

**Handbuch zur
Störfallanalyse von
nuklearen Ver- und
Entsorgungseinrichtungen**

**Teil B
Physikalisch-chemische
Grundlagen**

Handbuch zur Störfallanalyse von nuklearen Ver- und Entsorgungseinrichtungen

Teil B Physikalisch-chemische Grundlagen

Fabian Sommer (Ed.)

August 2022

Anmerkung:

Das diesem Bericht zugrunde liegende Forschungsvorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz, nukleare Sicherheit und Verbraucherschutz (BMUV) unter dem Förderkennzeichen 4719E03320 durchgeführt.

Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt bei der GRS.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung der GRS wieder und muss nicht mit der Meinung des BMUV übereinstimmen.

Deskriptoren

Nukleare Sicherheit, nukleare Ver- und Entsorgung, Regelwerke, Störfälle

Kurzfassung

Das vorliegende Handbuch wurde vornehmlich mit dem Ziel erstellt, den in Behörden oder Forschungseinrichtungen tätigen und mit Störfallanalysen befassten Personen Informationen in die Hand zu geben, die bei der Planung, der Erstellung, dem Betrieb und dem Rückbau von Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung eine zutreffende und rasche Beurteilung von Störfällen erlauben. Es liegt jedoch nicht in der Absicht der Verfasser des Handbuchs, fertige Lösungen für komplexe Probleme der Störfallanalyse anzubieten. Derartige Fragen werden stets einer eingehenden Analyse und Berechnung durch Fachleute auf dem Gebiet der Störfallanalyse vorbehalten bleiben müssen.

Der sinnvolle Gebrauch der im Handbuch vorliegenden Informationen erfordert ein grundsätzliches Verständnis der Störfallproblematik und der Terminologie der nuklearen Sicherheit. In Teil A „Grundlagen der Störfallanalyse“ werden daher zunächst die wichtigsten Begriffe und Grundlagen eingeführt und erläutert, und der gesetzliche Rahmen dargestellt. In Teil B „Physikalisch-chemische Grundlagen der Störfallanalyse“ werden die Prozesse erläutert, die bei einem Störfall auftreten können. In Teil C „Auswertung der Betriebserfahrung von Vorkommnissen“ werden die bisherig aufgetretenen nationalen wie auch internationalen Vorkommnisse statistisch ausgewertet. In Teil D „Exemplarische Anwendung der Störfallanalyse auf Einrichtungen der nuklearen Ver- und Entsorgung“ werden die verschiedenen Aspekte der Störfallanalyse exemplarisch auf einen generischen Störfall angewendet.

Abstract

This handbook was prepared primarily with the aim to provide information to experts of authorities or research facilities engaged in incident analysis. It will allow an adequate and rapid assessment of incidents in the planning, preparation, operation and dismantling of nuclear supply and waste disposal facilities. However, it is not the intention of the authors of the handbook to offer ready solutions to complex problems of incident analysis. Such questions must remain subject to an in-depth analysis and assessment to be carried out by dedicated experts of incident analysis.

The expedient use of the information given in this handbook requires a fundamental understanding of incident analysis and the terminology of nuclear safety. Therefore, in part A "fundamentals of incident analysis" the most important terms and fundamentals are introduced and explained, and the legal framework is set. Part B "Physical and chemical fundamentals of incident analysis" explains the physical and chemical processes possibly involved in an incident. In Part C "Evaluation of the operational experience of events", the national and international nuclear events happened so far, are statistically evaluated. In Part D "Exemplary application of incident analysis to nuclear supply and waste disposal facilities", the various aspects of incident analysis are applied exemplary to a generic application case.

Inhaltsverzeichnis

	Kurzfassung	I
	Abstract	II
1	Einleitung	1
2	Radionuklid-Inventar in Einrichtungen der nuklearen Versorgung	3
2.1	Nuklide, Zerfallsreihen und Aktivitäten	3
2.2	Erzförderung und -aufbereitung	6
2.2.1	Förderung von Uranerzen.....	6
2.2.2	Erzreinigung	7
2.2.3	Uranreinigung.....	9
2.3	Konversion von Uranverbindungen.....	10
2.3.1	Konversion des gereinigten Urans zu UF ₆	10
2.3.2	Konversion des angereicherten UF ₆ zu Urandioxid	11
2.4	Urananreicherung.....	12
2.4.1	Gasdiffusionsverfahren.....	13
2.4.2	Gaszentrifugenverfahren	13
2.5	Brennelementfertigung	14
2.5.1	Pulverbehandlung.....	15
2.5.2	Pellet-Herstellung	16
2.5.3	Füllen und Verschweißen der Hüllrohre	17
2.5.4	Assemblierung.....	18
2.5.5	Uran aus der Wiederaufbereitung von Brennelementen.....	19
3	Aerosole und Pulver	21
3.1	Grundlagen und Begriffsbestimmung.....	21
3.2.1	Eigenschaften von Partikeln in der Gasphase.....	22
3.2.2	Rechnerische Modifikation der Partikeleigenschaften: Äquivalenteigenschaften.....	25

3.3	Stoffeigenschaften der Uran- und Plutonium-Verbindungen im Brennstoffkreislauf	29
3.4	Aerosolverhalten.....	32
3.4.1	Sedimentation.....	32
3.4.2	Diffusion	33
3.4.3	Thermodiffusion (Thermophorese).....	34
3.4.4	Diffusiophorese.....	34
3.5	Abscheidemechanismen von Aerosolen im menschlichen Körper	34
3.6	Aerosole aus Brand	51
4	Quelltermerstellung bei der Freisetzung von Radionukliden	55
4.1	Definition von Ereignisgruppen	56
4.1.1	Festlegung der Randbedingungen.....	57
4.1.2	Ableitung des Schadensbildes	57
4.1.3	Ableitung von Lastannahmen.....	58
4.1.4	Spezifizierung des betroffenen radioaktiven Stoffs mit zu berücksichtigenden Barrieren	58
4.2	Bestimmung der Bildung ausbreitungsfähiger radioaktiver Stoffe	58
4.2.1	Bildung ausbreitungsfähiger radioaktiver Stoffe bei mechanischer Belastung	59
4.2.2	Bildung ausbreitungsfähiger radioaktiver Stoffe bei thermischer Belastung	63
4.2.3	Bildung ausbreitungsfähiger radioaktiver Stoffe bei kombinierter Belastung	70
4.3	Freisetzung aus radioaktiven Stoffen ohne Umschließung.....	70
4.3.1	Freisetzung ausbreitungsfähiger radioaktiver Stoffe bei mechanischer Belastung	70
4.3.2	Freisetzung ausbreitungsfähiger radioaktiver Stoffe bei thermischer Belastung	71
4.3.3	Freisetzung ausbreitungsfähiger radioaktiver Stoffe bei kombinierter Belastung	71
4.4	Freisetzung ausbreitungsfähiger radioaktiver Stoffe mit Berücksichtigung der Barrierewirkung von Umschließungen	72

4.4.1	Freisetzung aus radioaktiven Stoffen bei mechanischer Beaufschlagung mit Berücksichtigung der Barrierewirkung von Umschließungen.....	72
4.4.2	Freisetzung aus radioaktiven Stoffen bei thermischer Beaufschlagung mit Berücksichtigung der Barrierewirkung von Umschließungen.....	74
4.4.3	Freisetzung aus radioaktiven Stoffen bei kombinierter Beaufschlagung mit Berücksichtigung der Barrierewirkung von Umschließungen.....	76
5	Freisetzung von UF₆	77
5.1	Uranhexafluorid im Brennstoffkreislauf	77
5.2	Chemische und physikalische Eigenschaften von UF ₆	78
5.3	Radiologische Eigenschaften von UF ₆	83
5.4	Toxikologische Bewertung	84
5.5	Sicherheitsanforderungen und technische Regelwerke	87
5.6	Grundsätze der UF ₆ -Handhabung – Vorsorgemaßnahmen zur Vermeidung und Beherrschung von UF ₆ -Freisetzungen	90
5.7	Einrichtungen und Verfahrensschritte beim Umgang mit UF ₆	91
5.7.1	Konversion.....	92
5.7.2	Transport	96
5.7.3	Anreicherung	98
5.7.4	Brennelementfertigung	105
5.7.5	Lagerung	110
5.8	Mögliche Störfälle im Zusammenhang mit der Freisetzung von UF ₆	112
5.8.1	Freisetzung von gasförmigem UF ₆ innerhalb der Betriebsanlagen.....	113
5.8.2	Auslaufen wässriger uranhaltiger Lösungen, Kritikalitätsstörfall	114
5.8.3	Mechanische Beschädigung und Absturz eines UF ₆ -Behälters	115
5.8.4	UF ₆ -Austritt beim Transport	116
5.8.5	UF ₆ -Behälter unter Brandbedingungen	116
5.8.6	Einwirkungen von außen	118
5.9	Vorsorgemaßnahmen zur Begrenzung der Störfallfolgen bei UF ₆ -Freisetzungen.....	119
5.10	Besondere Vorkommnisse bei der Verarbeitung von UF ₆	122
5.10.1	Fazit aus den Vorkommnissen mit Freisetzung von UF ₆ in Deutschland	122

5.10.2	Fazit aus den Vorkommnissen mit Freisetzung von UF ₆ International....	125
5.10.3	Relevanz der eingetretenen Vorkommnisse und Konsequenzen für Sicherheitsvorkehrungen in deutschen Anlagen	126
6	Ablagerungs- und Rückhaltemechanismen.....	129
6.1	Eigenschaften lüftungstechnischer Einrichtungen unter verschiedenen Betriebsbedingungen.....	131
6.1.1	Bestimmungsgemäßer Betrieb.....	131
6.1.2	Störfallbetrieb	132
6.1.3	Verhalten von Aerosolen unter Störfallbedingungen	132
6.2	Rückhaltesysteme für Aerosole und flüchtige Fortluftbestandteile	134
6.2.1	Fasermattenfilter.....	134
6.2.2	Gas-Sorptionsfilter	144
6.2.3	Tiefbettfilter.....	144
6.2.4	Gaswäscher.....	144
6.2.5	Iodfiltersysteme	148
6.2.6	Anordnungen von Rückhaltevorrichtungen	150
6.2.7	Klappen und Türen	150
6.3	Rückhaltesysteme für radioaktiv kontaminierte Flüssigkeiten.....	151
6.3.1	Kontaminierte wässrige Lösungen	153
6.3.2	Abwassersystem.....	154
6.3.3	Abwasserbehandlung und Dekontamination	154
6.4	Rechenmodelle für Rückhalteeinrichtungen.....	158
7	Freisetzung und Verteilung in der Atmosphäre.....	161
7.1	Grundlagen.....	161
7.2	Strömungsmodelle.....	164
7.2.1	Diagnostische Strömungsmodelle.....	164
7.2.2	Prognostische Strömungsmodelle	165
7.3	Ausbreitungsmodelle	167
7.3.1	Gaußsche Puffmodelle	169
7.3.2	Gaußsche Fahnenmodelle.....	169

7.3.3	Eulermodelle.....	173
7.3.4	Lagrangemodelle.....	175
7.4	Beschreibung von Modellparametern.....	178
7.4.1	Quelltermspezifikation	178
7.4.2	Topographische Parameter	179
7.4.3	Meteorologische Parameter.....	181
8	Freisetzung von Radionukliden im Boden und Grundwasser	191
8.1	Radionuklidhaltige Flüssigkeiten.....	191
8.2	Grundlagen.....	194
8.2.1	Grundwasserströmung in der gesättigten Zone	195
8.2.2	Grundwasserströmung in der ungesättigten Zone.....	198
8.2.3	Stofftransport im Grundwasser	202
8.2.4	Transport im Boden	206
8.3	Mögliche Freisetzungs- und Verteilungspfade	208
8.3.1	Bodenkontamination	209
8.3.2	Atmosphärische Deposition	210
8.4	Rechenmodelle.....	215
8.4.1	Die finite Differenzen-Methode.....	215
8.4.2	Die finite Elemente-Methode.....	221
8.4.3	Die finite Volumen-Methode.....	223
8.5	Maßnahmen zur Eindämmung eines erfolgten Radionuklidaustritts in Boden und Grundwasser	224
	Literaturverzeichnis.....	227
	Abbildungsverzeichnis.....	251
	Tabellenverzeichnis.....	255

1 Einleitung

Dieser Teil des *Handbuchs zur Störfallanalyse* erläutert die physikalisch-chemischen Prozesse, die bei einem Störfall auftreten können. In Kap. 1 wird zunächst das Radionuklid-Inventar besprochen, das typischerweise in Einrichtungen der nuklearen Ver- und Entsorgung vorhanden ist. Kap. 3 behandelt die Eigenschaften und das Verhalten von typischen Aerosolen und Pulvern. Die folgenden Kapitel beschäftigen sich mit der Quelltermerstellung bei der Freisetzung von Radionukliden (Kap. 0), der Freisetzung von UF_6 (Kap. 4), Ablagerungs- und Rückhalte-mechanismen (Kap. 6), der Freisetzung und Verteilung von radioaktiven Partikeln in der Atmosphäre (Kap. 7) und der Freisetzung von Radionukliden im Boden und Grundwasser (Kap. 8).

2 Radionuklid-Inventar in Einrichtungen der nuklearen Versorgung

2.1 Nuklide, Zerfallsreihen und Aktivitäten

Der versorgungsseitige Umgang mit radioaktiven Stoffen im Kernbrennstoffkreislauf beschränkt sich maßgeblich auf die Kernbrennstoffe und deren Zerfallsprodukte. Im Falle der in Deutschland verwendeten LWR-Technologie werden hierbei verschiedene Verfahren zur Behandlung von angereichertem Uran, sowie im Falle der Verwendung von MOX-Brennelementen von Uran-Plutonium-Gemischen angewendet. Die bei der Verarbeitung des Roherzes, sowie die nach längerer Lagerung der Kernbrennstoffe auftretenden Zerfallsprodukte können hierbei in signifikantem Maß zur Dosisleistung sowie zum Kontaminations- und Inkorporationsrisiko beitragen. Tab. 2.1 zeigt die Zusammensetzung der Uranisotope von, auf angereichertem Natururan basierenden UO₂ Kernbrennstoffen mit der zugehörigen spezifischen Aktivität pro Gramm Schwermetall, sowie die radiologische Relevanz unter den Bedingungen des Normalbetriebs.

Tab. 2.1 Uranisotope in angereicherten, natururanbasierten UO₂-Kernbrennstoffen

/PFE 98/, /IAEA 12/

Iso-top	Rel. Anteil [%]	Halbwertszeit [a]	Spez. Aktivität [Bq/g]	Zerfallsart	Radiol. Relevanz
²³⁴ U	Spuren	$2,46 \cdot 10^5$	$2,29 \cdot 10^8$	α, spontane Spaltung	gering
²³⁵ U	< 5 %	$7,04 \cdot 10^8$	$7,96 \cdot 10^4$	α, spontane Spaltung, ²⁴ Ne-Emission, ²⁸ Mg-Emission	gering
²³⁸ U	> 94 %	$4,47 \cdot 10^9$	$1,24 \cdot 10^4$	α, β ⁻ , spontane Spaltung	gering

Die Verarbeitung Plutonium- und „Reprocessed Uranium“- (RepU)-haltiger Kernbrennstoffe wird maßgeblich durch die besonderen Eigenschaften des Plutoniums, des ²⁴¹Pu Zerfallsprodukts ²⁴¹Am und durch das im RepU enthaltene ²³⁶U bestimmt. Tab. 2.2 zeigt die Zusammensetzung der Schwermetallisotope von MOX-Kernbrennstoffen mit der zugehörigen spezifischen Aktivität pro Gramm Schwermetall, sowie die radiologische Relevanz unter den Bedingungen des Normalbetriebs /IAEA 07/.

Tab. 2.2 Schwermetallisotope in RepU und MOX-Kernbrennstoffen

/IAEA 12/, /IAEA 07/

Isotop	Rel. Anteil [%]	Halbwertszeit [a]	Spezifische Aktivität [Bq/g]	Zerfallsart	Radiol. Relevanz
²³⁶ U	Spuren	$2,34 \cdot 10^7$	$2,38 \cdot 10^6$	α , spontane Spaltung	Gering, bei RepU hoch
²³⁹ Pu	< 5 %	$2,41 \cdot 10^4$	$2,29 \cdot 10^9$	α , spontane Spaltung	Hoch, Kontaminationsgefahr
²⁴¹ Pu	Spuren	14,35	$3,81 \cdot 10^{12}$	α , β^- , spontane Spaltung	Hoch, Kontaminationsgefahr
²⁴¹ Am	Spuren	432,2	$1,26 \cdot 10^{11}$	α , spontane Spaltung	Hoch, Gammastrahlung

Zur Bewertung der Anlagenauslegung und zur Bestimmung eines Quellterms für Störfallanalysen ist neben dem Schwermetallinventar der Kernbrennstoffe insbesondere das Verhalten der resultierenden Zerfallsprodukte zu betrachten. Die Zerfallsprodukte der jeweiligen im Kernbrennstoff enthaltenen Nuklide sind ihrerseits wiederum radioaktiv und zerfallen weiter. Hierbei bestimmen die Zerfallsart (α oder β) sowie die kernisomere Stabilisation des Tochternuklids die radiologische Relevanz des jeweiligen Tochternuklids. Die Bildungsrate der Tochternuklide ist zur Aktivität des entsprechenden im Kernbrennstoff enthaltenen Mutternuklids konstant. Hierbei entsteht aufgrund der aufeinanderfolgenden Zerfälle eine sogenannte Zerfallsreihe /LIE 01/.

Zerfallsreihen werden aus historischen Gründen, sowie aufgrund des im Bereich der Actinoide bevorzugten Alphazerfalls als $4n$ bis $4n+3$ Zerfallsreihe bezeichnet. Die zur Abschätzung des radiologischen Schädigungspotentials relevanten Zerfallsreihen sind hierbei die $4n+2$ (²³⁸U) und $4n+3$ (²³⁹Pu + ²³⁵U) Reihe. Zur Vollständigkeit sei hier noch die $4n+1$ (²⁴¹Pu) Reihe genannt, deren radiologisches Potential jedoch bereits durch das ²⁴¹Am in Tab. 2.2 ausreichend behandelt wurde. Abb. 2.1 und Abb. 2.2 zeigen die $4n+2$ und $4n+3$ Zerfallsreihe mit den in UO₂- und MOX-Brennstoffen enthaltenen Isotopen ²³⁸U und ²³⁴U für die $4n+2$ Reihe, sowie ²³⁹Pu und ²³⁵U für die $4n+3$ Reihe /LIE 01/.

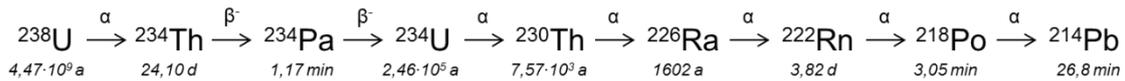


Abb. 2.1 Ausschnitt aus der 4n+2 Zerfallsreihe ausgehend vom Uranisotop ^{238}U

/PFE 98/, /LIE 01/

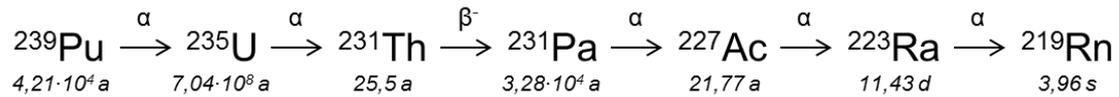


Abb. 2.2 Ausschnitt aus der 4n+3 Zerfallsreihe mit den Schwermetallisotopen ^{239}Pu und ^{235}U

/PFE 98/, /LIE 01/

Für Kombinationen, in denen das Mutternuklid eine deutlich höhere Halbwertszeit besitzt als das durch den radioaktiven Zerfall entstehende Tochternuklid, lässt sich ein säkulares Gleichgewicht formulieren. Hierbei entspricht die Aktivität des Tochternuklides exakt der Aktivität des Mutternuklides, da der radioaktive Zerfall des Mutternuklides den Gesamtprozess als geschwindigkeitsbestimmenden Schritt dominiert. In den Zerfallsreihen der leichteren Actinoide mit langen Halbwertszeiten existieren solche Gleichgewichte oft über mehrere Generationen, bevor sie durch ein Tochternuklid mit längerer Halbwertszeit unterbrochen werden. Die Aktivität im Gleichgewicht ist hierbei proportional zur Aktivität des Mutternuklids und zur Anzahl der Generationen im Gleichgewicht.

Für die Gewinnung und Verarbeitung von Natururan spielen die gesamten, auf Uran folgenden Isotope der 4n+2 sowie 4n+3 Zerfallsreihe eine radiologisch signifikante Rolle. Aufgrund ihres radiotoxischen Potentials besonders hervorzuheben sind hier die gasförmigen und somit flüchtigen Radonisotope, sowie die kurzlebigen Alphastrahler, die sich im Verarbeitungsprozess anreichern können und schon bei Inkorporation geringster Mengen eine extreme radiotoxische Wirkung entfalten. Bei der Verarbeitung bereits gereinigter Uranverbindungen reduzieren sich die vorhandenen Zerfallsprodukte aufgrund der benötigten Zeit zur Bildung signifikanter Mengen auf die Isotope ^{234}Th und ^{234}Pa für 4n+2, sowie teilweise ^{231}Th für 4n+3, da diese durch das säkulare Gleichgewicht innerhalb der zu erwartenden Lagerzeiten schnell nachgebildet werden können. Für die Verarbeitung von Plutonium und Wiederaufarbeitungs-Uran (RepU) spielen zudem die Isotope ^{241}Am und ^{236}U eine Rolle /LIE 01/, /IAEA 12/.

Bei der Betrachtung der Sicherheitsauslegung ist zu beachten, dass die verschiedenen Tochternuklide zu ihren Mutternukliden unterschiedliche physikalische, chemische und radiologische Eigenschaften besitzen und daher deutlich höhere Gefährdungspotentiale aufweisen können als dies für ihre Mutternuklide der Fall ist.

2.2 Erzförderung und -aufbereitung

Uran ist das schwerste in der Erde natürlich vorkommende Element, das aus entsprechenden Erzlagerstätten abgebaut wird. Die größten Produzenten für Uranerz im Jahr 2017 waren Kasachstan, Kanada und Australien. Die weltweit geförderte Menge lag im Jahr 2017 bei 59.500 t Uran. Als weitere Produzenten sind Russland, Niger und Namibia zu nennen. Insgesamt entfallen 89 % der Uranförderung auf die genannten sechs Staaten, wobei auf Kasachstan, Kanada und Australien bereits 71 % der weltweit geförderten Menge entfallen. Uranerze können in Schwarzschiefern, Sandsteinen, granitischem und vulkanischem Gestein sowie in Phosphatlagerstätten angetroffen werden. Häufige Verbindungen sind hierbei Uraninit (UO_2), Pechblende ($(\text{U}^{+4}_{1-x}, \text{U}^{+6}_x)\text{O}_{2+x}$), Branerit (UTi_2O_6), Coffinit ($\text{U}(\text{SiO}_4)_{n-x}(\text{OH})_{4x}$), Torbernit ($\text{Cu}(\text{UO}_2)_2(\text{PO}_4)_2 \times 10 \text{H}_2\text{O}$) und Heinrichit ($\text{Ba}(\text{UO}_2)_2(\text{AsO}_4)_2 \times 10 \text{H}_2\text{O}$).

2.2.1 Förderung von Uranerzen

Uran kann als Uranerz aus der Erdkruste gefördert werden. Hierbei sind die bevorzugt eingesetzten Verfahren das „in-situ-leaching“ sowie der Abbau im Tagebau. Der Uran-Gehalt im Erz schwankt je nach Lagerstätte stark. Die Roherze enthalten nur selten mehr als 1 % Uran, im Allgemeinen jedoch weniger als 0,04 %. Das Uran steht im Erz aufgrund der langen Lagerzeit von normalerweise mehreren Millionen Jahren mit allen Tochternukliden den Zerfallsreihen im Gleichgewicht. Die Aktivitäten der relevanten Nuklide können aus den Zerfallsreihen von ^{238}U und von ^{235}U berechnet werden /ULL 77/.

Neben dem Roherz fallen im Urantagebau große Mengen Abraum an, der ebenfalls Aktivität enthält. Die Menge des Abraums sowie seine Aktivität sind dabei stark von der durchgeführten Art des Abbaus abhängig.

Auch eine Gewinnung aus Meerwasser ist möglich, derzeit aber nicht ökonomisch sinnvoll, und wird aktuell nicht praktiziert.

2.2.2 Erzreinigung

Im Erz ist das Uran in chemisch gebundener Form enthalten. Zur ersten Reinigung und Aufkonzentration des Uranerzes wird dieses gemahlen und durch Flotationsprozesse vom Beiwerk getrennt und anschließend, meist unter Einsatz von Schwefelsäure, aufgelöst. Auch alkalische Aufschlussverfahren finden Anwendung. Die Erzverarbeitung sowie der Aufschluss der konzentrierten Erze stellen aus radiologischer Sicht kritische Arbeitsschritte dar, da hierbei die Tochternuklide aus den Zerfallsreihen freigesetzt werden, vgl. auch Kap. 2.1. Eine besondere Rolle kommt hierbei den gasförmigen Zerfallsprodukten wie Radon (^{226}Ra) zu, da diese durch ihre physikalische Form und radiologischen Eigenschaften ein besonderes Gefährdungspotential darstellen (Radon-Emmanation).

Durch Zugabe von Ammoniumhydroxid wird das Uran als Urankonzentrat Yellowcake aus den Lösungen ausgefällt und getrocknet. Bei Urankonzentrat handelt es sich um ein gelbes, pulverförmiges Feststoffgemisch verschiedener Uranverbindungen, das typischerweise in 200-Liter-Fässern von den Uranbergwerken geliefert wird. Yellowcake besteht zu 70 bis 80 % aus der Uran-Verbindung U_3O_8 (Triuranoxoxid); der Rest liegt als $(\text{NH}_4)_2\text{U}_2\text{O}_7$ (Ammoniumdiuranat), $\text{Na}_2\text{U}_2\text{O}_7$ (Natriumdiuranat) oder Magnesiumuranat (MgU_2O_7) vor /WKK 12/. Aus 2 Mg Uranerz werden ca. 1 kg Yellowcake gewonnen. Durch die mit der Fällungsreaktion einhergehende chemische Separation ist die Aktivität von frischem Yellowcake anfangs nur auf die natürlich vorkommenden Uran-Isotope zurückzuführen. Mit fortschreitender Lagerzeit wachsen jedoch die kurzlebigen Tochterisotope in das säkulare Gleichgewicht hinein. Zur Einstellung eines säkularen Gleichgewichts der Aktivitäten A mit $A_{(\text{Mutter})} = A_{(\text{Tochter})}$ sind hierbei etwa zehn Halbwertszeiten des Tochternuklids notwendig (entspricht für $^{238}\text{U} - ^{234}\text{Th}$ ca. 240 d, für $^{234}\text{Th} - ^{234}\text{Pa}$ ca. 12 min) /PFE 98/. Abb. 2.3 zeigt den Aktivitätsverlauf der Urantöchter ^{234}Th und ^{234}Pa pro Tonne reinen ^{238}U als Funktion der Zeit nach der Reinigung des Urans. Thorium und Protactinium bilden aufgrund der geringen Halbwertszeit des ^{234}Pa (1,17 min) sehr ähnliche Aktivitäten aus und überdecken sich im Diagramm /LIE 01/, /IAEA 99/.

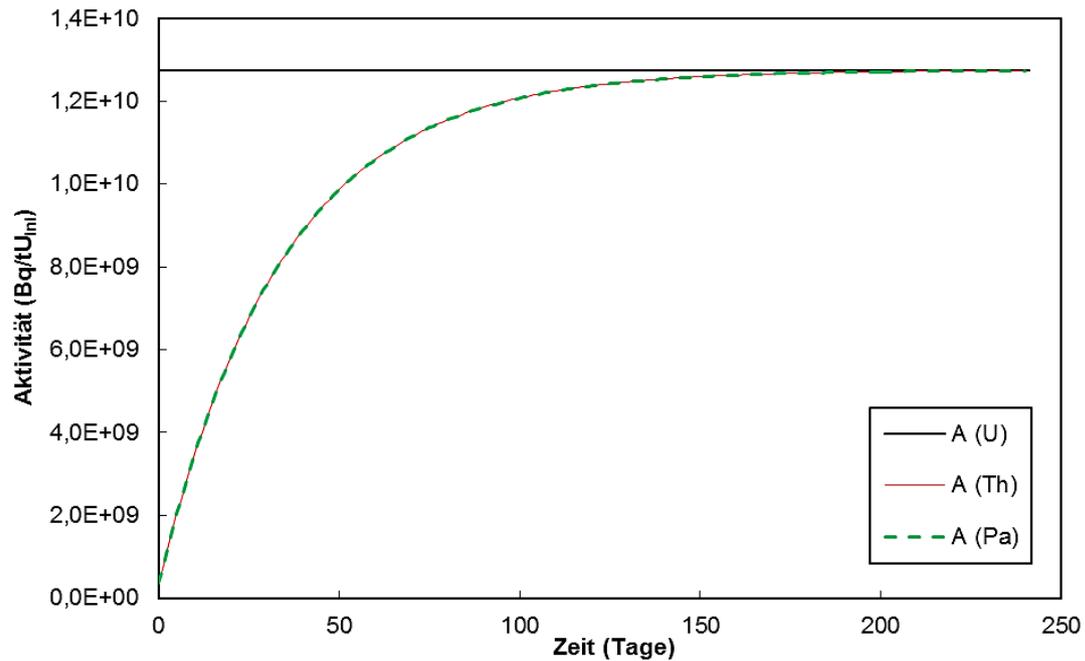


Abb. 2.3 Aktivitätsverlauf von ^{238}U (schwarz) und seiner Töchter der ersten Generation ^{234}Th und zweiten Generation ^{234}Pa als Funktion der Zeit nach einer vollständigen chemischen Uranreinigung nach

/PFE 98/

Die als *Tails* bezeichneten Rückstände aus der Gewinnung von Uran enthalten nach der Abtrennung die langlebigen Zerfallsprodukte und weisen oft aus radiologischer Sicht signifikante Gefahrenpotentiale auf, was ihrem Verbleib sowie ihrer Behandlung eine Sonderstellung zukommen lässt. Aufgrund der oft geringen Urananteile im Erz werden zudem große Mengen an *Tails* produziert /IAEA 99/.

Tab. 2.3 Aktivitäten der einzelnen Stoffströme bei Förderung und Erzaufbereitung

Stoffstrom	enthaltene Nuklide	Aktivität
Roherze	Nuklide der 4n+2 und 4n+3 Zerfallsreihe im Gleichgewicht	Gleichgewichtsaktivität der Zerfallsreihen
Abraum	Langlebige Nuklide der Zerfallsreihen sowie deren Töchter im Gleichgewicht; oftmals Thorium und Töchter	Gleichgewichtsaktivität unterhalb der langlebigen Urantöchter sowie Thoriumaktivität
Yellowcake	^{234}U , ^{235}U , ^{238}U sowie die einwachsenden säkularen Isotope (^{231}Th , ^{234}Th und ^{234}Pa)	Aktivität von Natururan: ^{234}U (49 %), ^{235}U (2 %), ^{238}U (49 %)
Tails	Langlebige Nuklide der Zerfallsreihen sowie deren Töchter	Aktivitäten der Zerfallsreihen

Das Urankonzentrat Yellowcake stellt als Produkt der Uranminen und -mühlen oftmals die Transportform des Rohstoffes dar. Zum Transport von Urankonzentraten werden spezielle im jeweiligen Land zugelassene Behälter verwendet, die die notwendigen Schutzziele im Rahmen des Sicherheitsnachweises erfüllen. Durch die Abtrennung der späten Urantöchter der Zerfallskette beschränkt sich das Gefährdungspotential maßgeblich auf die Freisetzung und Inkorporation des pulverförmigen Urankonzentrates als Staub. Eine unbeabsichtigte Kritikalität des Urankonzentrates ist durch die Isotopenzusammensetzung des Natururans sowie durch die noch enthaltenen Verunreinigungen ausgeschlossen, sollte jedoch im Sicherheitsnachweis dennoch betrachtet werden. Durch die Aufreinigung des Urans und der Abtrennung der Urantöchter ist ab diesem Arbeitsschritt für die zeitnahe nachfolgende Verarbeitung primär die Aktivität der Uranisotope von Bedeutung.

2.2.3 Uranreinigung

Das technisch dargestellte Urankonzentrat entspricht durch die enthaltenen Verunreinigungen nicht den Anforderungen zum Einsatz in kerntechnischen Anlagen. Zur effizienten Reinigung des Urans wird das Urankonzentrat in Salpetersäure gelöst und bildet Uranylнитrat ($\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$), welches durch eine Reihe von flüssig-flüssig-Extraktionsschritten unter Verwendung von n-Tributylphosphat (TBP) bis zur gewünschten Reinheit verarbeitet wird. Das gereinigte Uranylнитrat wird im Anschluss unter Verwendung von Ammoniumhydroxid (NH_4OH) als Ammoniumdiuranat gefällt und zu einem Oxidgemisch aus $\text{UO}_3/\text{U}_3\text{O}_8$ kalziniert, oder über eine direkte Verdampfung und Denitrierung zum UO_3

verarbeitet. Generell lässt sich zur Isolation des gereinigten Urans auch das Ammoniumuranylcarbonat (AUC)-Verfahren anwenden. Auch hier erfolgt eine Abtrennung der durch etwaige lange Lagerzeiten des Konzentrats eingewachsenen Urantöchter /IAEA 12/, /IAEA 99/.

2.3 Konversion von Uranverbindungen

Die Konversion von Uran beschreibt die chemisch-großtechnische Umwandlung des Urans zur Vor- und Nachbereitung bei der Anreicherung. Chemische Konversionsverfahren finden somit vor der Anreicherung zur Konversion des Uranoxids in das leichtflüchtige Uranhexafluorid (UF_6), sowie nach der Anreicherung zur Konversion des angereicherten UF_6 zu Urandioxid (UO_2) Anwendung /IAEA 12/.

2.3.1 Konversion des gereinigten Urans zu UF_6

Die modernen Techniken der für den Einsatz in Leichtwasserreaktoren notwendigen Isotopenanreicherung basieren auf der Verwendung gasförmiger Prozessmedien. Zur effektiven Anreicherung muss das anzureichernde Uran in das leichtflüchtige Uranhexafluorid (UF_6) überführt werden. Das feste Uranoxid-Gemisch wird hierzu in einem ersten Schritt in einer Wasserstoffatmosphäre zu Urandioxid (Oxidationsstufe U(IV)) reduziert /IAEA 09a/. Das Urandioxid wird nun unter Verwendung gasförmiger Flußsäure (HF) im Wirbelschichtofen zu Urantetrafluorid (UF_4) umgesetzt. Durch eine weitere Reaktion mit elementarem Fluor (F_2) entsteht daraus das zur Anreicherung verwendete Uranhexafluorid (UF_6) /IAEA 12/, /ULL 77/. Die Auslegung und der damit verbundene Sicherheitsnachweis sollte dem durch den Prozess gesteigerten Gefährdungspotential Rechnung tragen. Hierbei sind insbesondere die chemotoxische Wirkung der Flußsäure, des Fluors und des Uranhexafluorid, sowie die inkorporativ-radiotoxische Wirkung des Uranhexafluorids, welches in einer leichtflüchtigen Form vorliegt, zu berücksichtigen. Zusätzlich ist zu beachten, dass Uranhexafluorid bei erhöhten Temperaturen sublimiert und temperaturabhängig in gasförmiger Form durch druckführende Leitungen transportiert wird /IAEA 12/. Zur effektiven Vermeidung einer Freisetzung sind daher Maßnahmen zur Vermeidung von Temperaturüberhöhung sowie effektive Mechanismen zur Füllmengenbegrenzungen unbedingt notwendig. Auch eine Sublimation des UF_6 an kalten Flächen und ein erneuter Übergang in den gasförmigen Zustand bei Wiedererwärmen kann zu Druckstößen oder Uranmengenvariationen führen, die berücksichtigt werden müssen.

In der Konversion zur Vorbereitung auf die Anreicherung liegt das Uran in der natürlichen Isotopenzusammensetzung vor, was das Potential zu Kritikalität gegenüber angereicherten Uranverbindungen praktisch eliminiert. Für Transport und Lagerung von Uranhexafluorid mit natürlicher Isotopenzusammensetzung werden dickwandige Stahlbehälter eingesetzt. Häufig verwendete Behältertypen für Uranhexafluorid natürlicher Isotopenzusammensetzung sind der 48Y Behälter für Transport und Lagerung, sowie der 48G Behälter für die Lagerung (vgl. auch Kap. 5.7.2).

2.3.2 Konversion des angereicherten UF₆ zu Urandioxid

Angereichertes UF₆ besitzt aufgrund des höheren Anteils an ²³⁵U ein höheres Potential für Kritikalitätsstörfälle. Besonders bei der Anwendung nasschemischer Verfahrensschritte mit angereichertem Uran zur Verwendung in Leichtwasserreaktoren ist die kritikalitätssichere Anlagenauslegung notwendig und in Sicherheitsnachweisen zur Genehmigung zu belegen. Die Konversion von Uranhexafluorid kann anhand verschiedener Verfahren durchgeführt werden.

Beim nasschemischen AUC-Verfahren wird das Uranhexafluorid zu Prozessbeginn hydrolysiert und die entstandene Uranlösung mit Ammoniumhydroxid und Kohlenstoffdioxid versetzt, um Ammoniumuranylcarbonat (NH₄)₄UO₂(CO₃)₃ auszufällen. Dieses wird filtriert und in einem Wirbelschichtofen zu UO₂ reduziert.

Das Trockenkonversionsverfahren dagegen ist aufgrund der kritikalitätssicheren Prozessführung ohne flüssiges Wasser für angereichertes Uran sowie der geringeren Menge an flüssigen radioaktiven Abfällen von Vorteil. Bei der Trockenkonversion wird das gasförmige UF₆ mit Hilfe von trockenem Wasserdampf zu festem Uranylfluorid (UO₂F₂) hydrolysiert. Im Anschluss wird das Uranylfluorid in einem Wirbelschichtreaktor unter reduzierender Atmosphäre (Ar/H₂) zu UO₂ umgesetzt und verbleibende Fluorverbindungen im Anschluss in einem Drehrohrofen unter reduzierender Atmosphäre ausgetrieben.

Bei der Sicherheitsbetrachtung von Konversionsanlagen nach der Anreicherung ist neben der kritikalitätssicheren Auslegung die teilweise gasförmige Handhabungsform des Urans sowie die chemotoxische Wirkung des Edukts (Ausgangsstoff) UF₆ sowie des gasförmigen Nebenprodukts Fluorwasserstoff HF zu beachten. Zur effektiven Reduktion der Abfallmengen lässt sich das entstandene HF reinigen und in den Rohstoffkreislauf zurückführen /IAEA 12/. In den Anlagen zur Urankonversion fallen feste und flüssige

radioaktive Abfälle an, die adäquat behandelt und recycelt oder als radioaktive Abfälle entsorgt werden müssen.

2.4 Urananreicherung

Für die Aufrechterhaltung einer Kettenreaktion in Leichtwasserreaktoren über einen zur Energieerzeugung sinnvollen Zeitraum von mehreren Jahren muss der Anteil des spaltbaren Uranisotops ^{235}U ausgehend von seiner natürlichen Konzentration von ca. 0,7 Gewichts-% (Gew. %) auf Werte zwischen drei und fünf Gew. % angehoben werden. Dieser Prozess wird Urananreicherung genannt. Die Urananreicherung basiert grundlegend auf der Massendifferenz zwischen den beiden Uranisotopen. Dabei beträgt der Massenunterschied für die verwendete chemische Verbindung UF_6 aufgrund der Monoisotopie natürlichen Fluors (100 % ^{19}F) 3 AMU (unified atomic mass unit: atomare Masseinheit). Dieser Unterschied zwischen den Uranisotopen ^{238}U und ^{235}U entspricht einer Massendifferenz von 0,85 %. Um eine vergleichbare Kenngröße für die Kapazität einer Anreicherungsanlage zu erhalten wurde die Einheit „Urantrennarbeit“, UTA (engl.: *Separative Work Unit*, SWU) eingeführt. In die Berechnung der UTA fließen alle prozessrelevanten Faktoren mit ein:

- Die Anreicherung des Edukts
- Die Anreicherung des *Products* (Uranfraktion mit erhöhter Anreicherung im Vergleich zum Natururan)
- Die verbleibende Restanreicherung des abgereicherten Stroms
- Die Masse durchgesetzten Urans

Zur Berechnung der UTA wird eine Reihe komplexer Gleichungen verwendet, die Einheit im SI-System ist entsprechend „Mg UTA“.

Großtechnisch werden heute das Gasdiffusionsverfahren und das Gaszentrifugenverfahren eingesetzt /ULL 77/, /WKK 09/.

2.4.1 Gasdiffusionsverfahren

Die Anreicherung mittels Gasdiffusion beruht auf der geringfügig höheren Mobilität der $^{235}\text{UF}_6$ Moleküle gegenüber den $^{238}\text{UF}_6$ Molekülen. Bei der Druckdifferenz-getriebenen anteiligen Diffusion des UF_6 -Isotopengemisches durch eine dünne Membran enthält das diffundierte Gasvolumen einen geringfügig höheren Anteil an $^{235}\text{UF}_6$. Die Effektivität der Anreicherung ist hierbei von der Druckdifferenz, der Temperatur und dem diffundierten Anteil des Gesamtvolumens abhängig. Da das Anreicherungssystem dem Prinzip des Ausgleichs eines künstlich aufgezwungenen Drucks zugrunde liegt, muss dieser mittels Verdichter erzeugt werden, was einen enormen Energieverbrauch zur Folge hat und europaweit mittlerweile zu einer nahezu vollständigen Aufgabe der Anreicherung mittels Gasdiffusion geführt hat.

2.4.2 Gaszentrifugenverfahren

Beim Gaszentrifugenverfahren wird das Isotopengemisch in Form von gasförmigem Uranhexafluorid einem schnell rotierenden Zylinder, einer Ultrazentrifuge zugeführt. Die dabei auftretenden Zentrifugalkräfte bewirken eine teilweise Entmischung (Trennung) der Uranisotope, wobei das schwerere ^{238}U aufgrund seiner höheren Masse vornehmlich an die Zylinderwand migriert und das leichtere ^{235}U bevorzugt im Inneren des Zylinders auf der ^{238}U Außenschicht „aufschwimmt“. Zur effektiven Anreicherung der Uranisotope über das Zentrifugalverfahren müssen aufgrund der sehr geringen Massendifferenz und der diffusiven Selbstdurchmischung des Isotopengemisches sehr hohe Rotationsgeschwindigkeiten verwirklicht werden. Die Urantrennung kann hierbei mittels Thermodiffusion durch einen im Zentrifugationsprozess extern angelegten Temperaturgradienten verbessert werden (Zippe-Ultrazentrifuge). Die dadurch erzeugte geringfügige Trennung der Uranisotope voneinander wird durch mehrere hintereinander geschalteten Zentrifugen in einer Zentrifugenkaskade bis zur gewünschten Zielanreicherung durchgeführt.

Zur Vollständigkeit sei hier noch das Trenndüsenverfahren genannt, bei dem das UF_6 durch eine Anzahl von Gasdüsen geführt wird, wobei die Trennung aufgrund von Fliehkräften innerhalb der Düse stattfindet. Das Verfahren beruht, wie das Gasdiffusionsverfahren ebenfalls, auf einer künstlich aufgeprägten Druckdifferenz, wobei die Trennung jedoch wesentlich ineffektiver ist, was das Verfahren nochmals deutlich ineffektiver macht als das bereits ineffiziente Gasdiffusionsverfahren.

Aufgrund der unterschiedlichen Zerfallskonstanten der beiden Uranisotope ändert sich mit einer Änderung der Isotopenzusammensetzung auch die Aktivität des Uran-Product. Hierbei ist zusätzlich die im Natururan sehr geringe Menge ^{234}U zu berücksichtigen. Wegen der niedrigeren Masse wird dieses Isotop jedoch stärker angereichert. Aufgrund der im Vergleich zu den anderen natürlich vorkommenden Uranisotopen kurzen Halbwertszeit beträgt der Anteil der Aktivität des ^{234}U bei einer Anreicherung von 3,5 % ^{235}U mehr als 80 % der Gesamtaktivität. Abgereichertes Uran enthält entsprechend geringere Anteile der kurzlebigeren Nuklide ^{235}U und ^{234}U und besitzt daher eine deutlich geringere Aktivität, die hauptsächlich vom Zerfall des ^{238}U bestimmt wird /MAG 00/, /IAEA 07/.

Tab. 2.4 Relative Aktivitäten der einzelnen Stoffströme bei der Urananreicherung

Stoffstrom	enthaltene Nuklide	Aktivitäten
Natururan	^{234}U , ^{235}U , ^{238}U	^{234}U (49 %), ^{235}U (2 %), ^{238}U (49 %)
angereichertes Uran (3,5 % ^{235}U)	^{234}U , ^{235}U , ^{238}U	^{234}U (82 %), ^{235}U (3 %), ^{238}U (15 %)
abgereichertes Uran (0,2 % ^{235}U)	^{234}U , ^{235}U , ^{238}U	^{234}U (14 %), ^{235}U (1 %), ^{238}U (85 %)

2.5 Brennelementfertigung

Die Fertigung von Brennelementen für Leichtwasserreaktoren schließt an die zuvor genannten Urangewinnungs-, Anreicherungs- und Konversionsprozesse an und beginnt mit dem Ausgangsstoff UO_2 . In typischen LWR werden UO_2 oder $(\text{Pu,U})\text{O}_2$ basierte Mischoxid-Keramiken in Pelletform verwendet, die sich in druckbeaufschlagten Brennstabhüllrohren aus zirkoniumbasierten Legierungen befinden. Die Brennstäbe wiederum befinden sich in quadratischen (DWR, SWR) oder hexagonalen (WWER) Anordnungen, die durch Gitter und Struktur- oder Führungsrohre gehalten werden. Die Brennstäbe werden in definiertem Abstand zueinander in diese Gitter eingebracht und werden allein durch die vom Aufbau des Gitters aufgebrachte Klemmwirkung in Position gehalten. Je nach Reaktortyp und Design sind hier verschiedene Brennelement-Designs mit unterschiedlichen Stabanzahlen, Stablängen, Wasserkästen und Wasserkanälen möglich. Dabei folgen die UO_2 -Brennelemente für Druckwasserreaktoren einem eher simplen symmetrischen Aufbau mit gleichlangen Stäben in hexagonaler oder quadratischer Grundfläche, in denen maximal einige wenige Stäbe an den Ecken eine vom Hauptteil

abweichende Anreicherung aufweisen. Brennelemente für Siedewasserreaktoren verfügen aufgrund der sich im Betrieb horizontal ändernden Moderator- und Kühlmitteldichte einen deutlich komplexeren Aufbau mit Wasserkanälen, teillangen Stäben sowie stark unterschiedlichen Anreicherungen über die Länge einzelner Stäbe.

Zur Herstellung von Brennelementen gehören grundlegend die Schritte Pulverbehandlung, Pellet-Herstellung, Sintern, Schleifen, Füllen der Stäbe und Assemblierung /IAEA 12/.

2.5.1 Pulverbehandlung

Die Eigenschaften der herzustellenden Brennstoffpellets bezüglich Wärmeleitfähigkeit und Dichte sowie die maschinelle Verarbeitung hängen stark von den Eigenschaften der verwendeten Pulver ab. Das Ausgangsmaterial Urandioxid besitzt abhängig vom angewendeten Konversionsverfahren unterschiedliche Eigenschaften bezüglich seiner Fließfähigkeit. Zur maschinellen Verarbeitung von Urandioxid kann es daher notwendig sein, Urandioxidpulver durch eine Vorkompaktierung in eine fließfähige Form zu überführen.

Zur Herstellung von Uran-Plutonium-Mischoxid Pellets wird ein sogenanntes „Master-Blend“ mit einem Plutoniumanteil von etwas weniger als 40 % (Mischungsgrenze von U und Pu als Mischoxid) mit abgereichertem Uran oder Natururan vermengt, und im Anschluss gemeinschaftlich gemahlen, um ein Pulver mit einer möglichst homogenen Plutoniumverteilung zu erhalten. Aufgrund des erhöhten Gefährdungspotentials durch Uran- und Plutoniumdioxid-Stäube sollten diese Arbeiten in mit Unterdruck beaufschlagten hermetisch abriegelten Umschließungen (Handschuhbox) stattfinden und adäquate Vorkehrungen zur Filterung der Abluft sowie zur Beherrschung von Störfällen durch eine Druckstaffelung gewährleistet sein. Hierbei ist zusätzlich darauf zu achten, dass besonders beim Umgang mit Mischoxiden hoher Plutoniumkonzentrationen die Entwicklung kritischer Volumina unter Berücksichtigung moderierender Materialien vermieden wird.

Die heute zur Erhöhung des Abbrandes eingesetzten Brennelemente mit dem abbrennbaren Neutronengift Gadoliniumoxid (Gd_2O_3) werden, ähnlich den MOX-Brennstoffen, durch gemeinsames Vermahlen von UO_2 und Gd_2O_3 zu einem Master-Blend und anschließendem Verdünnen auf die gewünschte Konzentration hergestellt /IAEA 12/.

2.5.2 Pellet-Herstellung

Die vorbehandelten Pulver werden je nach Pelletdesign automatisiert zu Brennstofftabletten von 9-11 mm Höhe und 8-10 mm Durchmesser gepresst. Der Pressdruck bestimmt hierbei die Rohdichte (keramisch: Gründichte) der zylindrischen Rohlinge. Die Pressform zur Pellet-Herstellung besitzt einen deutlich größeren Durchmesser als die fertigen Pelletabmessungen, da sich Maße und Dichte der Pellets im darauffolgenden Sinterschritt noch signifikant verändern. Die gepressten UO_2 Pellets werden im Anschluss in einem Sinterofen in reduktiver Atmosphäre zu einem festen spröden keramischen Werkstoff verarbeitet. Beim Sintern nimmt die Dichte der Pellets durch makroskopische Umformungsprozesse der UO_2 Körner zu, und es entsteht eine feste Matrix.

Grundlegend geschieht das Sintern bei erhöhter Temperatur, jedoch mit einigem Abstand zur Schmelztemperatur der zu sinternden Materialien (2.865 °C für UO_2 , 2.400 °C für PuO_2). Für UO_2 und $(\text{U,Pu})\text{O}_2$ basierte Pellets liegt die reduktive Sinter Temperatur bei ca. 1.700 °C. Hierbei wirkt sich der zeitliche Temperaturverlauf signifikant auf die Eigenschaften des Materials aus. Die Verwendung reduktiver Atmosphäre im Sinterschritt, meist ein Gemisch aus Argon und Wasserstoff (Ar/H_2), unterbindet die Oxidation des UO_2 zu Uranoxiden höherer Oxidationszahl. Alternative Sinterprogramme wie das „Low-temperature-oxidative-sintering“ befinden sich in der Entwicklungsphase, wobei ein Einzug dieser Methoden als Standardfertigungstechnik erst mit dem Neubau von Anlagen zu erwarten ist.

Die gesinterten keramischen Pelletrohlinge werden im Anschluss auf die spezifizierten Abmessungen geschliffen. Bei der Pellet-Herstellung aus Pulvern sowie beim Schleifen der gesinterten Rohlinge stellen uran- und plutoniumhaltige Stäube ein besonderes Gefährdungspotential dar. Die Arbeiten sollten zur Minimierung der Kontaminations- und Inkorporationsgefahr in einem hermetisch abriegelten Raum stattfinden. Besonders bei den aufgrund der statischen Aufladung deutlich mobileren Plutoniumstäuben sind geeignete Vorkehrungen zum Schutz des Personals und der Umgebung bei Versagen der ersten Barriere (Handschuhbox-Dichtungsschaden, Handschuhbeschädigung) zu treffen. Die Verwendung von hochentzündlichem Wasserstoffgas zur Einstellung einer reduktiven Atmosphäre bei hohen Temperaturen innerhalb der primären Umschließung spielt eine wichtige Rolle bei der Sicherheitsbetrachtung. Hierbei sind die Wasserstoffkonzentration und die entsprechenden Explosionsgrenzen für Gasgemische aus Luft, Argon und Wasserstoff zu berücksichtigen /IAEA 12/.

2.5.3 Füllen und Verschweißen der Hüllrohre

Die fertig gesinterten, geschliffenen und gereinigten Brennstoffpellets werden im Anschluss in die Hüllrohre gefüllt. Hierbei werden die Pellets als säulenförmiger Stapel in das Hüllrohr eingefüllt. Die Anzahl der Pellets pro Hüllrohr variiert hierbei mit der Höhe der Pellets sowie mit der aktiven Länge des Brennstabs, und liegt z.B. bei DWR-Brennelementen bei ca. 100 Pellets pro Meter aktiver Zone. Oberhalb der Pellets befindet sich ein Hohlraum, der zur Aufnahme freiwerdender Spaltgase vorgesehen ist. Um die Pellet-Säule unter Betriebsbedingungen stabil im unteren Teil des Hüllrohrs zu halten und ein Aufsteigen einzelner Pellets zu verhindern, wird die Pellet-Säule im Hohlraum mittels einer Stahlfeder gegen den Endstopfen verspannt.

Als Hüllrohrmaterial werden heute verschiedene Zirkonium-basierte Legierungen verwendet. Die Hüllrohre für Leichtwasserreaktoren besitzen typischerweise einen Außendurchmesser von ca. 1 cm, der jedoch je nach Reaktor- und Brennelementtyp um wenige mm schwanken kann. Um der unterschiedlichen thermische Ausdehnung sowie der Spaltgaserzeugung Rechnung zu tragen, besitzen die Hüllrohre einen geringfügig größeren Innendurchmesser als den Außendurchmesser der Pellets. Der dadurch entstehende Spalt stellt wiederum hohe Anforderungen an den betrieblichen Wärmetransport aus dem Brennstoff in das Kühlmittel. Zur Verbesserung des Wärmetransports durch den Spalt wird der Brennstab nach dem Befüllen mit Brennstoffpellets mit einem Vor- druck von ca. 30 bar Helium beaufschlagt. Das Verschweißen des Endstopfens geschieht üblicherweise mittels Widerstandsschweißverfahren. Alternativ können auch Lichtbogen- oder Laserschweißverfahren Anwendung finden. Die Qualitätskontrolle erfolgt im Falle des Widerstandsschweißens bereits durch die Aufzeichnung und Analyse des Schweißstromverlaufes. Im Anschluss werden die Schweißnähte nachbehandelt und der bei Befüllen und Verschweißen für Kontaminationen zugängliche Bereich der Hüllrohre dekontaminiert /NEI 15/.

2.5.4 Assemblierung

Die verschweißten Brennstäbe stellen die kleinste integrale Einheit des Kernbrennstoffs im Reaktor dar. Die zur Erzeugung von Kernenergie notwendige Kritikalität ist von der Geometrie der Anordnung des Kernbrennstoffs und somit der Brennstäbe im Reaktorkern abhängig. Um eine möglichst homogene Anordnung der Brennstäbe im Reaktor zu ermöglichen, werden mehrere Brennstäbe zu einem Brennelement zusammengefasst. Hierbei definieren Abstandhalter auf verschiedenen Höhen des Elements den Abstand der Brennstäbe zueinander. Die Brennstäbe werden mittels Klemmwirkung in die Abstandhalter eingespannt, sodass thermische Dehnung und betriebsbedingte Materialveränderung (z. B. Brennstabverbiegen) keine fixierungsbedingten Spannungen in den Brennstab einbringen können. Einige der Stabpositionen in Brennelementen von DWRs werden für Steuerstäbe reserviert und mit sogenannten Steuerstabführungsrohren besetzt. Hierbei hat sich die Schreibweise $Y \times Y - Z$ etabliert, wobei Y für die Stabanzahl der Seitenflächen und Z für die Anzahl an Steuerstabführungsrohren und somit kernbrennstofffreien Positionen steht.

Gängige Designs deutscher **Druckwasserreaktoren** sind bzw. waren $18 \times 18 - 24$, $16 \times 16 - 20$ und $15 \times 15 - 20$. International ist heute der Typ $17 \times 17 - 25$ weit verbreitet. Durch die hohe Anzahl der Stäbe und die hohe Dichte des Brennstoffs kommt ein erhebliches Gewicht zustande. Die tragenden Strukturen des Brennelements sind daher als eine Art Skelettstruktur aufgebaut. Kopf und Fuß des Brennelements bestehen aus rostfreiem Edelstahl und befinden sich unter bzw. über den Brennstäben. Sie sind mithilfe der Steuerstabführungsrohre miteinander verbunden, an denen auch die Abstandhalter befestigt sind, welche über ihre Klemmwirkung die Brennstabformation halten. Der Brennelementfuß sorgt hierbei für den sicheren Stand des Brennelements und überträgt die Kräfte auf das untere Kerngitter. Der Brennelement-Kopf verfügt über Löcher, in die die Zentrierstifte des oberen Kerngitters greifen. Zudem sind am Kopf Niederhalterfedern angebracht, die dafür sorgen, dass das Brennelement mit einer definierten Kraft entgegen dem Kühlmittelstrom auf das untere Kerngitter gedrückt wird. Eine Sonderform der DWR-Brennelemente stellen die Elemente für russische **WWER-Reaktoren** dar. Sie bestehen aus einer hexagonalen Grundfläche, jedoch sind auch hier alle signifikanten Teile entsprechend dem quadratischen Design vorhanden.

Brennelemente für **Siedewasserreaktoren** enthalten deutlich geringere Stabanzahlen zwischen 6×6 (veraltet) bis zu 11×11 Stäben (bei modernen Auslegungen). Auch besitzen sie keine Steuerstabführungsrohre, da die Kontrolle der Reaktivität über zwischen den Brennelementen angeordnete Steuerkreuze erfolgt. Die tragende Struktur der SWR-Brennelemente ist zumeist ein in der Mitte des Elements befindlicher Wasserkasten, der einige Brennstabpositionen ersetzt. Dieser erstreckt sich über die gesamte Länge des Elements und verbindet Kopf und Fuß des Brennelements miteinander. Teilweise sind nur einige Brennstäbe durch kühlmittelführende Rohre ersetzt.

Zum Assemblieren der Brennelemente wird in der Regel Kopf oder Fuß des Brennelements entfernt und die Brennstäbe in die Abstandhalter geschoben. Nach dem vollständigen Einschub aller Stäbe wird dann das fehlende Endstück auf die Steuerstabführungselemente aufgesetzt und verschraubt /NEI 15/. Die Vorgänge bei diesem letzten Schritt der Brennelementherstellung sind rein mechanischer Natur und führen zu keiner Veränderung des Aktivitätsinventars in den fertigen Brennstäben. Der Schritt ist vielmehr eine Verringerung des Gefährdungspotentials zu betrachten, da die Kernbrennstoffe für nachfolgende Schritte als allseitig umschlossene Aktivität vorliegen. Zu beachten bleibt die Einhaltung der Unterkritikalität, vor allem bei Hinzufügen von Moderator (z. B. Wasser).

2.5.5 Uran aus der Wiederaufbereitung von Brennelementen

Uran, das durch die Wiederaufarbeitung von Brennelementen von den Spalt- und Korrosionsprodukten sowie von Plutonium abgetrennt wurde (RepU; manchmal auch als „Alturan“ bezeichnet), steht durch den verbleibenden hohen Anteil an Uran in bestrahltem Kernbrennstoff in großen Mengen zur Verfügung. Die Isotopenzusammensetzung von Uran aus der Wiederaufarbeitung ist gegenüber natürlichem Uran jedoch verändert, vgl. auch Kap. 2.1. Die durch den Abbrand des Brennstoffes verbleibende relative Häufigkeit des spaltbaren ^{235}U liegt mit typischerweise ca. 0,9% über der Isotopenhäufigkeit von ^{235}U in natürlichem Uran. Gleichzeitig entstehen im Reaktorbetrieb durch (n, γ)-Reaktionen größere Mengen ^{236}U , das u. a. als Neutronengift wirkt, sowie auch zusätzliches ^{234}U . Weiterhin existieren auch in gereinigtem RepU Reste chemischer Verunreinigungen in Form von Spaltprodukten und Transuranelementen. Die Handhabung von RepU stellt daher höhere radiologische Anforderungen als die Handhabung von Natururan.

Grundlegend ist eine erneute Anreicherung des RepU denkbar, jedoch werden die gegenüber Natururan in erhöhtem Maße vorhandenen Uranisotope ^{234}U und ^{236}U hierbei mit angereichert. Dies ist für eine weitere Verwendung als Reaktorbrandstoff von Nachteil. Zudem bewirkt dies eine unerwünschte Kontamination der Anreicherungskaskaden mit ^{236}U welche für Natururan konzipiert und vorgesehen wurden. Eine Möglichkeit zur direkten Verwendung von RepU ist die Herstellung von MOX und UO_2 Brennstoffen mit Plutonium bzw. durch Blenden von hoch angereichertem Uran (HEU). Letzteres bewirkt insbesondere eine Verdünnung des neutronenparasitären ^{236}U im RepU, und wurde in der Vergangenheit erfolgreich durchgeführt.

Bei einer direkten Verwendung von RepU zur Herstellung von UO_2 - und MOX-Brennelementen sind durch die Messtoleranz der Restanreicherung höhere Sicherheitsmargen anzusetzen, was den erreichbaren Zielabbrand für diese Art von Brennstoff reduziert und den aktuellen Entwicklungen in der Kernbrennstoffversorgung entgegensteht. Uran aus der Wiederaufarbeitung kann zudem aufgrund des gegenüber Natururan erhöhten ^{235}U Anteil als Brennstoff in Schwerwasserreaktoren (CANDU) oder MAGNOX-Reaktoren eingesetzt werden.

Die oben genannten Verfahren wurden in der Vergangenheit bis zur industriellen Reife entwickelt und in einigen Fällen in industriellem Maßstab eingesetzt. Auch wenn heutige Anlagen für den Umgang mit RepU ausgelegt sind, überwiegen die mit dem Einsatz von RepU einhergehenden Einschränkungen im Reaktorbetrieb (Ausnahme: Geblendet mit HEU, s. o.). Das aus der Wiederaufarbeitung stammende Uranylнитrat wird daher typischerweise in die Lagerform UO_3 oder U_3O_8 umgewandelt und in Edelstahlbehältern gelagert /IAEA 12/.

3 Aerosole und Pulver

3.1 Grundlagen und Begriffsbestimmung

Für Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung sind hinsichtlich der Freisetzung radioaktiver Stoffe die luftgetragenen Pfade unter Berücksichtigung des jeweiligen lungengängigen Materialanteils von entscheidendem Interesse. Es wird davon ausgegangen, dass in Anlagen des Kernbrennstoffkreislaufes der Inkorporationspfad auf der Basis der Inhalation von radioaktivem Material alle anderen Inkorporationspfade dominiert /MCQ 88/, /DOE 92/.

Bei einer störfallbedingten Freisetzung von Radionukliden können diese als Gase, Partikel oder gebunden an nicht-radioaktive Aerosole vorliegen:

- in Form von Rauch nach Feuer oder Explosionen,
- durch Aufwirbelung bereits deponierter Partikel als Staubwolke (Resuspension),
- durch Verdunstung kontaminierter Flüssigkeiten.

Als Aerosole werden Zweiphasen-Systeme bezeichnet, bei denen flüssige oder feste Partikel mit Durchmessern von 1 nm bis 100 µm in einer Gasphase dispergiert sind /ROE 00/. Je nach Aggregatzustand der Partikel unterscheidet man demnach Aerosole flüssiger und fester Teilchen (s. Tab. 3.1).

Tab. 3.1 Klassifizierung von Aerosolen

Typ	Disperse Phase	Dispersionsmittel	Beispiele
Flüssige Aerosole	Flüssigkeit	Gas	Nebel
Feste Aerosole	Feststoff	Gas	Rauch, Staub

Aerosole lassen sich anhand ihrer Entstehungsgeschichte in zwei Kategorien einteilen:

- Dispersionsaerosole entstehen, indem feste oder flüssige Stoffe in einem Trägergas fein verteilt in einen Schwebезustand überführt werden.
- Kondensationsaerosole bilden sich aus im Trägergas frei beweglichen Einzelmolekülen (Dampf) durch Kondensation. Es sind zudem gemischte Aerosole, deren Teilchen durch Dispersion und Kondensation entstehen möglich.

Durch Dispersion entstandene Feststoffaerosole nennt man **Stäube**. Durch Kondensation oder chemische Umwandlungen in der Gasphase entstandene Feststoffaerosole nennt man **Rauche**. Aerosole mit flüssigen Teilchen werden, unabhängig davon, ob sie durch Kondensation oder Dispersion gebildet wurden, als **Nebel** bezeichnet.

3.2 Größenverteilungen von Aerosolen und Pulvern

Zur Charakterisierung der physikalischen Eigenschaften von Aerosolpartikeln wird in erster Linie die Partikelgröße, d. h. deren Durchmesser, herangezogen. Da Aerosolpartikel sehr unterschiedlich geformt sein können, und die gemessene Größe vom Messverfahren abhängen kann, sollte dieses stets zusätzlich angegeben werden. Zusätzlich bestimmen Parameter wie Anzahl-, Oberflächen- und Volumendichte der Partikel pro Luftvolumen sowie die Partikelgrößenverteilung das Verhalten von Aerosolen. Im Folgenden wird auf die Eigenschaften von Partikeln eingegangen und Modellansätze zur Berechnung des Partikelverhaltens vorgestellt.

3.2.1 Eigenschaften von Partikeln in der Gasphase

Die Eigenschaften luftgetragener Partikel können sich stark heterogen darstellen. Wichtige Einflussfaktoren sind hierbei die Partikelgröße, die Partikelform und die physikalische Dichte der Partikel. Der Größenbereich von Aerosolpartikeln unterschiedlicher Entstehungspfade erstreckt sich über mehrere Größenordnungen von wenigen Nanometern bis zu einigen hundert Mikrometern und ist in Abb. 3.1 dargestellt. Dabei werden Aerosolpartikel sowohl natürlichen als auch anthropogenen Ursprungs betrachtet. Letztere bezeichnen durch den Menschen erzeugte oder verursachte Aerosolpartikel.

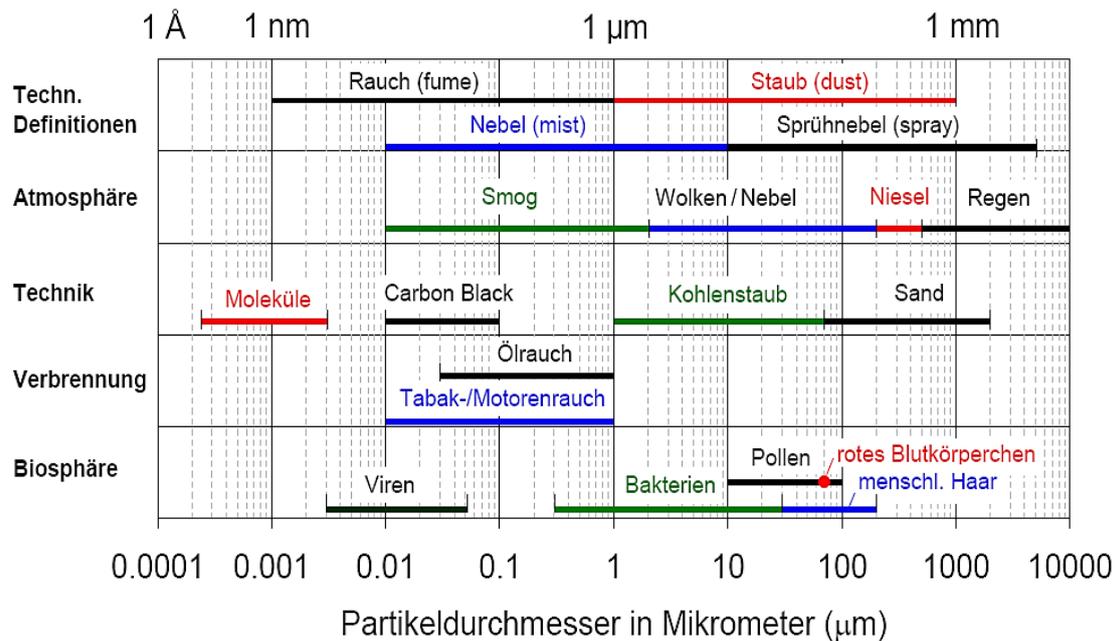


Abb. 3.1 Größenverteilung von Aerosolpartikeln natürlichen und anthropogenen Ursprungs

Insbesondere in der Atmosphärenphysik und -chemie ist es üblich, Aerosolpartikel aufgrund ihrer Größenverteilung und ihrer Entstehungsweise in vier Hauptgruppen, sogenannte Modi, zu klassifizieren /HOC 05/:

- Nukleationsmodus ($D < 10 \text{ nm}$)
- Aitken-Modus ($D = 10 - 100 \text{ nm}$)
- Akkumulationsmodus ($D = 100 \text{ nm} - 1 \mu\text{m}$)
- Coarse-Modus ($D > 1 \mu\text{m}$)

Aerosolpartikel des Nukleationsmodus werden direkt aus der Gasphase über die sogenannte „Gas-to-Particle-Conversion“ neu gebildet. Aerosolpartikel des Aitken-Modus entstehen zumeist aus durch Koagulation angewachsene Nukleationspartikel; sie werden größtenteils in Verbrennungsprozessen gebildet. Aerosolpartikel des Akkumulationsmodus bestehen hauptsächlich aus Teilchen, die aus Gasphasen-Prozessen herausgebildet werden (z. B. verdampfbare Oxidationsprodukte), und aus einer Vielzahl von organischen Komponenten. Partikel dieser Mode weisen die längste atmosphärische Lebensdauer auf. Aerosolpartikel der Coarse-Mode werden, im Unterschied zu den

Partikeln der übrigen Moden, durch mechanische Prozesse (z. B. Zerkleinerung, Abrieb) in die Atmosphäre abgegeben.

Die Größenverteilung von Partikelkollektiven lässt sich vereinfacht anhand ihrer Dispersität definieren. Definitionsgemäß ist ein Partikelkollektiv:

- Monodispers, wenn die im Gemisch enthaltenen Partikeldurchmesser um weniger als 10 % voneinander abweichen;
- Quasi-Monodispers, wenn die im Gemisch enthaltenen Partikeldurchmesser zwischen 10 % und 100 % voneinander abweichen;
- Polydispers, wenn die im Gemisch enthaltenen Partikeldurchmesser um mehr als 100 % voneinander abweichen; dies deutet auf das Vorliegen unterschiedlicher Partikeltypen und Entstehungsmechanismen hin.

Zur parametrisierten Darstellung von Partikelgrößenverteilungen werden verschiedene Verteilungsfunktionen genutzt, z. B. die Gaußsche Normalverteilung (DIN 66144), die logarithmische Normalverteilung (DIN 66144), die Potenzverteilung nach Gates, Gaudin und Schuhmann (DIN 66143), oder die RRSB-Verteilung nach Rosin, Rammler, Sperling und Benne (DIN 66145). Je nachdem, ob die Partikelanzahl, die Partikeloberfläche, das Partikelvolumen oder die Partikelmasse als Funktion der Partikelgröße D_p dargestellt werden, ergeben sich unterschiedliche Verteilungen /HIN 99/, /BAR 05/:

- Anzahl-Größenverteilung: $dN = N(D_p) d\log D_p$
- Oberflächen-Größenverteilung: $dO = O(D_p) d\log D_p$ mit $O(D_p) = N(D_p) \cdot \pi \cdot D_p^2$
- Volumen-Größenverteilung: $dV = V(D_p) d\log D_p$ mit $V(D_p) = N(D_p) \cdot \frac{\pi \cdot D_p^3}{6}$
- Massen-Größenverteilung: $dm = m(D_p) d\log D_p$ mit $m(D_p) = V(D_p) \cdot \rho$

Abb. 3.2 zeigt exemplarisch die Partikelanzahlverteilung für eine saubere ländliche sowie für eine durchschnittliche städtische Umgebung /TRA 01/. Die Partikelanzahlverteilung wird – im Unterschied zur Partikelmassenverteilung – deutlich von den kleinen und mittleren Partikelgrößen dominiert.

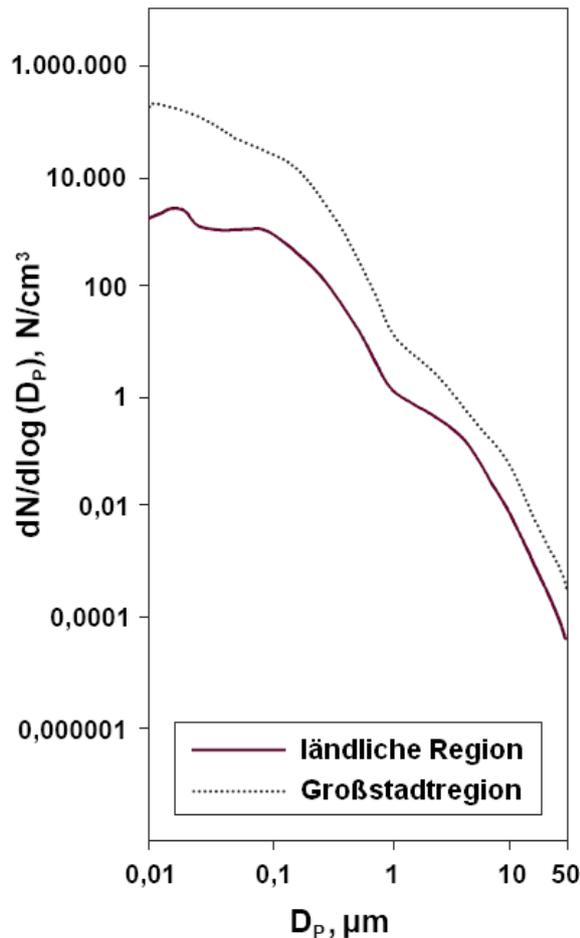


Abb. 3.2 Anzahlgrößenverteilung von Aerosolen in Abhängigkeit von der Umgebung nach

/TRA 01/

3.2.2 Rechnerische Modifikation der Partikeleigenschaften: Äquivalenteigenschaften

Aufgrund der Tatsache, dass Aerosolpartikel sehr unterschiedlich geformt sein können, hängt die gemessene Partikelgröße stark vom verwendeten Messverfahren ab und spiegelt somit nicht die tatsächlichen Eigenschaften der Partikel wider. Bei der Angabe von Partikelgrößen sollte deshalb stets auch die eingesetzte Messmethode genannt werden. Zur besseren rechnerischen Beschreibung von Partikeln in Aerosolen dient das Konzept des sog. Äquivalentdurchmessers. Ein Äquivalentdurchmesser ist der rechnerische Durchmesser einer Kugel, die bei dem verwendeten Messverfahren die gleiche Eigenschaft wie das betrachtete, unregelmäßig geformte Teilchen aufweist.

Für einige der in der Aerosolmesstechnik gebräuchlichen Äquivalentdurchmesser sind nachfolgend die Definitionsgleichungen aufgeführt:

- Äquivalentdurchmesser einer oberflächengleichen Kugel: $d = \sqrt{\frac{O}{\pi}}$
- Äquivalentdurchmesser einer volumengleichen Kugel: $d = \sqrt[3]{\frac{6 \cdot V}{\pi}}$
- Äquivalentdurchmesser einer massengleichen Kugel: $d = \sqrt[3]{\frac{6 \cdot m}{\pi \cdot \rho_L}}$
- Äquivalentdurchmesser einer Kugel gleicher Sinkgeschwindigkeit in Luft (aerodynamischer Äquivalentdurchmesser): $d = \sqrt{\frac{18 \cdot \eta_L \cdot v_S}{(\rho_P - \rho_L) \cdot g}}$

Mit: O = Oberfläche, V = Volumen, m = Masse, ρ_L = Dichte der Flüssigkeit (liquid), ρ_P = Dichte des Partikels, v_S = Sedimentationsgeschwindigkeit und η_L = dynamische Viskosität.

Es existieren verschiedene Verfahren, um die geometrische Ausdehnung nichtisometrischer (d. h. unregelmäßig geformter) Partikel zu untersuchen, woraus eine Anzahl gebräuchlicher geometrischer Formfaktoren resultieren, z. B.

- der Oberflächen-Formfaktor: Verhältnis der realen Partikeloberfläche zum Quadrat des projizierten Durchmessers (der Oberflächen-Formfaktor einer Kugel ist π);
- der Volumen-Formfaktor: Verhältnis des realen Partikelvolumens zur dritten Potenz des projizierten Durchmessers (der Volumen-Formfaktor einer Kugel ist $\pi/6$).

Zur Kennzeichnung der Partikelgröße wird üblicherweise der sogenannte aerodynamische Äquivalentdurchmesser (**AED**, **Aerodynamic Equivalent Diameter**) herangezogen. Der AED ist der rechnerische Durchmesser eines Partikels, das in ruhender oder laminar strömender Luft (d. h. unter Einwirkung der Schwerkraft) die gleiche Sinkgeschwindigkeit aufweist wie ein kugelförmiges Vergleichspartikel mit einer angenommenen Dichte von 1 g/cm^3 . Der AED charakterisiert somit die Eigenschaften des Partikels beim luftgetragenen Transport und bei der Inhalation. Bei Partikeln $> 1 \text{ }\mu\text{m}$ AED berücksichtigt er Größe, Form und Dichte des Partikels bei der Bestimmung seines Verhaltens in Luft. Aerosolpartikel von $100 \text{ }\mu\text{m}$ AED verfügen über eine Transportfähigkeit in der Luft von etwa 100 Metern /ILK 00/.

Partikel mit Durchmessern $< 1 \mu\text{m}$ werden primär durch Diffusion transportiert, wodurch deren Abscheidung ebenfalls auf Diffusionsprozessen basiert (vgl. Kap. 3.4.2). Die Beschreibung der Partikelgrößen erfolgt bei diesen Partikeln durch den sogenannten Diffusions-Äquivalentdurchmesser (Mobilitätsdurchmesser). Der Diffusions-Äquivalentdurchmesser ist der rechnerische Durchmesser eines Partikels, das die gleiche Diffusionsgeschwindigkeit in Luft besitzt wie ein kugelförmiges Vergleichspartikel mit einer angenommenen Dichte von 1g/cm^3 . Der Diffusions-Äquivalentdurchmesser bestimmt die Ablagerung im Atemtrakt bei isometrischen Partikeln mit Durchmessern $< 0,5 \mu\text{m}$.

Die potenzielle Strahlenexposition radioaktiver Aerosole, die aufgrund von Störfallereignissen in Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung freigesetzt werden können, wird einerseits durch die nuklidspezifische Zusammensetzung und andererseits durch die aerodynamischen bzw. thermodynamischen Eigenschaften der Partikel bestimmt. Die Partikelgrößen radioaktiver Aerosole gehorchen einer logarithmischen Normalverteilung /ICRP 94a/. Wichtige Kenngrößen in diesem Zusammenhang sind:

- der Aktivitäts-Medianwert des aerodynamischen Durchmessers (**AMAD, Activity Median Aerodynamic Diameter**), und
- der Aktivitäts-Medianwert des thermodynamischen Durchmessers (**AMTD, Activity Median Thermodynamic Diameter**).

Der AMAD ist der rechnerische Durchmesser eines Partikels, das in Luft die gleiche Sinkgeschwindigkeit aufweist wie ein kugelförmiges Vergleichspartikel mit einer angenommenen Dichte von 1g/cm^3 , dessen Aktivität dem Medianwert aller Aerosolteilchen entspricht /VOG 07/. Das heißt, jeweils 50 % der Aktivität in einem Aerosolgemisch wird Teilchen zugeordnet, die größer bzw. kleiner als der AMAD sind.

Der AMTD ist der rechnerische Durchmesser eines Partikels, das in Luft die gleiche Diffusionsgeschwindigkeit aufweist wie ein kugelförmiges Vergleichspartikel mit einer angenommenen Dichte von 1g/cm^3 , dessen Aktivität dem Medianwert aller Aerosolteilchen entspricht. Das heißt, jeweils 50 % der Aktivität in einem Aerosolgemisch wird Teilchen zugeordnet, die größer bzw. kleiner als der AMTD sind.

An den Radioaktivitätsmessstationen des Deutschen Wetterdienstes werden die Aktivitätskonzentrationen aerosolpartikelgebundener Radionuklide kontinuierlich überwacht. Die entsprechenden Messprogramme für den Normal- und den Intensivbetrieb basieren

auf der Allgemeinen Verwaltungsvorschrift zum Integrierten Mess- und Informationssystem zur Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt (AVV-IMIS) /BUN 06/. Die Rechtsgrundlage hierfür sind das Strahlenschutzvorsorgegesetz /BUN 08/ und das Gesetz über den Deutschen Wetterdienst /BUN 98/. Ziel ist die frühzeitige Erkennung aerosolgebundener künstlicher Radionuklide in der bodennahen Luft oberhalb der Nachweisgrenzen bei störfallbedingten Freisetzungen und bei Unfällen. Im Intensivbetrieb werden kürzere Messintervalle zugrunde gelegt als im Normalbetrieb, was zu höheren Nachweisgrenzen führt. Ein Beispiel für das Potential dieser Messmethode ist die Detektion von ¹⁰⁶Ruthenium-Partikeln im mBq/m³-Bereich im Herbst 2017 in Deutschland und in weiteren EU-Staaten. /MAS 19/

Die fortschreitenden Entwicklungen in der Aerosolmesstechnik /TAY 15/ erlauben seit Ende der 1980er Jahre eine größenfraktionierte Massen- und Inhaltsstoffbestimmung von Schwebstäuben. Bei Angaben zu Massenkonzentrationen werden die unterschiedlichen Größenfraktionen oftmals mit **PM_x** (**P**articulate **M**atter) bezeichnet, wobei x der Medianwert des aerodynamischen Durchmessers (angegeben in µm) der jeweiligen Größenfraktion ist. Die Klassifikation der entsprechenden Partikelfraktionen mit den dazugehörigen Partikelgrößen ist in DIN ISO 7708 eindeutig geregelt. Tab. 3.2 gibt hierzu einen Überblick.

Tab. 3.2 Definition von Partikelfraktionen in der Aerosolmesstechnik nach DIN ISO 7708

Partikelfraktion	Durchmesser	Bezeichnung bzw. Beschreibung
TSP	< ca. 30 µm	Gesamtschwebstaub („Total Suspended Particulates“)
PM ₁₀	< 10 µm	Partikelfraktion, die einen größenselektiven Lufteinlass passiert, der für einen AED von 10 µm Abscheidegrad von 50 % aufweist (thorakaler Schwebstaub, Abb. 3.3).
PM _{2,5}	< 2,5 µm	Partikelfraktion, die einen größenselektiven Lufteinlass passiert, der für einen AED von 2,5 µm einen Abscheidegrad von 50 % aufweist (alveolarer Schwebstaub; Abb. 3.3).
UFP	< 0,1 µm	Ultrafeine Partikel
NP	< 0,05 µm	Nanopartikel

Abb. 3.3 illustriert quantitativ eine typische Volumenverteilung der verschiedenen Größenfraktionen, die unter Annahme kugelförmiger Partikel aus der Anzahlverteilung berechnet wurde.

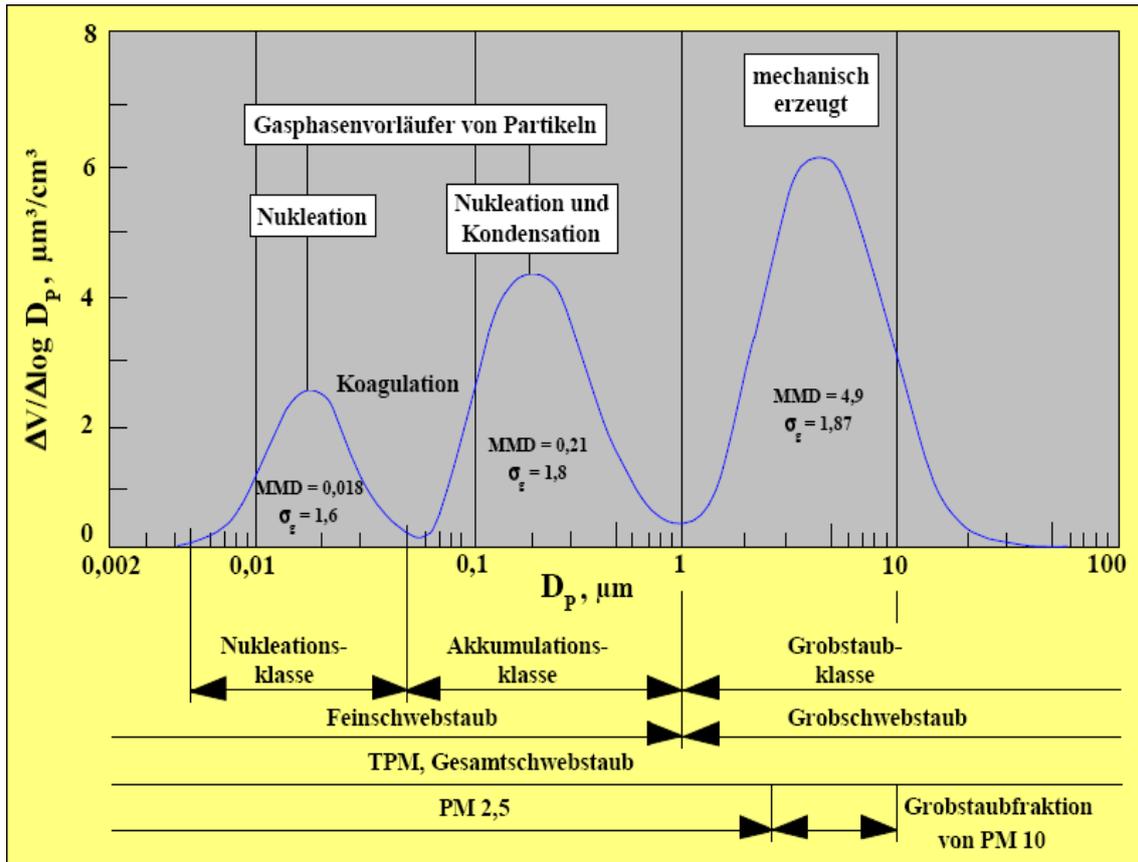


Abb. 3.3 Typische Volumenverteilung von Aerosolen nach DIN ISO 7708

3.3 Stoffeigenschaften der Uran- und Plutonium-Verbindungen im Brennstoffkreislauf

Die Herstellung von UO_2 -basierten Kernbrennstoffen für Leichtwasserreaktoren kann auf unterschiedlichen Konversionsprozessen basieren. Als industriell angewandte Prozesse sind hierbei die nasschemischen Verfahren ADU (Ammoniumdiuranat) und AUC (Ammoniumuranylcarbonat), sowie der trockene DC (Dry Conversion) Prozess zu nennen. Von diesen Prozessen findet heute lediglich der DC Prozess in Deutschland Anwendung. Die nasschemischen Verfahren sind nach ihrer Fällungsverbindung, die für die Isolation des Urans aus der Lösung sorgt, benannt. Die Produkte aus den unterschiedlichen Prozessen unterscheiden sich hauptsächlich durch deren Pulvereigenschaften. Beim DC-Prozess kommt hinzu, dass Kritikalität innerhalb des Prozesses aufgrund der Abwesenheit flüssigen Wassers als Moderator als sehr unwahrscheinlich eingestuft wird. Hierdurch gilt die Kritikalität bei der Anlagenauslegung als auslegungsüberschreitender Störfall. Die chemischen Verbindungen, in denen der Kernbrennstoff in den Anlagen der

nuklearen Versorgung vorliegen, sind in Tab. 3.3 aufgelistet; dabei sind auch relevante Zwischenprodukte aufgeführt. Einige der Verbindungen sind prozessspezifisch und liegen daher nur in einem der drei Prozesse vor. Die im Zusammenhang mit der Berechnung der Dosiskoeffizienten wichtigen Absorptionstypen der aufgeführten Uranverbindungen enthält Tab. 3.9 in Kap. 3.5.

Tab. 3.3 Eigenschaften von Uranverbindungen im Brennstoffkreislauf

/THO 94/, /HHS 99/

Chemische Verbindung	Physikalische Form im Herstellungsprozess	Theoretische Dichte bei 20 °C (g/cm ³)	Farbe des Kristalls
UF ₆	Feststoff, Gas	5,06	fahlgelb
UF ₄	Feststoff, Pulver	6,70	grün
UO ₂ F ₂	Feststoff, gelöst	6,37	weiß
UO ₂	Feststoff, Pulver	10,96	schwarz
UO ₃	Feststoff, suspendiert	7,29	Gelb-orange
U ₃ O ₈	Feststoff, Pulver	8,39	olivgrün
(NH ₄) ₂ U ₂ O ₇	Feststoff, suspendiert	3,96	gelbgrün
(NH ₄) ₄ UO ₂ (CO ₃) ₃	Feststoff, suspendiert	2,77	gelb
UO ₂ (NO ₃) ₂ · 6 H ₂ O	Feststoff, gelöst	2,81	gelbgrün
U-Metall	Feststoff	18,95	metallisch

Uran und seine Verbindungen sind als Schwermetall chemisch giftig. Die bei der LWR-Brennelementherstellung auftretenden Uranverbindungen sind nicht brennbar; pulverförmige Stoffe sind durch Brandeinwirkung jedoch leicht dispergierbar. Zudem können abgelagerte pulverförmige Uranverbindungen durch Luftbewegungen aufgewirbelt und verteilt werden (Resuspension).

Zur Analyse störfallbedingter Freisetzungen dispersibler Feststoffe aus Anlagen des Kernbrennstoffkreislaufes ist die Partikelgrößenverteilung ausschlaggebend. Diese ist in erheblichem Maße vom Herstellungsprozess abhängig. Prozessstypische Partikelgrößenverteilungen von UO₂ bei der Pulverherstellung nach dem AUC-Verfahren (nasschemische Konversion von UF₆) /HEI 91/, /GRI 98/ sind in Abb. 3.4 dargestellt.

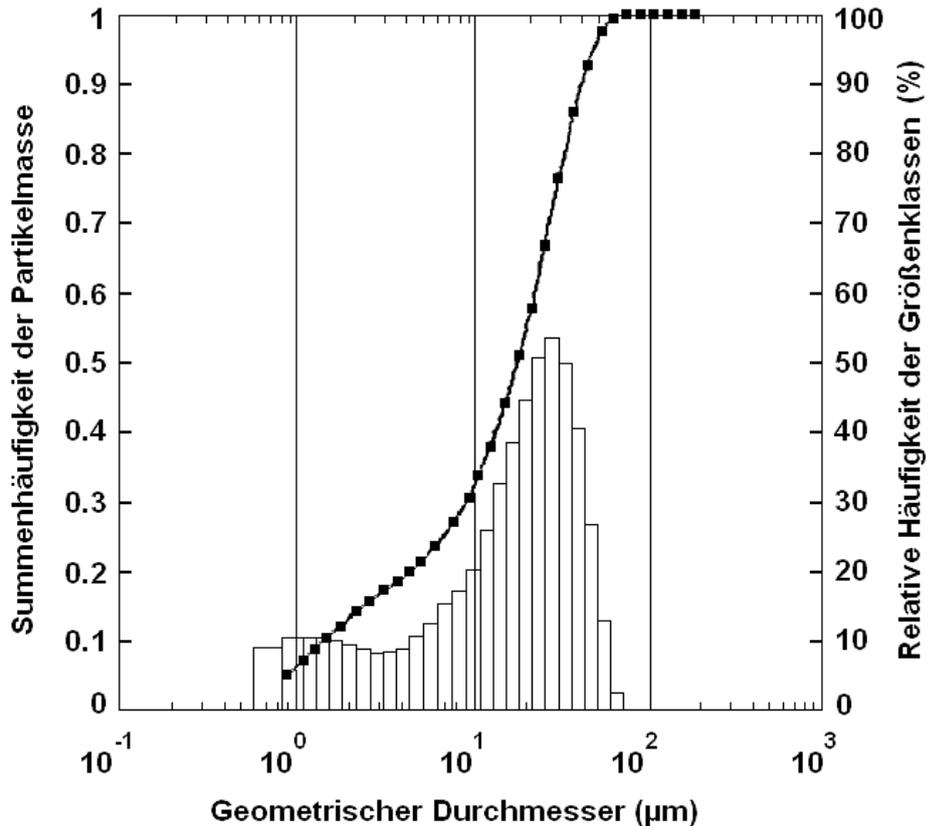


Abb. 3.4 Partikelgrößenverteilung von UO_2 -Pulver aus dem AUC-Verfahren

/ASS 79/

Die massebezogenen Anteile an Partikeln, die aufgrund ihrer Größenklasse dem Feinstaub zugeordnet werden, betragen bei UO_2 -Pulver größenordnungsmäßig 34 % (Partikelklasse $< 10 \mu\text{m}$) bzw. 18 % (Partikelklasse $< 5 \mu\text{m}$). Die entsprechenden Werte für U_3O_8 liegen etwa doppelt so hoch, für AUC etwa halb so hoch. Für UO_2 -Granulat bei der Pulverherstellung nach dem ANF-Verfahren (trockenchemische Konversion von UF_6) /HEI 91/, /GRI 98/ ist davon auszugehen, dass Partikelgrößen $< 40 \mu\text{m}$ mit weniger als 0,1 % Massenanteil vorliegen /THO 94/.

Erfahrungen bei der störfallbedingten Freisetzung von UF_6 zeigen, dass das bei Reaktion des UF_6 mit Luftfeuchtigkeit gebildete UO_2F_2 als sehr feines Material mit Partikelgrößen $< 1 \mu\text{m}$ freigesetzt wird, wodurch ein charakteristischer weißer Nebel in der Luft wahrnehmbar ist /THO 94/. Im Unterschied zu den wasserunlöslichen Uranoxiden UO_2 und U_3O_8 wird die chemotoxische Wirkung von UF_6 nicht primär durch das darin enthaltene Uran verursacht, welches als akutes Schwermetallgift für Lungen und Nieren wirkt. Die registrierten Todesfälle nach störfallbedingten Freisetzungen von UF_6 in ausländischen Uranverarbeitungsanlagen (Philadelphia, 02.09.1944; Pilcaniyeu, 29.10.1984;

Gore, 04.01.1986) waren vielmehr auf die toxische Wirkung der Reaktionsprodukte des UF_6 mit Wasser, Flusssäure (HF) und Uranylfluorid (UO_2F_2), zurückzuführen /HHS 99/, /EPA 04a/.

3.4 Aerosolverhalten

3.4.1 Sedimentation

Sedimentation ist die Ablagerung von Partikeln auf horizontalen Flächen durch Einwirkung der Schwerkraft. Dieser Effekt wächst mit der Masse der abzulagernden Partikel. Für Teilchen $> 10 \mu m$ ist die Sedimentation der dominante Depositionsprozess. Da in einem gut durchmischten Volumen der Ablagerungsvorgang in einer dünnen Grenzschicht entlang der Oberfläche stattfindet, dienen alle horizontalen Flächen als Sedimentationsflächen. Bei schrägen Oberflächen verringert sich die Sedimentation mit dem Cosinus des Neigungswinkels zur Horizontalen.

Die zeitliche Abnahme der Aerosolkonzentration in einem Raum durch Sedimentation folgt einem Exponentialgesetz entsprechend Gleichung (3.1).

$$C(t) = C_0 \cdot \exp\left(-\frac{A \cdot v_s \cdot t}{V}\right) \quad (3.1)$$

C_0	Anfangskonzentration der Aerosole
A	Bodenfläche des Raumes
V	Volumen des Raumes
v_s	Sedimentationsgeschwindigkeit
t	Zeit

Für die Sedimentationsgeschwindigkeit v_S eines kugelförmigen Teilchens in Luft gilt nach Stokes-Gleichung (3.2).

$$v_S = \frac{(\rho_P - \rho_L) \cdot g \cdot d_p^2}{18 \cdot \eta_L} \quad (3.2)$$

d_p	aerodynamischer Teilchendurchmesser
ρ_P	Dichte des Teilchens
ρ_L	Dichte der Luft
η_L	dynamische Viskosität der Luft
g	Fallbeschleunigung

Die Sedimentationsgeschwindigkeit hängt nach der Stokes-Gleichung von Durchmesser und Dichte der Teilchen ab. Da größere Partikel schneller abgelagert werden als kleinere Partikel, verringert sich der mittlere Teilchendurchmesser im Laufe der Zeit. Für Partikel $< 1 \mu\text{m}$ ist die Stokes-Gleichung nicht mehr exakt gültig und muss mit einem Korrekturfaktor versehen werden. Wird der Zähler um den Cunningham-Korrekturfaktor K_C (siehe Gleichung (3.3)) erweitert (hierbei ist λ die mittlere freie Weglänge der Luftmoleküle), behält die Stokes-Gleichung ihre Gültigkeit /DAV 45/, siehe Gleichung (3.4).

$$K_C = 1 + \frac{\lambda}{d_p} \cdot \left[2,514 + 0,8 \cdot \exp\left(\frac{-0,55 \cdot d_p}{\lambda}\right) \right] \quad (3.3)$$

$$v_{S,korr} = v_S \cdot K_C \quad (3.4)$$

Der gesteigerte relative Einfluss der Molekularbewegung des Trägergases auf Aerosolteilchen mit Durchmessern $< 1 \mu\text{m}$ führt zu einer Erhöhung der Sedimentationsgeschwindigkeit um den Faktor K_C .

3.4.2 Diffusion

Sehr kleine Aerosolpartikel (Durchmesser $< \text{ca. } 0,1 \mu\text{m}$) unterliegen der Brownschen Molekularbewegung der sie umgebenden Gasmoleküle. Diese Bewegung verhindert die Sedimentation und führt zur Abscheidung durch Diffusion im Konzentrationsgradienten an der Oberfläche. Die Diffusionsgeschwindigkeit steigt mit sinkendem Teilchen- und Faserdurchmesser sowie mit abnehmender Strömungsgeschwindigkeit des Gases.

3.4.3 Thermodiffusion (Thermophorese)

Die Abscheidung durch Thermodiffusion erfolgt im Temperaturgradienten einer Grenzschicht an einer kalten Wand. Sie ist nur bei sehr starken Temperaturgradienten, wie sie z. B. bei schweren Bränden auftreten, von Bedeutung.

3.4.4 Diffusiophorese

Durch einen Dampfdruckgradienten kommt es zur Bewegung von Partikeln, welche mit dem Strom von dampfförmigen Substanzen mitbefördert werden. Die Abscheidung durch Diffusiophorese erfolgt mit der Dampfkondensation an einer kalten Wand. Sie ist nur von Bedeutung, wenn bei einem Störfallereignis größere Dampfmengen freigesetzt werden.

3.5 Abscheidemechanismen von Aerosolen im menschlichen Körper

Ein für die Abschätzung der epidemiologischen Wirkung radioaktiver Aerosole bedeutender Parameter im ICRP-Modell /ICRP 94a/ ist die sogenannte Inhalabilität. Diese ist definiert als der Bruchteil der Aerosole, der mit dem Volumen der inhalierten Atemluft durch Mund oder Nase in den Organismus gelangt. Die Inhalabilität ist hauptsächlich vom aerodynamischen Äquivalentdurchmesser (AED), aber auch von der Atemfrequenz, der Windgeschwindigkeit v und der Windrichtung abhängig. Abb. 3.5 zeigt die Inhalabilität als Funktion des AED nach dem ICRP-Modell. Die Inhalabilität für 5 μm bzw. 10 μm AED beträgt 0,97 bzw. 0.84. Diese Werte gelten für Windgeschwindigkeiten bis 5 m/s /DÖR 02/.

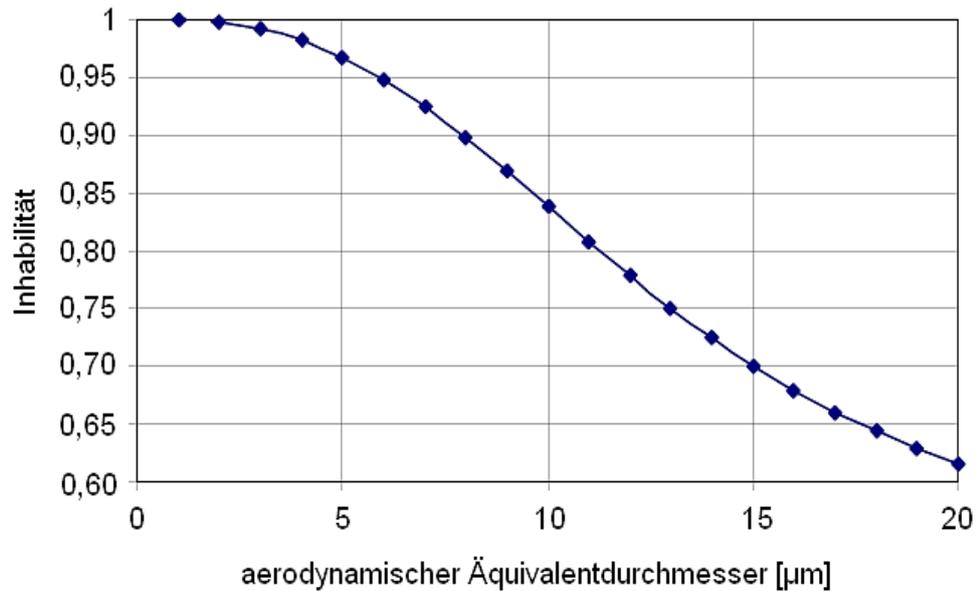


Abb. 3.5 Inhalabilität von Aerosolen als Funktion der Partikelgröße (aerodynamischer Äquivalentdurchmesser) nach dem ICRP-Modell

/ICRP 94a/

In den 1990er Jahren wurden folgende Begriffsdefinitionen international standardisiert und harmonisiert /STE 98/:

- **Inhalable Particulate Mass (IPM)**
- **Thoracic Particulate Mass (TPM)**
- **Respirable Particulate Mass (RPM)**

Das entsprechende Inhalabilitätsmodell von ISO (International Organization for Standardization), CEN (Comité Européen de Normalisation – European Standardization Committee) und ACGIH (American Conference of Governmental Industrial Hygienists) weicht vom ICRP-Modell insoweit ab, als es Partikeln mit AED < 15 µm eine geringere Inhalabilität und Partikeln mit AED > 15 µm eine größere Inhalabilität als im ICRP-Modell zuweist. Dabei wird konservativ angenommen, dass über den Mund größere Partikel aufgenommen werden können als über der Nase.

Für aerodynamische Äquivalentdurchmesser im Bereich $0 \leq AED \leq 100 \mu\text{m}$ und Windgeschwindigkeiten im Bereich $0,5 \text{ m/s} \leq v \leq 9 \text{ m/s}$ gilt demnach die empirische Beziehung nach Gleichung (3.5) zwischen dem AED (Zahlenwert in μm) und der über alle Windrichtungen gemittelten Inhalabilität I /CHP 00/.

$$I = 0,5 \cdot (1 + \exp(-0,06 \cdot AED)) \quad (3.5)$$

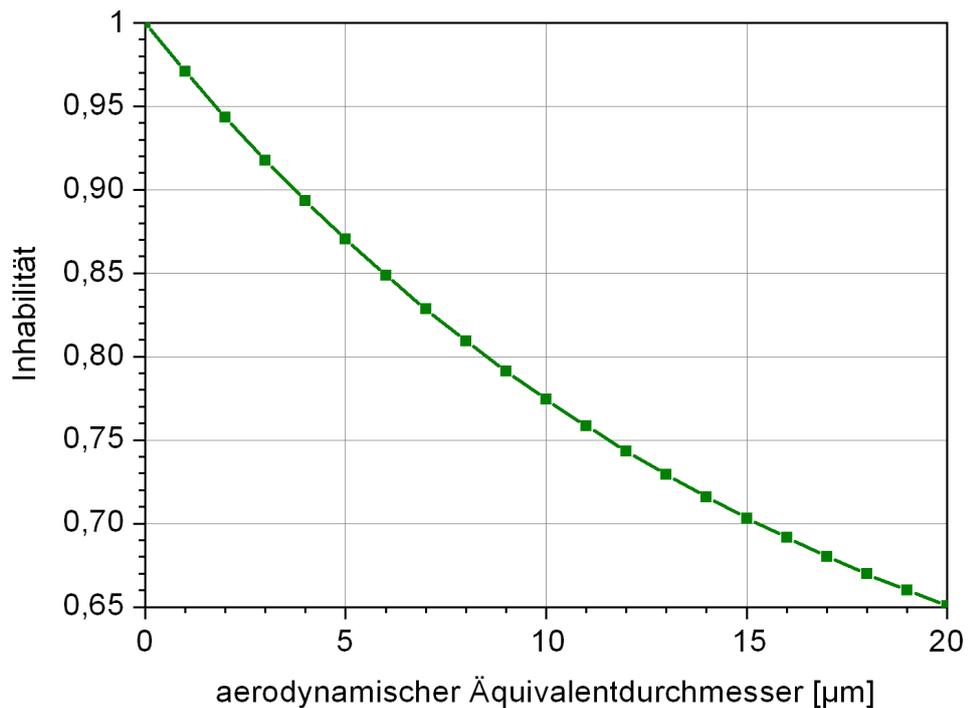


Abb. 3.6 Inhalabilität von Aerosolen als Funktion der Partikelgröße (aerodynamischer Äquivalentdurchmesser) nach dem ISO-Modell

/CHP 00/, /STE 98/

Die aus Gleichung (3.5) resultierende Abnahme der Inhalabilität bei Zunahme des AED ist in Abb. 3.6 grafisch dargestellt. Für Partikel mit $AED > 100 \mu\text{m}$ wird pauschal $I = 0,5$ gesetzt, sofern keine verlässlichen experimentellen Daten vorliegen.

Eingeatmete Partikel lagern sich durch Impaktion, Sedimentation und Diffusion je nach Größe und Geschwindigkeit in den oberen und unteren Atemwegen bis in die Lunge ab. Die Klassifikation der entsprechenden Partikelfractionen mit den dazugehörigen Partikelgrößen ist in DIN EN 481 einschlägig geregelt. Tab. 3.4 gibt hierzu einen Überblick.

Tab. 3.4 Klassifizierung von Partikelfractionen nach DIN EN 481

Partikelfraktion	Durchmesser	Definition
einatembare Fraktion (E-Fraktion)	$\leq 100 \mu\text{m}$	Massenanteil aller Partikel, der durch Mund und Nase eingeatmet wird
extrathorakale Fraktion	$> 10 \mu\text{m}$	Massenanteil eingeatmeter Partikel, der nicht über den Kehlkopf hinaus vordringt
thorakale Fraktion	$\leq 10 \mu\text{m}$	Massenanteil eingeatmeter Partikel, der über den Kehlkopf hinaus vordringt
tracheobronchiale Fraktion	$4 - 10 \mu\text{m}$	Massenanteil eingeatmeter Partikel, der über den Kehlkopf hinaus, aber nicht bis in die Lunge vordringt
alveolare Fraktion (A-Fraktion)	$\leq 4 \mu\text{m}$	Massenanteil eingeatmeter Partikel, der bis in die Lunge vordringt

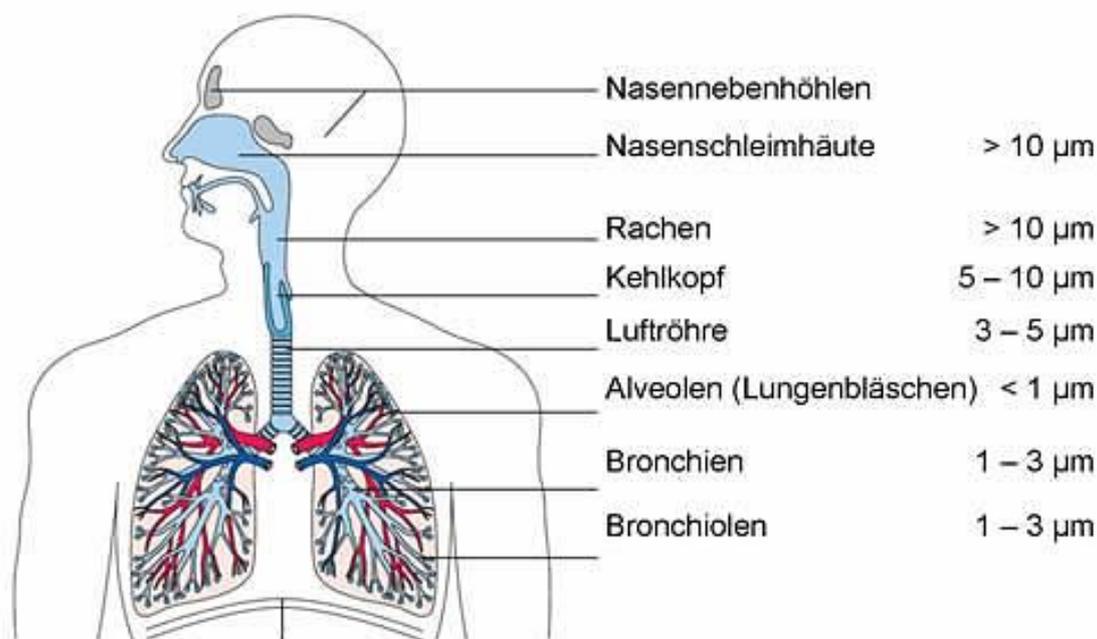


Abb. 3.7 Abscheidecharakteristik von Partikeln in der menschlichen Lunge

/GER 19/

Abb. 3.7 zeigt schematisch die Größenverteilung der Aerosolanteile, die sich in den unterschiedlichen Regionen des menschlichen Atemtraktes ablagern. Mit abnehmendem aerodynamischem Durchmesser dringen die Partikel immer tiefer in die Atemwege ein. Näherungsweise gilt hierbei, dass Partikel mit einem Durchmesser von mehr als $10 \mu\text{m}$ im extrathorakalen Bereich (Nasen-Rachen-Kehlkopf-Anteil) und Teilchen zwischen etwa 4 und $10 \mu\text{m}$ im tracheobronchialen Bereich abgelagert werden (Tracheobronchial-

Anteil). Aerosolpartikel, deren aerodynamischer Durchmesser kleiner als etwa $4\ \mu\text{m}$ ist, passieren den Kehlkopf (Larynx) sowie die Hauptbronchien und erreichen die Lungenflügel. Die feinsten Partikel mit Durchmessern kleiner als $1\ \mu\text{m}$ gelangen bis in die Lungenbläschen (Alveolen). Sie werden dort entweder abgelagert (alveolarer Anteil) oder wieder ausgeatmet.

Ein Teil des im Atemtrakt deponierten Materials geht je nach Löslichkeit, Partikelgröße und Verweildauer der Partikel zu variablen Anteilen in die Blutbahn über. Die Resorption gut löslicher Partikel bzw. Aerosole beginnt schon im Nasen-Rachen-Raum. Unlösliche Partikel verbleiben lange in den Alveolen und bestrahlen dort die umgebenden Gewebe, oder werden von Phagozyten („Fresszellen“) zu den Lymphknoten transportiert. In diesem Fall kann es als Folge entzündlicher Reaktionen zu Fibrose und Narbenbildung kommen. Die systemische Aufnahme ist hier auch bei Nanopartikeln sehr gering.

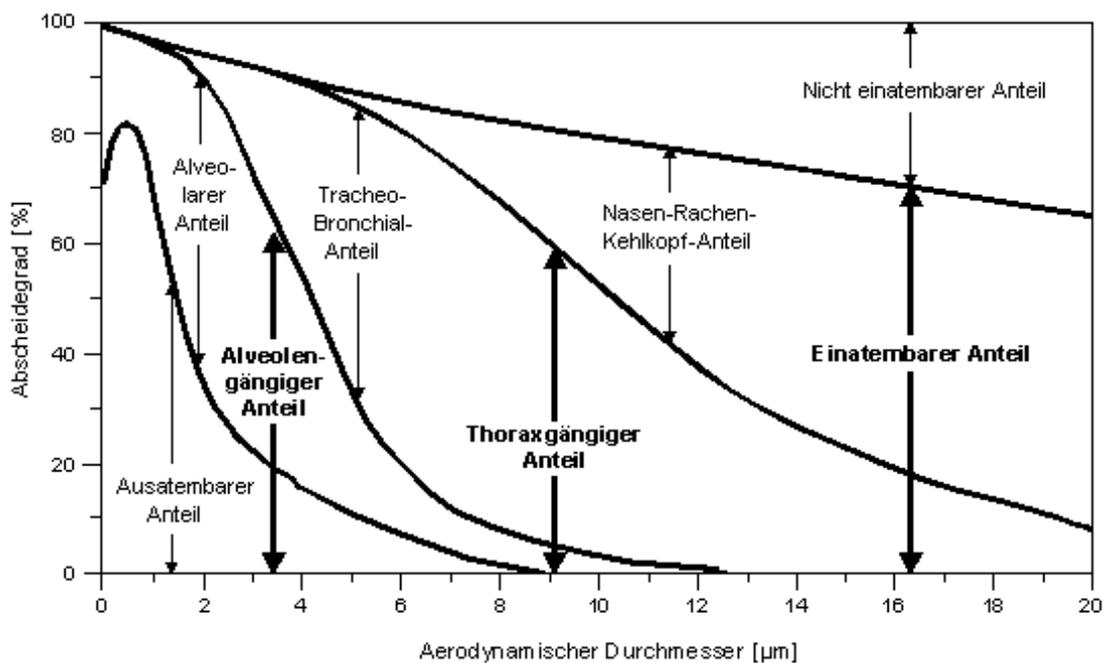


Abb. 3.8 Abscheidegrad für Aerosole in verschiedenen Bereichen des Atemtraktes als Funktion der Partikelgröße

Definition der epidemiologisch relevanten Aerosolanteile nach DIN EN 481

In Abb. 3.8 ist die mittlere Wahrscheinlichkeit (Abscheidegrad) für Partikel, in bestimmte Bereiche des Atemtraktes (Nasen- und Rachenraum, Kehlkopf und Bronchien, Alveolen) vorzudringen, in Abhängigkeit vom aerodynamischen Durchmesser dargestellt. Der Abscheidegrad der einzelnen Anteile der Partikelgrößenfraktionen ist bezogen auf das

gesamte luftgetragene Partikelkollektiv. In erster Näherung kann die PM₁₀-Fraktion mit der thorakalen Fraktion gleichgesetzt werden. Die alveolare Fraktion für die Risikogruppe (Kranke, geschwächte Personen, Kinder) wird durch PM_{2,5} angenähert.

Bei der Inhalation können radioaktive Aerosole über den Atemtrakt in den Blutkreislauf gelangen. Zur Berechnung der daraus resultierenden Strahlenexposition wird der Atemtrakt nach /ICRP 94a/ in fünf Bereiche mit insgesamt zwölf Kompartimenten unterteilt, die jeweils unterschiedliche biokinetische Eigenschaften aufweisen (siehe Abb. 3.9).

Der extrathorakale Bereich des Atemtrakts umfasst:

- den vorderen Nasenbereich (ET₁; 1 Kompartiment),
- den hinteren Nasenbereich, Mund, Rachen und Kehlkopf (ET₂; 2 Kompartimente).

Der thorakale Bereich des Atemtrakts umfasst:

- den Bronchialbereich (BB; 3 Kompartimente),
- den Bronchiolarbereich (bb; 3 Kompartimente),
- den Alveolarbereich (Al; 3 Kompartimente).

Die durchschnittlichen Halbwertszeiten für den Aufenthalt von Partikeln in den einzelnen Bereichen des Atemtrakts betragen laut /ICRP 94a/:

- ET₁: 17 Stunden,
- ET₂: 10 Minuten,
- BB: 100 Minuten,
- bb: 8 Stunden bzw. 23 Tage (zwei Fraktionen),
- Al: 35 Tage, 700 Tage bzw. 7000 Tage (drei Fraktionen).

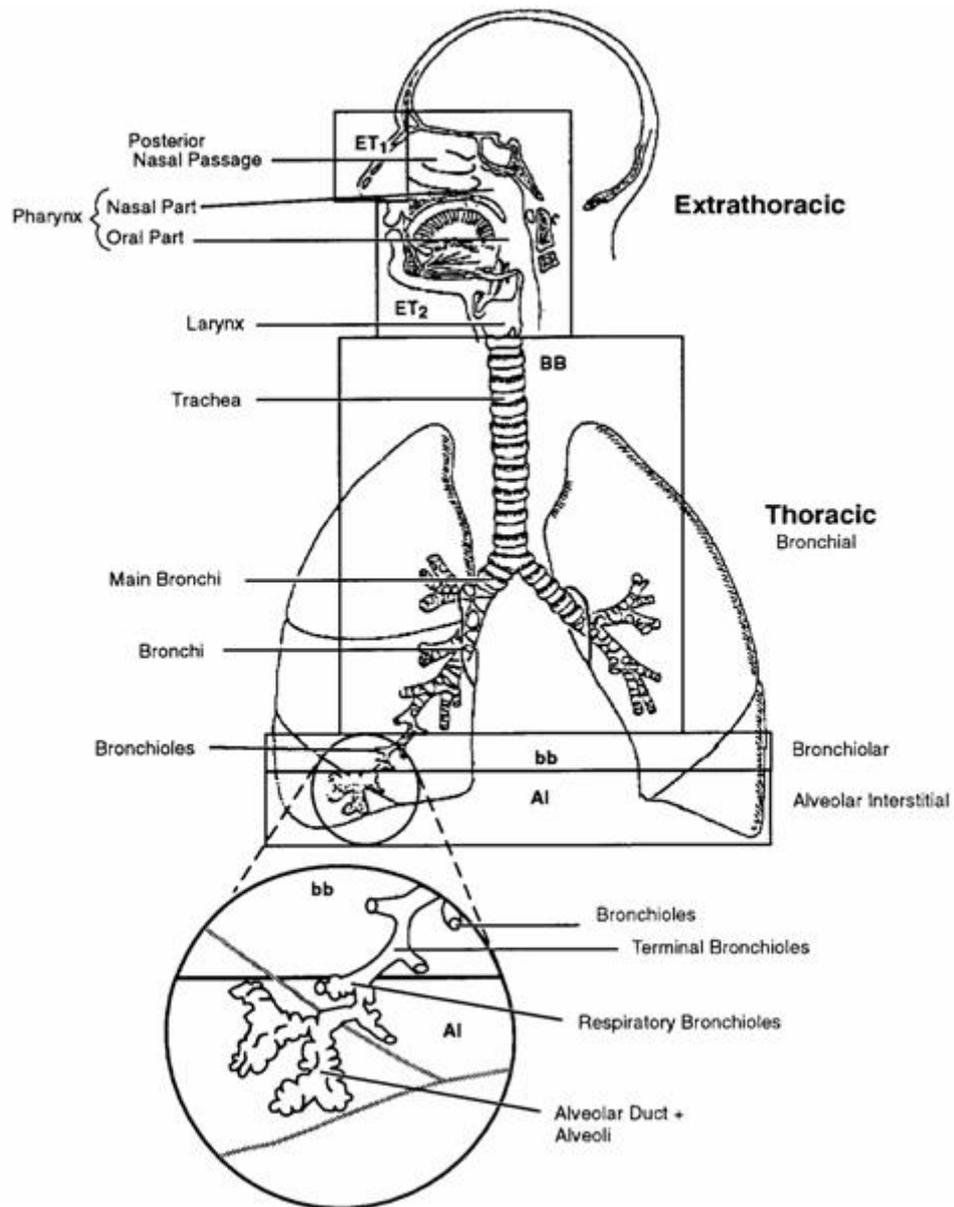


Abb. 3.9 Kompartimente des menschlichen Atemtrakt-Modells der ICRP

/ICRP 94a/

Das Atemtrakt-Modell der ICRP geht davon aus, dass sich Aerosole mit unterschiedlicher Wahrscheinlichkeit in den Kompartimenten ablagern, wobei neben Atemfrequenz und Lebensalter verschiedene Parameter, insbesondere Durchmesser und Dichte der Teilchen – nicht jedoch die Art der Substanz – zu berücksichtigen sind. Demgegenüber ist die Ablagerung von Gasen materialabhängig und wird durch die Löslichkeit und die chemische Reaktivität der Substanz bestimmt.

Im Gegensatz zu gasförmigen Stoffen kommt es bei der Inhalation von festen oder flüssigen Aerosolteilchen im Atemtrakt zu Ablagerungsvorgängen (Deposition). Ablagerungsort sowie Abscheidegrad hängen entscheidend von der Größe, der Form und der Dichte der inhalierten Partikel ab. Darüber hinaus beeinflussen auch die individuelle Form des Atemtraktes sowie die Art der Atmung das Depositionsverhalten. Der menschliche Atemtrakt ist unter anderem dadurch charakterisiert, dass mit zunehmender Eindringtiefe in den Atemtrakt der Gesamtquerschnitt, der sich verzweigenden Atemwege zunimmt, wobei gleichzeitig die Strömungsgeschwindigkeit abnimmt. Da inhalierte Aerosolteilchen somit im Bereich der Nase und des Rachens am schnellsten strömen, große Teilchen dieser Bewegung aufgrund ihrer Trägheit aber nur bedingt folgen können, kommt es im extrathorakalen Bereich vornehmlich zu Ablagerungen größerer Teilchen (Grobstaub). Kleinere Teilchen (Feinstaub) können tiefer in die Bronchien eindringen, wobei die kleinsten Teilchen bis in die Lunge gelangen. Im Atemtrakt-Modell nach /ICRP 94a/ sind Aerosolgrößen von 0,6 bis 100 µm für die Deposition berücksichtigt.

Aus der Aerosolkonzentration, der das Anlagenpersonal bzw. die Bevölkerung bei einem Störfallereignis ausgesetzt ist, sowie aus dem Atemvolumen und der Depositionswahrscheinlichkeit im Respirationstrakt ergibt sich die Partikeldosis, die mit einer toxischen Wirkung in Beziehung gesetzt werden kann. Da ein Teil der deponierten Dosis durch entsprechende Reinigungsmechanismen aber mehr oder weniger schnell wieder aus der Lunge entfernt werden kann, darf im Allgemeinen nicht die deponierte Dosis, sondern nur die retinierte Dosis, d. h. die Differenz aus deponierter und abtransportierter Dosis, mit der beobachteten Wirkung ursächlich in Beziehung gesetzt werden. Nur wenn 100 % der deponierten Dosis auch retiniert werden (z. B. bei leichtlöslichen Aerosolen), entspricht die deponierte Dosis auch der Wirkdosis.

Die Elimination („Clearance“) schwerlöslicher Stäube aus dem Bronchialtrakt erfolgt, indem das Flimmerepithel und die Zilien (Flimmerhärchen) den Bronchialschleim und die darin festgehaltenen Partikel in Richtung Kehlkopf transportieren, wo er abgehustet und zum Teil verschluckt wird. Die ca. 0,2 mm großen Endausstülpungen der Atemwege, die sogenannten Alveolen, haben kein Flimmerepithel, und die Reinigung von partikelförmigen Ablagerungen erfolgt durch bewegliche Fresszellen, die sogenannten Makrophagen. Diese Zellen versuchen die inkorporierten Partikel aufzulösen und/oder diese über die Lymphbahnen und den Bronchialtrakt abzutransportieren. Lassen sich die Partikel nicht auflösen, reichern sie sich in den Makrophagen an, und es kann zu zytotoxischen Effekten (Schädigung von Gewebezellen) mit Auswirkungen auf das umgebende

Lungengewebe kommen. Die Mechanismen der Partikelaufnahme der Makrophagen und die biologische Wirkung sind abhängig von den Partikeleigenschaften, vor allem aber von der Partikelgröße. In diesem Zusammenhang sind besonders die ultrafeinen Partikel ($D < 100 \text{ nm}$) und die Nanopartikel ($D < 50 \text{ nm}$) von Bedeutung. Partikel aus Substanzen, die im μm -Größenbereich nicht krebserregend sind, können dies im nm-Größenbereich sehr wohl sein. Die Kinetik der Clearance wird im Atemtrakt-Modell nach /ICRP 94a/ mit verschiedenen Transferraten beschrieben, die den konkurrierenden Prozessen von Teilchentransport in der Lunge und Übertritt ins Blut Rechnung tragen, siehe Gleichung (3.6)

$$\frac{dR_i(t)}{dt} = -\lambda_i(t) \cdot R_i(t) + m_{ji}(t) \cdot R_j(t) \quad (3.6)$$

t	Zeitdauer seit der Aufnahme des Radionuklids
$R_i(t)$	verbliebene Menge des Radionuklids im Atemtrakt-Bereich i (ET ₂ , BB, bb oder AI)
$\lambda_i(t)$	gesamte momentane Clearance-Rate des Bereichs i
$m_{ji}(t)$	Transferrate vom Bereich j in den Bereich i

Die aus den biokinetischen Modellen berechneten Dosiskoeffizienten für die Inkorporation von Radionukliden durch Inhalation und Ingestion sind in /ICRP 95a/, /ICRP 95b/ (für Personen der Bevölkerung) bzw. in /ICRP 94b/ (für beruflich strahlenexponierte Personen) tabelliert. Bei der Berechnung der Dosiskoeffizienten für die Bevölkerung wird ein Referenzaerosol mit einem AMAD von $1 \mu\text{m}$ zugrunde gelegt. Das Referenzaerosol für beruflich strahlenexponierte Personen hat einen AMAD von $5 \mu\text{m}$, eine Dichte von 3 g/cm^3 und einen Formfaktor von 1,5 /ICRP 94a/. Der genannte AMAD-Wert stützt sich auf eine Reihe voneinander unabhängiger Messungen in verschiedenen Industriezweigen der Kerntechnik /DOR 95/, /KEL 96/, /ANS 97/, /ANS 02/. Repräsentative AMAD-Messwerte für unterschiedliche Anlagentypen sind in den Tab. 3.5 und Tab. 3.6 zusammengefasst.

Tab. 3.5 AMAD-Messwerte für Anlagen des Brennstoffkreislaufs in Frankreich

/ANS 97/

Anlage	Jahr	Chemische Verbindung	Anzahl der Messungen	AMAD-Bereich (μm)	Median (μm)
FBFC	1987	UO ₂ , U ₃ O ₈	7	2,9 – 8,2	4,7
	1992	UO ₂ , U ₃ O ₈	37	1,8 – 5,8	3,9
	1993–1995	UO ₂ , U ₃ O ₈	65	1,3 – 9,0	5,8
COGEMA	1990	UO ₂ , U ₃ O ₈	6	3,0 – 8,2	6,1
COMURHEX	1988	UF ₄	3	6,8 – 9,0	8,0
	1988	(NH ₄) ₂ U ₂ O ₇	2	7,8 – 8,0	7,9
	1992	U ₃ O ₈	2	4,4 – 7,0	5,8
	1994	UO ₃	1	–	3,1

Tab. 3.6 AMAD-Messwerte für verschiedene nukleare Anlagentypen weltweit

/DOR 95/

Anlagentyp	Anzahl der Messungen	AMAD-Bereich (μm)	Median (μm)
Kernkraftwerke	39	0,28 – 7,2	3,9
Kernbrennstoffkreislauf	57	0,34 – 16,5	3,8
Uranerzaufbereitung	13	0,50 – 16	6,8

Die prozentuale Verteilung der abgelagerten Aerosole mit 1 μm , 5 μm bzw. 10 μm AMAD auf die verschiedenen Bereiche des Atemtraktes entsprechend dem ICRP-Modell /ICRP 94a/ ist in Tab. 3.7 spezifiziert. Aufgrund der Messunsicherheit werden neben dem Referenzaerosol mit 5 μm AMAD auch Aerosole mit 1 μm bzw. 10 μm AMAD berücksichtigt.

Tab. 3.7 Ablagerungscharakteristik von Aerosolen mit 1 µm, 5 µm bzw. 10 µm AMAD

Bereich	AMAD = 1 µm	AMAD = 5 µm	AMAD = 10 µm
ET ₁	16,5%	33,9%	34,7%
ET ₂	21,1%	39,9%	38,4%
BB	1,2%	1,8%	1,3%
bb	1,7%	1,1%	0,6%
Al	10,7%	5,3%	2,4%
Gesamt	51,2%	82,0%	77,4%

Abb. 3.10 veranschaulicht den nach dem ICRP-Modell berechneten Abscheidegrad in den verschiedenen Bereichen des Atemtraktes als Funktion der Partikelgröße. Gemäß /ICRP 94a/ gilt für den Abscheidegrad η eines Atemtraktbereichs die Beziehung nach Gleichung (3.7).

$$\eta = \sqrt{(\eta_{ae})^2 + (\eta_{th})^2} \quad (3.7)$$

Dabei resultiert der Anteil η_{ae} aus aerodynamischen Depositionsprozessen (Sedimentation und Impaktion) und der Anteil η_{th} aus thermodynamischen Depositionsprozessen (Diffusion). Die Ablagerungscharakteristik ist durch ein Minimum im Größenbereich 0,1 – 1 µm aerodynamischer Durchmesser gekennzeichnet. Oberhalb von 1 µm wird die Ablagerung durch Sedimentation und Impaktion bestimmt (relevante Kenngröße: AMAD), unterhalb von 0,1 µm durch Diffusion (relevante Kenngröße: AMTD).

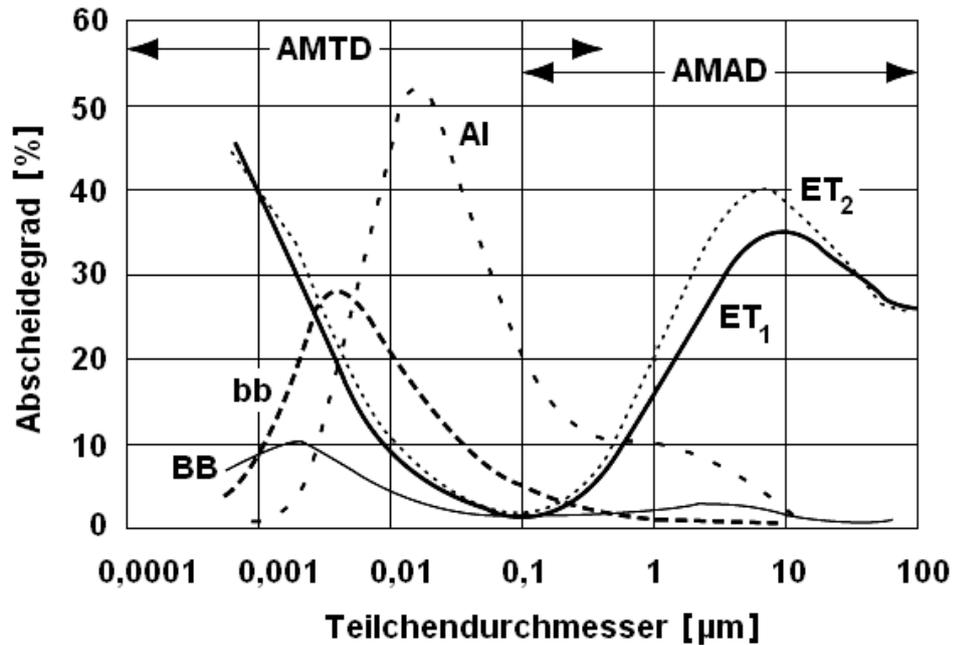


Abb. 3.10 Abscheidegrad für Aerosole in verschiedenen Bereichen des Atemtraktes als Funktion der Partikelgröße nach dem ICRP-Modell

/ICRP 94a/

Die Geschwindigkeit, mit der ein inhaliertes Radionuklid in den Blutkreislauf übergeht (Retention), hängt u. a. von seiner chemischen Form ab. Liegt das Nuklid in leicht löslicher Form vor, wird es schnell und nahezu vollständig aufgenommen. Bei schwerlöslichen Partikeln ist auch deren Größe und Form sowie der pH-Wert und die chemische Zusammensetzung der Umgebung von Bedeutung /NUK 89/, /HOR 09/.

Zum Abbau der im Atemtrakt deponierten Aktivität unterscheidet das ICRP-Atemtraktmodell zwischen biomechanischen Mechanismen (z. B. Transport über den Mukoziliarapparat der Nasenschleimhaut; Phagozytose) und biochemischen Mechanismen (systemische Absorption). Für die biomechanischen Mechanismen wird bei allen Nukliden und Verbindungen die gleiche Kinetik angenommen, während für die biochemischen Mechanismen vier Absorptionstypen F, M, S und V (s. u.) definiert werden. Die Absorptionstypen entsprechen grob den Retentionsklassen D, W und Y des alten Lungenmodells /ICRP 79/. Sie werden allerdings nicht über die biologische Halbwertszeit der Aktivität im pulmonalen Bereich definiert, sondern über die Zeitkonstanten der Absorptionsprozesse /DÖR 02/.

Die Absorption in den Blutkreislauf gliedert sich in zwei Teilprozesse, die beide zeitabhängig sind:

- Dissoziation inhalierter Partikel in Teilchen, die vom Blut absorbiert werden können („dissolution“),
- Aufnahme löslicher Partikel und dissoziierter Teilchen ins Blut („uptake“).

In /ICRP 94a/ wird für inhalede radioaktive Aerosole die Verwendung materialspezifischer Absorptionsraten empfohlen, sofern verlässliche experimentelle Daten vorliegen. Ist dies nicht der Fall, werden festgelegte Standardparameter verwendet; hierfür hat die ICRP vier verschiedene Absorptionstypen definiert, nach denen die jeweiligen Dosiskoeffizienten berechnet werden:

- Typ F („fast“): 100 % der im Atemtrakt deponierten Aktivität wird mit einer Halbwertszeit von 10 Minuten resorbiert; 50 % der im extrathorakalen Bereich (außer Nasenhöhlen) deponierten Aktivität gelangt in den Verdauungstrakt.
- Typ M („moderate“): 10 % der im Atemtrakt deponierten Aktivität wird mit einer Halbwertszeit von 10 Minuten resorbiert, die restlichen 90 % mit einer Halbwertszeit von 140 Tagen; etwa 70 % des in den Alveolen deponierten Materials gelangt in die Körperflüssigkeiten.
- Typ S („slow“): 0,1 % der im Atemtrakt deponierten Aktivität wird mit einer Halbwertszeit von 10 Minuten resorbiert, die restlichen 99,9 % mit einer Halbwertszeit von 7000 Tagen; etwa 10 % des in den Alveolen deponierten Materials gelangt in die Körperflüssigkeiten.
- Typ V: 100 % der Aktivität wird sofort resorbiert (instantane Absorption von Gasen oder Dämpfen). Keine Ablagerung in den Kompartimenten. Sofortige Aufnahme in die Körperflüssigkeiten.

Diese Werte stellen grobe Abschätzungen eines realen Nuklidgehaltes in der Lunge bzw. in einzelnen Lungenkompartimenten dar. Die Parameter Vielfalt der neuen ICRP-Modelle ist in diversen Rechencodes implementiert.

Das Absorptionsverhalten radioaktiver Aerosole in den menschlichen Körperflüssigkeiten lässt sich durch drei Parameter f_r , s_r und s_s (r = rapid, s = slow) beschreiben. Der Bruchteil f_r des absorbierten Materials wird schnell mit der Auflösungsrate s_r , der

Bruchteil $(1 - f_r)$ langsam mit der Auflösungsrate s_s aufgenommen (Abb. 3.11). Die Standardparameter für die Absorptionstypen F, M und S gemäß /ICRP 94a/ sind in Tab. 3.8 zusammengefasst.

Tab. 3.8 Standardparameter für die Absorptionstypen F, M und S

/ICRP 94a/

Parameter	Typ F	Typ M	Typ S
f_r	1	0,1	0,001
s_r [d^{-1}]	100	100	100
s_s [d^{-1}]	–	0,005	0,0001

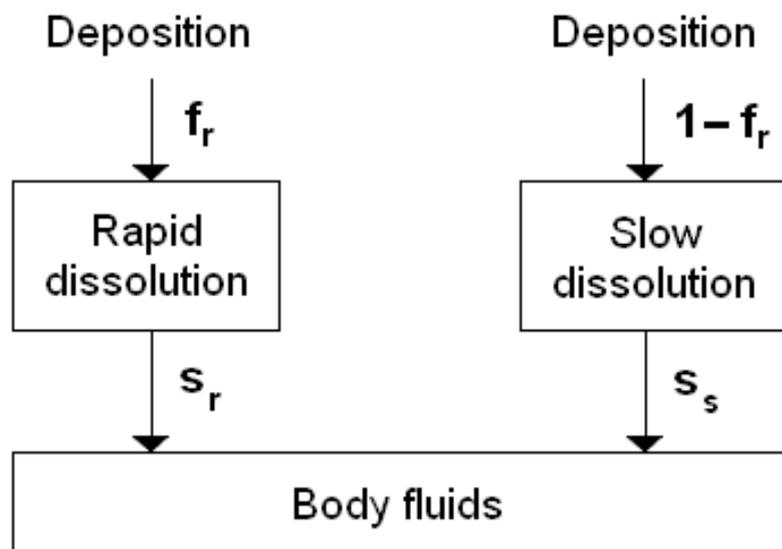


Abb. 3.11 Erläuterung der Parameter zur Modellierung des Absorptionsverhaltens radioaktiver Aerosole im ICRP-Modell

/ICRP 94a/, /DÖR 06/

Die festgelegten Standardparameter beeinflussen die Anteile der im Atemtrakt abgelagerten Radionuklide, die den Blutkreislauf erreichen, wie folgt /ICRP 94a/:

- Typ F: schnelle Absorption von nahezu 100 % des in BB, bb und Al deponierten Materials sowie von 50 % des in ET₂ deponierten Materials; bei Nasenatmung: schnelle Absorption von 25 % des deponierten Materials in ET₁ und ET₂, bei Mundatmung: schnelle Absorption von 50 % des deponierten Materials in ET₁ und ET₂.

- Typ M: ca. 70 % des in AI deponierten Materials erreicht eventuell das Blut; schnelle Absorption von 10 % des in BB und bb deponierten Materials sowie von 5 % des in ET₂ deponierten Materials; bei Nasenatmung: schnelle Absorption von 2,5 % des in ET₁ und ET₂ deponierten Materials; bei Mundatmung: schnelle Absorption von 5 % des in ET₁ und ET₂ deponierten Materials.
- Typ S: ca. 10 % des deponierten Materials in AI erreicht eventuell das Blut; geringe Absorption des in ET₁, ET₂, BB und bb deponierten Materials.

Die Absorptionstypen der in den Anlagen des Kernbrennstoffkreislaufes relevanten Uranverbindungen gemäß /ICRP 94b/ sind in Tab. 3.9, Spalte 2, zusammengefasst. Die ICRP Task Groups INDOS (*Internal Dosimetry*) und DOCAL (*Dose Calculations*) entwickeln gegenwärtig neue OIR (*Occupational Intakes of Radionuclides*) Dokumente; diese enthalten für ausgewählte Elemente und Radionuklide materialspezifische Absorptionsparameter, Dosiskoeffizienten, biokinetische und dosimetrische Modelle. Die Publikation der OIR Dokumente ermöglicht ein Update des menschlichen Atemtrakt-Modells, basierend auf umfangreichen praktischen Erfahrungen und neuen wissenschaftlichen Erkenntnissen /BAI 07/, /ICRP 07/. Mit dem vorliegenden Entwurf des Dokuments OIR-27 für Uran und seine Verbindungen (Appendix von /ICRP 07/) ergeben sich bei den Absorptionstypen einige Änderungen gegenüber /ICRP 94b/, wie aus Tab. 3.8, Spalte 3, hervorgeht.

Tab. 3.9 Absorptionstypen von Uranverbindungen im Brennstoffkreislauf

Chemische Verbindung	Absorptionstyp nach /ICRP 94b/, /BLE 03/	Absorptionstyp nach /ICRP 07/
UF ₆	F	F
UF ₄	M	M
UO ₂ F ₂	F	F
UO ₂	S	S
UO ₃	M	F oder M ⁶⁾
U ₃ O ₈	S	M
(NH ₄) ₂ U ₂ O ₇ ¹⁾	– ⁵⁾	M
(NH ₄) ₄ UO ₂ (CO ₃) ₃ ²⁾	– ⁵⁾	– ⁵⁾
UO ₂ (NO ₃) ₂ · 6 H ₂ O ³⁾	F	F
U-TBP ⁴⁾	– ⁵⁾	F
U-Metall	S	S

¹⁾ Ammoniumdiuranat (ADU), ²⁾ Ammoniumuranylcarbonat (AUC), ³⁾ Uranylnitrat-Hexahydrat,

⁴⁾ Uranyl-Tributylphosphat, ⁵⁾ nicht spezifiziert, ⁶⁾ fallspezifisch

Die Inhalation eines radioaktiven Aerosols führt praktisch immer zu einer inhomogenen Dosisverteilung in der Lunge. Die Inhomogenität ist umso größer, je größer die Aktivität der Partikel, je geringer die Lungenlöslichkeit der Partikel und je kleiner die Reichweite der emittierten Strahlenart ist /SSK 85/, /SSK 89/. Als „heiße“ Partikel bezeichnet man diejenigen radioaktiven Aerosolpartikel, die diese Eigenschaften in besonderem Maße besitzen und somit eine stark inhomogene Dosisverteilung in der Lunge bewirken. In diesem Kontext gilt vor allem eine störfallbedingte Inhalation von ²³⁹PuO₂-Partikeln als problematisch, da infolge der ungewöhnlich langen Verweilzeit von PuO₂ in der Lunge und der geringen Reichweite der emittierten α-Strahlung – weniger als 0,1 mm im menschlichen Gewebe /VOG 07/ – eine sehr hohe lokale Dosis in der unmittelbaren Umgebung eines ²³⁹PuO₂-Partikels zu erwarten ist. Der Dosiskoeffizient für die Inhalation von ²³⁹PuO₂-Aerosolen (Absorptionstyp S) beträgt $8,3 \times 10^{-6}$ Sv/Bq für 5 µm AMAD und $1,5 \times 10^{-5}$ Sv/Bq für 1 µm AMAD /FRI 02/.

Die Strahlenschutzkommission hat sich 1976 mit der Frage befasst, ob bei gleicher absorbiertener Strahlenenergie in der gesamten Lunge eine stark inhomogene Dosisverteilung biologisch wirksamer ist als eine homogene Dosisverteilung, vor allem im Hinblick auf die Induktion von Lungenkrebs /SSK 85/. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind für den Strahlenschutz von großer Bedeutung, da hiervon die Festlegung von Grenzwerten für die Inhalation unlöslicher, radioaktiver Aerosole abhängt.

Bei gleicher mittlerer Lungendosis ist die Zahl der bestrahlten Zellen bei inhomogener Bestrahlung sehr viel kleiner als bei homogener Bestrahlung. Die hohe α -Dosis in der Umgebung heißer Partikel bewirkt einen stark erhöhten Anteil abgetöteter Zellen und eine entsprechende Reduktion des Anteils mutierter Zellen. Das Verhältnis von mutierten zu abgetöteten Zellen dürfte deshalb bei inhomogener Bestrahlung kleiner sein als bei homogener Bestrahlung. Durch den sogenannten „Overkill-Effekt“ in der Umgebung heißer Partikel wird ein Teil der Strahlungsenergie biologisch unwirksam absorbiert.

Die wichtigsten Hinweise zur Radiotoxizität heißer Partikel lieferten vergleichende Inhalationsexperimente an Ratten /LAF 74a/, /LAF 74b/, /LAF 75/. Zur Untersuchung der Radiotoxizität in Abhängigkeit von der Inhomogenität der Aktivitäts- bzw. Dosisverteilung in der Lunge wurden α -Strahlung emittierende Aerosole verschiedener Actinoidenverbindungen verwendet (^{239}Pu , ^{238}Pu und ^{241}Am als Oxid in fester Form bzw. als Nitrat in Lösung; ^{244}Cm als Nitrat). Die α -Zerfallsenergien dieser Nuklide unterscheiden sich nur wenig voneinander und liegen im Bereich von 5,0 – 5,8 MeV. Die in der Lunge deponierte Aktivität wurde im Bereich von 0,01 – 10 $\mu\text{Ci/g}$ Lunge variiert und die Aktivitätsverteilung dieser Verbindungen in der Lunge mittels Autoradiographie untersucht. Demnach wurde $^{244}\text{Cm}(\text{NO}_3)_3$ annähernd homogen in der Lunge verteilt, während die Inhalation von $^{239}\text{PuO}_2$ die größte Inhomogenität aufwies. Des Weiteren wurden die Verkürzung der Lebensdauer der Tiere und die Lungenkrebshäufigkeit untersucht. Dabei zeigte sich, dass bei gleicher mittlerer Lungendosis die Radiotoxizität im Hinblick auf die Lebensdauerverkürzung mit zunehmender örtlicher und zeitlicher Inhomogenität der Dosisverteilung in der Lunge abnimmt. Die Toxizität von $^{239}\text{PuO}_2$ beträgt demnach nur etwa ein Fünftel von derjenigen des annähernd homogen in der Lunge verteilten $^{244}\text{Cm}(\text{NO}_3)_3$. Die Auswertung der Lungenkrebshäufigkeit lieferte im Prinzip das gleiche Resultat.

3.6 Aerosole aus Brand

Bei jedem Brand findet eine stoffliche und energetische Umsetzung der verbrennenden Substanzen statt. Neben der Asche, die am Brandherd verbleibt, entstehen hierbei Rußpartikel, Aerosole und Gase.

Aerosole spielen in der automatischen Branddetektion eine wichtige Rolle, denn der bei den meisten Bränden entstehende Rauch ist ein Aerosol, dessen Partikel hauptsächlich aus Kohlenstoff und H_2O bestehen.

Zur Detektion von Bränden werden unterschiedliche Sensoren eingesetzt, die auf Zustandsänderungen im Raum reagieren. Brandmelder, die auf Aerosolpartikel reagieren, können als Partikelsensoren betrachtet werden, deren Ausgangssignal von der Partikelart, der Partikelgrößenverteilung und der Partikelanzahlkonzentration abhängt. Solange kein Brand vorliegt, wird vom Sensor die am Ort der Probennahme vorliegende natürliche Hintergrundbelastung an Aerosolpartikeln gemessen. Werden von mehreren Stellen mit Hilfe eines Leitungssystems Proben zum Sensor geführt, so entsteht ein Gemisch der Aerosole der einzelnen Probennahmestellen. Das sich ergebende Ausgangssignal liegt unterhalb des Schwellwertes für einen Brand.

Die eingesetzten Brandmelder haben eine untere Nachweisgrenze im Hinblick auf die Partikelgröße, die für die Reaktionszeit eines Sensors auf einen beginnenden Brand maßgeblich ist. Da die Nanopartikel bei einem beginnenden Brand das erste Brandsignal darstellen, ist ihre Erfassung bei der Charakterisierung von Brandaerosolen von besonderer Bedeutung.

Ausgangspunkt zur Beschreibung der Reaktion eines Brandmelders ist zunächst die Partikelanzahlkonzentration in Abhängigkeit vom Partikeldurchmesser. Bei einem beginnenden Brand wird das bereits im Raum vorliegende Hintergrundaerosol durch das Brandaerosol überlagert, das aus der Dampfphase gebildet wird und deswegen zunächst aus kleinsten Partikeln (Nanopartikel) besteht, die aufgrund nachfolgend wirkender aerosoldynamischer Prozesse vergrößert werden.

Der natürliche Größenbereich der Partikeldurchmesser erstreckt sich von wenigen Nanometern bis ca. 100 μm . Ohne äußere Einflüsse bzw. ohne besondere Ereignisse stellt sich in der Raumluft eine relativ stabile Größenverteilung ein. Änderungen vollziehen sich eher langsam. Trotzdem enthält jedes Aerosol eine gewisse Dynamik, die zu

Veränderungen in den Nukleations- und Akkumulationsmoden führt. Die Coarse-Mode bleibt stabil, d. h. es kommt zu keinem Austausch mit Partikeln aus dem Nukleations- und Akkumulationsmode. Die beiden letzteren Moden hingegen unterliegen ständigen Veränderungen, insbesondere bei Bränden, aufgrund Partikelbildung aus der Dampfphase (Nukleation und Kondensation) bzw. Partikelkoagulation bei hohen Anzahlkonzentrationen (Abb. 3.12).

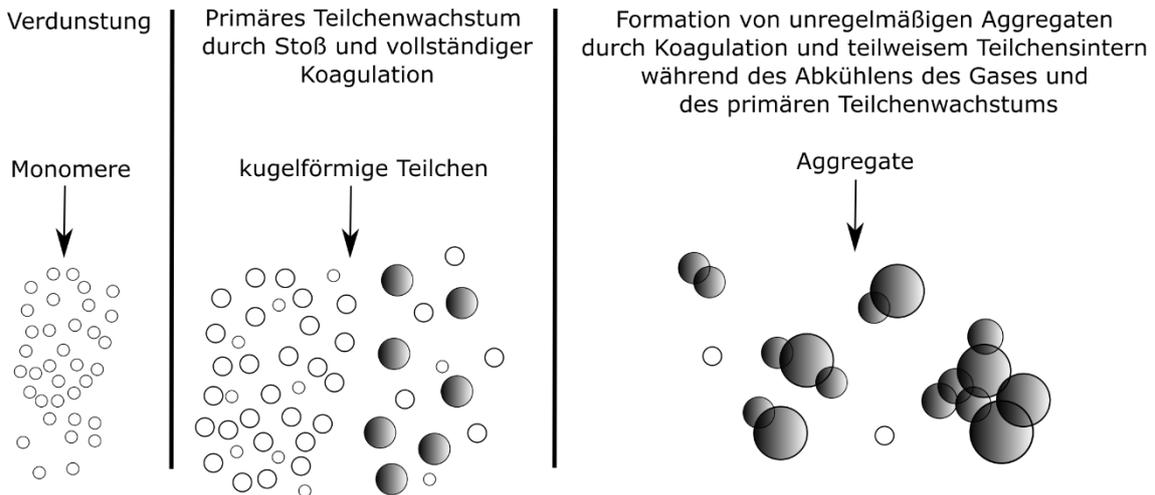


Abb. 3.12 Partikelbildung durch Nukleation, Kondensation und Koagulation

/TRA 01/

Die Partikel der Nukleationsmode wachsen praktisch in die Akkumulationsmode hinein. Aus der Dampfphase entstehen in sehr hoher Anzahlkonzentration Keime, die durch Kollisionen untereinander sowie durch Dampfkondensation weiterwachsen. Die Anzahlkonzentration in dieser Phase ist immer noch so hoch, dass die Partikel aufgrund ihrer Bewegung im Gas häufig kollidieren. Die Partikel bleiben nach der Kollision aneinanderhaften und wachsen dadurch sehr schnell weiter an. Die Anzahlkonzentration im Aerosol nimmt während der Koagulation stetig ab, wenn keine neuen Partikel zugeführt werden. Dieser Vorgang setzt sich so lange fort, bis die Wahrscheinlichkeit einer Kollision aufgrund der niedrigeren Anzahlkonzentration sehr klein geworden ist. Das Aerosol ist dann relativ stabil. Die Koagulation kann sich über einen Zeitraum von Bruchteilen einer Sekunde bis zu Minuten erstrecken /TRA 01/.

Ähnliche Vorgänge spielen sich bei Beginn eines Brandes ab. Es entstehen in unmittelbarer Nähe des Brandes sehr viele Partikel im Nanometerbereich. Mit zunehmendem Alter des Aerosols verschiebt sich die Größenverteilung zu Partikeln mit größerem Durchmesser. Messungen der Partikelgrößenverteilung haben ergeben, dass der

Partikeldurchmesser von Brandaerosolen Werte im Intervall zwischen 4,2 nm und 7,5 μm annimmt /TAM 99/.

In Abb. 3.13 sind gemessene Größenverteilungen für verschiedene Testbrandaerosole zu Beginn eines Brandes dargestellt. Hierfür kam ein Messsystem zum Einsatz, welches Partikel in einem Bereich von 20 nm bis ca. 1 μm mit einer Zeitauflösung von 20 Minuten detektiert. Ab einem Partikeldurchmesser von 100 nm bis zur unteren Nachweisgrenze von 20 nm zeigen sich aber schon größere Fehler in der Messung; diese sind u. a. auf Verluste im Messgerät und auf die mit abnehmender Partikelgröße abnehmende Größenauflösung zurückzuführen.

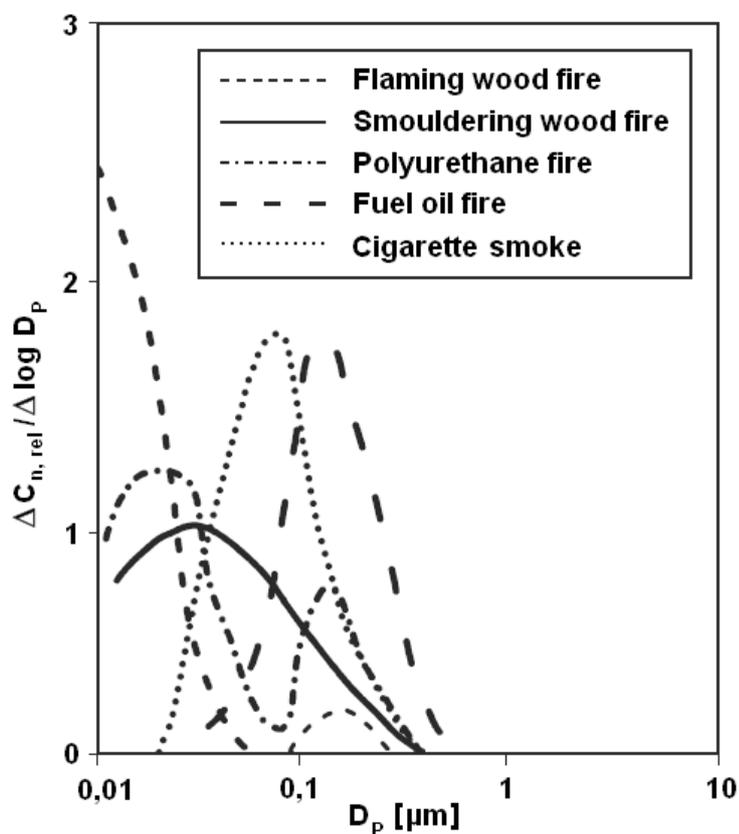


Abb. 3.13 Größenverteilungen verschiedener Testbrandaerosole

/FIS 78/

Bei offenem Holzbrand erkennt man den Nukleationsmode, dessen Maximum vom Messsystem nicht vollständig erfasst werden konnte, da dessen untere Nachweisgrenze hierzu nicht ausreichte. Das Aerosol des Holzbrandes bildet ab 100 nm einen zweiten Mode, hier noch mit einer geringen Anzahlkonzentration. Der Kunststoffbrand zeigt schon deutlicher den Akkumulationsmode. Für die Beurteilung des Brandfortschrittes

bzw. für die frühzeitige Erkennung eines entstehenden Brandes ist es also besonders wichtig, die Größenverteilung, beginnend mit Partikeln im Nanometerbereich, in ihrem zeitlichen Verlauf zu messen.

Zur Klassifizierung der verschiedenen Brandarten werden in der Praxis sogenannte Testfeuer definiert, die charakteristische Unterschiede z. B. hinsichtlich der Wärme- und Rauchentwicklung, der Aufwärtsströmung sowie der Eigenschaften der Brandaerosole aufweisen (Tab. 3.10).

Tab. 3.10 Klassifizierung von Testbränden. W: Wärmeentwicklung, R: Rauchentwicklung

Typ	Brandart	Brandmaterial	Wärme- und Rauchentwicklung	Aufwärtsströmung	Aerosolcharakteristik
TF1 ¹⁾	offener Zellulosebrand	Holz	W: stark R: ja	stark	dunkel
TF2 ²⁾	Pyrolyse-Schmelbrand	Holz	W: vernachlässigbar R: ja	schwach	hell, stark streuend
TF3 ²⁾	Glimm-Schmelbrand	Baumwolle	W: vernachlässigbar R: ja	sehr schwach	hell, stark streuend
TF4 ²⁾	offener Kunststoffbrand	Polyurethan	W: stark R: ja	stark	sehr dunkel
TF5 ²⁾	Flüssigkeitsbrand	n-Heptan	W: stark R: ja	stark	sehr dunkel
TF6 ¹⁾	Flüssigkeitsbrand	Ethanol	W: stark R: nein	stark	keine
TF8 ³⁾	Flüssigkeitsbrand	Decalin	W: vernachlässigbar R: ja	schwach	sehr dunkel

¹⁾ nach EN 54-9; ²⁾ nach EN 54-7; ³⁾ nach EN 54-15 (in Vorbereitung); derzeit gilt CEA Norm 4021.

4 Quelltermerstellung bei der Freisetzung von Radionukliden

Die Bestimmung der Freisetzung von Radionukliden bei Störfällen im Rahmen von Störfallanalysen (Quelltermbestimmung) stellt eine komplexe Aufgabe dar, da eine Vielzahl von Einflussgrößen bzw. -parametern zu berücksichtigen sind, die sich theoretisch wie praktisch nur schwer quantifizieren lassen. Hierzu zählen u. a.:

- Festlegung realistischer Randbedingungen beim Störfall,
- Ableitung des Schadensbildes,
- Ableitung von Lastannahmen,
- Spezifizierung des betroffenen radioaktiven Stoffs mit zu berücksichtigenden Barrieren,
- Definition von Ereignisgruppen,
- Bestimmung der Bildung ausbreitungsfähiger radioaktiver Stoffe,
- Bestimmung der Barrierequalität,
- Übergang der ausbreitungsfähigen radioaktiven Stoffe in die Atmosphäre am Störfallort.

Das Ergebnis der Quelltermbestimmung ist entweder ein Vektor aus nuklidspezifischen Aktivitäten oder nuklidgruppenspezifischen Freisetzunganteilen, sowie Angaben zur Größenverteilung der freigesetzten Aktivität.

Unter den Randbedingungen werden die Annahmen verstanden, die zur Ableitung des Schadensbildes im betrachteten Störfall und zur Quantifizierung von Lastannahmen getroffen werden. Für die Ableitung des Schadensbildes werden die möglichen Störfallszenarien und die daraus resultierenden Schadensmechanismen diskutiert. Je nach Schadensbild können daraus unterschiedliche mechanische und thermische Lasten resultieren. Anhand der Schadensbilder werden anschließend die abdeckenden Lastannahmen für die Abfall- bzw. Transportbehälter, Handhabungs- oder Lagereinrichtungen ermittelt. Diese in Deutschland für verschiedene Anlagen praktizierte Vorgehensweise bei Störfallanalysen entspricht weitgehend der aktuellen Vorgehensweise in den IAEA Sicherheitsanforderungen für Anlagen des nuklearen Brennstoffkreislaufs /IAEA 17/.

Aus dem jeweiligen Umfeld, den Randbedingungen und dem Schadensbild ergibt sich der betroffene radioaktive Stoff, der der Freisetzung unterworfen ist. Da in Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung üblicherweise Barrieren zwischen radioaktiven Stoffen und der Atmosphäre bestehen, ist für die Freisetzung von Radionukliden die Bestimmung der Barrierequalität wesentlich relevant.

Auch wenn die Barriere beeinträchtigt ist, können nur die Stoffe freigesetzt werden, die potenziell luftgetragen ausbreitungsfähig sind, also Partikel mit einem aerodynamischen Durchmesser $AED < 10 \mu\text{m}$ oder gasförmige Stoffe. Diese liegen entweder bereits vor Störfalleintritt in entsprechender Form vor, z. B. Pulver für die Brennstofftablettenherstellung, oder entstehen erst beim Störfall.

Von dem ausbreitungsfähigen Anteil des radioaktiven Stoffes tritt wiederum nur ein geringer Teil in die Atmosphäre über. Dieser Anteil wird üblicherweise als Freisetzunganteil oder Freisetzungsfaktor bezeichnet.

4.1 Definition von Ereignisgruppen

Die Definition von Ereignissen bzw. Ereignisgruppen wird in Schritt 3.B in Annex III von /IAEA 17/ gefordert. Jedes identifizierte Ereignis wird charakterisiert nach

- Ort des Auftretens (vgl. auch Kap. 4.1.1)
- Auslösendes Ereignis oder Störfallursache bzw. Ereignisursache (vgl. auch Kap. 4.1.1)
- Schadensbild (vgl. auch Kap. 4.1.2)
- Lastannahmen (vgl. auch Kap. 4.1.3)
- Betroffener radioaktiver Stoff (vgl. auch Kap. 4.1.4)

Gleichartige Ereignisse können zu Ereignisgruppen zusammengefasst werden, z. B. „Gebindeabsturz von einem Kran“ oder „Brandereignisse mit unterschiedlichen Brandlasten“. Bei diesen Ereignisgruppen gelten die Ereignisse mit den höchsten Lastannahmen oder dem höchsten radioaktiven Inventar als Auslegungsstörfälle.

Für die Auslegungsstörfälle oder die sonstigen einzelnen identifizierten Ereignisse können dann die Freisetzunganteile ermittelt werden.

4.1.1 Festlegung der Randbedingungen

Die Randbedingungen für die Quelltermbestimmung entsprechen den in /IAEA 17/ Annex III als „Input Data“ aufgeführten Informationen:

- Auslegungsspezifikationen auf Basis eingesetzter Produkte, ausgeführter Prozesse sowie Produktionsmöglichkeiten,
- Schutzziele,
- Definition erforderlicher Sicherheitsfunktionen (bei deren Verlust radioaktive Stoffe freigesetzt werden).

In der Praxis gehören hierzu die Verteilung der radioaktiven Stoffe in der Anlage, der Abschluss dieser Stoffe von der Raumatmosphäre (Verpackung, Einschluss in Handschuhkästen usw.), Geometrien wie Raumgrößen, Weglängen oder Hubhöhen, Brandlasten, Barrieren, Geschwindigkeiten und Massen von beweglichen Objekten, usw.

Die Randbedingungen ergeben sich bei in Betrieb befindlichen Anlagen aus den Gegebenheiten vor Ort, bei geplanten Anlagen aus den Planungsgrundlagen. Sind bei geplanten Anlagen Randbedingungen noch nicht festgelegt, werden für die Störfallanalyse Annahmen getroffen, die dann an anderer Stelle, z. B. in der Genehmigung, festgeschrieben werden.

4.1.2 Ableitung des Schadensbildes

Die für die Quelltermbestimmung zu berücksichtigenden Schadensbilder ergeben sich aus den in /IAEA 17/ Annex III als „Identifizierung von Gefahren“ dargestellten Ereignissen (adaptiert auf deutsche Terminologie):

- Einwirkung von außen,
- Einwirkung von innen,
- Ausfall von Strom und Medienversorgung,
- Fehler beim Einsatz von Elektrizität und Chemikalien,
- Mechanisches Versagen, einschließlich Abstürzen und Anprall, Versagen von druckführenden Komponenten, Leckagen und Anschlussfehlern,

- Fehler von, und menschliches Versagen mit, Leittechnikeinrichtungen,
- Interne Feuer und Explosionen,
- Überflutung (wird hier nicht weiter behandelt).

Auf Basis dieser Ereignisse werden Schadensszenarien abgeleitet (Schritt 3 in Annex III von /IAEA 17/), z. B. Fall von einer Hebeeinrichtung oder Entwicklung eines Vollbrandes.

4.1.3 Ableitung von Lastannahmen

Die Lastannahmen ergeben sich aus der Kombination des Schadensbilds und der Randbedingungen. Ist z. B. das Ereignis „Absturz von verpackten radioaktiven Stoffen“ als Schadensbild nicht auszuschließen, so bestimmen die Randbedingungen, in diesem Fall die maximale Hubhöhe, die spezifische maximale mechanische Beaufschlagung. Ein anderes Beispiel ist die Ableitung einer Brandzeit-Temperatur-Funktion aus den vorhandenen Brandlasten, welche die thermische Beaufschlagung bestimmt.

4.1.4 Spezifizierung des betroffenen radioaktiven Stoffs mit zu berücksichtigenden Barrieren

Die Spezifizierung des betroffenen radioaktiven Stoffes ist ebenfalls Bestandteil von Schritt 3 in Annex III von /IAEA 17/. Sie ergibt sich aus den Randbedingungen, wie sie in Kap. 4.1 ermittelt bzw. festgelegt wurde. Beispiele sind das Nuklidinventar eines Handschuhkastens, eines Caissons oder eines Abfallgebindes.

4.2 Bestimmung der Bildung ausbreitungsfähiger radioaktiver Stoffe

Bei der Bestimmung der Bildung ausbreitungsfähiger radioaktiver Stoffe werden ausschließlich Ereignisse mit mechanischer, thermischer oder kombinierter mechanisch-thermischer Belastung betrachtet. Die Freisetzung infolge von Kritikalitätsstörfällen wird nicht berücksichtigt, da davon ausgegangen wird, dass hiergegen ausreichende Vorsorgemaßnahmen getroffen werden, z. B. durch inhärent sichere Auslegung (deterministischer Ausschluss). Aus dem gleichen Grund wird keine Freisetzung durch Überflutung berücksichtigt.

4.2.1 Bildung ausbreitungsfähiger radioaktiver Stoffe bei mechanischer Belastung

Als ausbreitungsfähig gelten radioaktive Stoffe mit einem aerodynamisch äquivalenten Durchmesser (AED) $< 70 \mu\text{m}$. Lungengängig sind nur Partikel $< 10 \mu\text{m}$. Die größeren Partikel können jedoch auch ausgebreitet werden und können zur Kontamination, Ingestion und zur γ -Strahlenbelastung beitragen. Bei der Bildung ausbreitungsfähiger radioaktiver Stoffe wird unterschieden zwischen dispergierbaren radioaktiven Stoffen (Pulvern, Schüttgütern) wie UO_2 -Pulvern zur Brennelement-Fertigung, unfixierten Pulverharzen, Aschen usw. und festen Körpern wie zementierten Abfallprodukten, Pellets, Metallkörpern und ähnlichen Stoffen.

4.2.1.1 Dispergierbare Stoffe

Dispergierbare Stoffe können bei einem Störfall offengelegt und dann ausgebreitet werden. Die Massenverteilung dispergierbarer Stoffe ergibt sich aus deren Spezifikationen oder muss durch Messungen, z. B. Siebanalysen oder aerodynamische Messungen, bestimmt werden. Spezifikationen für UO_2 -Pulver zur Pelletfertigung von Brennelementen erfordern ein Pulver mit einem AED von $< 3 \mu\text{m}$.

Siebanalysen haben gegenüber aerodynamischen Messungen den Nachteil, dass sie zur Entmischung oder Zerstörung von Partikeln bzw. Agglomeraten führen können. Die Ergebnisse der Messungen mit Siebanalyse zeigen daher im Größenbereich $< 50 \mu\text{m}$ erhöhte Werte gegenüber den aerodynamischen Methoden, im Größenbereich $> 50 \mu\text{m}$ hingegen liegen die Messwerte von Siebanalysen unterhalb derer von aerodynamischen Methoden.

Im Rahmen des Planfeststellungsverfahrens Konrad beispielsweise wurde für unfixierte radioaktive Abfälle folgende kumulierte Massenverteilung auf der Basis von Siebanalysen und aerodynamischen Messungen an Pulverharzen und Aschen ermittelt.

Tab. 4.1 Gemessener kumulierter Massenanteil unfixierter radioaktiver Abfälle in Abhängigkeit des aerodynamisch äquivalenten Durchmessers AED

AED	Kumulierter Massenanteil [%]
< 10 µm	50
< 30 µm	60
< 50 µm	70
< 70 µm	80

4.2.1.2 Feste Körper

Die Ermittlung der Bildung freisetzbarer Stoffe aus festen Körpern basiert auf theoretischen Grundlagen von Zerkleinerungsprozessen und Verteilungsfunktionen von Partikelsystemen, wobei die erforderlichen Parameter anhand experimenteller Untersuchungen ermittelt werden.

Der Bildung neuer Partikel gehen Bruchvorgänge voraus, bei denen zur Erzeugung neuer Grenzflächen Energie notwendig ist /RUM 72/. Der Quotient aus diesen neuen Grenzflächen und der zur Erzeugung aufgewendeten Energie wird als spezifische Bruchflächenenergie bezeichnet. Messungen ergaben hierfür Werte von 10^{-4} bis 10^{-3} J/cm² für Gläser, 10^{-3} bis 10^{-1} J/cm² für Kunststoffe und 10^{-2} bis 10 J/cm² für Metalle.

Die Bruchauslösung erfolgt in der Regel an Fehlstellen und Strukturstörungen durch Überschreiten kritischer Festigkeitswerte. Mit abnehmender Größe der entstandenen Bruchstücke verringert sich die spezifische Anzahl der Fehlstellen, und damit gewinnt der Körper zunehmend plastische Eigenschaften. Hierdurch wird bei kleinen Partikeln ein erhöhter Anteil der mechanischen Energie zur plastischen Verformung verbraucht, sodass für die Erzeugung kleinerer Teilchen daraus überproportional zunehmend mehr Energie aufgewendet werden muss.

Durch die Zerkleinerung fester Körper entsteht ein Kollektiv an Teilchen, welches bezüglich der Größe verteilt ist. Verteilungsfunktionen im Zusammenhang mit Partikelspektren werden als Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen (differentielle Darstellung) oder als Summenhäufigkeiten (integrale Darstellung) angegeben. Die Wahrscheinlichkeiten können sich auf die Anzahl der Partikel, die Partikeloberfläche oder die Partikelmassen (und damit auch deren Volumina) beziehen. Die massenbezogene Summenhäufigkeit von

Partikeln bis zu einem maximalen Partikeldurchmessers wird als Aerosolgenerierungsfaktor F_g bezeichnet.

Aus der Auswertung von experimentellen Untersuchungen im Rahmen des Planfeststellungsverfahrens Konrad hat sich beispielsweise als passende Verteilungsfunktion eine log-normal-Wahrscheinlichkeitsfunktion ergeben.

Damit lautet die Funktion für den Aerosolgenerierungsfaktor in Abhängigkeit von der Beaufschlagungsenergie für Partikel bis zum maximalen Partikeldurchmesser:

$$F_g = \pi^{-1/2} \int_{-\infty}^{OG} \exp(-x^2) dx \quad (4.1)$$

Die obere Integrationsgrenze OG beträgt:

$$OG = 2^{-1/2} \ln \{ [E \times d' \times \rho \times \exp \{-0.5 \times [\ln(\sigma_g)]^2\} / (6 \times b)] / \ln(\sigma_g) \} \quad (4.2)$$

E in [J/kg]	spezifische Sturz- oder Crushenergie
$d' = 1.4 \cdot 10^{-5}$ m	der maximale Partikeldurchmesser für Aerosole
$\rho = 2000$ kg m ⁻³	die Probendichte
$b = 230$ kg s ⁻²	die Oberflächenbildungsenergie
$\sigma_g = 11$	die geometrische Standardabweichung der Verteilung der Partikeldurchmesser

Die angegebenen Zahlenwerte sind beispielhaft für ein Zementprodukt, das typischerweise einen maximalen Partikeldurchmesser von 14,5 µm besitzt. Die Parameter b und σ_g wurden aus einer Vielzahl von experimentellen Untersuchungen abgeleitet /GRÜ 87/.

Abb. 4.1 zeigt den Aerosolgenerierungsfaktor F_g als Funktion der spezifischen Sturz-, Beaufschlagungs- oder Crushenergie E .

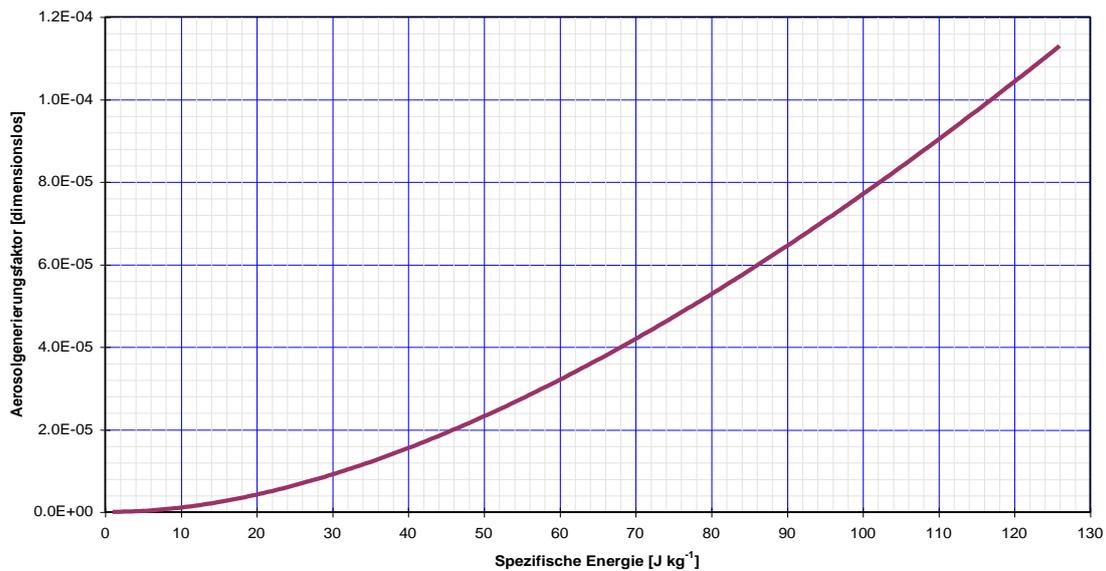


Abb. 4.1 Aerosolgenerierungsfaktor als Funktion der Beaufschlagungsenergie

In Tab. 4.2 sind Aerosoldispersierungsfaktoren für unterschiedliche Fallhöhen und maximale Partikeldurchmesser und Zementprodukte dargestellt, wie sie im Rahmen des Planfeststellungsverfahrens Konrad ermittelt wurden.

Tab. 4.2 Aerosoldispersierungsfaktoren für Zementprodukte

Größe AED [µm]	Massensummenhäufigkeit für Fallhöhe [m]			
	1,25	2,0	3,0	5,0
10	3,9E-07	1,1E-06	2,4E-06	6,5E-06
20	1,7E-06	4,2E-06	9,2E-06	2,3E-05
30	3,7E-06	9,2E-06	1,9E-05	4,8E-05
40	6,5E-06	1,6E-05	3,2E-05	7,8E-05
50	9,9E-06	2,3E-05	4,8E-05	1,1E-04
60	1,4E-05	3,2E-05	6,5E-05	1,5E-04
70	1,8E-05	4,2E-05	8,4E-05	1,9E-04

In /SEE 83/ wurde in gleicher Art das Zerkleinerungsverhalten von UO₂-Pellets untersucht. Aus den Untersuchungen ergab sich eine geometrische Standardabweichung von 3,2 und eine Oberflächenbildungsenergie von 3.300 kg/s².

4.2.2 Bildung ausbreitungsfähiger radioaktiver Stoffe bei thermischer Belastung

Bei der Freisetzung radioaktiver Stoffe infolge thermischer Beaufschlagung wurden in den Sicherheitsanalysen für das Endlager Konrad /GRÜ 87/ vier Freisetzungsmechanismen abgeleitet, die generell für Störfallanalysen auch bei Anlagen des Brennstoffkreislaufs anwendbar sind:

- Freisetzung durch Pyrolyse radioaktiver Stoffe,
- Freisetzung durch Verbrennen radioaktiver Stoffe,
- Freisetzung durch Verdampfen von Wasser im radioaktiven Stoff,
- Freisetzung durch Sublimation bzw. Verdampfen radioaktiver Stoffe.

Eine detaillierte Beschreibung dieser Freisetzungsmechanismen findet sich in /GRÜ 87/. Mit diesen vier Grundfreisetzungsmechanismen lassen sich entweder einzeln oder in Kombination die Freisetzungen aus radioaktiven Stoffen beschreiben. Die Ermittlung der Freisetzungsanteile erfolgt für die Radionuklidgruppen:

- Halogene, ^{14}C in leichtflüchtiger Form, und sonstige leichtflüchtige Stoffe,
- Tritium (als Monowasserstoff-Monotritium-Oxid HTO),
- Radionuklide in mittelflüchtiger Form,
- nichtflüchtige und nichtbrennbare Radionuklide.

Die genannten Mechanismen werden im Folgenden überblicksartig betrachtet.

4.2.2.1 Freisetzung durch Pyrolyse

Unter Pyrolyse versteht man die thermische Zersetzung eines Stoffes. Dieser Vorgang findet dann in radioaktiven Stoffen statt, wenn die Produkttemperatur unter eingeschränktem Luftzutritt gewisse Schwellenwerte überschreitet und der radioaktive Stoff thermisch instabile Bestandteile enthält. Die gasförmigen Zersetzungsprodukte strömen als sog. Pyrolysegas aus und brennen außerhalb des radioaktiven Stoffs ab, sofern sie entzündet werden. Mit den Pyrolysegasen wird ein bestimmter Anteil der Aktivität freigesetzt.

Thermogravimetrieanalysen an Harzprodukten ergeben, dass in diesen Materialien erst bei Temperaturen oberhalb von 573 K (300 °C) Pyrolysevorgänge in nennenswertem Umfang einsetzen. Maßstäbliche Untersuchungen an Presslingen mit pyrolysefähigem Material kommen zum gleichen Ergebnis /GRÜ 87/.

Aus o.g. maßstäblichen Untersuchungen ergibt sich, dass bei vollständiger Pyrolyse maximale Freisetzunganteile von 5×10^{-3} für Cäsium als Vertreter für mittelflüchtige Radionuklide und 4×10^{-4} für Strontium als Vertreter für schwerflüchtige Radionuklide zu erwarten sind. Für leichtflüchtige Radionuklide wird ein Freisetzunganteil von 1 angesetzt.

Die Ermittlung des Freisetzunganteils durch Pyrolyse erfordert die Berechnung des instationären Temperaturfeldes (vgl. Kap. 4.2.2.6) in dem von der thermischen Beaufschlagung betroffenen radioaktiven Stoff. Für die Volumenanteile mit einer Temperatur $> 573 \text{ K}$ wird Pyrolyse mit o.g. Freisetzunganteilen angenommen.

4.2.2.2 Freisetzung durch Verbrennen

Bei der Freisetzung durch Verbrennen werden nach aktuellem Wissensstand brennbare radioaktive Stoffe, im Wesentlichen schmelzbare, brennbare Stoffe und Bitumenprodukte, im Brandfall aufschmelzen, aus einem Behälter austreten und abbrennen. Ebenso können nichtschmelzbare brennbare Stoffe, die im Störfall offengelegt werden, abbrennen.

Im Rahmen der Sicherheitsanalyse Konrad wurde eine Vielzahl von experimentellen Untersuchungen zur Freisetzung beim Verbrennen radioaktiver Stoffe ausgewertet /GRÜ 87/. Der abdeckende Freisetzunganteil, der hierbei zur Ableitung von Anforderungen an das Abfallprodukt genutzt wurde, ergab sich beim Verbrennen von mit Uranoxyd (feinpulverig mit mittlerem AED von $6 \mu\text{m}$) verunreinigten Zellstoff und Papiertaschentüchern in einem Luftstrom von 0,5 bis 1 m/s. Der Mittelwert der sonstigen Freisetzunganteile bei den berücksichtigten Untersuchungen liegt unter 1 %. Ein Wert von 10 % ist als ausreichend abdeckend für das Spektrum der berücksichtigten Untersuchungen für nicht- und mittelflüchtige Radionuklide.

4.2.2.3 Freisetzung durch Verdampfen von Wasser im Abfallprodukt

Freisetzung durch Verdampfen von Wasser oder Restfeuchte im radioaktiven Stoff, d. h. bei Temperaturen oberhalb von 100 °C bzw. 373 K, erfolgt bei Produkten, in denen Radionuklide in Wasser oder wässrigen Lösungen gelöst vorkommen, z. B. in Zementprodukten. Beim Verdampfen der Flüssigkeiten kommt es zum Mitverdampfen der gelösten Radionuklide. Das Ausmaß der Radionuklidfreisetzung wird durch die sog. Abstreiffaktoren, d. h. dem Radionuklidanteil, der bei vollständiger Verdampfung freigesetzt wird, und den über dem Siedepunkt befindlichen Volumenanteilen bestimmt. Abstreiffaktoren wurden sowohl im technischen als auch im Labormaßstab ermittelt /GRÜ 87/.

Bei den Untersuchungen im technischen Maßstab wurde während einer 70-minütigen Flammenaussetzung eines 200 l-Fasses zusammen mit ca. 10 % des gesamten Wassers ein Anteil von 10^{-5} des Cäsium-Inventars freigesetzt. Diese beiden Werte bildeten während der gesamten Freisetzungsdauer ein nahezu konstantes Verhältnis, sodass bei hypothetischer 100 %iger Wasserfreisetzung ein maximaler Freisetzunganteil von 10^{-4} zu erwarten ist.

Bei den Untersuchungen im Labormaßstab wurden beim Eindampfen von Plutoniumnitratlösung mit 90 % Volumenreduktion Freisetzunganteile in Größenordnungen von 10^{-5} bis 10^{-3} ermittelt. Der maximal ermittelte Wert bei diesen Untersuchungen von $1,8 \times 10^{-3}$ wurde beim Eindampfen durch heftiges Kochen gemessen, ein Vorgang, der zum Beispiel beim Ausdampfen von Wasser aus einer Zementmatrix bzw. aus Konzentraten ausgeschlossen werden kann. Der höchste Wert beim langsamen Eindampfen, dies entspricht in etwa den Vorgängen beim Wasseraustrag aus Zementmatrizen bzw. Konzentraten, beträgt 8×10^{-5} . Dies stellt eine gute Übereinstimmung mit dem im maßstäblichen Experiment gewonnenen Wert dar.

Der geschilderte Freisetzungsmechanismus läuft wie erwähnt erst bei Temperaturen > 373 K ab. Im Sinne einer konservativen Abschätzung wird bei der Quelltermbestimmung für das Teilvolumen mit Temperaturen > 373 K ein Freisetzunganteil von 5×10^{-4} für mittel- und schwerflüchtige Radionuklide angesetzt. Für leichtflüchtige Radionuklide und HTO kann ein Wert von 1 oder eine detaillierte Berechnung gemäß dem Freisetzungsmechanismus durch Sublimation bzw. Verdampfen (vgl. folgenden Abschnitt) herangezogen werden. Der Freisetzunganteil durch Mitverdampfung ergibt sich damit zu:

$$f_{\text{Verdampfung}} = \frac{V_{T>100^\circ\text{C}}}{V_{\text{gesamt}}} \times 5 \times 10^{-4} \quad (4.3)$$

$V_{T>100^\circ\text{C}}$ Teilvolumen mit $T > 100^\circ\text{C}$

Das Teilvolumen mit $T > 100^\circ\text{C}$ wird über instationäre Temperaturfeldrechnungen im radioaktiven Stoff bestimmt (vgl. Kap. 4.2.2.6).

4.2.2.4 Freisetzung durch Sublimation bzw. Verdampfen radioaktiver Stoffe

Die Freisetzung durch Sublimation bzw. Verdampfen radioaktiver Stoffe ist z. B. relevant für metallische Komponenten, bei denen Radionuklide als Oberflächenkontamination vorliegen. Die Bestimmung des freigesetzten Radionuklidanteils erfolgt über thermodynamische Gesetze des Stoffübergangs.

$$\dot{m}_D = \sigma_C \times \Delta C \quad (4.4)$$

\dot{m}_D Stoffübergang in $\text{kg m}^{-2} \text{s}^{-1}$
 σ_C Stoffübergangszahl in m s^{-1}
 ΔC Konzentrationsänderung in $\text{kg}_{\text{Dampf}}/\text{m}^3_{\text{Luft}}$

Der Freisetzungsanteil durch Sublimation bzw. Verdampfen ergibt sich zu:

$$f_{\text{Subl}} = \frac{1}{\rho \times \delta} \times \sum \left(\frac{V(\vartheta_i)}{V_{\text{gesamt}}} \times \dot{m}_D(\vartheta_i) \right) \times \Delta t \quad (4.5)$$

$\dot{m}_D(T)$ Temperaturabhängiger Stoffübergang (Massenstrom) für betrachtetes Radionuklid. Gerechnet wird für isotherme Volumina i mit konstanten Temperaturdifferenzen

$\rho \times \delta$ Schichtdicke einer Kontamination mal Dichte. Gerechnet werden kann mit einem Wert von $0,002 \text{ kg m}^{-2}$

Δt Zeit für einen Rechenlauf

$$\dot{m}_D(T) = \sigma_C \times \frac{M_D \times \exp(-A/T + B + C \times \ln(T))}{R \times T} \quad (4.6)$$

σ_C Stoffübergang in $\text{kg m}^{-2} \text{s}^{-2}$ (Gerechnet werden kann wie in der Systemanalyse Konrad mit einem Wert von 10^{-2})

M_D molare Masse

R allgemeine Gaskonstante ($8,3144621 \text{ J}/(\text{mol} \times \text{K})$)

T absolute Temperatur in K

A, B, C Koeffizienten zur Dampfdruckberechnung.

Weitere Details zur Herleitung der Beziehung finden sich in /GRÜ 87/.

4.2.2.5 Zusammenstellung von Freisetzungsteilen

In Tab. 4.3 sind die Freisetzungsteile verschiedener Stoffgruppen für die unterschiedlichen Freisetzungsmechanismen bei thermischer Belastung zusammengefasst.

Tab. 4.3 Freisetzungsteile bei thermischer Beaufschlagung

Freisetzungsart	leichtflüchtig	HTO	mittelflüchtig	schwerflüchtig
Pyrolyse	1	1	5 E-3 ¹⁾	4 E-4 ¹⁾
Verbrennen	1	1	0,1	0,1
Verdampfen von Wasser	1	1	5 E-4 ²⁾	5 E-5 ²⁾
Sublimation/Verdampfen	$f_i(T) (1) ^3$	$f_i(T) (0,12) ^3$	$f_i(T) (1E-5) ^3$	0

¹⁾ Bei 100 %iger Pyrolyse, ²⁾ Bei 100 %iger Verdampfung des Wassers,

³⁾ Beispiel für Container mit thermischer Abschirmung

4.2.2.6 Instationäre Temperaturfeldberechnungen

Die Ermittlung der Freisetzungsteile bei thermischer Beaufschlagung erfordert - außer bei dem Mechanismus Verbrennen - die Berechnung instationärer Temperaturfelder. Hierzu wird als Randbedingung für das physikalische Modell die Lastannahme für thermische Beaufschlagung, die Brandzeit-Temperaturfeld-Funktion angesetzt. Für den Wärmeübergang können entweder exakte Wärmeübergangsparameter durch Konvektion und Strahlung herangezogen werden, oder abdeckend wird die Brandzeit-Temperaturfeld-Funktion der äußeren Begrenzung des radioaktiven Stoffes aufgeprägt.

Abb. 4.2 und Abb. 4.3 zeigen exemplarisch Temperaturfelder in einem Container für einen einstündigen Brand. Abb. 4.2 gibt die Temperaturverteilung V unmittelbar nach Brandende, Abb. 4.3 nach weiteren zwei Stunden Abkühlen wieder.

Aus diesen dreidimensionalen Temperaturfeldern ergeben sich dann durch numerische Integration die zeitabhängigen isothermen Volumenanteile. Vergleiche Abb. 4.4 als Beispiel für die Aufheizung eines typischen Konrad-Containers. Üblicherweise ist die Betrachtung eines Zeitraums von 20 bis 24 Stunden ausreichend.

Aus dem Verlauf der isothermen Volumenanteile ergibt sich entsprechend den o. g. physikalischen Modellen der Verlauf der Freisetzungsteile, siehe Abb. 4.5.

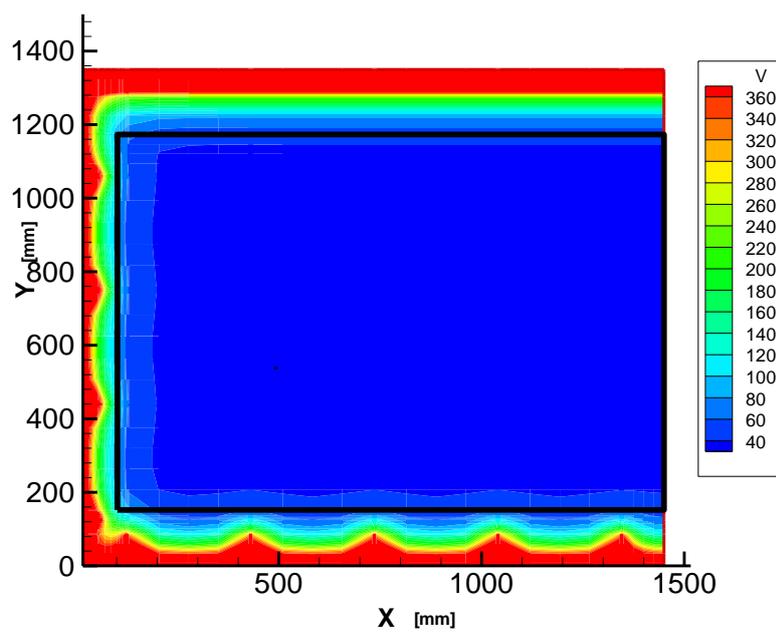


Abb. 4.2 Temperaturfeld 1 h nach Brandbeginn (in 38 cm Tiefe von der Containerwand)

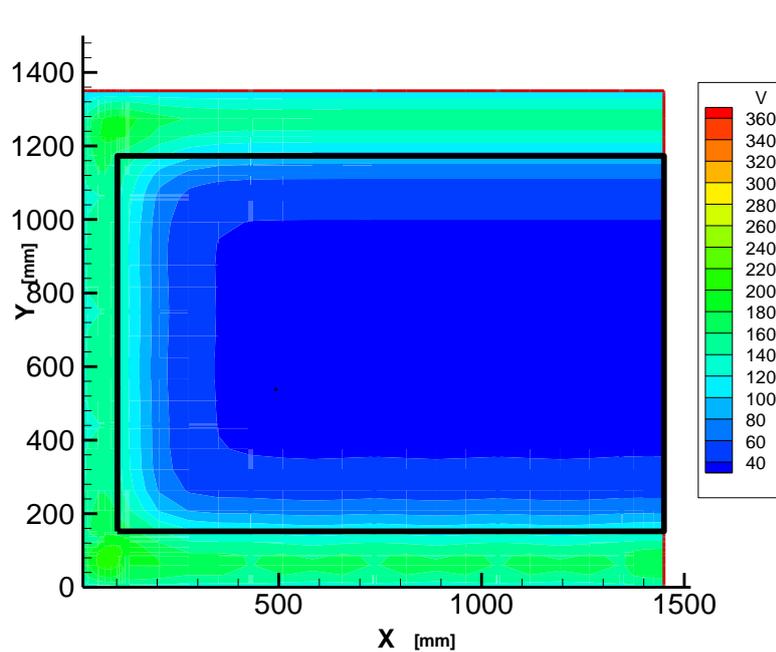


Abb. 4.3 Temperaturfeld 3 h nach Brandbeginn (in 38 cm Tiefe von der Containerwand)

Isotherme Volumenanteile des Abfallprodukts

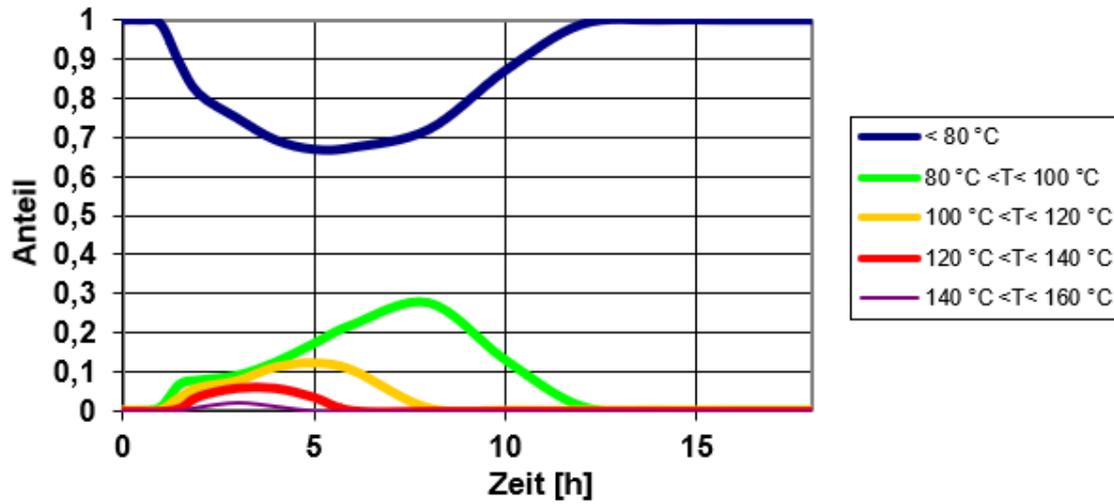


Abb. 4.4 Entwicklung der betrachteten Teilvolumina für vorgegebene Isotherme im Abfallprodukt in einem Container Typ IV

Freisetzunganteile des Abfallprodukts

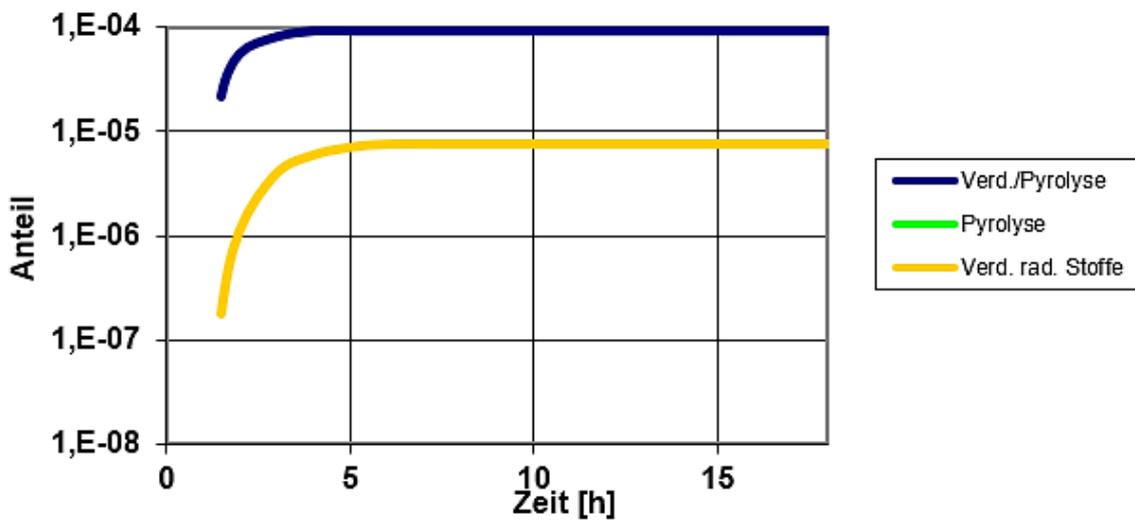


Abb. 4.5 Entwicklung der Freisetzunganteile aus einem Container Typ IV

Die grüne Kurve liegt dabei unter der blauen.

4.2.3 Bildung ausbreitungsfähiger radioaktiver Stoffe bei kombinierter Belastung

Wird ein radioaktiver Stoff zuerst mechanisch und dann thermisch beaufschlagt, z. B. bei einer Kollision mit Folgebrand, so ist zunächst die Bildung der freisetzbaren radioaktiven Stoffe durch mechanische Beaufschlagung entsprechend Kap. 4.2.1 zu ermitteln, und anschließend für die beschädigte Konfiguration der radioaktiven Stoffe die Freisetzung infolge thermischer Beaufschlagung wie in Kap. 4.2.2 beschrieben.

4.3 Freisetzung aus radioaktiven Stoffen ohne Umschließung

Die in Kap. 4.1.4 ermittelten ausbreitungsfähigen radioaktiven Stoffe können nur zum Teil in die umgebende Atmosphäre freigesetzt werden, selbst wenn keine Barrierewirkung berücksichtigt werden kann. Dabei ist die Belastungsart zu berücksichtigen.

4.3.1 Freisetzung ausbreitungsfähiger radioaktiver Stoffe bei mechanischer Belastung

Bei den, gemäß Kap. 4.2.1, gebildeten ausbreitungsfähigen Stoffen handelt es sich um dispergierbare Feststoffe. Von diesen dispergierbaren Feststoffen kann aus physikalischen Gründen nur ein geringer Anteil in die Atmosphäre freigesetzt werden, hauptsächlich, weil die maximale Aerosolmasse in Luft auf wenige μg bis mg begrenzt ist.

Da geeignete theoretische Verfahren zur Bestimmung dieses Anteils fehlen, sind experimentelle Untersuchungen durchgeführt worden, um das Freisetzungsverhalten in Abhängigkeit verschiedener Einflussgrößen zu quantifizieren. Im Rahmen der Sicherheitsanalyse Konrad wurde beispielsweise zur Durchführung der Untersuchungen ein mit verschiedenen pulvrigen Substanzen gefüllter Behälter in einer geschlossenen Kammer aus unterschiedlichen Höhen fallengelassen.

Der Behälter ist so konstruiert, dass er beim Aufprall die Seitenwände abklappt, sodass die Freisetzung nicht durch eine Restbarrierewirkung des Behälters beeinflusst wird. Die Kammer ist so instrumentiert, dass eine zeit-, größen- und höhenabhängige Messung der Partikelkonzentration möglich ist. Die Untersuchungen erfolgen mit und ohne Ventilation.

Für das in Kap. 4.2.1.1 beschriebene Partikelsystem wurden die in Tab. 4.4 dargestellten größen- und belastungsabhängigen Freisetzungsanteile abgeleitet. Eine ausführliche Herleitung dieser Werte findet sich in /GRÜ 87/.

Tab. 4.4 Größen- und belastungsabhängige Freisetzungsanteile für Partikelsysteme

Partikel Größen Bereich	5 m-Fall mit Ventilation [%]	2 m-Fall mit Ventilation [%]	3 m-Fall ohne Ventilation [%]	1 m-Fall ohne Ventilation [%]
< 10 µm	0,18	0,063	0,039	0,011
< 30 µm	0,44	0,116	0,120	0,035
< 50 µm	0,51	0,136	0,170	0,062
< 70 µm	0,56	0,150	0,210	0,092

Partikelsysteme, die durch eine mechanische Beaufschlagung erst gebildet werden, sind massenmäßig erheblich kleiner als solche die bereits komplett pulverförmig vorliegen. Hierfür wird, auf Basis der in /GRÜ 87/ dargestellten Ableitungen, ein abdeckender Wert für den dispergierten Anteil für alle Größenklassen von 1 % abgeschätzt.

4.3.2 Freisetzung ausbreitungsfähiger radioaktiver Stoffe bei thermischer Belastung

Die gemäß Kap. 4.2.2 gebildeten radioaktiven Stoffe werden gasförmig freigesetzt. Sofern die Freisetzung nicht in einer Umschließung mit spezifizierter Dichtheit erfolgt (dichter Behälter, Autoklav, Handschuhkasten, o. ä.), ist eine 100%ige Freisetzung zu unterstellen.

4.3.3 Freisetzung ausbreitungsfähiger radioaktiver Stoffe bei kombinierter Belastung

Bei kombinierter mechanisch-thermischer Beaufschlagung ist zunächst die Freisetzung durch mechanische Beaufschlagung entsprechend Kap. 4.3.1 zu ermitteln und anschließend für die beschädigte Konfiguration die Freisetzung infolge thermischer Beaufschlagung, wie in Kap. 4.3.2 beschrieben.

4.4 Freisetzung ausbreitungsfähiger radioaktiver Stoffe mit Berücksichtigung der Barrierewirkung von Umschließungen

Üblicherweise befinden sich radioaktive Stoffe in Anlagen des Brennstoffkreislaufs in einer oder mehreren Umschließungen (Lagerbehälter, Handschuhkasten, Abfallbehälter usw.). Diese verhindern im Normalbetrieb und im intakten Zustand der Umschließung eine Freisetzung der radioaktiven Stoffe. Unter Störfallbedingungen können eine oder mehrere dieser Umschließungen unter Umständen Schaden nehmen und radioaktives Material freisetzen. Hierbei kann die verbleibende Restwirksamkeit der Umschließung als Ausbreitungsbarriere von entscheidender Bedeutung sein. Dies gilt sowohl für akute Freisetzungen aus einer Umschließung als auch für beschädigte Einzelumschließungen in einem Mehrfachbarriersystem. Im Falle der beschädigten Einzelumschließung in einem Mehrfachbarriersystem besteht dabei keine akute Freisetzung, jedoch ist die Reduktion der wirksamen Barrieren für die weitere Handhabung zu berücksichtigen.

4.4.1 Freisetzung aus radioaktiven Stoffen bei mechanischer Beaufschlagung mit Berücksichtigung der Barrierewirkung von Umschließungen

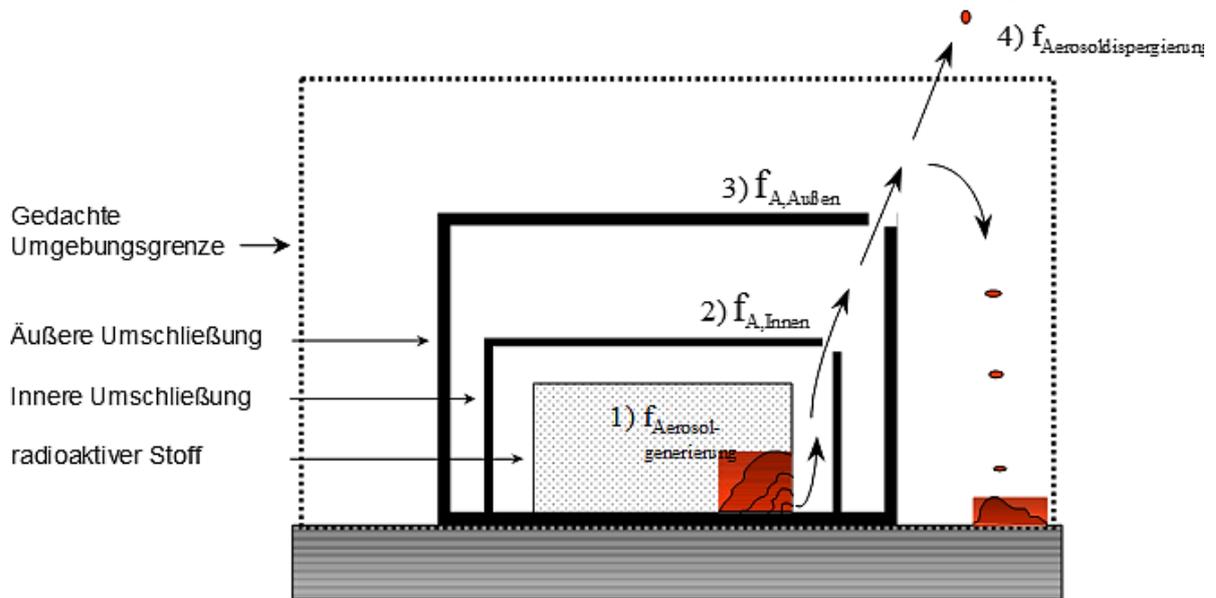
Für eine realistische Ermittlung der beim Störfall freigesetzten radioaktiven Stoffe ist die Barrierewirkung dieser Umschließungen mit zu berücksichtigen. Wird eine Umschließung zwar beschädigt, bleibt aber dicht, kommt es zu keiner Freisetzung. Wird jedoch bei allen Umschließungen die Dichtheit beeinträchtigt, ist eine Freisetzung radioaktiver Stoffe zu unterstellen. Gegenüber den Betrachtungen in Kap. 4.3 ist die Freisetzung jedoch um die Barrierewirkung der Umschließungen reduziert. Dabei ist die Barrierewirkung B definiert zu:

$$B = 1 - f \quad (4.7)$$

wobei f der Anteil des Abfallproduktes ist, der die Barriere passiert hat.

Abb. 4.6 zeigt schematisch die Freisetzung aus einem radioaktiven Stoff mit Berücksichtigung der Barrierewirkung von beschädigten Umschließungen (innere und äußere Umschließung). Aus dem festen radioaktiven Stoff werden durch die mechanische Beaufschlagung, z.B. Absturz von einem Kran, ausbreitungsfähige Partikel gebildet (Aerosolgenerierungsfaktor f_G gemäß Kap. 4.3.1). Bei pulverförmigen radioaktiven Stoffen entspricht der Aerosolgenerierungsfaktor dem ausbreitungsfähigen Anteil.

- 1) Durch einwirkende Kräfte kann je nach radioaktivem Stoff nur ein Anteil an beaufschlagtem Produkt in luftgetragene Partikel zermahlen werden (Aerosolgenerierungsfaktor f_G)
- 2) Der innere Austragungsfaktor $f_{A,Innen}$ beschreibt das Verhältnis der aus einem inneren radioaktiven Stoff ausgetragenen Masse sowie der absolut enthaltenen Masse
- 3) Der äußere Austragungsfaktor $f_{A,Außen}$ reduziert diesen Faktor durch die Barrierenqualität der äußeren Umschließung, z. B. eines Transportcontainers
- 4) Der Anteil an dem aus der äußeren Umschließung ausgetragenen radioaktiven Stoffs setzt sich zum Teil direkt auf dem Boden ab, so dass nur ein Anteil dessen als luftgetragener Anteil aerosolförmig vorliegt (Aerosoldispergierungsfaktor f_D)



$$\rightarrow \text{Freisetzung } F = f_{A,Innen} * f_{A,Außen} * f_G * f_D$$

Abb. 4.6 Schema der Freisetzung bei mechanischer Belastung mit Berücksichtigung der Barrierewirkung

Aus der inneren Umschließung wird nur ein bestimmter Anteil (innerer Austragungsanteil $f_{A,Innen}$), und hiervon wiederum ebenfalls nur ein Anteil aus der äußeren Umschließung (äußerer Austragungsanteil $f_{A,Außen}$) ausgetragen. Von dem aus der äußeren Umschließung ausgetretenen radioaktiven Stoff wird nur der gemäß Kap. 4.3.1 dispergierbare Anteil in die Umgebung freigesetzt.

Bestehen zwischen den Umschließungen Filter, deren Funktionsfähigkeit erhalten bleibt, so ist die Filterwirkung bei den Austragungsfaktoren mit zu berücksichtigen.

Die Bestimmung der Austragungsfaktoren f_A kann nicht allgemeingültig angegeben werden. Sie erfolgt im Allgemeinen mit Hilfe von Rechenprogrammen oder auf Basis experimenteller Untersuchungen.

Abb. 4.7 zeigt exemplarisch die Barrierequalität für einen Konrad-Container für den Lastfall „Fall“, die auf Basis experimenteller Untersuchungen abgeleitet wurde. Hiernach wird die Freisetzung bei einem 15m Fall durch die verbliebene Barrierewirkung um ca. 98,5 % reduziert.

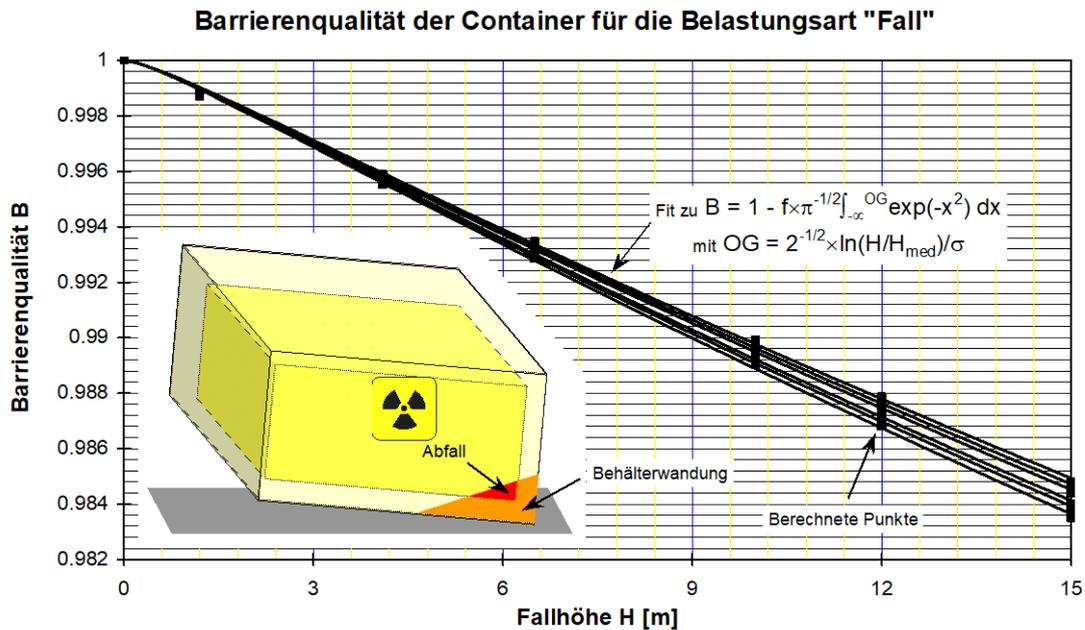


Abb. 4.7 Barrierequalität für einen Container für die Belastungsart Fall

4.4.2 Freisetzung aus radioaktiven Stoffen bei thermischer Beaufschlagung mit Berücksichtigung der Barrierewirkung von Umschließungen

Befindet sich ein radioaktiver Stoff in einer Umschließung mit spezifizierter Dichtigkeit, so baut sich durch die thermische Beaufschlagung ein Überdruck auf, der durch Leckagen langsam abgebaut wird. Durch die Aufheizung im Inneren der Umschließung treten Radionuklide gemäß den Mechanismen in Kap. 4.2.2 in die Atmosphäre innerhalb der Umschließung über und führen dort zu einer Konzentration an Radionukliden. Die austretende Leckage hat die gleiche Konzentration und bewirkt somit eine Freisetzung radioaktiver Stoffe. Abb. 4.8 zeigt dies schematisch für einen radioaktiven Stoff in einem Konrad-Gussbehälter. Die Leckage erfolgt hier durch den Spalt zwischen Deckel und Behälterkörper.

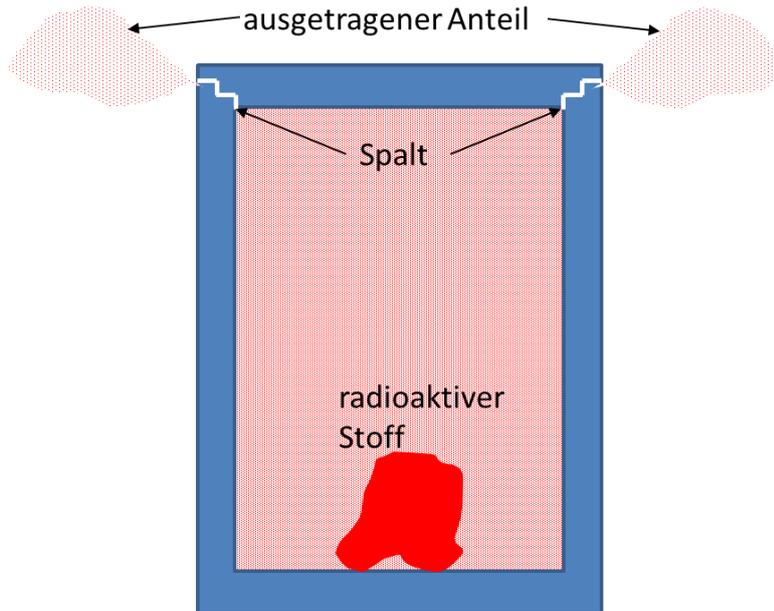


Abb. 4.8 Schema der Austragung radioaktiver Stoffe aus einer Umschließung mit spezifizierter Dichtigkeit

Abb. 4.9 zeigt den Temperatur- und Druckaufbau durch einen einstündigen Brand bei 800 °C, bei dem 10l verdampfbare Wasser im Gussbehälter angenommen wurde.

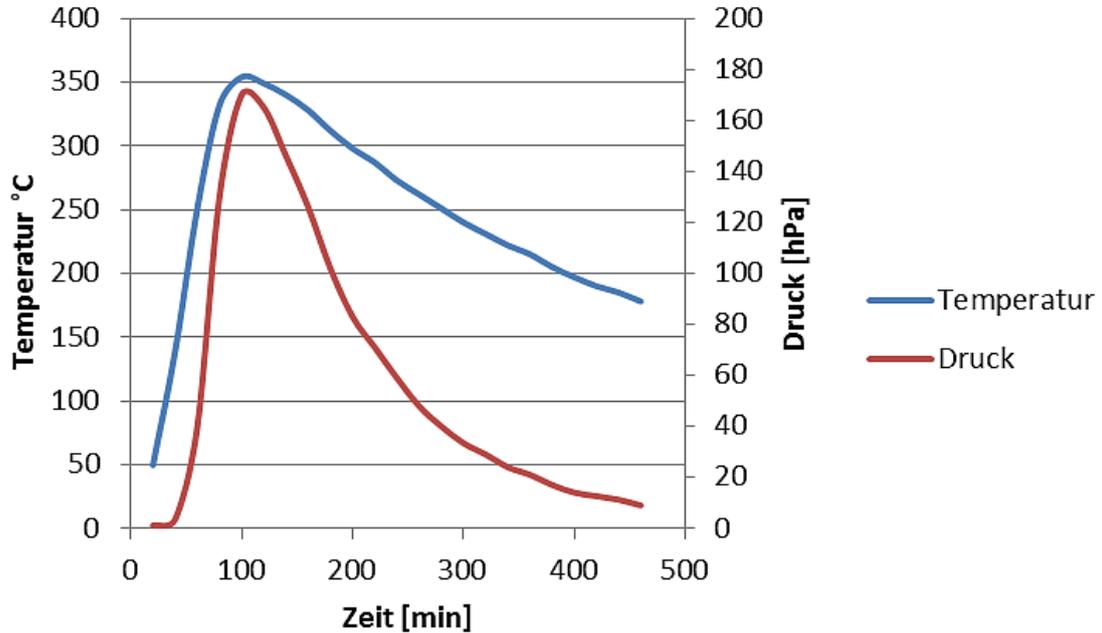


Abb. 4.9 Temperatur- und Druckaufbau in einem Gussbehälter bei einem 1-Stunden Brand

Der Ausströmvorgang aus dem unter Überdruck stehenden Gussbehälter berechnet sich über die Leckrate:

$$L = \frac{\pi \times d^4 \times (p_i^2 - p_a^2)}{256 \times \eta \times l} \quad (4.8)$$

L	Leckrate
p_i	Innendruck
p_a	Außendruck
η	Dynamische Viskosität ($1,87 \cdot 10^{-5} \text{ Pa s} = \text{kg}/(\text{m}\cdot\text{s})$)
l	Länge des Leckkanals
d	Durchmesser des Leckkanal (hydraulischer Durchmesser).

Für das dargestellte Beispiel wurde im Rahmen der Systemanalyse Konrad ein freigesetzter Anteil von 2×10^{-5} berechnet /GRÜ 87/.

Kommt es durch den Druckaufbau zu einem instantanen Behälterversagen, so kann das gesamte sich in der Behälteratmosphäre befindliche Radionuklidinventar freigesetzt werden. Anschließend erfolgt eine weitere Freisetzung entsprechend Kap. 4.2.2.

4.4.3 Freisetzung aus radioaktiven Stoffen bei kombinierter Beaufschlagung mit Berücksichtigung der Barrierewirkung von Umschließungen

Bei kombinierter mechanisch-thermischer Beaufschlagung ist zu unterscheiden, ob die spezifizierte Dichtheit der Umschließung erhalten bleibt oder nicht.

- Ist die spezifizierte Dichtheit beeinträchtigt, erfolgt die Ermittlung der durch mechanische Belastung verursachten Freisetzung radioaktiver Stoffe wie in Kap. 4.4.1 beschrieben und zusätzlich die Ermittlung der durch die thermische Belastung verursachten Freisetzung gemäß Kap. 4.2.2.
- Bleibt die spezifizierte Dichtheit der Umschließung demgegenüber erhalten, ist wie in Kap. 4.4.2 beschrieben vorzugehen.

5 Freisetzung von UF₆

5.1 Uranhexafluorid im Brennstoffkreislauf

Das in der Natur vorkommende Uranerz ist mit seiner Isotopenzusammensetzung von 0,0055 Gew.% ²³⁴U, 0,72 Gew.% ²³⁵U und 99,2745 Gew.% ²³⁸U als Brennstoff für Leichtwasserreaktoren ungeeignet. Ein notwendiger Schritt in der nuklearen Versorgung ist deshalb die Urananreicherung. Das durch thermische Neutronen spaltbare ²³⁵U muss in einem Anreicherungsgrad von 3-5 Gew.% in den Kernbrennstäben vorliegen.

Für die gängigen Anreicherungsverfahren wird Uran in natürlicher Isotopenzusammensetzung (U_{nat}) in Form von hochreinem, gasförmigen UF₆ benötigt. Es wird als sogenannter *Feed* mit 0,72 Gew.% ²³⁵U an die Anreicherungsanlagen geliefert.

Weltweit werden für die Urananreicherung im industriellen Maßstab das Diffusionsverfahren und das Zentrifugenverfahren eingesetzt. Das Zentrifugenverfahren ist mit 50 kWh/kg UTA erheblich energieeffizienter als das Diffusionsverfahren mit 2.400 kWh/kg UTA (UTA = Urantrennarbeit). Das Zentrifugenverfahren wird auch von der Firma URENCO in Deutschlands einziger Urananreicherungsanlage in Gronau angewandt. Bei diesem Verfahren wird über Zentrifugenkaskaden das leichtere ²³⁵U vom schwereren ²³⁸U separiert und so schrittweise dessen Konzentration erhöht, bis die gewünschte Anreicherung von 3-5 Gew.% (*Product*) vorliegt. Die Zentrifugenkaskaden in Gronau sind so ausgelegt, dass kein UF₆ mit einer Anreicherung > 6 Gew.% ²³⁵U erzeugt werden kann /URE 03/.

Aus dem *Product* werden in der Brennelementherstellung die Brennstäbe gefertigt. Das UF₆ wird hierfür in Urandioxid (UO₂) konvertiert. In der einzigen deutschen Brennelementfertigungsanlage der ANF in Lingen wird dabei das Verfahren der Trockenkonversion eingesetzt (siehe Kap. 5.7.4). Die abgereicherten *Tails* werden in Stahlzylinder verpackt und gelagert.

In Abb. 5.1 ist schematisch derjenige Teil des Brennstoffkreislaufs dargestellt, in dem Uranhexafluorid involviert ist.

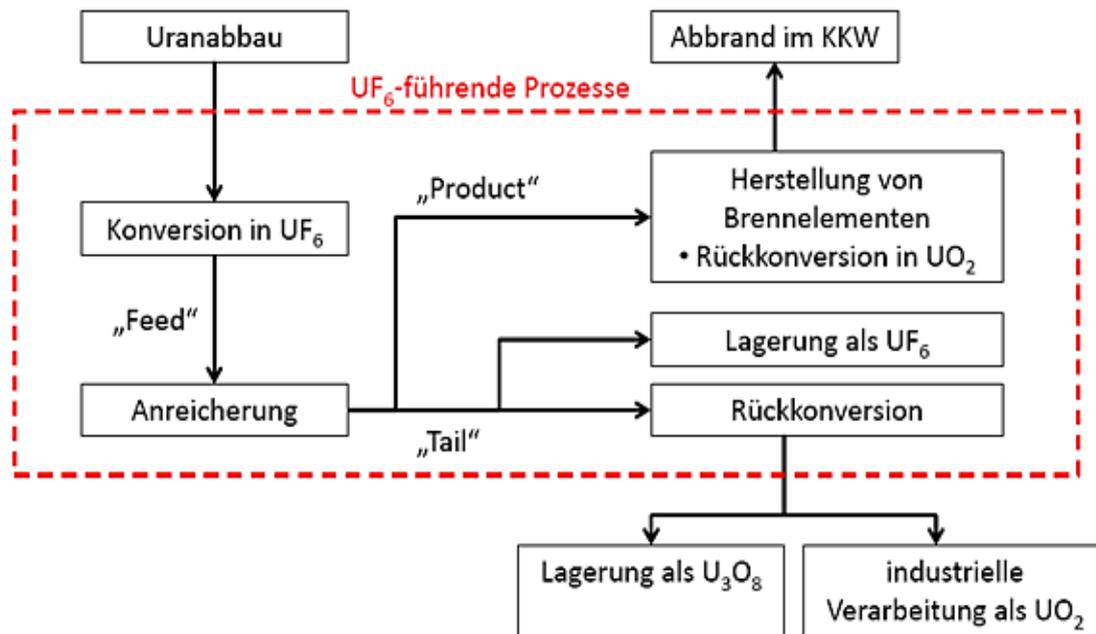


Abb. 5.1 Uranhexafluorid führende Prozesse im Brennstoffkreislauf

Fluor kommt in der Natur isotenrein (zu 100 %) als ^{19}F vor und lässt sich sehr gut zur Isotopentrennung von ^{235}U und ^{238}U einsetzen. Es lässt sich einfach an Uran binden und wieder lösen. Bei der Urananreicherung werden die unterschiedlichen molaren Massen von $^{235}\text{UF}_6$ (348,99 g/mol) und $^{238}\text{UF}_6$ (351,99 g/mol) genutzt. Die Anreicherungstechnik beruht direkt auf dem Massenunterschied (beim Gaszentrifugenverfahren) bzw. auf der daraus resultierenden unterschiedlichen Diffusionsgeschwindigkeit (beim Gasdiffusionsverfahren) /ROT 82/.

5.2 Chemische und physikalische Eigenschaften von UF_6

Uranhexafluorid ist eine leicht flüchtige, äußerst giftige, schwach radioaktive und korrosive Verbindung. Bei Raumtemperatur liegt UF_6 als farbloser, kristalliner Feststoff vor (Abb. 5.2). UF_6 bildet orthorhombische, leicht hydrolysierbare Kristalle, die unter Normaldruck (1.013 mbar) bei 56,4 °C sublimieren. Der Tripelpunkt von Uranhexafluorid liegt bei 64,0 °C und 1.517 mbar. Die Tatsache, dass die Sublimationstemperatur unterhalb des Tripelpunktes liegt, bedeutet, dass UF_6 nur oberhalb von 64,0 °C und 1.517 mbar als Flüssigkeit vorliegt. Da der Druck von flüssigem UF_6 immer oberhalb des atmosphärischen Luftdrucks liegt, ist das Verhalten eines mit flüssigem UF_6 gefüllten Behälters mit dem Verhalten eines mit überhitztem Wasser gefüllten Behälters vergleichbar /BAR 88/.



Abb. 5.2 Uranhexafluorid-Kristalle in einer Glasampulle

/ANL 09/

Das Phasendiagramm von Uranhexafluorid ist in Abb. 5.3 dargestellt. Auffällig ist der für einen Feststoff ungewöhnlich hohe Dampfdruck, der bei 20° C bereits 107 mbar beträgt. Beim Transport befindet sich Uranhexafluorid im festen Aggregatzustand, dabei stellt sich in den Transportbehältern ein Unterdruck von 0,1 bar ein /URE 01/. Der zur Separation der Isotope ^{235}U und ^{238}U notwendige gasförmige Aggregatzustand von Uranhexafluorid beim Anreicherungsprozess lässt sich durch geeignete Wahl von Temperatur und Druck einfach herbeiführen.

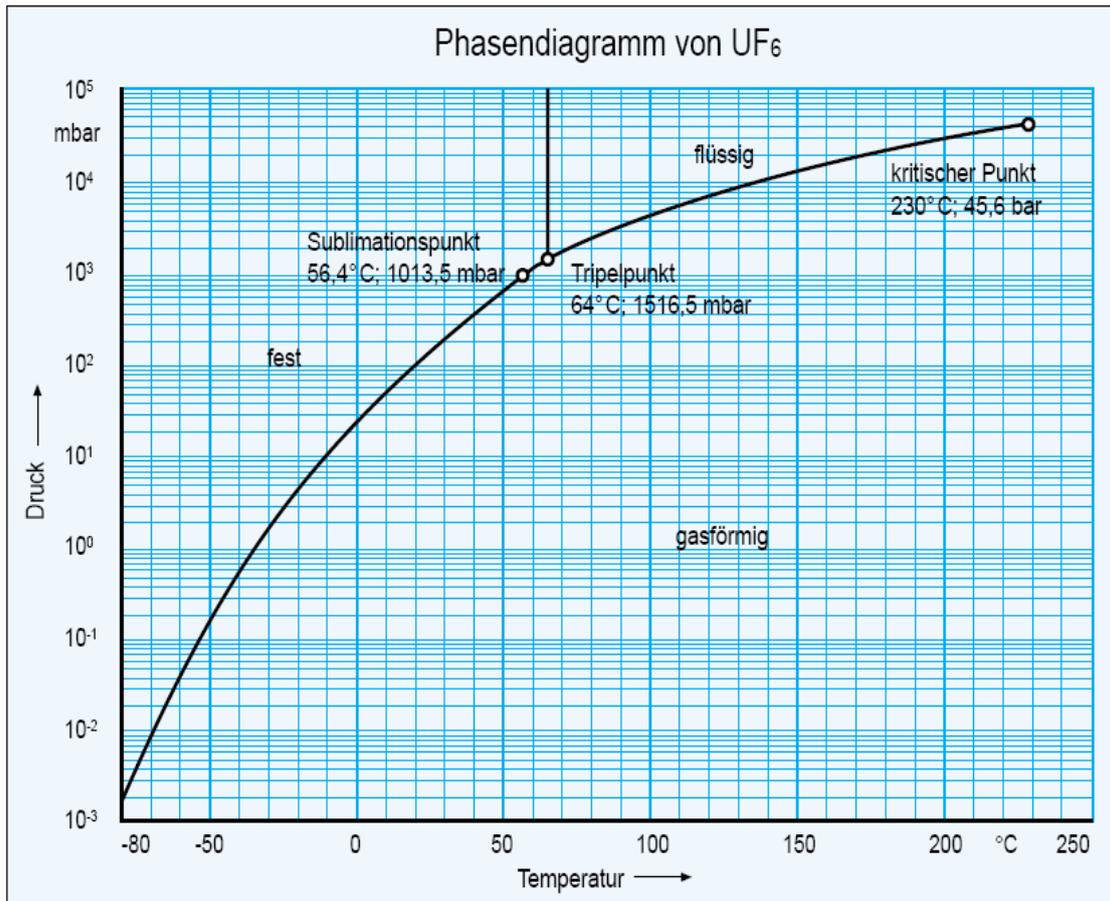


Abb. 5.3 Phasendiagramm von Uranhexafluorid

/URE 03/

Die Dichte bei 20° C im festen Zustand beträgt 5,09 g/cm³, bei 64 °C im flüssigen Zustand 3,67 g/cm³ (Abb. 5.4). Aufgrund der dadurch bedingten Volumenzunahme bei der Verflüssigung um etwa ein Drittel werden UF₆-Behälter nur zu weniger als zwei Drittel mit festem UF₆ befüllt.

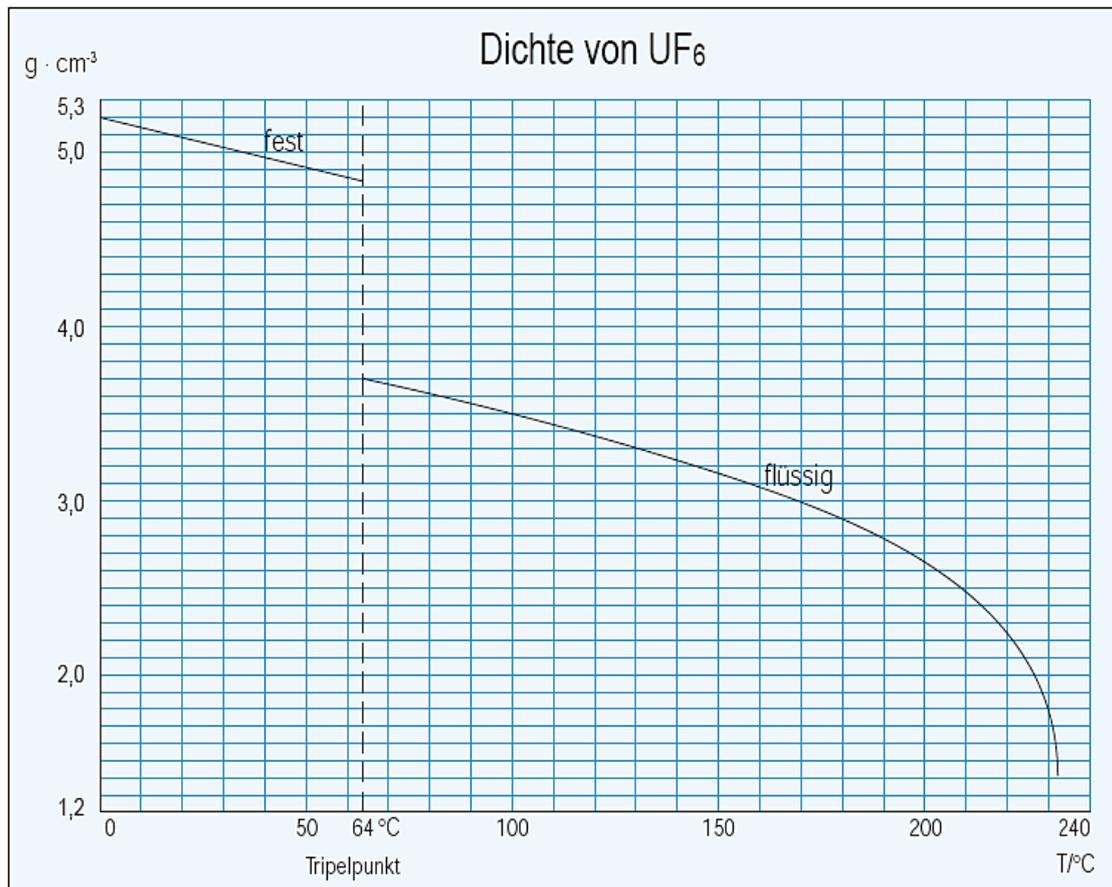


Abb. 5.4 Dichte von Uranhexafluorid im festen und flüssigen Aggregatzustand

/URE 03/

Uranhexafluorid ist nicht brennbar und nicht explosiv. Bei Raumtemperatur ist es chemisch beständig gegen trockene Luft sowie gegen reinen Sauerstoff, Stickstoff und Wasserstoff. Es reagiert hingegen sehr heftig mit Wasser bzw. Wasserdampf (Luftfeuchtigkeit), wobei festes Uranylfluorid (UO₂F₂) und gasförmiger Fluorwasserstoff (HF) nach Gleichung (5.1) entstehen:



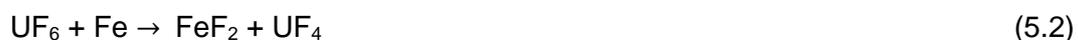
Das Reaktionsprodukt Uranylfluorid ist hygroskopisch, gut wasserlöslich und kann in Lösung in geeigneter Konzentration und Menge auch bei Anreicherungen < 5 Gew.% ²³⁵U Kritikalität erreichen. Die Wasserlöslichkeit birgt bei Freisetzung zudem die Gefahr des Absickerns in den Erdboden. UO₂F₂ ist eine thermodynamisch sehr stabile Verbindung, die nicht mit Sauerstoff reagiert und sich erst oberhalb von 300 °C langsam in U₃O₈ zersetzt /DOE 99/.

Fluorwasserstoff HF, in wässriger Lösung auch als Flusssäure bezeichnet, ist ein farbloses, stechend riechendes, sehr giftiges Gas, das stark ätzend auf Haut, Schleimhäute und Augen wirkt. Beim Einatmen können sich Lungenödeme bilden. Fluorwasserstoff reagiert mit der Luftfeuchtigkeit unter Bildung von weißem Rauch, was das Auffinden von eventuellen Undichtigkeiten an den UF₆-Transportsystemen erleichtert.

Unfallerfahrungen bei UF₆-Freisetzungen zeigen, dass UF₆ – bzw. UO₂F₂ bei Reaktion des UF₆ mit Luftfeuchtigkeit – als sehr feines Material mit Partikelgrößen < 1 µm freigesetzt wird /THO 94/.

Mit organischen Verbindungen (z. B. Alkohole, Äther) und aromatischen Kohlenwasserstoffen (z. B. Benzol, Toluol) reagiert UF₆ bereits bei Raumtemperatur heftig bis explosionsartig. Dabei zersetzt sich UF₆ zu Fluorwasserstoff, elementarem Fluor (F₂) und Uranfluoriden. Bei Bränden mit Öl oder Kerosin reagiert UF₆ zu festem UF₄, gasförmigem HF und inerten (teils gasförmigen, teils festen) Kohlenstoff-Fluor-Verbindungen. Mineralisches Öl kann mit flüssigem UF₆ heftig reagieren, mit festem UF₆ kann es kurz vor Erreichen des Schmelzpunktes (64 °C) reagieren. In den Pumpen, die bei der Handhabung von UF₆-Behältern zum Einsatz kommen, wird deshalb nur perfluoriertes, UF₆-resistentes Öl verwendet.

Mit den meisten Metallen und Legierungen (z. B. Eisen, Kobalt, Chrom, Aluminium, Magnesium oder Messing) reagiert UF₆ bei Raumtemperatur bis zu Temperaturen von etwa 100 °C sehr langsam unter Bildung von Metallfluoriden. Die Reaktionsprodukte lagern sich als schwerflüchtige Feststoffe auf den betreffenden Metalloberflächen ab, wodurch eine Weiterreaktion weitestgehend verhindert wird. Eine typische Reaktion ist z. B.



Bei höheren Temperaturen (etwa 240 °C) besitzen Nickel, Kupfer und Inconel-Legierungen gute Korrosionseigenschaften gegenüber gasförmigem UF₆. Oberhalb von 400 °C ist Nickel am beständigsten, während die Edelmetalle Gold und Platin sowie Edelstahl bei diesen Temperaturen wesentlich weniger widerstandsfähig sind.

Gegenüber flüssigem UF₆ bis zu Temperaturen von etwa 110 °C sind Kupfer, Nickel und Edelstahl noch resistent, während Zink und Blei stark angegriffen werden. Auch synthetische Hochpolymere weisen eine gute chemische Beständigkeit gegenüber UF₆ auf, z. B. Teflon bis 120 °C. Sie werden deshalb als Dichtungsmaterialien für UF₆-Behälter

verwendet. Absolut trockenes Glas und Quarzsand werden von Uranhexafluorid bei Raumtemperatur ebenfalls nicht angegriffen. Aktivkohle adsorbiert gasförmiges Uranhexafluorid sehr effektiv und wird daher in Sorptionsfallen zur Reinigung von Resturan aus der Pumpenabluft eingesetzt.

5.3 Radiologische Eigenschaften von UF₆

Verglichen mit der chemotoxischen Wirkung ist das radiologische Gefahrenpotential von Uranhexafluorid eher gering. Die spezifische Aktivität von Natururan beträgt $2,54 \times 10^4$ Bq/g. Die Halbwertzeiten der Isotope betragen für ²³⁵U $7,04 \times 10^8$ Jahre, für ²³⁸U $4,47 \times 10^9$ Jahre, und für ²³⁴U $2,45 \times 10^5$ Jahre. Niedrig angereichertes Uran ist vor allem ein α -Strahler, wobei die spezifische α -Aktivität maßgeblich vom Anteil des Isotops ²³⁴U bestimmt wird, das in geringem Maße in niedrig angereichertem Uran enthalten ist. Die Isotope ²³⁵U und ²³⁸U, die nahezu die gesamte Masse des niedrig angereicherten Urans ausmachen, sind ebenfalls α -Strahler, allerdings mit sehr geringer spezifischer Aktivität. Die Energie der Heliumkerne, die bei den α -Zerfällen der Uranisotope emittiert werden, beträgt 4 bis 5 MeV. Daneben treten als Folgeprodukte des radioaktiven Zerfalls von ²³⁵U und ²³⁸U die kurzlebigen Nuklide ²³¹Th und ²³⁴Th sowie ²³⁴Pa auf, die allesamt niederenergetische β -Strahler sind. Von diesen Nukliden und von ²³⁵U resultiert außerdem eine schwache γ -Strahlung.

Das auf $\leq 6\%$ ²³⁵U angereicherte Material weist einen, bis zu einem Faktor 11, höheren Anteil an ²³⁴U auf, sodass die spezifische α -Aktivität des *Product* etwa um den Faktor 5 höher ist als die des *Feed*, während die spezifischen β - und γ -Aktivitäten nahezu unverändert bleiben. Mit zunehmender Anreicherung steigt erwartungsgemäß das radiologische Gefährdungspotential.

Die spezifische Aktivität von *Tails*-Uran ist geringer als die von Natururan, da bei der Abreicherung auch das radiologisch dominierende Isotop ²³⁴U mit abgereichert wird. In der chemischen Toxizität unterscheiden sich UF₆ und UO₂ bzw. U₃O₈ aus *Tails*-Uran hingegen nicht von Natururan oder angereichertem Uran.

γ -Strahlung aus UF₆-Behältern entsteht vor allem beim radioaktiven Zerfall des metastabilen Nuklids ^{234m}Pa und – in geringem Maße – beim Zerfall von ²³⁵U. Da ^{234m}Pa in der natürlichen ²³⁸U-Zerfallsreihe (Uran-Radium-Reihe) dem unmittelbaren ²³⁸U-Tochternuklid ²³⁴Th folgt, ist die γ -Strahlung eines UF₆-Behälters praktisch vom Anreicherungsgrad

des UF₆ abhängig. Da die γ-Strahlung durch die Behälterwände und insbesondere durch das Uran im UF₆ selbst abgeschirmt wird, stammt der Hauptbeitrag zur γ-Strahlung von den Restmengen („Heel“) der in den Freilägern aufbewahrten, entleerten Behälter.

Neutronenstrahlung kann beim Umgang mit Uranhexafluorid entstehen, wenn ein höher-energetisches α-Teilchen auf ein Fluoratom des UF₆ trifft ((α,n)-Effekt):



Die Neutronenstrahlung aus der (α,n)-Reaktion trägt einen erheblichen Anteil an der Dosisleistung bei der Lagerung von UF₆. In geringerem Maße entsteht Neutronenstrahlung auch bei der Spontanspaltung von ²³⁸U (partielle Halbwertszeit 8 × 10¹⁵ Jahre). Daher hängt die von UF₆-Behältern ausgehende Neutronenstrahlung vom Anreicherungsgrad des UF₆ ab (s. Tab. 5.1). Von entleerten Behältern geht keine Neutronenstrahlung aus.

Bei den mit *Product* gefüllten UF₆-Behältern trägt die Neutronenstrahlung bis zu 70 % zur Dosisleistung bei, während es bei den mit *Feed* oder *Tails* gefüllten UF₆-Behältern < 20 % sind. Bei letzterem dominiert jeweils die γ-Strahlung.

Tab. 5.1 Neutronenstrahlungscharakteristik von mit UF₆ gefüllten Behältern

Absatzformat ¹	<i>Tails</i>	<i>Feed</i>	<i>Product</i>	<i>Product</i>
Gehalt an ²³⁵ U [%]	0,32	0,72	5,0	6,0
Neutronen pro g Uran [s ⁻¹]	0,040	0,062	0,32	0,41
Anteil der Neutronen aus (α,n)-Reaktion [%]	62	76	91	93
Anteil der Neutronen aus ²³⁸ U-Spontanspaltung [%]	38	24	9	7

5.4 Toxikologische Bewertung

Im Unterschied zu den wasserunlöslichen Uranoxiden UO₂ und U₃O₈ wird die chemotoxische Wirkung von UF₆ nicht primär durch das darin enthaltene Uran verursacht, welches als akutes Schwermetallgift für Lungen und Nieren wirkt. Die registrierten Todesfälle nach störfallbedingten Freisetzungen von UF₆ in amerikanischen Uranverarbeitungsanlagen (Philadelphia, 02.09.1944; Gore, 04.01.1986) waren vielmehr auf die Bildung konzentrierter Aerosole von HF und UO₂F₂ zurückzuführen /HHS 99/, /EPA 04a/.

Mit der Neufassung der Gefahrstoffverordnung /BUN 13/ im Jahr 2005 (letzte Änderung 2013) wurden für gesundheitsschädliche Arbeitsstoffe Arbeitsplatzgrenzwerte (AGW) festgelegt. Sie ersetzen die bisher verwendeten Maximalen Arbeitsplatzkonzentrationen (MAK) und Technischen Richtkonzentrationen (TRK). Bis die Arbeitsplatzgrenzwerte in die Technischen Regeln für Gefahrstoffe /BUN 09a/ eingearbeitet sind, können die MAK- und die TRK-Werte für die Beurteilung der Gefährdung am Arbeitsplatz weiterhin herangezogen werden.

Der Arbeitsplatzgrenzwert ist die zeitlich gewichtete durchschnittliche Konzentration eines Stoffes in der Luft am Arbeitsplatz, bei der eine akute oder chronische Schädigung der Gesundheit der Beschäftigten nicht zu erwarten ist. Bei der Festlegung wird von einer in der Regel achtstündigen Exposition, bei Einhaltung einer durchschnittlichen Wochenarbeitszeit von 40 Stunden, während der Lebensarbeitszeit ausgegangen. Der Arbeitsplatzgrenzwert wird in mg/m³ und ml/m³ (ppm) angegeben.

Für Fluorwasserstoff beträgt der Arbeitsplatzgrenzwert 0,83 mg/m³ bzw. 1 ml/m³ /BUN 18a/. Der MAK-Wert für Uran und seine Verbindungen ist mit 0,25 mg/m³ (eintrennbare Fraktion, bezogen auf den Metallgehalt) festgelegt.

Für Uranhexafluorid und Fluorwasserstoff wurden AEGL-Werte (Acute Exposure Guideline Levels, Details siehe /SOM 19/, Kapitel 3.13) festgelegt (Tab. 5.2 und Tab. 5.3), nicht jedoch für Uranylfluorid wegen unzureichender Datenlage.

Tab. 5.2 AEGL-Werte für UF₆

/EPA 04a/, /EPA 13/

Expositionsdauer	AEGL-1 (mg/m ³)	AEGL-2 (mg/m ³)	AEGL-3 (mg/m ³)
10 min	3,6	28	216
30 min	3,6	19	72
1 h	3,6	9,6	36
4 h	– ¹⁾	2,4	9,0
8 h	– ¹⁾	1,2	4,5

¹⁾ keine Empfehlung wegen unzureichender Datenlage

Tab. 5.3 AEGL-Werte für HF

/EPA 04b/, /EPA 13/

Expositionsdauer	AEGL-1 (mg/m ³)	AEGL-2 (mg/m ³)	AEGL-3 (mg/m ³)
10 min	1,0	95	170
30 min	1,0	34	62
1 h	1,0	24	44
4 h	1,0	12	22
8 h	1,0	12	22

Daneben wurden sogenannte ERPG-Werte (Emergency Response Planning Guidelines, Details siehe /SOM 19/, Kap. 3.13) für Uranhexafluorid und Fluorwasserstoff festgelegt, die als Referenzwerte für die nach einem Störfallereignis einzuleitenden Maßnahmen im Rahmen des Notfallschutzes zu betrachten sind (Tab. 5.4).

Tab. 5.4 ERPG-Werte für UF₆ und HF

/AIHA 09/

Expositionsdauer	ERPG-1 (mg/m ³)	ERPG-2 (mg/m ³)	ERPG-3 (mg/m ³)
UF ₆	5	15	30
HF	2	20	50

In Kap. 3.13 des ersten Teil dieses Handbuchs findet sich eine ausführliche Erläuterung des AEGL- und ERPG-Konzepts /SOM 19/.

Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass das chemotoxische Gefahrenpotential von Uranhexafluorid als weitaus größer einzustufen ist als dessen Radiotoxizität /JUS 88/, /RIN 88/, /NRC 91/, /HHS 99/, /EPA 04a/. So führt z. B. das 10-min Einatmen des AEGL-3 Wertes für UF₆ (Schwelle zur lebensbedrohlichen oder tödlichen Wirkung) nur zu einer Dosis von 20-30 mSv. Bei diesen Werten sind keine schwerwiegenden Gesundheitsschäden zu erwarten.

5.5 Sicherheitsanforderungen und technische Regelwerke

Für die sicherheitstechnische Auslegung kerntechnischer Anlagen, und damit auch relevant im Zusammenhang mit UF_6 , ist gemäß § 7 Abs. 2 Nr. 3 des Atomgesetzes /DEU 22/ die nach dem Stand von Wissenschaft und Technik erforderliche Vorsorge gegen Schäden zu treffen. Die radiologischen Schutzziele der erforderlichen Vorsorge werden in der Strahlenschutzverordnung /BUN 18b/ präzisiert. Im Rahmen des untergesetzlichen Regelwerkes für kerntechnische Anlagen in Deutschland wurden vom BMUB „Sicherheitsanforderungen für Kernbrennstoffversorgungsanlagen“ /BMU 04/ definiert. Die allgemeine Zielsetzung des Atomgesetzes und der Strahlenschutzverordnung wird dabei in konkrete Anforderungen umgesetzt. Die Sicherheitsanforderungen werden spezifiziert für folgende Anlagentypen:

Urananreicherungsanlagen nach dem Gasultrazentrifugenprinzip (Teil I),

1. Anlagen zur Herstellung von Leichtwasserreaktor-Brennelementen mit niedrig angereichertem Uran (Teil II),
2. Anlagen zur Herstellung von Uran/Plutonium-Mischoxid-Brennelementen (Teil III),
3. Anlagen zur Herstellung von Uran-Brennelementen für Hochtemperatur- und Forschungsreaktoren (Teil IV).

In den Sicherheitsanforderungen wurden auslegungsbestimmende Störfälle für die einzelnen Anlagentypen festgelegt. Für die auslegungsbestimmenden Störfälle ist die Einhaltung der Anforderungen des § 104 der Strahlenschutzverordnung /BUN 18b/ durch Berechnung der möglichen radiologischen Störfallauswirkungen nachzuweisen, sofern nicht die Störfallmöglichkeit aufgrund der nachgewiesenen getroffenen Vorsorge ausgeschlossen werden kann.

Aspekte der konventionellen Schadensvorsorge wurden in die Sicherheitsanforderungen insoweit einbezogen, wie es im Rahmen der atomrechtlich gebotenen Schadensvorsorge notwendig erscheint. Neben den für kerntechnische Anlagen gültigen Verordnungen und Regeln sind daher in den Sicherheitsanforderungen auch eine Reihe allgemeingültiger konventioneller Regeln aufgeführt.

Die Teile I und II der Sicherheitsanforderungen basieren in wesentlichen Teilen auf Arbeiten der GRS:

- „Sicherheitsanforderungen für Urananreicherungsanlagen nach dem Gasultrazentrifugenprinzip“ /THO 91a/
- „Sicherheitsanforderungen für die Herstellung von Leichtwasserreaktor-Brennelementen mit niedrig angereichertem Uran“ /THO 91b/

Eine ausführliche Darstellung zu Teil I und II der Sicherheitsanforderungen findet sich in Kap. 3.3 des ersten Teils dieses Handbuchs /SOM 19/.

Weiterführende Informationen zu den Definitionen der Sicherheitsstandards und -anforderungen in Deutschland finden sich u. a. in folgenden Arbeiten:

- „Sicherheitstechnische Fragen bei der Handhabung von UF₆-Behältern in Urananreicherungsanlagen und Brennelementfabriken“ /TEC 85/
- „Stand der Sicherheitsvorkehrungen gegen UF₆-Freisetzungen“ /GRI 88/
- „Stand der Sicherheitstechnik bei der Lagerung von Uranhexafluorid“ /GRI 88/
- „Entscheidungsgrundlagen bei Notfällen in Brennelementfabriken“ /THO 94/
- „Sicherheitstechnischer Vergleich zwischen Nass- und Trockenkonversion von UF₆ zu sinterfähigem UO₂ für Leichtwasserreaktoren“ /HEI 91/
- „Auswertung der Erfahrungen mit der Trockenkonversion im Vergleich zu Nassverfahren für die Konversion von UF₆ zu UO₂-Pulver“ /GRI 98/

In den drei erstgenannten Arbeiten werden die physikalischen, chemischen und radiologischen Probleme beim Umgang mit Uranhexafluorid im Detail erörtert.

Speziell für die Handhabung von Uranhexafluorid gelten folgende internationale Normen und Regeln:

- ANSI-Norm N14.1-1982 „Packaging of Uranium Hexafluoride for Transport“ /ANSI 81/
- ISO-Norm 7195:2005 „Packaging of Uranium Hexafluoride for Transport“ /ISO 05/
- USEC-651 (Rev. 7): „Uranium Hexafluoride: A Manual of Good Handling Practices“ /USEC 95/

Die beiden internationalen Normen für die Spezifikation von UF₆-Transportbehältern gelten auch für alle Anlagen des Brennstoffkreislaufes, in denen UF₆ gehandhabt wird. Da diese Normen weltweit anerkannt sind, sind sie relativ schwer zu beeinflussen, wenn einzelne Mängel erkannt werden, die durch Konstruktionsänderungen zu beheben wären. Eine Übersicht aller international im Einsatz befindlichen Behälter für UF₆ ist in /USEC 95/ zusammengestellt.

Die oben genannten Normen und Regeln sind konsistent mit den folgenden Empfehlungen der IAEA:

- IAEA-TECDOC-423: „Recommendations for Providing Protection During the Transport of Uranium Hexafluoride“ /IAEA 87/
- IAEA-TECDOC-608: „Interim Guidance on the Safe Transport of Uranium Hexafluoride“ /IAEA 91/
- IAEA-TECDOC-771: „Manual on Safe Production, Transport, Handling and Storage of Uranium Hexafluoride“ /IAEA 95/
- IAEA Safety Requirements SSR-6: „Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material. 2012 Edition“ /IAEA 18/
- IAEA Safety Guide TS-G-1.1 (Rev. 1): „Advisory Material for the IAEA Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material“ /IAEA 08a/
- IAEA Safety Guide TS-G-1.2: „Planning and Preparing for Emergency Response to Transport Accidents Involving Radioactive Material“ /IAEA 02/

Auf die Gesetze, Verordnungen und Richtlinien für den Transport und die Lagerung von Uranhexafluorid in Deutschland wird in den Kap. 5.7.2 und Kap. 5.7.5 näher eingegangen.

5.6 Grundsätze der UF₆-Handhabung – Vorsorgemaßnahmen zur Vermeidung und Beherrschung von UF₆-Freisetzungen

Während der Lagerung oder bei Transportvorgängen befindet sich das UF₆ stets in festem Zustand und im UF₆-Transportbehälter herrscht Unterdruck. Unter diesen Bedingungen sind, wenn überhaupt, nur sehr geringe und lokal begrenzte Freisetzungen denkbar. Probleme können sich erst ergeben, wenn das UF₆ verflüssigt ist oder in gasförmigem Zustand und unter Normal- oder Überdruck vorliegt. Unter diesen Bedingungen ist bei Störfällen mit ernststen Freisetzungen zu rechnen.

Alle Verfahrensschritte, bei denen UF₆ durch Aufheizen in einen derartigen Zustand gebracht wird, finden stets in doppelt umschlossenen Behältern statt, d. h. der UF₆-Zylinder wird vor der Bearbeitung in einen Autoklaven eingebracht und nur in diesem Autoklaven aufgeheizt. Der Behälter und das Behälterventil sind vollständig von der zweiten Barriere umschlossen. Teilweise ist auch die anschließende UF₆-Rohrleitung, soweit sie Überdruck führt, noch in einem Doppelrohr untergebracht. Für diese Prozesse werden in den Sicherheitsanforderungen auch zusätzlich separate Raumbereiche empfohlen.

Alle Rohrleitungen, in denen UF₆ gasförmig strömt, sowie alle zugehörigen Armaturen werden beheizt, um Blockagen durch Auskristallisieren von UF₆ zu vermeiden. Da ein Entfernen von eventuell aufgetretenen UF₆-Pfropfen durch Erhitzen wegen der sprunghaften Änderung der Dichte beim Schmelzen von UF₆ (siehe Kap. 5.2) zur Beschädigung von Rohrleitungen führen kann, werden Vakuumsysteme zum Freihalten bzw. zum Wiederfreimachen von UF₆-Rohrleitungen vorgehalten.

Die Absaugsysteme dienen auch dazu, kleinere UF₆-Freisetzungen beim Behälterwechsel, bei dem die Rohrleitung abgeflanscht werden muss, zu vermeiden. Zusätzlich sind Spülgassysteme mit trockenem Inertgas vorgesehen, um zu verhindern, dass Luft, die Feuchtigkeit enthält, in Kontakt mit UF₆-Gas kommen kann. Die Feuchtigkeit würde zu UO₂F₂-Ablagerungen und ggf. zu Verstopfungen führen.

Vor dem Aufheizen von UF₆-Behältern werden das Behälterventil und die angeschlossene Rohrleitung durch eine Druckprobe mit trockenem Inertgas und Lecksuchspray an allen Flanschen und Dichtungen auf Dichtigkeit überprüft. Dadurch wird sichergestellt, dass vor Entstehung des UF₆-Überdrucks die Funktionsfähigkeit der ersten Sicherheitsbarriere nachgewiesen ist. Die Aufheizung erfolgt erst, nachdem die zweite Sicherheitsbarriere, d. h. der Autoklav, geschlossen ist.

Bei der Reinigung von UF₆-Behältern oder -Leitungen, bei Montage- und Reparaturarbeiten wird stets darauf geachtet, dass keine organischen Reinigungs- oder Schmiermittel verwendet werden und keine chemischen Reaktionen von UF₆ mit organischen Flüssigkeiten (siehe Kap. 5.2) eintreten können.

5.7 Einrichtungen und Verfahrensschritte beim Umgang mit UF₆

Nach einer Darlegung der Grundsätze zur Handhabung von Uranhexafluorid in Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung in Kap. 5.6 wird in diesem Abschnitt näher auf die verfahrenstechnischen Prozesseinrichtungen zur UF₆-Verarbeitung und auf die sicherheitstechnischen Maßnahmen der einzelnen Anlagentypen eingegangen. Dabei wird auch auf die Anforderungen des deutschen Regelwerks im Hinblick auf den Transport und die Lagerung von Uranhexafluorid Bezug genommen. Weitere Informationen finden sich u. a. in /IAEA 17/.

Die in Deutschland durchgeführten Verfahrensschritte mit UF₆ bestehen aus dem Transport und der Anreicherung des *Feeds*, dem Transport des angereicherten *Products*, dem Transport und der Lagerung des abgereicherten *Tails*, sowie der Entleerung von UF₆-*Product*-Behältern mit Einspeisung in die Trockenkonversion, sowie der Trockenkonversion zu Uranoxid selbst. Die genannten Verfahrensschritte werden im Folgenden näher dargelegt. Die Konversion des Uranerzes zu UF₆ sowie die Dekonversion des *Tails* zu Uranoxid finden ausschließlich außerhalb Deutschlands statt.

5.7.1 Konversion

Konversionsanlagen zur Umwandlung von gereinigtem Natururan in Uranhexafluorid existieren in zahlreichen Ländern. Die fünf Länder mit der größten Produktion an Uranhexafluorid sind, in der Reihenfolge ihrer Produktionsvolumina 2006 abnehmend: Frankreich, Kanada, Russland, USA und Großbritannien. Weiterhin betrieben Argentinien, Brasilien, Indien, Iran, Japan, Südkorea, Südafrika und die Türkei in jenem Jahr Konversionsanlagen /NUC 06/.

Die Konversion von Yellowcake (U_3O_8) und weiteren Uranoxiden zu Uranhexafluorid gliedert sich in folgende Abschnitte, deren Zusammenhang als Überblick in dem allgemeinen Prozessschema in Abb. 5.5 dargestellt ist (nach /IAEA 09a/):

- Vorreinigung
- Kalzinierung
- Reduktion
- Hydrofluorierung
- Fluorierung
- Destillation und Abfüllen des *Products*
- Abgaswäsche
- Uranrückgewinnung

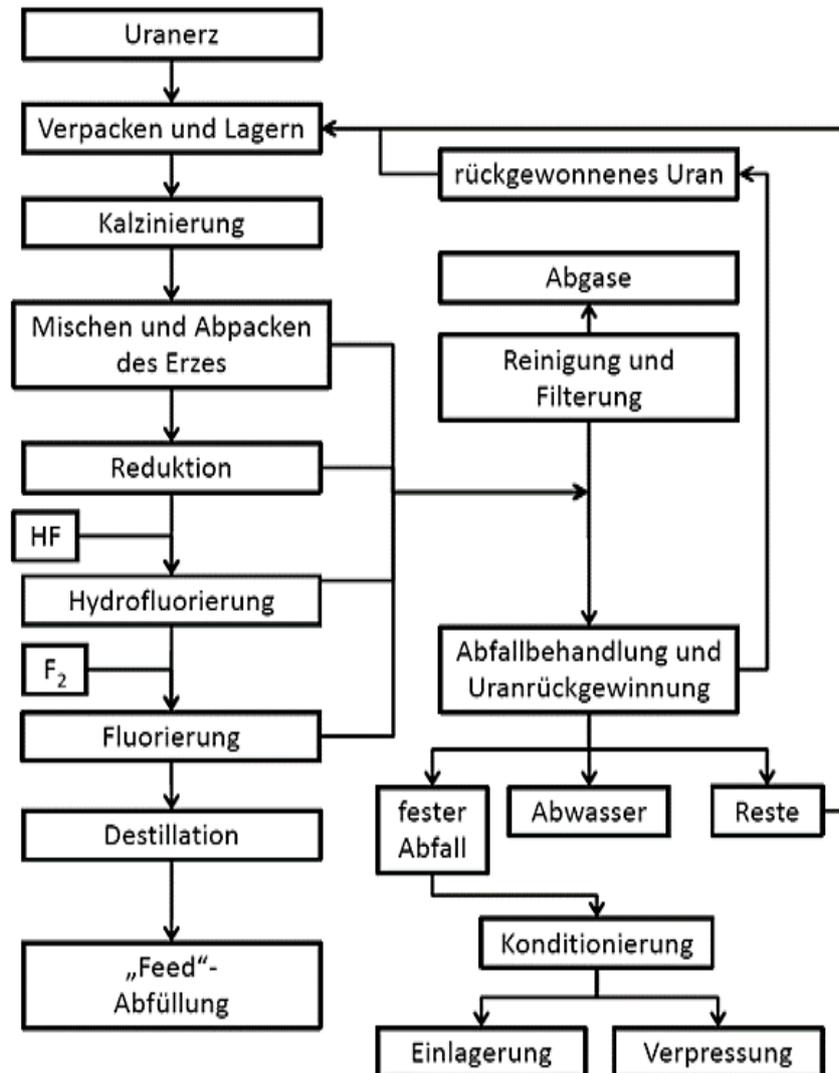


Abb. 5.5 Prozessschema der Konversion von Uranerz zu UF_6

Die wichtigsten Chemikalien mit sicherheitstechnischer Relevanz, die bei der Konversion von U_3O_8 zu UF_6 eine Rolle spielen, sind

- Ammoniak NH_3 : wird für die Herstellung von Wasserstoff zur Reduktion von U_3O_8 und UO_3 verwendet;
- Fluor F_2 : wird genutzt, um UF_4 zu UF_6 zu konvertieren;
- Fluorwasserstoff HF : wird genutzt, um UO_2 zu UF_4 zu konvertieren;
- Uranhexafluorid UF_6 : *Feed, Product, Tails*;
- Kaliumhydroxid KOH : wird zur Bindung des Urans und des Fluorwasserstoffs im Abgaswäscher eingesetzt.

Vorreinigung

Yellowcake besteht aus einer Reihe von Uranverbindungen, die einen zur Herstellung von Kernbrennstoffen, zu hohen Anteil an Verunreinigungen aufweisen. Um Uranverbindungen in der gewünschten Reinheit zu erhalten, wird Yellowcake in Salpetersäure aufgelöst. Die entstehende Uranylнитrat-Lösung wird mit einer Lösung aus Tributylphosphat in gereinigtem Kerosin extrahiert, wobei das Uranylнитrat in die organische Phase aufgenommen und so von den vorhandenen Verunreinigungen getrennt wird. Das extrahierte und gereinigte Uran lässt sich mit verdünnter Salpetersäure aus der organischen Phase entfernen. Die Uranylнитrat-Produktlösung wird in einem kontinuierlichen Prozess eingeengt (chem.: Entzug von Lösungsmittel), wodurch festes Uranylнитrat-Hexahydrat ($\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, oft auch kurz als UNH bezeichnet) auskristallisiert und abfiltriert wird /IAEA 09a/, /IAEA 12/, /TAY 15/.

Kalzinierung

Das aus der Vorreinigung hervorgehende UNH wird in einem Drehrohrofen bei 700°C in Inert-Atmosphäre kalziniert, um Uran(VI)-oxid UO_3 zu erhalten, welches das Ausgangsprodukt für die Reduktion zu UO_2 darstellt /IAEA 09a/.

Reduktion

Das so gereinigte Uran(VI)-oxid wird in Wirbelschichtreaktoren mittels Wasserstoff zu Urandioxid UO_2 reduziert. Es dient als Ausgangssubstanz für die Hydrofluorierung.

Hydrofluorierung

Das Urandioxid aus der Reduktion wird zur Hydrofluorierung in Wirbelschichtöfen geleitet. In der Wirbelschicht reagiert das UO_2 mit gasförmigem Fluorwasserstoff HF zu Urantetrafluorid UF_4 .



Die Abgase werden gefiltert, um eventuell enthaltenes Uran zurückzuhalten. Eine Kaliumhydroxidlösung bindet überschüssiges HF in einem Wäscher im Abgastrakt, bevor das Abgas an die Atmosphäre abgegeben wird /IAEA 09a/.

Fluorierung

Mit Fluorgas wird das feste Urantetrafluorid zu gasförmigen Uranhexafluorid umgesetzt:



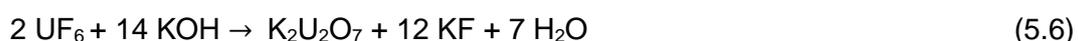
Dieser Prozess findet ebenfalls in Wirbelschichtöfen statt. Über Filteranlagen werden die Abgase, die UF_6 , HF und F_2 enthalten, gereinigt und das UF_6 in Kältefallen abgetrennt. Uranreste aus den Sumpfen der Wirbelschichtöfen werden in den Produktionsprozess zurückgeführt /IAEA 95/.

Destillation und *Product*-Abfüllung

Das Uranhexafluorid wird in Kältefallen verflüssigt und in einem Tank gelagert, bevor es zur Destillation gelangt. Die Destillation wird als Kolonnen-Destillation durchgeführt, wobei unterschiedliche Siedepunkte der Verunreinigungen gegenüber dem UF_6 genutzt werden. Die Destillation lässt sich sowohl kontinuierlich als auch im Chargenbetrieb durchführen. Weiterhin können Hilfsprodukte zur Verbesserung der Trenneffizienz verwendet werden. Als wichtige Verunreinigungen sind hier aus dem Konversionsprozess stammendes HF und F_2 , sowie mitgeschlepptes Wolframfluorid WF_6 und Molybdänfluorid MoF_6 zu nennen. Genügt das UF_6 den Reinheitskriterien, wird es abgekühlt, kondensiert und als *Feed* abgepackt.

Abgaswäsche

Das UF_6 wird danach in einer Kolonne von den primären Kältefallen bei Temperaturen zwischen 0°C und -10°C auskondensiert. In einer zweiten und dritten Kältefallenkolonne wird das verbleibende UF_6 bei tieferen Temperaturen auskondensiert und in die Destillationskolonne zurückgeführt. Der nicht kondensierbare Anteil der Abgase mit Fluor, Luft und Uranhexafluorid-Anteilen wird im Anschluss über Gaswäscher gereinigt. Hierbei entfernt Kaliumhydroxid als chemisch reaktive Komponente der Waschlösung den Fluoranteil und bindet das verbliebene Rest-Uran:



Die Abgaslösung wird gereinigt und das KOH zurückgewonnen, um erneut zur Filterung eingesetzt zu werden. Das entstehende Kaliumdiuranat ($K_2U_2O_7$) setzt sich in der KOH-Filterlösung ab, wird gereinigt und wieder in den Konversionsprozess geleitet.

Uranrückgewinnung

Filterrückstände, kontaminierte Sümpfe der Wirbelschichtöfen, diverse Prozessstäube und Gaswäscherückstände werden in den Uranrückgewinnungsprozess eingespeist. Bei den flüssigen Abfällen handelt es sich größtenteils um mit Uran verunreinigte Natriumcarbonatlösungen (Na_2CO_3) aus der Transportbehälterwäsche und Kaliumdiuranat aus der Abgaswäsche. Die Lösungen werden filtriert und der Urananteil separiert. Die Filterrückstände, die Zerfallsprodukte von Uran enthalten (größtenteils Thorium und Protaktinium), werden zwischengelagert, um später als radioaktive Abfälle entsorgt zu werden.

5.7.2 Transport

Beim Transport liegt Uranhexafluorid als Feststoff vor. Aufgrund der Volumenzunahme von UF_6 beim Übergang vom festen in den flüssigen Aggregatzustand (siehe Kap. 5.2) werden UF_6 -Behälter aus Sicherheitsgründen nicht komplett mit festem UF_6 befüllt; es bleibt also ein Anteil des Behälters frei /URE 01/.

In Deutschland kommen für den Transport von UF_6 üblicherweise zwei Ausführungen der in den USA gefertigten Transportbehälter zum Einsatz: Der 48Y-Behälter (Natururan, abgereichertes Uran) und der 30B-Behälter (Uran bis 5 % Anreicherung). In Tab. 5.5 sind die technischen Daten der beiden Behältertypen spezifiziert. Für den Transport sind sowohl der 48Y-Behälter als auch der 30B-Behälter mit einer zusätzlichen Schutzverpackung (*Overpack*) ausgestattet, vgl. Abb. 5.6. Seit 2002 sind die 48Y-Behälter zudem mit einer Ventilschutzkappe versehen, die das Behälterventil bei Behälterabstürzen zusätzlich schützt.

Tab. 5.5 Technische Daten der UF₆-Transportbehälter

/USEC 95/, /URE 01/

	48Y-Behälter	30B-Behälter
Transportgut UF ₆ (Anreicherung)	<i>Feed, Tails</i> (≤ 0,72 %)	<i>Product</i> (> 0,72 %)
Konstruktionsmaterial	Stahl (ASTM A516)	Stahl (ASTM A516)
Durchmesser [cm]	122	76
Volumen [m ³]	4	0,7
Wandstärke [mm]	16	13
UF ₆ -Fassungsvermögen [kg]	12.501	2.277
UF ₆ -Heel [kg]1)	22,68	11,34
Auslegungsdruck [bar]	13,8	13,8
Prüfdruck [bar]	27,6	27,6

1) Heel: zulässige Restmenge, die nach Entleerung des Behälters in diesem verbleiben darf

Das abgereicherte Uran (*Tails*) wird typischerweise entweder in 48Y-Transportbehälter oder in 48G-Lagerbehälter (Fassungsvermögen ca. 12 Mg UF₆) gefüllt. Die 48G-Behälter sind in den USA bereits seit 1951 im Einsatz /URE 97/, /URE 02/.



Abb. 5.6 48G-Lagerbehälter und 30B-Transportbehälter beim Verladen in den Overpack

Links: 48G-Behälter /ANL 09/; rechts: 30B-Behälter /URE 01/

Die genannten Transport- und Lagerbehältertypen entsprechen den weltweit anerkannten Normen ISO 7195:2005 /ISO 05/ bzw. ANSI N14.1-1982 /ANSI 81/ und unterliegen in Deutschland einer Bauart-Zulassung durch das Bundesamt für die Sicherheit der nuklearen Entsorgung (BASE) bzw. der Bundesanstalt für Materialforschung und -prüfung (BAM) /BMVI 16/. Eine Übersicht aller international im Einsatz befindlichen Behälter für UF₆ ist in /USEC 95/ zusammengestellt.

Unter Berücksichtigung der Tatsache, dass Uranhexafluorid UF_6 bei Kontakt mit Luftfeuchtigkeit stark ätzenden Fluorwasserstoff HF bildet, sind in der „Gefahrgutverordnung Straße, Eisenbahn und Binnenschifffahrt“ (GGVSEB) besondere „Anforderungen an die Verpackung und Beförderung von Uranhexafluorid“ aufgestellt worden /BGB 19/, /BUN 09b/. Danach müssen UF_6 -Verpackungen als Druckbehälter ausgelegt und aus einem geeigneten Kohlenstoffstahl oder einem anderen geeigneten legierten Stahl gebaut werden. Sie müssen für Betriebstemperaturen von -40 °C bis 121 °C und für einen Betriebsdruck von 14 bar ausgelegt sein und einem Prüfdruck von 28 bar unterworfen werden /ANSI 81/, /ISO 05/.

Alle Uranhexafluorid-Transporte gelten als Gefahrguttransporte der Klasse 7 und unterliegen dem Gefahrgutbeförderungsgesetz (GGBefG) /BUN 75/ sowie den entsprechenden internationalen Vereinbarungen /WNTI 06/, /IAEA 09b/. Das *Product* ist zudem Kernbrennstoff, dessen Transport in Deutschland nach § 4 AtG /DEU 22/ einer Genehmigung bedarf. An der Oberfläche der UF_6 -Transportbehälter ist nach der GGVSEB eine Dosisleistung von 2 mSv/h zulässig. In 2 m Abstand von der Außenkante des Transportfahrzeugs beträgt der Grenzwert 0,1 mSv/h /BGB 19/.

5.7.3 Anreicherung

Im Folgenden wird ein beispielhafter typischer Prozessablauf der Anreicherung mittels Zentrifugen beschrieben. Details können anlagenspezifisch z. T. deutlich davon abweichen. Ein allgemeines Prozessschema der Anreicherung von UF_6 ist vorab als Überblick in Abb. 5.7 dargestellt. Nähere Details sind im weiteren Text erläutert; vgl. auch Kap. 2.4.

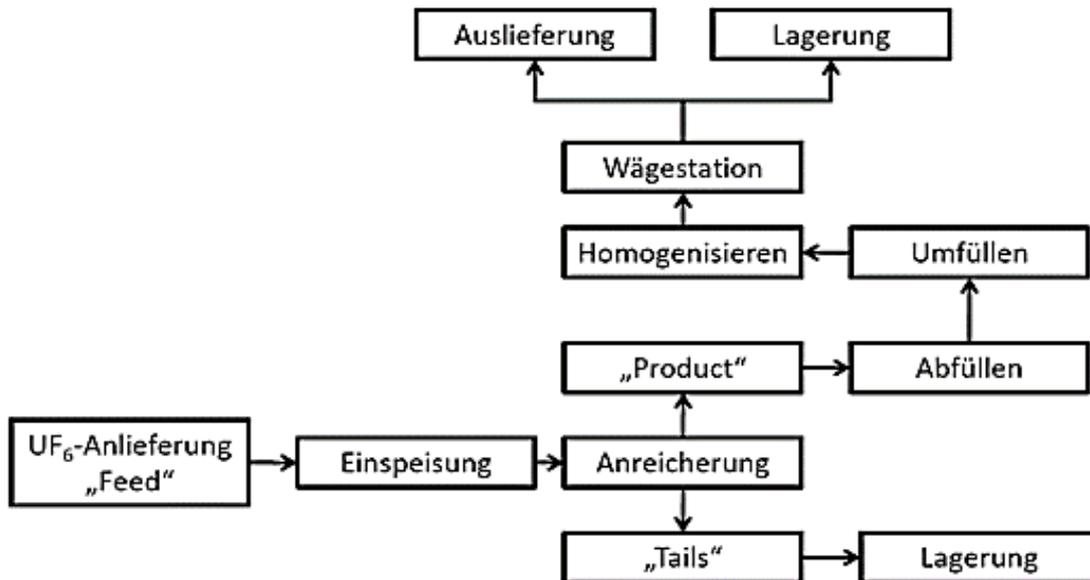


Abb. 5.7 Allgemeines Prozessschema bei der Anreicherung von UF₆

Die Entladung der angelieferten Behälter mit festem Uranhexafluorid-*Feed* erfolgt in einem beheizbaren gasdichten Autoklaven einer Aufheizstation. Dieser übernimmt auch die Funktion der zweiten Sicherheitsbarriere. Die Temperatur wird durch Warmluft auf ca. 70 °C erhöht, wodurch das Uranhexafluorid im Transportbehälter sublimiert und der Druck steigt. Die Erwärmung der Luft findet wiederum über einen Wärmetauscher statt. Das gasförmige UF₆ strömt mit ca. 2 bar aus und gelangt in die Druckreduzierstation. Für die Anreicherung in den Zentrifugen wird der Druck auf den notwendigen Eingangsdruck des Zentrifugensystems gesenkt. Dieser liegt bei einem Bruchteil des Umgebungsdrucks. Damit das UF₆ nicht resublimiert, werden die Rohrleitungen elektrisch beheizt. Danach wird das UF₆ in die Zentrifugenkaskaden geleitet. Dort herrscht ein Unterdruck, der einer Verfestigung entgegenwirkt und im Störfall ein rasches Austreten von Uranhexafluorid verhindert.

Beim Zentrifugenverfahren sammelt sich die leichtere ²³⁵U-Komponente in größeren Anteilen in der Mitte der Zentrifuge und kann dort extrahiert werden, während die Konzentration des schwereren ²³⁸U-Anteils in Richtung der Gefäßwand zunimmt (vgl. Abb. 5.8). Diese Zentrifugenschritte werden mehrmals hintereinander durchgeführt, bis der gewünschte Anreicherungsgrad erreicht ist. Die so in den Kaskaden separierten Fraktionen *Product* und *Tails* werden in der darauffolgenden Desublimatorstation gekühlt und verfestigt. Mit angereichertem Uran gefüllte Desublimatoren werden im Anschluss erhitzt und der Inhalt in den jeweiligen Transporttank in der Behälterfüllstation geleitet.

Die Füllung wird im Anschluss in der Wägestation überprüft. Die Anreicherung des *Products* wird in der Umfüllanlage getestet und gegebenenfalls ausgeglichen, indem gasförmiges UF_6 zwischen Behältern unterschiedlicher Anreicherung ausgetauscht wird.

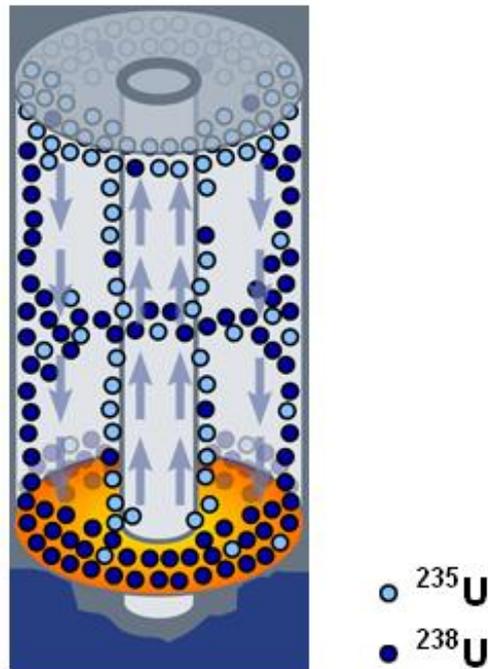


Abb. 5.8 Schema der UF_6 -Strömung in einer Gaszentrifuge

/WKK 09/

Einspeisung

Die Aufheizung des UF_6 mit Heißluft ist möglich, da nur ein relativ geringer kontinuierlicher Massenstrom an verdampftem UF_6 zur Einspeisung erforderlich ist, und der geringe Wärmeübergang von der Heißluft an den UF_6 -Behälter für die Energiezufuhr ausreicht.

Das gasförmige UF_6 wird bei einem typischen Druck von ca. 2 bar vom Autoklaven in einem doppelwandigen Rohr zur Druckreduzierstation geleitet. Sowohl das Ausdampfen als auch die Druckreduktion erfolgen in separaten Raumbereichen. Nach ggf. mehrstufiger Druckreduktion wird das UF_6 mit dem zur Anreicherung notwendigen Unterdruck in den Anreicherungsprozess eingespeist. Da der gesamte folgende Anreicherungsprozess im Unterdruck abläuft, und da wegen des geringen Druckes und damit der geringen Dichte innerhalb der Zentrifugenkaskade nur ein kleines UF_6 -Inventar vorliegt, ist in diesem Prozessschritt keine Freisetzung größeren Ausmaßes möglich. Signifikante

Freisetzungen sind nur im Bereich der Ausdampfung und der Druckreduzierhalle möglich.

Undichtigkeiten würden aufgrund des herrschenden Unterdrucks zunächst zu einem Lufteinbruch in das UF₆-Leitungssystem und in die Apparate führen. Da die Komponenten des Trennprozesses sehr empfindlich auf einen Lufteinbruch reagieren, wäre eine Zerstörung verschiedener Anlagenteile die Folge. Dies ist zum einen auf die Bildung von ätzender Flusssäure (HF) mit dem in Luft vorhandenen Wasserdampf zurückzuführen. Zum anderen kann es durch den Druckschlag bzw. den stark erhöhten Druck und den sehr hohen Rotationsgeschwindigkeiten (typischerweise ~1.200 Hz, bei 6,5 cm Durchmesser: 490 m/s Umfangsgeschwindigkeit /SPE 21/) der Zentrifugen zu mechanischen Beschädigungen kommen. Um dies zu vermeiden ist eine genaue Überwachung des Unterdruckes und z. B. eine Schnellschlusseinrichtung oder etwas Vergleichbares zum Schutz der Anlage erforderlich. Die Dichtheitsanforderungen gegen das Eindringen von Luft in das System sind aus den oben genannten betrieblichen Gründen um Größenordnungen höher als die Anforderungen gegen Leckagen.

Autoklaven verfügen über eine Temperatur- und Druckmesseinrichtung zur Steuerung des Aufheizprozesses. Die Beheizung des Behälters mit Heißluft und der damit verbundenen hohen Differenzen der Wärmekapazität zwischen Luft und dem im Behälter befindlichen UF₆ ermöglicht einen schnelle Antwort des Systems auf mögliche Regelungsschritte und ermöglicht im Bedarfsfall einen schnellen Abbruch des Prozesses. Die UF₆-Leitung im Inneren des Autoklaven ist typischerweise mit automatischen und manuellen Absperrventilen ausgestattet. Beim Austausch der Behälter wird eine Verbindungsleitung zwischen UF₆-Leitung und Behälterventil angeflanscht. Um eventuell kleine UF₆-Mengen absaugen zu können, steht eine Absaugvorrichtung zur Verfügung.

Nach dem Einbringen eines neuen Behälters in den Autoklaven und dem Anschließen der Verbindungsleitungen wird zunächst die UF₆-Leitung in das Evakuierungssystem angeschlossen. Nach Dichtheitsüberprüfung mit Über- und Unterdruck wird das UF₆-Behälterventil geöffnet. Danach erfolgt die Aufheizung und das Entleeren des Behälters in die Prozessanlage. Nach dem Entleeren erfolgt eine Restentleerung des Behälters mittels Unterdruck. Anschließend wird die UF₆-Leitung wieder abgesperrt, der Autoklav geöffnet und die Verbindungsleitung abgeflanscht /IAEA 95/.

Bei dieser Vorgehensweise beim Behälterwechsel besteht im Normalbetrieb zu keinem Zeitpunkt die Gefahr einer größeren UF_6 -Freisetzung. Kleinste UF_6 -Mengen, die beim Abflanschen aus dem Ventil oder der Leitung austreten können, werden durch eine Absaugeinrichtung entfernt. Die im Autoklaven befindlichen Anschlusskomponenten befinden sich stets auf möglichst demselben Temperaturniveau wie der gesamte Autoklav, sodass ein Auskristallisieren von Uranhexafluorid in den Ventilen oder an der Messstelle vermieden wird. Alle verwendeten Armaturen werden üblicherweise wartungsarm ausgelegt.

Zudem gibt es zur Überprüfung der Prozesssicherheit ein Freisetzung-Detektionssystem, welches den Betrieb der Anlage überwacht und in der Lage ist, bereits kleine Freisetzungen von UF_6 zu detektieren. In der Abluft der betroffenen Bereiche erfolgt eine Überwachung der Fluorwasserstoff-Konzentration sowie der α - und der β -Aktivität. Bei Überschreiten des jeweiligen Grenzwertes schaltet das Abluftsystem automatisch von Normalbetrieb auf Störfallbetrieb um.

Im Störfall wird die Abluft aus der Behälterhalle und der Druckreduzierhalle zunächst über Aktivkohlefilter geführt, um den HF-Anteil in der Abluft zurückzuhalten. Im Anschluss erfolgt eine Filterung in Schwebstofffiltern, sodass weder eine Freisetzung von HF noch von UO_2F_2 in die Umgebung auftreten kann.

Da die Anlagenräume, in denen die Aufheizung bzw. die Druckreduzierung erfolgt, gegenüber den sonstigen Anlagenräumen in Unterdruck gehalten werden, ist eine Verschleppung von freigesetztem UF_6 in andere Anlagenräume nicht zu erwarten.

Bei einer Freisetzung großer Mengen an UF_6 droht eine Überbeladung der Aktivkohlefilter und damit ein Durchbruch von gasförmigem HF und UF_6 hin zu den Schwebstofffiltern, die keine Rückhaltefunktion für gasförmige Stoffe aufweisen. Um eine Freisetzung in die Außenluft zu vermeiden, erfolgt automatisch ein vollständiger Lüftungsabschluss. Um die Filterwirksamkeit auch für größere Freisetzungen möglichst lange zu gewährleisten, werden Schwebstofffilter aus säurefestem Material eingesetzt.

Das Evakuierungssystem zur Restentleerung der Behälter besteht z. B. aus einem Desublimator. Dabei handelt es sich um einen Behälter, der aufgrund eines Wärmetauschers sowohl als Kältefalle betrieben als auch aufgeheizt werden kann. Der Desublimator ist meist mit einem Kühl- und Heizkreislauf ausgestattet. Das System ist dann je nach Betriebsweise geeignet, sowohl kleinere UF_6 -Mengen oder -Reste

abzusaugen als auch zur Entleerung von überfüllten Behältern ohne Aufheizung zu dienen. Diese Unterdrucksysteme, die allein unter Ausnutzung des geringen Dampfdrucks bei Abkühlung arbeiten, verfügen über ein Leichtgasabzugssystem, durch das die verbleibenden, nicht auskristallisierten Gase abgezogen werden können. Um sicherzustellen, dass nicht geringe UF_6 -Mengen mit Schmierölen in den Unterdruckbomben in Kontakt kommen, werden UF_6 -Absorptionsfallen vor den Pumpen angeordnet, sodass die Gefahr einer Explosion aufgrund einer heftigen chemischen Reaktion von UF_6 mit organischen Flüssigkeiten ausgeschlossen werden kann.

Abfüllung

Nach Durchlaufen des Trennprozesses wird das gasförmige UF_6 wieder in Behälter abgefüllt. Durch Erwärmung des Desublimators auf Temperaturen, bei denen der Dampfdruck von UF_6 unterhalb des Atmosphärendrucks liegt, und unter gleichzeitiger Kühlung der UF_6 -Behälter wird das in den Desublimatoren gesammelte Uranhexafluorid im gasförmigen Zustand in die UF_6 -Produktbehälter überführt. Die Kühlung erfolgt bei angereichertem UF_6 aus Überlegungen zur Kritikalitätssicherheit durch Luft anstelle von Kühlwasser, die in einem Wärmetauscher gekühlt wird. Bei abgereichertem UF_6 wird üblicherweise Kühlwasser anstelle von Luft verwendet.

Die Befüllung der Behälter wird durch kontinuierliche Messung der Behältermasse laufend überwacht. Bei Erreichen der zulässigen Füllmenge wird die Zuleitung automatisch abgesperrt. Die betrieblichen Maßnahmen zur Verhinderung von Undichtigkeiten sowie von Lufteinbruch beim An- und Abkoppeln der UF_6 -Behälter entsprechen denen bei der Einspeisung. Die Einrichtungen zur Befüllung der UF_6 -Behälter nach dem Trennprozess befinden sich ebenfalls in der Behälterhalle, die mit den oben erwähnten Lüftungstechnischen Einrichtungen ausgestattet ist.

Produktumfüllung

Zur Sicherstellung des gewünschten Anreicherungsgrades werden in der Produktumfüllanlage entsprechende Mengen aus verschiedenen Behältern definiert vermischt. Hierzu wird der Produktbehälter aus der Trennanlage in einem Autoklav auf ca. 80 °C aufgeheizt, eine zuvor berechnete Menge in gasförmigem Zustand in den finalen 30B UF_6 -Produktbehälter überführt, und dort durch Kühlung sublimiert. Nach Einspeisung dieser entsprechenden Teilmenge in den Produktbehälter wird aus einem anderen Behälter in einer anderen Aufheizstation die entsprechende Teilmenge mit

unterschiedlicher Anreicherung zugeführt. Die Druckreduzierung des UF₆-Gases erfolgt innerhalb des Aufheizautoklaven, der ansonsten identisch ist zu dem bei der Einspeisung verwendeten System. Hierbei liegt druckbeaufschlagtes UF₆ lediglich innerhalb des Aufheizautoklaven vor. Die technischen Einrichtungen und Verfahrensabläufe entsprechen denen beim Aufheizen des einzuspeisenden Uranhexafluorids vor, und denen der Produktabfüllung nach dem Trennprozess. Die Sicherheitsvorkehrungen zur Wägung sowie zur Einhaltung des maximalen Befüllgrades entsprechen denen nach dem Trennprozess.

Die Räumlichkeiten der Produktumfüllanlage sind mit entsprechenden Lüftungstechnischen Einrichtungen, d. h. Normalbetrieblüftung mit Unterdruck gegenüber anderen Anlagenräumen und automatischer Umschaltung auf Störfalllüftung bei UF₆-Freisetzungen, ausgestattet.

Homogenisierung

Um zu gewährleisten, dass das UF₆ in den Produktbehältern eine gleichmäßige Zusammensetzung, d. h. einen homogenen Anreicherungsgrad besitzt, werden die Produktbehälter bei der Übernahme aus dem Trennprozess und vor dem Abtransport in Aufheizautoklaven auf Temperaturen von ca. 90 °C erhitzt und dann ein bis zwei Tage auf dieser Temperatur belassen. Durch die so erhöhte Mobilität der UF₆-Moleküle stellt sich eine Homogenisierung des UF₆-Inhalts ein. Die Autoklaven entsprechen weitgehend denen bei der Einspeisung, jedoch existiert in der Homogenisierung zumeist keine Anschlussleitung zur Entleerung der UF₆-Behälter. Die UF₆-Behälter sind entweder völlig verschlossen oder sind mit einer Probennahmeeinrichtung verflanscht. Der Autoklav ist während des gesamten Vorgangs verschlossen und wird erst nach Erkalten der UF₆-Behälter wieder geöffnet.

Wägestation

Die befüllten UF₆-Behälter werden vor Aufheizung bzw. vor der Abgabe ins Lager oder vor dem Abtransport auf einer Waage auf ihr Gewicht kontrolliert, um sicherzustellen, dass die maximal zulässige Befüllung der Behälter nicht überschritten ist. Diese Wägung stellt eine zweite, unabhängige Kontrolle des zulässigen Inhalts der UF₆-Behälter dar. Zur Überprüfung der Waage stehen Prüfgewichte zur Verfügung, sodass eine genaue Gewichtsbestimmung sichergestellt ist.

Betriebsstörungen

Die Komponenten, in denen UF_6 verflüssigt oder im Überdruck gehandhabt wird, müssen so ausgelegt sein, dass betriebliche Leckagen im Normalbetrieb aufgefangen und beseitigt werden können. Bei Einbringen von beschädigten oder reparierten Behältern oder Ventilen sollte es zudem möglich sein, diese Behälter auch durch die Vakuumsysteme zu entleeren, falls eine normale Ausdampfung zu Freisetzungen in den Autoklaven führen würde. Die Aufheizung kann hierfür auf Temperaturen begrenzt werden, bei denen der Dampfdruck des UF_6 und somit der Behälterinnendruck unterhalb des Umgebungsdruckes liegt. Kleineren Freisetzungen aus Behältern in den Bereitstellungslagern können durch mobile Absaugeinrichtung und Reparaturmaßnahmen am Behälter entgegengewirkt werden. Reparaturen an Behältern oder Behälterventilen im beladenen Zustand werden prinzipiell nur im kalten Zustand, d. h. bei verfestigtem UF_6 , durchgeführt.

Wird bei der Kontrollwägung eines Produktbehälters festgestellt, dass der Behälter über den maximal zulässigen Füllgrad hinaus befüllt wurde, besteht z. B. die Möglichkeit, diesen Behälter umgehend in einen Autoklav zu bringen und dort ohne Aufheizung durch das Evakuierungssystem so weit in den Desublimator zu entleeren, bis das zulässige Füllgewicht erreicht ist. Durch diese Vorgehensweise kann eine Gefährdung der Behälterintegrität durch Druckerhöhung beim Aufheizen zur Entleerung vermieden werden.

5.7.4 Brennelementfertigung

Das in die Brennelementfabrik angelieferte, angereicherte UF_6 wird in einem Autoklaven aus dem Behälter ausgedampft und in modernen Anlagen z. B. mittels Trockenkonversion in UO_2 überführt. Anlagen ohne eigene Konversionseinrichtung erhalten das Uranoxid direkt angeliefert. Im folgenden Abschnitt werden die Arbeitsschritte einer generischen Brennelementfertigungsanlage beschrieben. Beschreibungen von Anlagenteilen und Verfahrensschritten richten sich nach den internationalen Richtlinien zu Transport, Lagerung und Handhabung von Uranverbindungen, sowie frei verfügbarer Fachliteratur. Abb. 5.9 veranschaulicht ein typisches Prozessdiagramm der Trockenkonversion.

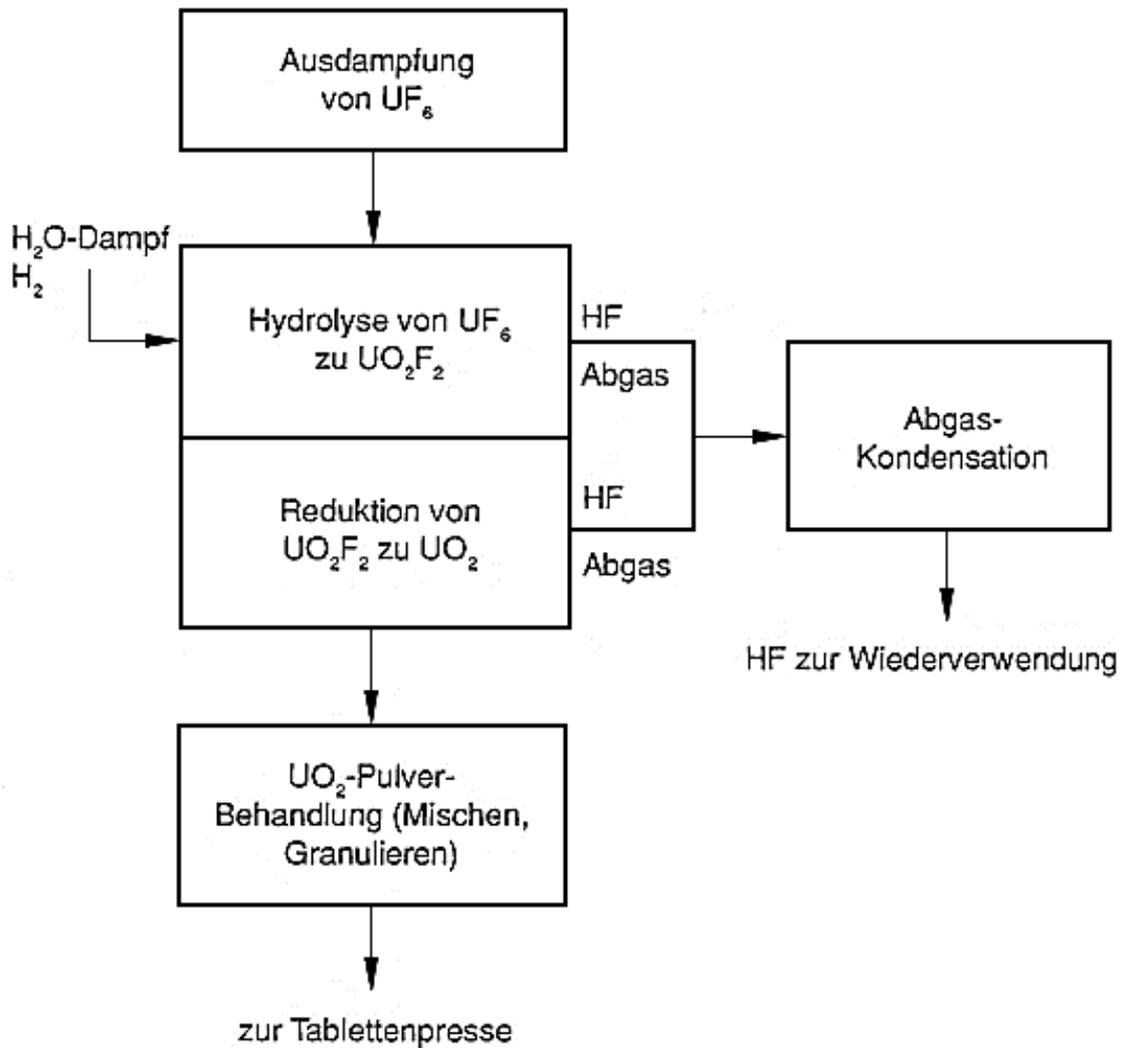


Abb. 5.9 Fließschema einer Trockenkonversion

/GRI 98/

In der Trockenkonversion werden die Zwischenprodukte und die Bedingungen der chemischen Reaktionen so gewählt, dass alle Edukte und Produkte in gasförmiger oder fester Form vorliegen. Dies bringt Vorteile bei der Sicherstellung der Unterkritikalität und reduziert die gegenüber einer nasschemischen Konversion notwendige Behandlung kontaminierter Prozessabwässer erheblich.

In der Regel erfolgt die Umsetzung von UF_6 zu UO_2 in zwei Prozessschritten /HEI 91/, /GRI 98/:

1. Ausgedampftes, gasförmiges UF_6 wird in einer Atmosphäre aus überhitztem Wasserdampf zunächst in festes Uranylfluorid (UO_2F_2) umgewandelt (Hydrolyse):



2. Defluorierung und Reduktion mittels Wasserstoffes und Wasserdampf im Wirbelschichtofen zu stabilem UO_2 -Pulver:



Die Summengleichung für diese kombinierten Reaktionen lautet:



Die notwendige Energie für diesen endothermen, kontinuierlichen Prozess kann z. B. durch eine elektrische Heizung bereitgestellt werden.

Die Besonderheit dieses Verfahrens besteht in der nahezu vollständigen Umwandlung des UF_6 über UO_2F_2 in rieselfähiges UO_2 in einem elektrisch beheizten Reaktionsbehälter durch zwei aufeinanderfolgende chemische Reaktionen /MOR 06/. Im ersten Prozessschritt reagiert das gasförmige UF_6 mit überhitztem Wasserdampf in einer Gasphasenreaktion zu festem UO_2F_2 -Pulver und HF. Das UO_2F_2 wird durch die Schwerkraft in den unteren Teil des Reaktionsbehälters transportiert, der als Wirbelschichtreaktor ausgelegt ist. Hier reagiert im zweiten Prozessschritt das entstandene UO_2F_2 -Pulver mit einem Prozessgas-Gemisch, das Wasserstoff enthält, zu UO_2 -Pulver und HF-Gas. Das so erzeugte UO_2 -Pulver wird dem Reaktionsbehälter entnommen und einem elektrisch beheizten Drehrohrofen zugeführt. Hier erfolgt die Entfernung von Fluor-Resten und die vollständige Reduktion zu UO_2 -Pulver. Bevor das Urandioxidpulver zu Tabletten verpresst werden kann, wird es einer mechanischen Behandlung unterzogen, die im Wesentlichen aus einer Folge von Misch-, Mahl-, Kompaktier- und Granuliertvorgängen besteht.

Das Prozessabgas der Reaktionsbehälter und des Drehofens wird einer Abgasbehandlung unterzogen. Es setzt sich qualitativ aus Stickstoff (N₂), Wasserstoff (H₂), Fluorwasserstoff (HF) und Wasserdampf (H₂O) zusammen. Es wird über in Serie angeordnete Sintermetall-Filter geführt, deren Aufgabe darin besteht, mitgeführte UO₂-Partikel abzuscheiden und zurückzuhalten. Dabei dient der erste Filter als Arbeitsfilter und der zweite als Sicherheitsfilter (*back-up*). Durch Überwachung des Differenzdrucks der Filter kann deren Integrität sichergestellt werden. Anschließend wird das Prozessabgas mittels wassergekühlter Kondensatoren auf etwa Raumtemperatur abgekühlt, wodurch ein Großteil des Wasserdampfs und des Fluorwasserstoffs kondensiert und dabei Flusssäure gebildet wird. Diese wird in Lagertanks aufgefangen und rezykliert. Der Urangehalt der Säure wird messtechnisch überwacht und der Prozess automatisch abgeschaltet, sollte ein vorgegebener Grenzwert überschritten werden.

Nach Verlassen der Kondensatoren besteht das Prozessabgas im Wesentlichen aus Stickstoff, Wasserstoff und geringen Restmengen an Fluorwasserstoff. Zur vollständigen Abtrennung von HF wird das Gas typischerweise über mehrere in Reihe geschaltete Kalksteinabsorptionsfilter geführt. Die Grundlage hierfür bildet die Reaktionsgleichung:



Der gebildete Flussspat (CaF₂) liegt dann als Feststoff vor. Er wird in Fässer abgefüllt und kann industriell verwertet oder deponiert werden. Hat das Prozessabgas die Kalksteinfilter passiert, wird der im Gas verbliebene Wasserstoff zumeist abgefackelt. Das verbleibende Prozessabgas (Stickstoff, Kohlenstoffdioxid und Wasserdampf) wird über einen Schwebstofffilter der Gebäudefortluft zugeführt.

Ausdampfung

Bei der Einspeisung von UF₆ in den Fertigungsprozess wird das Material chargenweise mit relativ hohem Durchsatz benötigt. Daher erfolgt die Ausdampfung typischerweise in Autoklaven, die mit mehrschichtigen Dampfheizungen ausgestattet sind. Dabei herrscht im Normalbetrieb in dem Autoklav Umgebungsdruck, was ein freies Abfließen des im Aufwärmprozess kondensierten Wassers ermöglicht. Der Heizdampf wird vor der Einspeisung typischerweise auf Temperaturen von einigen Grad über dem Siedepunkt eingestellt und als Heißdampf zugeführt. Dies hat den Vorteil, dass das Erhitzen mit leicht überhitztem Dampf ein effektiveres Aufheizen im Vergleich zum Aufheizen mit Heißluft ermöglicht, da beim Heißdampf zusätzlich die Verdampfungsenergie des

Wassers zum Erwärmen des Behälters genutzt werden kann. Bei einem derartigen Design wird das abfließende Kondensat gekühlt und die Systemintegrität mittels eines Messsystems überwacht, sodass eventuelle UF₆-Leckagen sofort erkannt würden. Im Falle einer Freisetzung werden Kondensatablauf und Dampfzufuhr automatisch unterbrochen und die Absperrarmatur zur UF₆-Prozessleitung geschlossen. Das Kondensat wird zur Abwasserbehandlungsstation weitergeleitet. Die Anlage ist dabei so auszulegen, dass eine große, schlagartige UF₆-Freisetzung zu keiner Freisetzung in die Betriebsräume und die Umgebung führen würde.

Zur Ausdampfung wird ein UF₆-Behälter in den Autoklaven eingeschoben, die Verbindungsleitung zur UF₆-Prozess-Leitung angeschlossen und die Dichtheit des Anschlussstrangs überprüft. Dies geschieht z. B. durch Druckbeaufschlagung mit CO₂ und anschließender Unterdruckprüfung /IAEA 95/. Nach dem Schließen des Autoklaven erfolgt das Aufheizen des Anschlussstrangs und die Entleerung durch die beheizte UF₆-Leitung über eine Druckreduzierung zur weiteren Bearbeitung.

Eine Absperrarmatur der UF₆-Prozess-Leitung wird auf dem Autoklav platziert und ist ebenfalls beheizt. Behälterseitig der Absperrarmaturen befinden sich dann ein Anschluss zu einem Evakuierungssystem sowie die Einspeisemöglichkeit von CO₂-Gas. Die Restentleerung des UF₆-Behälters erfolgt durch mehrmaliges Spülen mit CO₂-Gas. Dabei wird der UF₆-Behälter mit einem Überdruck von zumeist wenigen Bar beaufschlagt und wieder entleert. Das Evakuierungssystem besteht aus einer beheizten Rohrleitung, einer Unterdruckpumpe und einer Einspeisung in einen Wäscher. Das System ist nicht zur Restentleerung der UF₆-Behälter, sondern zur Absaugung von UF₆-Resten aus den Leitungen, insbesondere beim Behälterwechsel und bei Interventionsmaßnahmen, konzipiert /IAEA 95/.

Alle Rohrleitungen und Armaturen, in denen gasförmiges UF₆ transportiert wird, sind typischerweise beheizt, um ein Absetzen von festem UF₆ zu verhindern. Durch vorbeugende Instandhaltung und regelmäßigen frühzeitigen Austausch der Ventil- und Anschlussysteme kann sichergestellt werden, dass Interventionen während der Ausdampfung unter Normalbedingungen sehr unwahrscheinlich sind. Die Anschlussdichtung der Verbindungsleitung zum Behälter sollten bei der Druckprobe bei jedem Behälterwechsel mit geprüft werden.

In den Bereichen, in denen gasförmiges UF₆ gehandhabt wird, wird die Anlage durch ein Freisetzung-Warnsystem überwacht, das bereits Freisetzungen kleiner Mengen sicher erkennt und einen Alarm ausgibt.

Betriebsstörungen

Überfüllte Behälter, die bei der Wägung in der Eingangskontrolle entdeckt werden, werden nicht in den Anlagen verarbeitet. Hingegen ist es möglich, schadhafte oder reparierte Behälter mit den technischen Ausrüstungen und einer entsprechend angepassten Betriebsweise (z. B. Entleerung mit verminderter Temperatur) zu verarbeiten. Die Autoklaven zur Aufheizung sollten über Anschlussmöglichkeiten für Evakuierungssysteme verfügen, sodass eventuell während der Ausdampfung aufgetretene Freisetzungen in den Autoklaven wieder beseitigt werden können ohne den Autoklav zu öffnen.

Bei aufgeheiztem UF₆-Behälter dürfen keinerlei Transporte oder Reparaturmaßnahmen stattfinden. Der Autoklav ist stets geschlossen. Sollte bei aufgeheiztem und noch nicht entleertem Behälter eine Reparatur der UF₆-Absperrarmatur am Autoklav notwendig werden, so sind Maßnahmen zu implementieren, dass der UF₆-Behälter im Autoklav schneller abgekühlt werden kann.

5.7.5 Lagerung

Die Lagerung von Uranhexafluorid in angereicherter (*Product*), natürlicher (*Feed*) oder abgereicherter (*Tails*) Form bedarf in Deutschland grundsätzlich einer Genehmigung /BUN 79/. Nach Ablauf der Genehmigung ist die Sicherheit einer weiteren Lagerung erneut nachzuweisen. UF₆ darf nur in Behältern gelagert werden, die auch für den Transport außerhalb des Lagers zugelassen sind.

Bei der industriellen Herstellung von ca. 1 Mg angereichertem UF₆ mit 3,5 Gew.% ²³⁵U fallen ca. 7 Mg abgereichertes Uranhexafluorid an (*Tails*; /DEU 17/). In Deutschland soll das zu findende Endlager nach Standortauswahlgesetz (Stand 2020; /BUN 20/) auch diese *Tails* aufnehmen. Diese werden vor der Endlagerung aus UF₆ in eine andere chemische Konfiguration gebracht. Im Gegensatz dazu wird das abgereicherte Uran in vielen anderen Ländern nicht als radioaktiver Abfall, sondern als Wertstoff betrachtet, da in ihm ein erheblicher Anteil des ursprünglich im *Feed* enthaltenen ²³⁵U zurückbleibt. Bei einer Bandbreite von 0,2 – 0,36 Gew.% ²³⁵U für den Abreicherungsgrad verbleiben 30 – 50 % des im Natururan enthaltenen Spalt nuklids in den *Tails*. Das ²³⁸U wird in geringem

Umfang als wesentliche Komponente bei der Herstellung von Uran-Plutonium-Mischoxidbrennstoff (MOX) für Leichtwasserreaktoren verwendet.

Die Konzepte der Lagerung, möglichen Weiterverarbeitung und Entsorgung der *Tails* in typischen Anlagen der nuklearen Versorgung sehen häufig vor, dass abgereichertes Uran, das nicht anderweitig abgegeben wird, für eine spätere Verwendung als Ausgangsmaterial zur erneuten Anreicherung zwischengelagert wird. Teile des Materials können als Komponenten für die Herstellung von Uran-Plutonium-Mischoxid-Brennstoffen (MOX) verwendet werden. Ist eine weitere Anreicherung oder andere Verwendung nicht absehbar bzw. nähert sich der Lagerbestand der genehmigten Kapazität, können die UF_6 -*Tails* in U_3O_8 konvertiert und für einen längeren Zeitraum (50-100 Jahre) zwischengelagert werden. Da U_3O_8 chemisch sehr beständig, wasserunlöslich, nicht korrosiv, nicht brennbar und auch bei hohen Temperaturen nicht flüchtig ist, sind die potenziellen Risiken einer längerfristigen Zwischenlagerung hierbei wesentlich geringer als bei UF_6 . Sollte das Material als radioaktiver Abfall deklariert werden, müsste es in geeigneter chemischer Form (nach heutiger Kenntnis ebenfalls als U_3O_8) einem Endlager für radioaktive Abfälle zugeführt werden.

Die Uranhexafluorid-Bestände werden vor allem in den Betriebslagern der Verarbeitungsanlagen aufbewahrt. Der Gehalt an spaltbarem ^{235}U bestimmt dabei den erforderlichen nuklearen Sicherheitsstandard.

Die Lagerung des abgereicherten Uranhexafluorids erfolgt in den in Kap. 5.7.2 vorgestellten 48Y- und 48G-Behältern. Zur UF_6 -Lagertechnik liegen dokumentierte Erfahrungen seit 1951 in den USA, seit ca. 1975 bei den URENCO-Anlagen in Großbritannien und den Niederlanden, und seit 1985 in Gronau in Deutschland vor. Hierbei wird angenommen, dass abgereichertes Uran in Form von UF_6 über einen Zeitraum von mindestens fünfzig Jahren sicher in den Behältern gelagert werden kann, in die es beim Anreicherungsprozess abgefüllt wurde. Um die Sicherheit bei der Lagerung zu gewährleisten, wird jeder mit Uranhexafluorid gefüllte Lagerbehälter regelmäßig einer äußeren Inspektion unterzogen.

Das abgereicherte UF_6 kann in UO_2 oder in die metallische Form konvertiert werden. Als UO_2 lässt es sich anschließend industriell nutzen, z. B. im Brennstoffkreislauf /MAX 01/:

- Verwendung als Matrixmaterial für Brennelemente aus Uran-Plutonium-Mischoxid (MOX);
- Einsatz als Brutelement bzw. Neutronenreflektor in fortgeschrittenen (schnellen) Reaktoren;
- Wiederholte Anreicherung zur Herstellung von Material, dessen Anreicherungsgrad dem des Natururans gleicht (0,72 % ^{235}U);
- Wiederholte Anreicherung zur Herstellung von leicht angereichertem Produkt-Uran für kohlenstoff- oder schwerwassermoderierte Leistungsreaktoren.

Die Konversion von Uranhexafluorid zu Metall findet in zwei Schritten statt: Defluorierung mit Wasserstoff und dann metallothermische Reduktion mit Magnesium. Sie verläuft über das Zwischenprodukt Urantetrafluorid (UF_4):



Abgereichertes Uran in metallischer Form findet aufgrund seiner hohen Dichte von $18,9 \text{ g/cm}^3$ international sowohl militärisch als auch industriell Verwendung, in den USA z. B. als panzerbrechende Munition, zivil in Form von Ausgleichsgewichten in Flugzeugen und Schiffen, oder als Abschirmmaterial für Röntgen- bzw. γ -Strahlung in der medizinischen Strahlentherapie /EPA 06/.

5.8 Mögliche Störfälle im Zusammenhang mit der Freisetzung von UF_6

Aufgrund seiner chemischen Natur besteht bei Uranhexafluorid unter Störfallbedingungen das Potential einer gasförmigen Freisetzung. Bei der Freisetzung in die Atmosphäre reagiert das gasförmige UF_6 mit der Luftfeuchtigkeit zu chemotoxischem Uranylfluorid UO_2F_2 welches zunächst einen dichten, undurchsichtigen Aerosolnebel bildet, und dem ebenfalls gasförmigen, chemisch und biologisch hoch aggressiven, chemotoxischen Fluorwasserstoff (HF). Nachfolgend werden repräsentative Störfallereignisse für eine generische Urananreicherungsanlage beschrieben.

5.8.1 Freisetzung von gasförmigem UF₆ innerhalb der Betriebsanlagen

Eine UF₆-Freisetzung innerhalb von Anlagen der nuklearen Versorgung kann beim Aufheizen der Behälter, beim Um- bzw. Einfüllen oder durch Bruch bzw. Abriss von Leitungen erfolgen. Üblicherweise erfolgt die Be- und Entladung der Behälter in Autoklaven. Der Transportbehälter bildet die erste Freisetzungsbarriere, der Autoklav die zweite Barriere. In den Gebäuden herrscht ein leichter Unterdruck gegenüber dem äußeren Luftdruck. Dies verhindert im Freisetzungsfall ein Ausströmen von UF₆ in die äußere Atmosphäre, und bildet so die dritte Barriere. Die Überwachungs- und Belüftungssysteme der Hallen müssen umgehend auf ein Versagen der ersten und zweiten Sicherheitsbarriere reagieren können. In den meisten Verarbeitungsschritten wird mit Unterdruck gearbeitet, sodass zunächst Hallenluft in das System eindringt, bevor Uranhexafluorid austreten kann. Die Abdichtung der Behälter erfolgt über Ventilschluss. Bei diesen Szenarien ist eine Reaktion von UF₆ mit Luftfeuchtigkeit wahrscheinlich, und es kann zur Bildung von Uranylfluorid und Flusssäure kommen.

Als chemotoxisch abdeckender Störfall wird die Abscherung einer *Feed*-Einspeiseleitung angenommen. Dieses Ereignis deckt im Hinblick auf das chemotoxische Gefahrenpotential die Abscherung einer Umfüllleitung in der *Product*-Umfüllanlage ab. Wenn man konservativ keine Rückhaltung durch Umschaltung der Abluft auf die Störfalllüftung (gefilterte Abgabe der Raumluft über das Absaugsystem) unterstellt, kann es zu einer Ausbreitung von Uran in Form von UO₂F₂ und von HF über den Kamin kommen.

Als radiologisch abdeckender Störfall wird die Abscherung einer Umfüllleitung zwischen Aufheizstation und *Product*-Behälterfüllstation mit angereichertem UF₆ betrachtet. Unterstellt man konservativ keine Rückhaltung durch Umschaltung der Abluft auf die Störfalllüftung, so können auch hier Uran in Form von UO₂F₂ mit der entsprechenden ²³⁵U-Anreicherung über den Kamin zur Ausbreitung gelangen. Dieses Ereignis deckt in radiologischer Hinsicht typischerweise die Abscherung einer *Feed*-Einspeiseleitung ab, da diese weniger UF₆ mit geringerer Anreicherung und Aktivität enthält.

5.8.2 Auslaufen wässriger uranhaltiger Lösungen, Kritikalitätsstörfall

Das Versagen eines mit uranhaltigen Lösungen gefüllten Auffangbehälters kann als abdeckender Störfall angenommen werden. Unterstellt man konservativ keine Rückhaltung durch Umschalten der Abluft auf die Störfalllüftung (gefilterte Abgabe der Raumluft über das Absaugsystem), so können auch hier kleine Mengen an Uran über den Kamin zur Ausbreitung gelangen. Durch richtige Auslegung der Anlage wird sämtliche Flüssigkeit im Sumpf aufgefangen und bleibt somit auf die Anlage begrenzt.

UF₆ in reiner Form und jedweder Anreicherung kann nicht kritisch werden. Ein Kritikalitätsstörfall wird, auch sofern er als auslegungsüberschreitender Störfall gilt, dennoch als hypothetisch zu betrachtendem Ereignis postuliert. Das bei der Reaktion von UF₆ mit Wasser oder Luftfeuchtigkeit entstehende, gut wasserlösliche Uranylfluorid (UO₂F₂) kann in wässriger Lösung in geeigneter Konzentration und Menge auch bei Anreicherungen < 5% ²³⁵U (ab ca. 2 %) den Zustand der Kritikalität erreichen. Das Wasser würde hierbei als Moderator wirken.

Die grundlegenden Kritikalitätsdaten ($k_{\text{eff}} = 1$) einer UO₂F₂/H₂O-Lösung mit 6 % ²³⁵U betragen nach /GRS 19/:

- kritische Masse (Kugel): 27,5 kg
- kritisches Volumen (Kugel): 26 dm³
- kritischer Durchmesser (unendlich langer Zylinder): 25,1 cm
- kritische Schichtdicke (unendlich ausgedehnte Schicht): 11,9 cm

Die geometrisch sicheren Dimensionen ($k_{\text{eff}} = 0,95$) einer UO₂F₂/H₂O-Lösung mit 6 % ²³⁵U betragen nach /GRS 19/:

- sicheres Volumen (Kugel): 20,8 dm³
- sicherer Durchmesser (unendlich langer Zylinder): 22,5 cm
- sichere Schichtdicke (unendlich ausgedehnte Schicht): 10,7 cm

UO₂F₂/H₂O-Lösungen sind potentiell bei Vorgängen zu erwarten, die mit der Reinigung von entleerten Behältern in Verbindung stehen. Als mögliche Störfallereignisse für einen Anreicherungsgrad von 6 % ²³⁵U können unterstellt werden:

- Kritikalitätsexkursion in einem Abklingbehälter durch fehlerhafte Befüllung,
- Kritikalitätsexkursion einer Uranlösung bei der Uranausfällung.

Diese Ereignisse können nur dann eintreten, wenn in einem Behälter der Abklinganlage oder der Uranfällung große Mengen an angereichertem Uran vorliegen. Die Wahrscheinlichkeit hierfür ist sehr gering, denn um eine relevante Menge freizusetzen, müsste die Eindämmung mehrerer Behälter gleichzeitig versagen. Die Folge einer Kritikalitätsexkursion in einem Abklingbehälter ist mit einer hohen Wahrscheinlichkeit eine kurzzeitige Emission von durchdringender γ - und Neutronen-Strahlung. Die nukleare Kettenreaktion kann aber unter bestimmten Bedingungen über mehrere Stunden anhalten. Die resultierende Dosis der Direktstrahlung ist ohne Abschirmung in der näheren Umgebung von wenigen 10m als potentiell letal anzusehen. Wird die Abschirmwirkung der Gebäudewände berücksichtigt und konservativ unterstellt, dass die bei der Exkursion freigesetzten Spaltprodukte vollständig zur Ausbreitung gelangen, ergeben sich in beiden Fällen am Anlagenzaun effektive Dosen von wenigen mSv durch Direktstrahlung und Inhalation. Beim Störfall in der Abklinganlage überwiegt tendenziell die Direktstrahlung, während beim Störfall in der Uranausfällung vermutlich die Spaltproduktfreisetzungen die Dosisleistung dominieren würden.

5.8.3 Mechanische Beschädigung und Absturz eines UF₆-Behälters

Zu einer mechanischen Beschädigung eines UF₆-Behälters kann es durch unsachgemäße Handhabung oder Einwirkung von innen oder außen kommen. Die größte Schadensauswirkung bei unsachgemäßem Umgang würde ein Behälterabsturz nach sich ziehen. Reißt der Behälter auf, ist mit einer Freisetzung von UF₆, UO₂F₂ und HF in großem Umfang zu rechnen.

Als abdeckendes Ereignis kann in der Störfallanalyse das teilweise Aufreißen eines mit *Product* der maximal zulässigen Urananreicherung der Anlage gefüllten 48Y- oder 30B-Behälters nach einem Behälterabsturz im Freien angenommen werden. 48Y-Behälter werden teilweise innerhalb der Anlagen mit einer reduzierten maximalen Befüllung (z. B. 6Mg UF₆) verwendet /URE 02/. Dabei wird unterstellt, dass es zu einem Riss des

Behälters kommt, der durch das anwesende Betriebspersonal sofort bemerkt wird und innerhalb von einigen Minuten provisorisch abgedichtet werden kann.

Die Wahrscheinlichkeit für das Eintreten eines solchen Szenarios ist sehr gering. In den 1960er und 1970er Jahren in den USA durchgeführte Falltests haben gezeigt, dass die 48Y-Behälter Fallhöhen von bis zu 9 m (d. h. wesentlich höher als bei der Handhabung oder beim Transport möglich) unbeschadet überstehen können /DEK 07/. Dies wurde in die Transportregularien der IAEA aufgenommen, siehe /IAEA 18/. Im Zulassungsverfahren ist die Behälterintegrität gemäß den IAEA-Sicherheitsstandards bei Fallhöhen von 1,2 m (30B-Behälter) bzw. 0,6 m (48Y-Behälter) auf Beton nachzuweisen /IAEA 09b/.

5.8.4 UF₆-Austritt beim Transport

Beim Transport von UF₆-Behältern muss gewährleistet sein, dass diese luftdicht verschlossen bleiben. Bei einem Transportunfall mit leckgeschlagenem Behälter werden die Freisetzungsrate und -menge an UF₆ von der Temperatur, dem umgebenden Medium (Luft, Wasser) und der Größe des Lecks bestimmt. Tritt in einem unter Unterdruck (Größenordnung 100 hPa) stehenden Behälter ein Leck auf, kommt es zunächst zu einem Druckausgleich mit der Umgebung, bevor Uranhexafluorid freigesetzt werden kann. Das feste UF₆ entweicht anschließend langsam durch Sublimation an der Luft. Das evtl. bei der chemischen Reaktion von UF₆ mit Wasser oder Luftfeuchtigkeit gebildete UO₂F₂ ist fest, und es ist zu erwarten, dass es die Öffnung verstopft. Bei Leckgrößen von maximal 2,5 cm Durchmesser ist weder an Luft noch in Wasser mit einer größeren Gefahr zu rechnen /ISO 05/. In Deutschland hat es bisher keine sicherheitsrelevanten Zwischenfälle beim Transport von Uranhexafluorid gegeben, während es international zu entsprechenden Vorkommnissen gekommen ist, vgl. auch Kap. 5.10.2.

5.8.5 UF₆-Behälter unter Brandbedingungen

Bei Transportunfällen mit Brandeinwirkung ist unter ungünstigen Umständen mit potenziell ernstesten Auswirkungen zu rechnen.

Ist ein gefüllter UF₆-Behälter einem Brand ausgesetzt, kann das Uranhexafluorid vom festen in den flüssigen oder gasförmigen Aggregatzustand überführt werden. Auch die Zugfestigkeit des Konstruktionsmaterials der Behälter (ASTM A516 Stahl) nimmt mit zunehmender Temperatur ab /SHI 97/. In Abb. 5.10 sind die Siedephänomene in einem mit UF₆ gefüllten Transportbehälter dargestellt. Durch das starke Aufheizen des

Transportbehälters von außen geht das UF_6 zuerst in den flüssigen Aggregatzustand über, bevor es an der Innenseite der Außenwand zum Sieden und dadurch zur Blasenbildung kommt, während der noch feste Kern langsam zum Boden des Behälters sinkt. Diese Siedephänomene verursachen einen rapiden Druckaufbau im Behälter, der bis zum Aufreißen der stählernen Umhüllung führen kann.

Hinzu kommt, dass das Schmelzen von UF_6 mit einem großem Dichtesprung einhergeht siehe auch Abb. 5.4. Dadurch nimmt das Volumen des UF_6 fortschreitend zu, bei vollständigem Schmelzen um etwa ein Drittel, bis es nahezu das gesamte Behältervolumen ausfüllt und der Behälter aufgrund des hydraulischen Drucks zu bersten droht. Bei weiterer Energiezufuhr kommt es zum Bersten des Behälters und zu einer kurzzeitigen, schlagartigen Freisetzung („Flash-Verdampfung“) von heißem UF_6 -Dampf aufgrund der plötzlichen Druckentlastung, welcher mit atmosphärischem Wasserdampf rasch zu UO_2F_2 -Aerosolen und HF-Dampf reagiert /RIN 88/, /BRO 97/, /SHI 97/.

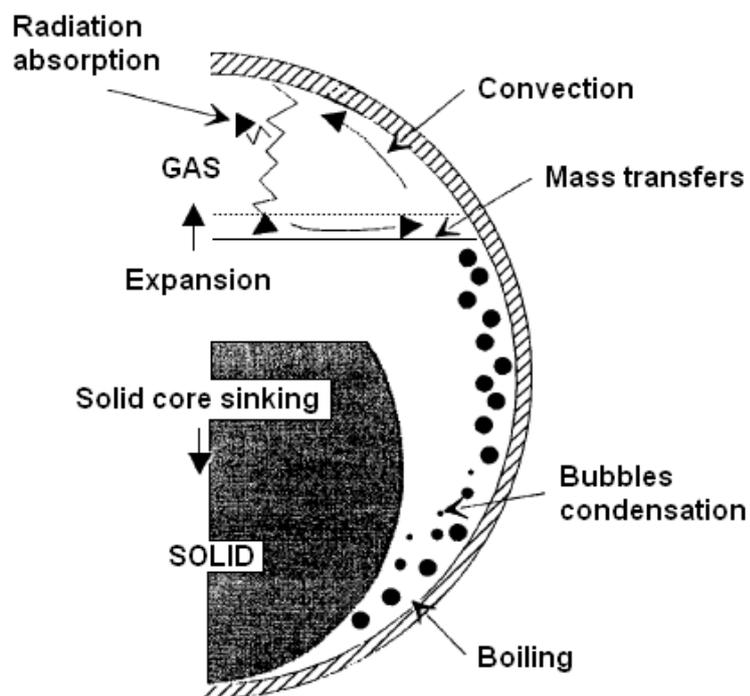


Abb. 5.10 Siedephänomene von UF_6 in einem Transportbehälter nach

/SHI 97/

Ein hypothetischer Störfallereignisablauf ist in /IAEA 02/ detailliert beschrieben. Hierbei wird davon ausgegangen, dass sich das UF_6 in einem 48Y-Behälter aufgrund der Brandeinwirkung auf eine Temperatur von 120°C erwärmt hat und dabei vollständig

geschmolzen ist. Der Dampfdruck von UF_6 bei dieser Temperatur beträgt 6750 mbar. Infolge des Druckaufbaus platzt der Behälter auf, wodurch UF_6 in Form einer Dampfwolke entweicht. Unter den gegebenen Bedingungen ist damit zu rechnen, dass ca. 65 % des Behälterinhalts (d.h. ca. 8.000 kg UF_6) innerhalb von einer Stunde freigesetzt werden. Da UF_6 -Gas schwerer ist als Luft, bleibt die Freisetzungshöhe zunächst gering; sie wächst jedoch, sofern sich das Gas mit den aufsteigenden Rauchschwaden des Feuers vermischt, wodurch das UF_6 stärker verteilt und verdünnt wird. Das gasförmige Uranhexafluorid setzt sich mit atmosphärischem Wasserdampf zu UO_2F_2 -Aerosolen und HF-Dampf um. Um 8.000 kg UF_6 vollständig zu hydrolysieren sind insgesamt 800 kg Wasser erforderlich; dies entspricht ca. 50.000 m³ Luft bei einer Temperatur von 25 °C und 50 % relativer Luftfeuchte. Das gasförmige HF ist leichter als Luft und wird nicht deponiert; eine Kontamination ist jedoch durch die Ablagerung der UO_2F_2 -Partikel am Erdboden und an Oberflächen zu erwarten.

Berechnungen im Rahmen des IAEA Coordinated Research Program *Assessment of Safety of UF_6 Transport Packages in Fires* (1992-1998) ergaben, dass ein 48Y-Behälter einem umschließenden Feuer mit einer Temperatur von 800 °C zwischen 25 und 35 Minuten standhält /DEK 02/, /DEK 04/, /DEK 07/. Unter der Annahme eines solchen Feuers zeigten frühere Berechnungen der CEA ein Bersten des 48Y-Behälters hingegen erst nach einer Einwirkungsdauer von 30 bis 60 Minuten /RIN 88/.

Aufgrund unzureichender experimenteller Daten bleiben Unsicherheiten über das thermohydraulische Verhalten von Uranhexafluorid unter realistischen Brandbedingungen. Allerdings wurde im Rahmen probabilistischer Sicherheitsanalysen auch gezeigt, dass die Wahrscheinlichkeit, dass ein mit UF_6 gefüllter 48Y-Behälter bei einem Transport in einen Großbrand mit verheerenden Auswirkungen verwickelt ist, äußerst gering ist /DAR 04/.

5.8.6 Einwirkungen von außen

Die größte Einwirkung von außen wäre ein Flugzeugabsturz auf ein Uranhexafluorid-Lager oder eine Uranhexafluorid-Prozessanlage. Die Eintrittshäufigkeit eines solchen Ereignisses ist zwar sehr gering, würde jedoch zu einer großen Freisetzung von UF_6 , UO_2F_2 , UF_4 und HF führen. Die bei einer anschließenden Reaktion mit Wasser gebildete Flusssäure führt wiederum durch ihre stark ätzende Wirkung typischerweise zu

Sekundärschäden. Flugzeugabsturz wird bereits bei der Standortauswahl des Lagers bzw. der Anlage berücksichtigt und häufig als auslegungsüberschreitendes Ereignis gewertet.

5.9 Vorsorgemaßnahmen zur Begrenzung der Störfallfolgen bei UF₆-Freisetzungen

Wie vorstehend dargelegt ist bei kleineren UF₆-Freisetzungen das Betriebspersonal durch die technischen Einrichtungen und die organisatorischen Sicherheitsvorkehrungen in der Lage, umgehend Abhilfe zu schaffen. Bei großen UF₆-Freisetzungen wird in aller Regel zunächst manuell Räumungsalarm ausgelöst. Die Anlagen sind technisch so ausgerüstet, dass die Freisetzung in den Anlagenräumen zunächst keine weitere Schädigung der Umgebung verursacht. Vorrangig ist hier der Schutz des Betriebspersonals.

Zur medizinischen Erstversorgung von Betriebspersonal mit störfallbedingten gesundheitlichen Beeinträchtigungen oder Schäden insbesondere durch Fluorwasserstoff HF sollte ein ärztlicher Bereitschaftsdienst eingerichtet sein. Darüber hinaus liegt bei der Warte üblicherweise eine Liste mit entsprechend ausgebildeten und ausgestatteten Ärzten und Krankenhäusern in der näheren Umgebung vor. Die Alarmordnung beinhaltet klare und unmissverständliche Anweisungen zur weiteren Vorgehensweise bei der Verständigung des betrieblichen Bereitschaftsdienstes bzw. für die Hinzuziehung der Betriebsfeuerwehr oder externer Hilfsdienste (z. B. Feuerwehr, technisches Hilfswerk, Sanitätsdienste).

Eindämmung der Freisetzung

Im Eingangsbereich zu den Hallen in denen UF₆ gehandhabt wird sollten in ausreichender Zahl Atemschutzgeräte zur Verfügung stehen, die zur Bekämpfung möglicher UF₆-Freisetzungen vorgehalten werden. Als mögliche technische Maßnahme zur Beendigung einer Freisetzung ist das Schließen von Ventilen durch manuelle Betätigung zu nennen. Weiterhin wird technisches Gerät vorgehalten, um auch mit anderen Mitteln Leckagen abzudichten. Hierzu gehören CO₂-Feuerlöcher, um durch Vereisung eine UF₆-Blockade in Rohrleitungen zu erzeugen, Holzstopfen, nasse Tücher, usw. Zur Reparatur undichter Behälter oder Ventile sind spezielle Reparaturkoffer vorhanden, in denen die notwendigen Geräte zur Reparatur oder zum Austausch von Behälterventilen bzw. zum Abdichten von Behältern bereitgehalten werden. Der Einsatz der jeweils geeigneten Maßnahmen kann nicht im Voraus festgelegt werden, sondern hängt von dem jeweiligen

Schadensbild und dem Zustand der Anlage im konkreten Einzelfall ab. Im Fall einer Ausstattung der Prozessanlagen mit jeweils doppelter Umschließung der aufgeheizten UF₆-Behälter und geeigneter Absperrarmaturen bei UF₆-Austritt aus dem Autoklav bzw. der Möglichkeit, das UF₆-Behälterventil fernbedient zu betätigen, wird davon ausgegangen, dass es dem Betriebspersonal gelingen wird, eine größere Freisetzung von Uranhexafluorid per Handbedienung zu verhindern. Darüber hinaus ist durch die technische Ausstattung der Lüftungsanlagen sicherzustellen, dass eine UF₆-Freisetzung zu keinen größeren Schadensauswirkungen in der Umgebung der Anlage führt.

Für Maßnahmen zur Begrenzung der Folgen einer störfallbedingten UF₆-Freisetzung und zur Behebung der Schadensursache ist zunächst die Betriebsmannschaft zuständig. Folgend werden für die jeweiligen Anlagen typische Alarmstrukturen beschrieben.

Urananreicherungsanlage

Da bei einer Urananreicherungsanlage relativ wenig Betriebspersonal im Einsatz ist, wird hier die Betriebsmannschaft häufig durch Mitarbeiter der Abteilung Sicherheit bzw. der Betriebsfeuerwehr verstärkt. Dieser Personenkreis ist jeweils für die Eindämmung einer UF₆-Freisetzung sowie für die Beseitigung der Schäden und die Dekontamination zuständig. Erfolgt eine UF₆-Freisetzung im Zusammenhang mit einem Brand bzw. wurde der Alarm als Brandalarm an die zuständige Betriebsfeuerwehr und die externe Feuerwehr weitergegeben, so sind diese nur für Bekämpfungsmaßnahmen, nicht aber für die Behebung der Schadensfolgen in der Anlage zuständig. Eine Weitergabe des Brandalarms erfolgt entweder auf Veranlassung der Betriebsfeuerwehr oder automatisch sofern der Alarm nicht innerhalb von wenigen Minuten quittiert wird.

Brennelementfertigungsanlage

Bei Brennelementfertigungsanlagen geht der Brandalarm typischerweise bei der auf dem Betriebsgelände befindlichen Werksfeuerwehr ein, die für das gesamte Nukleargebäude zuständig ist. Die Maßnahmen zur Eindämmung einer UF₆-Freisetzung liegen hier vorwiegend in der Verantwortung der zahlenmäßig relativ stark besetzten Betriebsmannschaft. Es kann auch die externe Feuerwehr im Einsatzfall automatisch alarmiert werden.

Schutz der Umgebung

Eine größere UF₆-Freisetzung mit erheblichen Auswirkungen für die umliegende Bevölkerung ist bei einem internen Störfallereignis in der Anlage ausgeschlossen. Dies wird durch die Implementierung entsprechender technischer Einrichtungen unter Beachtung der physikalischen Gegebenheiten sichergestellt.

Für zivilisatorisch bedingte äußere Einwirkungen, deren Auswirkungen nicht mit Sicherheit auf das Betriebsgelände beschränkt werden können (z. B. Flugzeugabsturz), sind weitergehende Maßnahmen vorgesehen. Entsprechend dem Katastrophenschutzplan werden die zuständigen Stellen alarmiert. Hierfür stehen normale Telefonleitungen und darüber hinaus üblicherweise eine Standleitung zur Feuerwehr und eine Richtfunkverbindung zur Polizei zur Verfügung. Die örtliche Katastrophenschutzleitung (Landrat oder Kreisverwaltung) wird durch einen sachkundigen und kompetenten Mitarbeiter der jeweiligen Firma unterstützt. Diese Vorkehrungen und Einrichtungen entsprechen den Rahmenempfehlungen für den Katastrophenschutz in der Umgebung kerntechnischer Anlagen /BMUB 15/. Die vom Betreiber kerntechnischer Anlagen geforderten Maßnahmen sind damit erfüllt. Weitere Vorkehrungen liegen in der Verantwortung der Behörden.

Die internen Alarmpläne der Betreiber sehen vor, dass der zuständige Bereitschaftsdienst, der über Funk alarmiert werden kann, die notwendigen Maßnahmen einleitet und das Betriebspersonal benachrichtigt. Der Katastrophenschutzplan regelt die Hinzuziehung der erforderlichen externen Hilfsdienste – Feuerwehr, technisches Hilfswerk, Sanitätsdienste – und die Verständigung der vorgesehenen Ärzte und Krankenhäuser.

Die erwähnten Vorsorgemaßnahmen wurden nicht speziell wegen einer befürchteten UF₆-Freisetzung getroffen, sondern beinhalten die allgemeine Katastrophenschutzvorsorge, in die die kerntechnischen Anlagen einbezogen sind.

Bei Unfällen während des Straßen- oder Schienentransports von Uranhexafluorid-Behältern, bei denen massive Freisetzungen nur durch katastrophenartige Einwirkungen ausgelöst werden können, sind für die Erstmaßnahmen die örtlichen Hilfsdienste zuständig. Zu deren Information dient das „Unfallmerkblatt für den Straßentransport von Uranhexafluorid“ /URE 77/, das beim Transport mitzuführen ist; auf diesem sind Gefahrenhinweise, Notfallmaßnahmen und die zu informierende Stelle für kerntechnische Hilfeleistung bei Dekontamination und Nachentsorgung angegeben.

5.10 Besondere Vorkommnisse bei der Verarbeitung von UF₆

Dieser Abschnitt enthält eine zusammenfassende Übersicht besonderer Vorkommnisse im In- und Ausland, die sich in Anlagen der Kernbrennstoffversorgung mit Umgang mit Uranhexafluorid zugetragen haben (Stand 2018).

- Bundesrepublik Deutschland: 41 Vorkommnisse
- International (ohne BRD): 163 Vorkommnisse

Die sicherheitstechnische Bewertung dieser Vorkommnisse basiert zum einen national auf der Atomrechtliche Sicherheitsbeauftragten- und Meldeverordnung (AtSMV) /BUN 18c/. Zum anderen auf der siebenstufigen internationalen Bewertungsskala INES (International Nuclear Event Scale) /KOT 94/, /IAEA 08b/, /IAEA 09c/.

Zur Inspektion von UF₆-Transport- und Lagerbehältern, die den nach Anforderungen der internationalen Standards (ISO, ANSI) vorzunehmen ist, liegen nur wenige veröffentlichte Ergebnisse vor. Eine systematische Auswertung wurde in /TEC 85/ vorgenommen. Sie zeigt, dass bei weniger als 0,1 % der Behälter Beschädigungen nach Spezifikation der Normen beobachtet wurden, die besondere Maßnahmen erforderlich machten. Freisetzungen aufgrund von Behältermängeln traten nicht auf.

5.10.1 Fazit aus den Vorkommnissen mit Freisetzung von UF₆ in Deutschland

Bei den 41 registrierten Vorkommnissen in deutschen Anlagen im Zeitraum von 1966 bis 2018 kam es in 27 Fällen (66 %) zu einer Freisetzung von UF₆ (bzw. UO₂F₂). Dabei handelte es sich um Mengen von 10 g bis 200 kg. Die Ursachen hierfür waren /BUN 09c/:

- 24.08.1966, Nukem (Konversion): Versagen der Leitungsheizung, UF₆ kondensierte und blockierte die Zufuhr, Bersten der Leitung durch externe Heizung (thermische Belastung);
- 31.03.1969, Nukem (Analysebereich): Bersten eines flexiblen Zufuhrschlauchs beim Abfüllen von UF₆;
- 30.09.1969, Nukem (Außengelände): unplanmäßiges Öffnen des Dampfauslassventils durch defektes pH-Messgerät;

- 30.11.1977, RBU 1: Ventilundichtigkeit;
- 07.12.1977, RBU 1 (Ausdampfstation): Verstopfung eines Anschlussstücks zum Umfüllen von UF₆;
- 11.04.1978, RBU 1 (Ausdampfstation): defekte Dichtung;
- 23.06.1980, RBU 1 (Konversion): versehentlich geöffnetes Ventil als Ursache für die Einleitung von flüssigem statt gasförmigem Ammoniak, dadurch UF₆-Umsetzung im Fällbehälter verhindert, keine ausreichende Rückhaltung durch nachgeschaltete Barrieren;
- 15.07.1980, RBU 1 (Konversion): Entleeren von Probeflaschen, fehlende Umsetzung des kristallinen UF₆, fehlende Rückhaltung der Prozessluft;
- 08.07.1981, RBU 1 (Ausdampfstation): falsches Rohrstück zwischen Ausdampfstation und Fällbehälter;
- 06.12.1982, RBU 1 (Ausdampfstation): verklemmtes Ventil zwischen Ausdampfstation und Fällbehälter;
- 08.02.1984, RBU 1: Entweichen von UF₆ beim Ankoppeln von UF₆-Behälter und Karbonatwasserbehälter
- 22.02.1984, RBU 1 (Chemiebereich): verstopftes Ventil durch kristallines UF₆
- 22.02.1984, RBU 1 (Chemiebereich): Ventile und Leitungen durch kristallines UF₆ verstopft;
- 25.07.1985, RBU 1 (Abfüllstation): Bedienungsfehler: ungespülter Behälter wurde evakuiert;
- 19.07.1986, RBU 1 (Konversion): Fehlbedienung an einer Leitung, Ventil nicht geschlossen, Schlauchschelle reißt ab;
- 27.04.1987, RBU 1 (Ausdampfstation): Defekt an einem Hauptventil, unvollständiges Schließen des Ventils vor Wartungsarbeiten;
- 23.10.1989, Siemens U (Spülstation): Ermüdungserscheinung an einem flexiblen Schlauchende, versehentliche Öffnung eines Ventils;
- 31.01.1990, Siemens U (Spülstation): Beschädigung einer Lötzindichtung durch Temperaturerhöhung infolge unsachgemäßer Behälterhandhabung;

- 12.12.1990, Siemens U (Abgasaufbereitung): Explosion eines Abgaswäschers
- 27.12.1994, ANF Lingen: Undichtigkeit am Flansch einer Filterkerze
- 27.01.1996, ANF Lingen: Leckage an einer Vakuumpumpe
- 10.01.2005, ANF Lingen: Versagen einer UF₆ führenden Verbindungsleitung
- 13.11.2006, ANF Lingen: Undichtigkeit an der Restentleerungspumpe für Behälter
- 03.02.2008, ANF Lingen: Versagen einer UF₆ führenden Verbindungsleitung
- 21.01.2010, Urenco Gronau: Freisetzung von Uranhexafluorid in den Raum der Behältervorbereitung
- 23.07.2011, Urenco Gronau: Freisetzung an einem Ventil
- 07.08.2013, Urenco Gronau: Freisetzung an einem Ventilflansch
- 17.09.2015, Urenco Gronau: Freisetzung bei Reparaturarbeiten an der Druckreduzierstation

Die meisten Freisetzungen waren demnach die Folge von defekten Ventilen und finden am häufigsten in den Ausdampfstationen der Anreicherungsanlagen statt. Zu Kritikalitätsstörfällen mit UF₆ ist es in Deutschland bisher nicht gekommen.

Zur bisher größten Freisetzung von Uranhexafluorid in Deutschland kam es am 30.09.1969 in der Brennelementeherstellung Hanau (damaliger Betreiber: NUKEM). Der Vorfall, bei dem 200 kg UF₆ freigesetzt wurden, ereignete sich im Freien und war die Folge eines Tests für die 30-Zoll-Sicherheitsbehälter. Ein solcher Behälter wurde mit 280 kg abgereichertem Uran beladen und mit heißem Dampf erhitzt. Der Auslass für das Kondenswasser wurde mit einem pH-Messgerät überwacht, das auf ein Vorhandensein von Säure als Folge von austretendem Uranhexafluorid reagiert und die Dampfeinlass- und -auslassventile schließt. Im Verlauf des Tests verdampfte das UF₆ planmäßig und strömte in einen angeschlossenen Prozessbehälter. Nach 10 Minuten öffnete das Dampfauslassventil wegen eines Defekts am pH-Messgerät. Daraufhin wurden ca. 200 kg Uranhexafluorid freigesetzt, bis ein Operateur in Schutzkleidung nach fünf Minuten die Freisetzung stoppen konnte. Es bildete sich eine 25 m hohe und 200 m lange UF₆-Wolke. Im Umkreis von 50 m wurde der Boden kontaminiert. Menschen kamen nicht zu Schaden.

5.10.2 Fazit aus den Vorkommnissen mit Freisetzung von UF₆ International

Unter den 163 aufgezeichneten Vorkommnissen in ausländischen Anlagen im Zeitraum von 1950 bis 2018 befinden sich 123 (75 %), die zu einer Freisetzung von Uranhexafluorid führten.

Die häufigsten Ursachen für UF₆-Freisetzungen im Bereich von einem bis einigen hundert Kilogramm waren Fehler bei der Probennahme, Versagen von Ventilen (z. B. Pierrelatte, 12.04.1987), der Bruch von Verbindungsleitungen und der Bruch von verstopften Leitungen beim Wiederaufheizen. In einigen Fällen ereigneten sich Explosionen durch Reaktionen mit organischen Stoffen (Tricastin, 13.01.1981 und 13.01.1982; Pilcaniyeu, 29.10.1984). Eine Explosion in der Diffusionsanreicherungsanlage Oak Ridge am 13.12.1962 mit hohem Sachschaden könnte ebenfalls hierher gehören; wegen unzureichender Dokumentation ist dieser Fall allerdings in der Aufstellung nicht enthalten. Die Unfälle führten in einem Fall zu einer tödlichen Verätzung mit Flusssäure (Gore, 04.01.1986) und bei der Explosion in Pilcaniyeu zu einer schweren Verletzung eines Betriebsangehörigen. In mehreren Fällen traten leichtere Verätzungen und Inkorporationen von Uran ein. Die UF₆-Freisetzungen führten zum Teil zugroßräumigen Kontaminationen der Anlagengebäude, des Werksgeländes und – in einigen Fällen – auch der benachbarten Flächen.

In der Auswertung wurden auch die eingetretenen Unfälle beim Transport von UF₆-Behältern erfasst. Bei diesen Ereignissen trat jedoch keine Freisetzung von Uranhexafluorid auf. Selbst beim Untergang der „Mont Louis“¹ wurde – trotz eines undichten Behälterventils – kein UF₆ an die Umwelt abgegeben. Aus verschiedenen Berichten im Zuge der Untersuchungen nach dem Unfall in Gore /NRC 86a/, /NRC 86b/, /NRC 86c/, /NRC 90/ ergibt sich, dass relativ häufig Behälter mit UF₆ überfüllt wurden. In einigen Fällen wurden überfüllte Behälter entgegen den Vorschriften aufgeheizt, wobei das Behälterventil geschlossen war. In einem Fall (Metropolis, 07.12.1984) kam es dabei zu einer massiven Verformung eines 48Y-Behälters. Es ist nur glücklichen

¹ Am 25.8.1984 kam es im Ärmelkanal zum Zusammenstoß einer Autofähre mit dem französischen Frachter „Mont Louis“, der 30 Behälter mit insgesamt 360 t Uranhexafluorid geladen hatte und auf dem Weg von Pierrelatte nach Riga war. Das Schiff sank und kam auf einer Sandbank zum Liegen. Alle UF₆-Behälter blieben intakt und konnten aus dem Wasser geborgen werden. Ein Behälter war am Ventil undicht, sodass Wasser in den Behälter eindrang /RID 05/.

Umständen zuzuschreiben, dass es nicht zum Bersten des Behälters und einer damit verbundenen Freisetzung einer größeren Menge von Uranhexafluorid kam.

Zur bislang größten UF_6 -Freisetzung überhaupt kam es bei dem Vorkommnis am 07.03.1978 im Lager der Anreicherungsanlage Portsmouth. Ein aufgeheizter dünnwandiger Zylinder mit 14 t UF_6 -Feed wurde nach der Probeentnahme zurück in den entsprechenden Lagerbereich gebracht. Beim Absenken mit dem Gabelstapler fiel der Behälter aus 20 – 25 m Höhe auf den Boden. Dabei bildete sich ein 20 cm langer Riss im Behälter, und innerhalb von 30 – 60 Minuten wurden 9.500 kg Uranhexafluorid (entsprechend 6.400 kg Uran) freigesetzt. Davon konnten 550 kg vom Boden zurückgewonnen werden; die restliche Menge verteilte sich in die Luft, größtenteils außerhalb der Anlagenbegrenzung.

5.10.3 Relevanz der eingetretenen Vorkommnisse und Konsequenzen für Sicherheitsvorkehrungen in deutschen Anlagen

Während die „Sicherheitsanforderungen für Kernbrennstoffversorgungsanlagen“ /BMU 04/ bei der Handhabung von gasförmigem UF_6 stets zwei Barrieren vorschreiben und bei der Handhabung von flüssigem UF_6 drei Barrieren gegenüber der Umgebung fordern, wird in /DOE 87/ (Vorgängerversion von /USEC 95/), in dem die Anforderungen an amerikanische Anlagen dargestellt sind, eine zweite Barriere bei flüssigem UF_6 nur empfohlen. Eine dritte Barriere wird hingegen nicht gefordert und ist in amerikanischen Anlagen oft auch nicht realisiert. Teilweise ist nicht einmal eine zweite Barriere beim Umgang mit flüssigem UF_6 realisiert (z. B. Vorkommnis in Gore am 04.01.1986). Darüber hinaus ist es teilweise sogar noch üblich, Behälter mit verflüssigtem UF_6 zu transportieren. Dies zeigt, dass die konstruktiven Einrichtungen für die UF_6 -Handhabung und das Barrierenprinzip in den deutschen Anlagen weitergehend und konsequenter angewendet werden.

Die relativ häufigen Behälterüberfüllungen (aufgrund des Versagens von Wägeeinrichtungen oder aufgrund von Bedienungsfehlern), die beim Wiederaufheizen des überfüllten Behälters zu ernststen Folgen führen können (z. B. Gore, 04.01.1986), haben bewirkt, dass in der Urananreicherungsanlage in Gronau die Befüllung von Behältern sowie das Entfernen eventueller Überfüllungen von vornherein nicht im flüssigen Zustand des UF_6 durchgeführt wird. Dadurch wird die Gefährdung des Behälters durch den Dichtesprung beim Schmelzen von UF_6 vermieden. Jeder befüllte Behälter wird prinzipiell auf einer separaten Wägestation überprüft, zusätzlich zur betrieblichen

Messeinrichtung bei der Befüllung. Der Kontrolle der zulässigen Befüllung vor Wiederaufheizung wird größte Bedeutung beigemessen.

Die Gefahr großer Freisetzungen aus aufgeheizten Behältern mit flüssigem Uranhexafluorid ist in deutschen Anlagen durch die technischen Einrichtungen (Autoklaven), die generell eine zweite Barriere gewährleisten, praktisch beseitigt. Darüber hinaus erfolgt die Ausdampfung oder Aufheizung immer in einem Betriebsgebäude welches durch Unterdruckhaltung und entsprechende Lüftungstechnische Maßnahmen bzw. Lüftungsabschluss eine dritte Barriere gegen Freisetzung in die Umgebung darstellt. Zum Schutz des nicht unmittelbar mit der Ausdampfung befassten Betriebspersonals ist bei der Urananreicherungsanlage in Gronau ein separater Anlagenraum für Komponenten mit UF_6 im Überdruck eingerichtet. Dadurch entfällt die Notwendigkeit von Fluchträumen, da alle Räume außerhalb des Betriebsraumes für das Betriebspersonal als gesicherte Zufluchtsräume gelten können.

Die erhöhte Freisetzung von gasförmigem UF_6 in die Prozessabluft aufgrund falscher Betriebsparameter bei der Fällung (RBU, 23.06.1980) hat dazu geführt, dass vor Beginn der UF_6 -Einspeisung, die für den Fällvorgang notwendigen Zustände der Flüssigkeitsvorlage und der Prozessgase überwacht werden und durch sicherheitstechnisch wirksame Verriegelungen gewährleistet sind. Zusätzlich wurde das Ammoniakversorgungssystem nachgerüstet, sodass die versehentliche Einspeisung von flüssigem Ammoniak nicht mehr möglich ist.

Die zahlreichen kleineren UF_6 -Freisetzungen bei Interventionsmaßnahmen oder beim Behälterwechsel (RBU, 1981–1984) haben die Entwicklung eines Evakuierungssystems bedingt, mit dem kleinere feste oder gasförmige Mengen UF_6 abgesaugt werden können. Dieses UF_6 wird dann in der Wasservorlage eines Wäschers umgesetzt. Zusätzlich wurden die Einrichtungen zur Beheizung der UF_6 -Leitungen und der Armaturen verbessert. Nachdem aufgrund von Fehlbedienung trotz des provisorischen Evakuierungssystems weitere kleinere UF_6 -Freisetzungen auftraten (RBU, 1985–1986), wurde eine Checkliste für den Ablauf der notwendigen Tätigkeiten beim Behälterwechsel entwickelt. Durch diese organisatorischen Verbesserungen wurden Fehlbedienungen im Normalbetrieb weitgehend ausgeschlossen.

Was die prinzipielle Vorgehensweise und die Verfahrensschritte beim Ausdampfen und beim Befüllen von Behältern mit Uranhexafluorid betrifft, so sind die in /USEC 95/ dargestellten Betriebsanweisungen auch in den deutschen Anlagen stets eingehalten worden. Die infolge der kleineren UF₆-Freisetzungen beim Behälterwechsel (RBU, 1981–1984) notwendigen Verbesserungen der Betriebsanweisungen bedeuten keine prinzipielle Abweichung, sondern eine Präzisierung und Detaillierung einzelner Teilschritte während der notwendigen Tätigkeiten zur Ausdampfung von UF₆. In den relativ groben Ausführungen von /USEC 95/ kann der Betriebsablauf naturgemäß nicht bis in die kleinsten Details dargestellt sein, insbesondere da er auf die anlagenspezifischen Gegebenheiten abgestimmt sein muss. Durch die Einbeziehung der Erkenntnisse, die aus den kleineren Freisetzungen gewonnen wurden, konnte ein verbesserter Standard für die Betriebsanweisungen erreicht werden.

Aufgrund einer Fehlbedienung bei Interventionsarbeiten sowie infolge der verzögerten Installation des endgültigen Evakuierungssystems kam es zu einer größeren Freisetzung von UF₆ (RBU, 27.04.1987) /BAY 88/. Als Konsequenz daraus wurde die technische Einrichtung des Evakuierungssystems und der Steuerungseinrichtungen verbessert, sowie die Checkliste für die Handhabung des Evakuierungssystems bei Reparaturarbeiten erweitert. Die neue Betriebsanweisung beinhaltet ebenfalls die Konsequenzen aus dem Störfall mit UF₆-Freisetzung aufgrund einer gebrochenen Ventilüberwurfmutter (Pierrelatte, 12.04.1987). Es wird darin festgelegt, dass keinerlei Arbeiten an der UF₆-Absperrarmatur oder der Verbindungsleitung durchgeführt werden dürfen, solange ein mit UF₆ gefüllter, aufgeheizter Behälter angeschlossen ist. Außerdem wird die Kontrolle der Dichtheit des Behälterventils vor Öffnen der Ausdampfstation verbindlich vorgeschrieben.

6 Ablagerungs- und Rückhaltemechanismen

In Anlagen des Brennstoffkreislaufs kommt es durch die Verarbeitung von Kernbrennstoffen in Teilen der Anlage zur Freisetzung radioaktiver Stoffe in Gas- oder Aerosolform. Um den Schutz von Personal, Mensch und Umwelt zu gewährleisten, sind Rückhaltemechanismen nötig, die die Freisetzung auf die dafür vorgesehenen Bereiche begrenzen. Des Weiteren sind störfallbedingte Freisetzungen zu unterstellen. Zum Schutz des Personals und der Umgebung sind auch für diesen Fall geeignete Vorkehrungen zu treffen /DEU 22/.

Lüftungsanlagen nach deutschem Recht lassen sich in Anlagen der Klasse 1: Notfallanlagen und Anlagen der Klasse 2: Anlagen für den Normalbetrieb unterscheiden /KTA 05/. Radionuklide werden in zwangsbe- und entlüfteten Räumen gehandhabt. Hierbei wird durch die Zu- und Abluftregelung ein kontinuierlicher Unterdruck innerhalb der Anlage gewährleistet. Dies bewirkt, dass bei eventuellen Undichtigkeiten, ein luft- oder gasgetragener Transport der Aktivität immer in die Anlage und niemals aus ihr heraus erfolgt. Entsprechend dem von den radioaktiven Stoffen ausgehenden Gefährdungspotential können hierbei zusätzliche abgeschlossene Systeme wie Handschuhkästen oder heiße Zellen verwendet werden. Diese Systeme weisen dabei ihrerseits einen Unterdruck gegenüber der umgebenden Raumluft auf. Hierbei entsteht eine Staffelung der Druckgradienten von der Umgebung hin zum Verarbeitungsort der radioaktiven Stoffe, der die primäre Kontaminationsquelle darstellt. Abb. 6.1 zeigt die Staffelung des Unterdrucks für ein abgeschlossenes System zur Aktivitätshandhabung in einem unter verminderten Druck stehenden Werkraum.

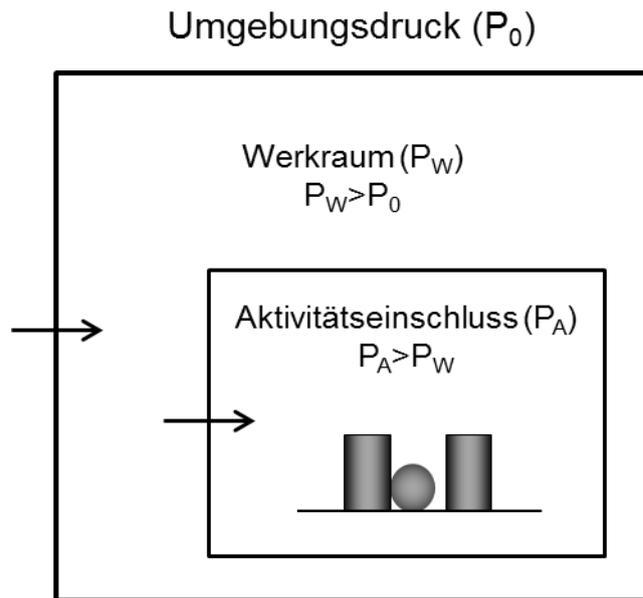


Abb. 6.1 Druckstaffelung in Einrichtungen zur Behandlung radioaktiver Stoffe

Vor der Abgabe, der zur Erhaltung des Unterdrucks abgeführten Luft, muss diese durch geeignete Systeme effektiv von Schadstoffen sowie radioaktiven Stoffen befreit werden. Die zur Erzeugung des Unterdrucks notwendigen Abluftsysteme bestehen aus Luftkanälen zur Führung des Abluftstroms, dem Filtersystem zur Reinigung des Luftstroms und einem Ventilator zur Erzeugung der Druckdifferenz. Das Zuluftsystem ermöglicht hierbei eine gezielte Verteilung der Frischluft und sorgt für einen optimalen Luftaustausch. In bestimmten Fällen ist das Spülen von Betriebsräumen durch das Lüftungssystem nach deutschem Gesetz vorgesehen. Für die Reinigung der Abluft werden anforderungsgemäß verschiedene Filtersysteme eingesetzt. Die Filterung partikelbasierter Verunreinigungen kann durch dynamische Abscheideverfahren und durch Fasermattenfilter erfolgen. Für schadstoffbelastete Abgase werden Gas-Sorptionsfilter und Nasswäscher verwendet. Für besondere Anwendungen sind modifizierte Bauformen, wie Fasertiefbettfilter, Heißgasfilter und Sandbettfilter vorgesehen.

Die großen Abluftmengen bedingen ebenfalls große Zuluftmengen, die gefiltert, befeuchtet, erwärmt oder auch gekühlt werden müssen. Um diese Mengen zu reduzieren, kann ein Teil der Raumluft über Umluftfilter geleitet werden, die jedoch in entsprechender sicherheitstechnischer Relevanz zum Zu- und Abluftsystem ausgelegt sein müssen /KTA 05/.

6.1 Eigenschaften Lüftungstechnischer Einrichtungen unter verschiedenen Betriebsbedingungen

6.1.1 Bestimmungsgemäßer Betrieb

Der bestimmungsgemäße Betrieb umfasst die Betriebszustände des „Normalbetriebs“ und des „Anormalen Betriebs“ /KER 16/.

6.1.1.1 Normalbetrieb

Im Normalbetrieb (störungsfreier Betrieb) befindet sich die Anlage innerhalb der für den regulären Betrieb vorgesehenen Parameter. Die hierbei vorzufindenden Bedingungen entsprechen den Bedingungen, für die das Lüftungs- und Rückhaltesystem der Anlage ausgelegt sind. Dies bedeutet im Falle des Lüftungssystems, dass sich alle Temperaturen, Volumenströme, Partikelkonzentrationen und Druckstaffelungen der gesamten Anlage innerhalb der für den Normalbetrieb definierten Parameter befinden und somit eine Freisetzung radioaktiver Stoffe auf dem Luftweg oberhalb der im Rahmen der Genehmigung festgelegten Emissionsgrenzen ausschließen /KER 16/.

6.1.1.2 Anormaler Betrieb

Im Gegensatz zum Normalbetrieb treten beim anormalen Betrieb eine oder mehrere Störungen auf, die jedoch in ihrem Ausmaß den sicheren Weiterbetrieb der Anlage nicht gefährden. Für das Lüftungs- und Filtersystem können hierbei bereits erhöhte Parameter, wie erhöhte Durchsätze oder erhöhte Partikelfrachten gegenüber dem Normalbetrieb auftreten. Der anormale Betrieb sowie dessen Grenzen sind innerhalb des Genehmigungsverfahrens und der Sicherheitsanalyse betrachtet, im Betriebshandbuch niedergeschrieben und stellen einen sicheren definierten Zustand außerhalb der Parameter für den störungsfreien Normalbetrieb dar /KER 16/.

6.1.2 Störfallbetrieb

Der Störfall beschreibt den Zustand einer Anlage deren Weiterbetrieb in Folge einer Störung aus sicherheitstechnischen Argumenten nicht mehr vertretbar ist. Hierbei kann weiterhin unterschieden werden, ob der Störfall im Rahmen der Anlagenauslegung betrachtet wurde, oder ob es sich um einen auslegungsüberschreitenden Störfall handelt. Primäres Ziel aller Handlungen im Störfallszenario ist die Einhaltung der Schutzziele nach AtG und StrlSchV /KER 16/, /BUN 18b/, /DEU 22/.

Störfälle sind, je nach Ausmaß, unter anderem:

- Brände,
- Kritikalität,
- Freisetzung radioaktiver Stoffe in die Anlage,
- Einwirkung von außen (Flugzeugabsturz, Hochwasser, Erdbeben, Blitzschlag).

In der Regel gibt es zur Beherrschung dieser Szenarien eine auslegungsbestimmende Annahme, anhand welcher ein Störfall als auslegungsüberschreitend eingestuft werden kann. Im Falle eines Auslegungsstörfalles ist die Anlagen inklusive Lüftungstechnischer Einrichtungen der Kategorien 1 und 2 in der Lage, den vorliegenden Störfall, ohne die Überschreitung der Emissionsgrenzwerte zu beherrschen. Im Falle eines auslegungsüberschreitenden Störfalles sind die Lüftungstechnischen Anlagen dazu einzusetzen, eine frühe Freisetzung radioaktiver Stoffe zu vermeiden und im Freisetzungsfalle die freigesetzte Menge radioaktiver Stoffe zu minimieren.

6.1.3 Verhalten von Aerosolen unter Störfallbedingungen

Im Gegensatz zu den Bedingungen im Normalbetrieb können im Störfallbetrieb Situationen auftreten, in denen die durch die Druckstaffelung gewährleistete, gerichtete Strömung sowie die nachfolgende gefilterte Abgabe der Luftmengen zusammenbricht. Unter diesen Bedingungen treten die physikalisch bedingten natürlichen Transportmechanismen in den Vordergrund des Aerosolverhaltens. Die Transportmechanismen beruhen hierbei auf Druckdifferenzen oder der durch Wärme hervorgerufenen Naturkonvektion. Brände oder kritikalitätsbedingte Wärme- und Druckentwicklungen unterstützen diese Prozesse und stellen zugleich eine Aerosolquelle dar.

6.1.3.1 Teilchentransport über den Impuls

Strömt das Medium z. B. aus einem unter Überdruck stehenden Behälter aus, so kann es durch seinen Impuls in entferntere Raumbereiche getragen werden. Ausströmende Gase können hierbei einen Teil ihres Impulses, auf ruhende Partikel übertragen und somit deren Transport begünstigen.

6.1.3.2 Naturkonvektion

Hat das Medium eine geringere Dichte als die Atmosphäre, in die es freigesetzt wird, so steigt es auf. Hat es eine größere Dichte, so sinkt es nach unten. Die Dichte ist stoffspezifisch und abhängig von der Temperatur. So hat z. B. Wasserdampf eine geringere und Kohlendioxid eine höhere Dichte als Luft. Mit steigender Temperatur nimmt die Dichte ab. Im Falle eines Brandes steigen die heißen Verbrennungsgase nach oben, kühlen sich an den Wänden und der Decke ab und sinken wieder nach unten. So entsteht eine Naturkonvektionsschleife, die die Atmosphäre oberhalb des Brandherdes durchmischt. In den darunter befindlichen Bereichen kann dabei die Atmosphäre weitgehend stagnieren, sodass in diese zunächst wenig Aerosol gelangt.

6.1.3.3 Zwangskonvektion

Lüftungssysteme oder Gebläse bewirken eine Zwangskonvektion. Der durch die Ventilationseinrichtungen des Lüftungssystems erzeugte Unterdruck ist hierbei die treibende Kraft für die gerichtete Strömung der Luft. Im ordnungsgemäßen Betrieb wird dabei eine Druckstaffelung aufrechterhalten, die es ermöglicht, die gesamte abgegebene Luft zur Reinigung über ein Filtersystem zu leiten, bevor sie an die Umgebung abgegeben wird. Die Aufrechterhaltung der lüftungstechnischen Druckstaffelung sowie die Integrität der Filtersysteme unter Störfallbedingungen trägt maßgeblich zur Beherrschung von Störfällen sowie der Vermeidung der Freisetzung radioaktiver Stoffe bei.

6.2 Rückhaltesysteme für Aerosole und flüchtige Fortluftbestandteile

Die im Lüftungstechnischen System verbauten Gasreinigungs-Systeme werden entsprechend der technischen Anforderungen in verschiedenen Bauformen eingesetzt. Die Bauform und Auslegung des Filtersystems richtet sich hierbei einerseits nach Temperatur, Art und Volumenstrom des zu reinigenden Gases, andererseits nach Art und Beschaffenheit der Verunreinigung. So werden für feste und flüssige Verunreinigungen verschiedene mechanische Filter eingesetzt, im Falle von gasförmigen oder leicht flüchtigen Verbindungen kommen Sorptionsfilter oder Gaswäscher zum Einsatz. Im folgenden Kapitel wird der Aufbau und die Wirkweise dieser Filtersysteme dargestellt.

6.2.1 Fasermattenfilter

Fasermattenfilter bestehen aus dem Filtermaterial sowie dessen Halterung. Entsprechend ihrer Abscheidefähigkeit für Partikel wird zwischen Grob-, Fein- und Schwebstofffiltern unterschieden. Je nach Konstruktion und verwendeten Materialien weisen sie eine unterschiedliche Beständigkeit gegen erhöhte Temperaturen, Feuer, aggressive Stoffe, sowie Differenzdruck oder Druckstöße auf.

Abb. 6.2 zeigt ein Konstruktionsbeispiel für Filtereinsätze zur Verwendung in Lüftungsanlagen. Das Filtermaterial wird in einer offenen Faltung von der Filterhalterung getragen und bildet Lufttaschen. Dies ermöglicht den Einsatz großflächiger Filter bei geringer Anströmfläche des Filtereinsatzes. Zwischen den Lufttaschen können sich je nach Auslegung Separatoren und Bauteile des Filterhalters befinden. Am Filterhalter angebrachte Dichtungen verhindern eine Bypass Strömung zwischen Rahmen und Filtermaterial.



Abb. 6.2 Konstruktionsbeispiele für Fasermattenfilter

/NOV 19/

Fasermattenfilter sind in sehr unterschiedlichen Größen erhältlich. Die Anströmflächen können 0,01 bis 1,5 m² betragen. Durch Parallelschalten mehrerer Filter in einem Lüftungssystem kann die Filterfläche nach Bedarf vergrößert werden. Filter mit gleicher Anströmfläche, aber größerer Tiefe, haben eine größere Filterfläche.

Entsprechend der Anforderungen an das Filtern können sehr unterschiedliche Materialien verwendet werden. Als Filtermedium wird beispielsweise Glasfaser, Edelstahlfaser oder Kunststofffaser verwendet. Die Rahmen können aus Stahl, Aluminium oder auch aus Sperrholz gefertigt sein, die Dichtungen bestehen beispielsweise aus Gummi oder Glasfaserwatte. Die Separatoren zwischen den jeweiligen Filtertaschen können aus Aluminium, Kunststoff oder Papier bestehen.

Die Abscheidemechanismen zur Abscheidung partikelförmiger Verunreinigungen in einem mechanischen Filtersystem lassen sich in vier verschiedene Effekte aufteilen.

- Diffusionseffekt,
- Trägheitseffekt (Impaktion),
- Sperreffekt (Interzeption),
- Siebeffekt.

Im Folgenden werden auf den Abscheidemechanismus der einzelnen Effekte und die jeweiligen Partikeleigenschaften, für welche diese effektiv sind, eingegangen.

Diffusionseffekt (Diffusiophorese)

Staubpartikel sowie Schadstoffmoleküle, deren Verhalten aufgrund ihrer Größe maßgeblich über die Brownsche Teilchenbewegung definiert wird, folgen im Allgemeinen einem Konzentrationsgradienten. Wird nun durch Adsorptions- oder Absorptionseffekte an der Filteroberfläche die lokale Konzentration der zu filternden Materialien reduziert, so bewegen sich diese entlang des Konzentrationsgradienten in Richtung des Filtermaterials und werden dort ebenfalls abgeschieden. Die Filtration aufgrund des Diffusionseffekts ist effizient für Moleküle und kleine Partikel $< 1 \mu\text{m}$. Die Effizienz der Filtration mittels Diffusionseffekt nimmt mit sinkender Strömungsgeschwindigkeit, sinkendem Partikeldurchmesser und sinkendem Faserdurchmesser zu. Eine schematische Darstellung des Diffusionseffekts findet sich in Abb. 6.3.

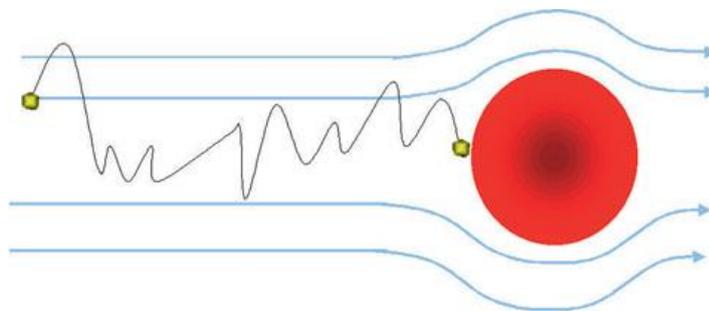


Abb. 6.3 Schematische Darstellung des Diffusionseffekts

/CAM 17/

Sperreffekt

Der Sperreffekt beruht auf der Adsorption von Staubpartikeln, die mit dem Filtermaterial in Kontakt geraten. Die Effekte des Diffusions- und Sperreffekt überschneiden sich im Bereich der Partikelgrößen von $0,1\text{--}1\mu\text{m}$, jedoch spielt der Einfluss der Diffusion für die Abscheidung mittels Sperreffekt eine untergeordnete Rolle. Die Partikel bewegen sich in gerichteter Bewegung mit dem Luftstrom. Die Effizienz der Filtration von Partikeln mittels Sperreffekt nimmt mit dem Partikeldurchmesser, sowie mit sinkendem Faserabstand und Faserdurchmesser zu und ist weitgehend unabhängig von der Strömungsgeschwindigkeit. Eine schematische Darstellung des Sperreffekts findet sich in Abb. 6.4.

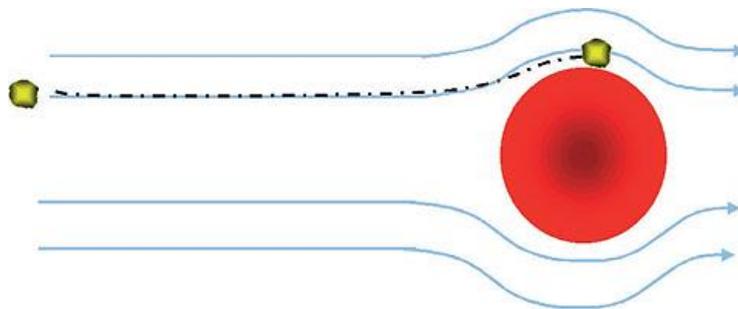


Abb. 6.4 Schematische Darstellung des Sperreffekts

/CAM 17/

Trägheitseffekt

Werden die Partikel so groß, dass sie sich aufgrund ihrer Eigenmasse von der Bewegung des Luftstroms durch Trägheit unterscheiden, so gewinnt die Abscheidung über den Trägheitseffekt an Einfluss. Hierbei umströmt die Luft die Filterfasern, wobei die enthaltenen Partikel dem Luftstrom aufgrund ihrer Trägheit nicht folgen können und mit den Filterfasern kollidieren. Das Prinzip gleicht dem Prinzip der im vorherigen Kapitel beschriebenen dynamischen Trennverfahren. Die Effektivität der Abscheidung über den Trägheitseffekt steigt mit Partikeldurchmesser und Strömungsgeschwindigkeit und sinkendem Faserdurchmesser. Eine schematische Darstellung des Trägheitseffekts findet sich in Abb. 6.5.

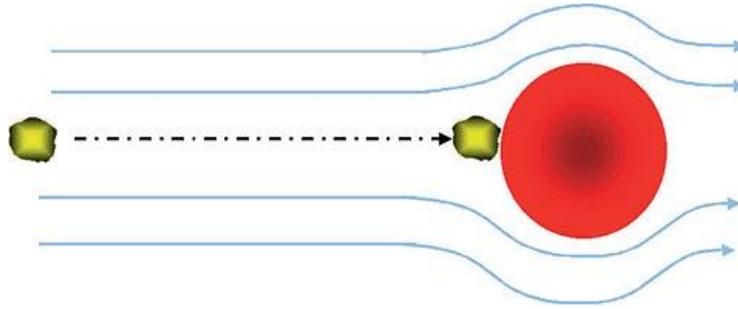


Abb. 6.5 Schematische Darstellung des Trägheitseffekts

/CAM 17/

Siebeffekt

Der Siebeffekt ist für Partikeldurchmesser im Größenbereich der Filterporen (Faserabstand) der primäre Abscheidemechanismus. Die Partikel werden allein aufgrund ihrer Dimensionierung durch das Filtermaterial daran gehindert, den Filter zu passieren. Die Siebwirkung nimmt mit steigender Partikelgröße und sinkendem Porendurchmesser zu und erlangt ab ca. 3 μm Bedeutung. Eine schematische Darstellung des Siebeffekts findet sich in Abb. 6.6.

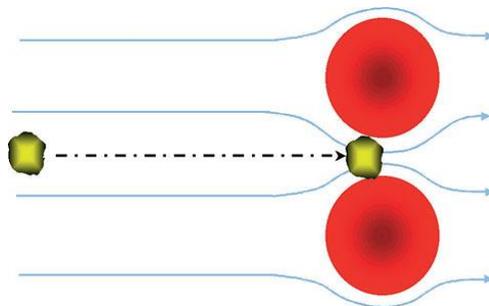


Abb. 6.6 Schematische Darstellung des Siebeffekts

/CAM 17/

In Abb. 6.7 ist die Wirksamkeit der verschiedenen Abscheidemechanismen als Funktion der Partikelgröße für einen Faserfilter dargestellt. Der Gesamtabscheidegrad eines Filters ergibt sich aus der Summe der einzelnen Effekte; er ist durch einen parabelförmigen Verlauf gekennzeichnet. Diejenige Partikelgröße, bei der bei gegebener Geschwindigkeit der Luftströmung durch das Filtermedium der Gesamtabscheidegrad eines Filters am geringsten, d. h. der Durchlassgrad am größten ist, wird als **MPPS (Most Penetrating Particle Size)** bezeichnet; sie ist ebenfalls in Abb. 6.7 markiert und liegt bei Faserfiltern

typischerweise zwischen 0,2 und 0,3 μm , d. h. im Übergangsbereich zwischen Diffusions- und Sperrereffekt als den dominierenden Abscheidemechanismen.

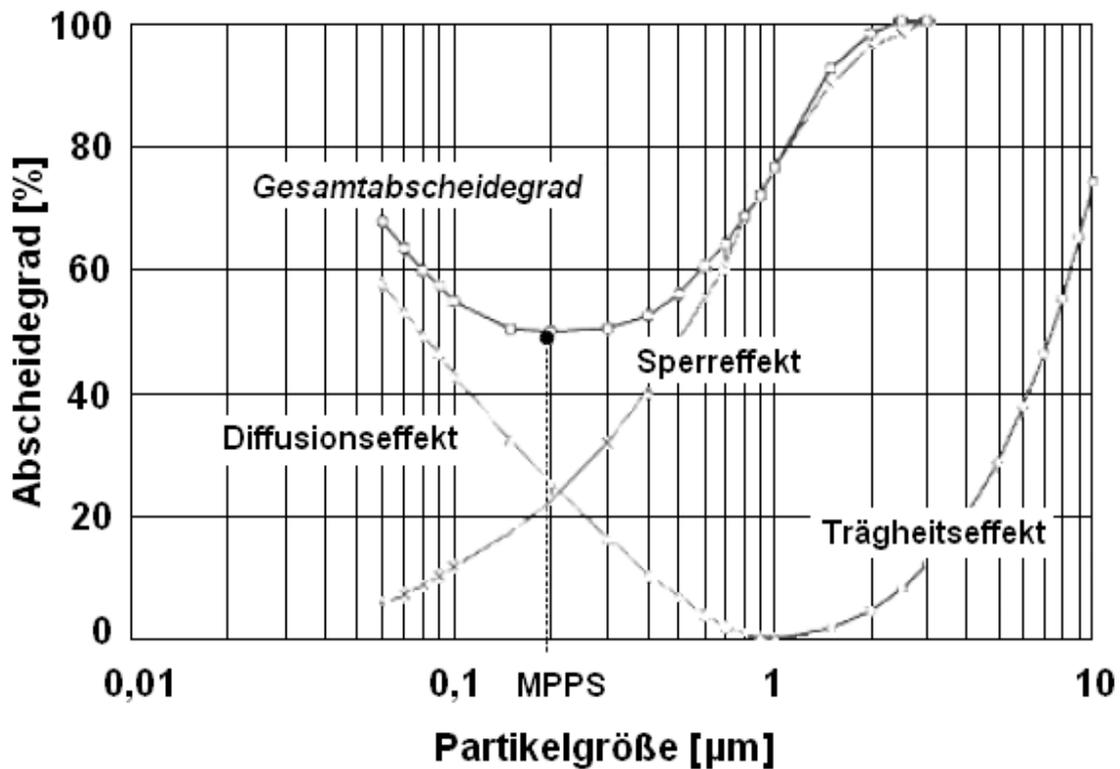


Abb. 6.7 Wirksamkeit der verschiedenen Abscheidemechanismen als Funktion der Partikelgröße für einen Faserfilter

/CAM 17/

Der Abscheidegrad eines Filters hängt dabei von verschiedenen Parametern ab, wie z. B.

- eingesetztes Filtermaterial,
- Filterfläche,
- Luftgeschwindigkeit.

Bei geringerer Luftgeschwindigkeit werden mehr Teilchen zurückgehalten. Eine größere Filterfläche reduziert die Strömungsgeschwindigkeit beim Durchtritt durch den Filter. Gleichzeitig erhöht eine größere Filterfläche die Lebensdauer des Filters.

Sowohl der Gesamtabscheidegrad eines Faserfilters als auch die Partikelgröße mit dem höchsten Durchlassgrad hängen von der Geschwindigkeit der Luftströmung durch das

Filtermedium ab. Bei einer Verringerung der Strömungsgeschwindigkeit würde sich die in Abb. 6.7 dargestellte Abscheidekurve zu größeren Partikeln hin verschieben, und der Mindestabscheidegrad würde etwas ansteigen. Letzteres hängt damit zusammen, dass der Sperreffekt von der Geschwindigkeit unabhängig ist, während der Diffusionseffekt mit abnehmender Strömungsgeschwindigkeit zunimmt. Umgekehrt würde sich bei zunehmender Strömungsgeschwindigkeit die Abscheidekurve infolge des abnehmenden Diffusionseffektes zu kleineren Partikelgrößen hin verschieben.

In Tab. 6.1 ist der Einfluss ausgewählter Filterparameter auf die Wirksamkeit einzelner Abscheideprozesse zusammengestellt /WEB 97/. Positiv korreliert („pos“) bedeutet, dass die Filterwirksamkeit mit größer werdendem Parameter steigt; negativ korreliert („neg“) heißt, dass sie mit größer werdendem Parameter fällt. Kein Einfluss ist mit „-“ gekennzeichnet.

Tab. 6.1 Korrelation zwischen verschiedenen Filterparametern und der Wirksamkeit von Abscheideprozessen

/WEB 97/

Abscheideprozess	Strömungsgeschwindigkeit	Faserdurchmesser	Faserdichte	Partikelgröße
Diffusion	neg	neg	pos	neg
Interzeption	-	neg	pos	pos
Impaktion	pos	neg	pos	pos

6.2.1.1 Klassifikation von Faserfiltern

Wie eingangs erwähnt, lassen sich Faserfilter in die Klassen Grob-, Fein- und Schwebstofffilter einteilen. Hierbei werden die Grob- und Feinstaubfilter zusammen behandelt, während sich die Schwebstofffilter gesondert noch einmal in zwei Gruppen aufspalten.

Grob und Feinstaubfilter

Grob und Feinstaubfilter spielen eine besondere Rolle bei der Abtrennung luftgetragener Verunreinigungen mit Partikelgrößen $> 1 \mu\text{m}$. Die Unterscheidung zwischen Grob- und Feinfilter wird hier bei einer Partikelgröße von $10 \mu\text{m}$ angesetzt. Der primäre Abtrennmechanismus im Bereich der Grob- und Feinfilter ist für die Grobfilter der Trägheitseffekt sowie für Feinfilter der Sperreffekt. Die Zielgruppe dieser Filterklasse umfasst hauptsächlich Verunreinigungen der Außenluft durch terrestrische Sand- und Erdenstäube

sowie Baustäube, es können jedoch auch Stäube aus Bruch- und Mahlvorgängen gefiltert werden. Auch einige Bakterien fallen in diese Größenklassifizierung und können von Feinstaubfiltern zurückgehalten werden. Entsprechend der Vorkommen solch größerer Luftverunreinigungen werden Grob- und Feinstaubfilter, oft auch gestaffelt, als Vorschaltfilter für feinere Filtersysteme verwendet, was die Lebensdauer der feineren und teureren Systeme erheblich erhöht /CAM 15/.

Tab. 6.2 Klassifikation von Grob- und Feinstaubfiltern nach DIN EN 779

Filterklasse	mittlerer Abscheidegrad, gravimetrisch (%)	mittlerer Wirkungsgrad, atmosphärisch (%)
G 1	< 65	–
G 2	65–80	–
G 3	80–90	–
G 4	> 90	–
F 5	–	40–60
F 6	–	60–80
F 7	–	80–90
F 8	–	90–95
F 9	–	> 95

Schwebstofffilter

Schwebstofffilter werden eingesetzt, um Partikel und Aerosole < 1 µm sicher aus Luftströmen zu entfernen. Verunreinigungen dieser Stoffklassifikation zeichnen sich dadurch aus, dass ein Absinken der Partikel in der Luft bei Raumtemperatur sehr langsam oder gar nicht vorhanden sein kann. Daher auch der Name „Schwebstoff“-Filter. Das genaue Sedimentationsverhalten der Schwebstoffe wird hierbei von der Materialdichte, der Temperatur und der Gaszusammensetzung beeinflusst. Partikel der Zielgruppe dieser Filterklasse sind lediglich über den Partikeldurchmesser definiert und müssen daher nicht zwingend schwebende Stoffe sein. Die maßgeblichen Mechanismen der Gasreinigung der Schwebstofffilter sind der Sperreffekt sowie der Diffusionseffekt. Schwebstofffilter werden gemäß der europäischen Norm DIN EN 1822-1 in die Filterklassen H 10–H 14 (**HEPA** = **H**igh **E**fficiency **P**articulate **A**ir **F**ilter) und U 15–U 17 (**ULPA** = **U**ltra **L**ow **P**enetration **A**ir **F**ilter) eingeteilt /CAM 15/.

Tab. 6.3 Klassifikationen von HEPA- und ULPA-Filtern nach DIN EN 1822-1

Filterklasse	Integralwert		Lokalwert (Leckprüfung)	
	Abscheidegrad (%)	Durchlassgrad (%)	Abscheidegrad (%)	Durchlassgrad (%)
H 10	85	15	– ¹⁾	– ¹⁾
H 11	95	5	– ¹⁾	– ¹⁾
H 12	99,5	0,5	– ¹⁾	– ¹⁾
H 13	99,95	0,05	99,75	0,25
H 14	99,995	0,005	99,975	0,025
U 15	99,9995	0,0005	99,9975	0,0025
U 16	99,99995	0,00005	99,99975	0,00025
U 17	99,999995	0,000005	99,9999	0,0001

¹⁾ kein Nachweis erforderlich.

Als Vorfilter für HEPA- und ULPA-Filter kommen gemäß DIN EN 779 die zuvor beschriebenen Grobstaubfilter der Klassen G 1–G 4 (für Partikel > 10 µm) und Feinstaubfilter der Klassen F 5–F 9 (für Partikel im Größenbereich 1–10 µm) zum Einsatz. Der Abscheidegrad und die Leckfreiheit von HEPA- und ULPA-Filtern werden gemäß DIN EN 1822-4 und 1822-5 geprüft.

6.2.1.2 Staubbelastung und Filterstandzeiten

Zur Auslegung und einwandfreien Funktion eines Filtersystems ist neben der Adressierung der richtigen Filtersysteme für die in der Anlage vorkommenden Staubbelastungen auch der zeitliche Verlauf der Filterleistung von Bedeutung. Hierbei spielt die Staubbelastung der Filter eine entscheidende Rolle. Die Triebkraft der Gasfiltration ist die zwischen der Rohgasseite und der Reingasseite herrschende Druckdifferenz. Durch Beladung der Filter mit Staubpartikeln steigt diese Druckdifferenz durch partielle Verstopfung des Filters durch den abgeschiedenen Staub bei gleichem Volumenstrom an. Die Beladung eines Filters mit Staub kann sich positiv auf den Abscheidegrad auswirken, wobei durch den entstandenen Filterkuchen eine effektivere Abscheidung der Partikel stattfindet. Der Differenzdruck über einen Filter lässt sich durch simple verfahrenstechnische Messungen im laufenden Betrieb ermittelt und wird daher als Indikator für die Standzeit eines Filters herangezogen. Die maximalen Druckdifferenzen, bei der ein Filterwechsel nötig wird, werden von den Filterherstellern für ihre Produkte angegeben. Da der Anstieg des Differentialdrucks über einen Filter mit einer Erhöhung der mechanischen Belastungen einhergeht, können Einschränkungen bei der Genehmigung der Filteranlage

festgelegt werden. Die Standzeiten von Filtersystemen lassen sich durch eine geeignete Staffelung der Filterqualität von Grob- hin zu Feinfiltern optimieren.

Filtersysteme, die für die Belastungen des Störfallbetriebes ausgelegt sind, erfahren im Idealfalle keine Staubbelastung. Jedoch unterliegen auch die Filtersysteme der Kategorie 1 der natürlichen Alterung und müssen im Anforderungsfall zuverlässig funktionieren. Hierzu sind die Filter nach einer vom Hersteller angegebenen materialabhängigen maximalen Standzeit auszuwechseln und die Funktionstüchtigkeit des Filtersystems in regelmäßigen Abständen zu überprüfen. Filtersysteme der Kategorie 1 müssen zudem für die im Störfall möglichen Bedingungen ausgelegt sein. Hierzu gehören insbesondere erhebliche Staubbelastungen durch Brand- und Schwelvvorgänge sowie deutlich erhöhte Gastemperaturen. Dies führt dazu, dass Filteranlagen der Kategorie 1 abhängig vom Auslegungstörfall einen technisch grundlegend anderen Aufbau aufweisen können, als dies für Filtersysteme der Kategorie 2 für dieselbe Anlage der Fall ist.

Für die Auslegung der Abluft-Filteranlage, die während oder unmittelbar nach Störfällen in deutschen Kernkraftwerken betrieben werden muss, legt die Sicherheitstechnische Regel KTA 3601 fest, dass die Filtereinheit in Strömungsrichtung aus Schwebstoff-Filterelementen mindestens der Filterklasse H 13, aus Jodfilteranlagen (Auslegung $2 \times 100\%$) sowie aus Schwebstoff-Filterelementen mindestens der Filterklasse H 11 bestehen muss. Diesen Filtern sollten Vorfilter mindestens der Klasse G 4 vorgeschaltet werden /KTA 05/.

In Urananreicherungsanlagen nach dem Gasultrazentrifugenprinzip müssen die Abgas- und Absaugeinrichtungen mit mindestens einem Schwebstoff-Filterelement der Filterklasse H 13 und einem Vorfilter der Klasse G 4 oder mit gleichwertigen Rückhalteeinrichtungen (z. B. zwei Schwebstoff-Filterelemente der Filterklasse H 12) ausgerüstet sein. Sind den Filtern Wäscher vorgeschaltet, sind zusätzlich Tropfenabscheider vorzusehen /BMU 04/.

In Anlagen zur Herstellung von Leichtwasserreaktorbrennelementen mit niedrig angereichertem Uran müssen die Abgas- und Förderabluftleinrichtungen mit mindestens einem Filter der Klasse S nach DIN 24184 und einem Vorfilter oder mit gleichwertigen Rückhalteeinrichtungen ausgerüstet sein. Sind den Filtern Wäscher vorgeschaltet, sind zusätzlich Tropfenabscheider vorzusehen /BMU 04/.

6.2.2 Gas-Sorptionsfilter

Die Abgasreinigung mittels Sorptionsprozessen beschreibt die reversible (Adsorption) oder irreversible (Absorption) Bindung von Abgasbestandteilen an eine aktive Oberfläche. Als Oberfläche können hier Feststoffe (Tiefbettfilter) und Flüssigkeiten (Gaswäscher) dienen. Ein bekanntes Beispiel für Adsorptionsfiltersysteme sind Aktivkohlefilter zur Schadstoffadsorption. Ein in der Kerntechnik bekanntes System sind insbesondere die Iodfilter, die chemisch-absorptive Wirkmechanismen aufweisen.

6.2.3 Tiefbettfilter

Sand- und Fasertiefbettfilter können für extreme Zustände, z. B. zur Beherrschung von Störfällen, bei denen chemisch aggressive Stoffe, heiße Brandgase oder Druckstoßbelastungen auftreten, eingesetzt werden. Ihre Rückhaltefähigkeit ist durch ihren großen Platzbedarf eingeschränkt. Bei typischen Tiefbettfiltern, die für die Druckentlastung des Reaktorsicherheitsbehälters entwickelt wurden, befindet sich die einzige Dichtung zwischen dem Filtereinsatz und dem Gehäuse auf der Rohluftseite, sodass einströmende Leckluft ebenfalls mitgefiltert wird. Das Filtermaterial besteht typischerweise aus Edelstahlfasern.

6.2.4 Gaswäscher

Gaswäscher dienen der Entfernung von Partikeln und gasförmigen Verunreinigungen aus Abgasen. Die Mechanismen der Abgasreinigung beruhen hierbei auf der Sorption gasförmiger Verbindungen in der Waschflüssigkeit sowie auf der Benetzung partikelförmiger Verunreinigungen. Die Benetzung partikelförmiger Verunreinigungen kann durch die Zugabe von Additiven in die Waschflüssigkeit erhöht werden. Die Sorption gasförmiger Verunreinigungen kann allein durch die Löslichkeit der Gase in der Waschflüssigkeit oder durch eine chemische Reaktion der Verunreinigung mit einem in der Waschflüssigkeit vorhandenen Reaktionspartner stattfinden. Gaswäscher werden bezüglich der Waschflüssigkeit in der Regel im Umlaufbetrieb eingesetzt, was die Kapazität des Wäschersystems begrenzt und eine Überwachung der Füllhöhe und Waschflüssigkeitsqualität erfordert. Um einen effektiven Stoffaustausch zwischen der gasförmigen und flüssigen Phase zu ermöglichen, muss die Kontaktfläche maximiert werden. Hierzu kommen verschiedene Bauformen von Gaswäscher zum Einsatz.

6.2.4.1 Sprühwäscher

Sprühwäscher bestehen aus einem meist zylinderförmigen Zerstäuberraum in dem auf einer oder mehreren Ebenen eine Waschflüssigkeit mittels Zerstäuberdüsen eingesprüht wird. Die zu reinigenden Abgase werden im Gegenstrom zu der herabrieselnden Waschflüssigkeit in den unteren Teil des Wäschers eingespeist und nach erfolgter Reinigung oberhalb der Sprühebene abgesaugt. Eine schematische Darstellung eines Sprühwäschers ist in Abb. 6.8 dargestellt.

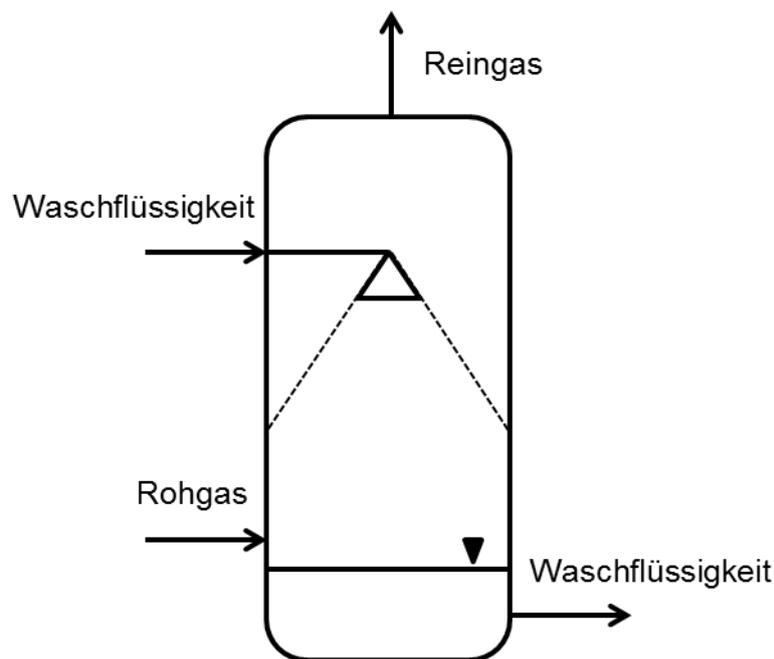


Abb. 6.8 Schematische Darstellung eines Sprühwäschers

Die Waschflüssigkeit wird hierbei mittels einer Umwälzpumpe aus dem Sumpf des Wäschers entnommen und erneut in den oberen Teil des Wäschers eingespeist. Zwischen Zerstäuberraum und Abgaszufuhr können sich zusätzlich von Siebböden getragene Schüttungen befinden. Die verrieselte Waschflüssigkeit trifft auf diese Schüttung und läuft als Flüssigkeitsfilm an dieser herab. Dies soll die Kontaktzeit mit dem durch diese Schüttung entgegenströmenden Abgas erhöhen und den Stoffaustausch verbessern. Vom Gas mitgerissene Tropfen müssen oberhalb der Zerstäubungszone von einem geeigneten Topfenabscheider, sowie hinter dem Wäscher von einem gesonderten Flüssigkeitsabscheider aus dem gereinigten Gasstrom entfernt werden. Qualität und Füllstand der Waschflüssigkeit sollten in sinnvollen Intervallen überprüft werden. Das Intervall nach dem die Kapazitäten der Waschflüssigkeit erschöpft ist hängt vom Volumenstrom der Abgase der Schadstoffbelastung der Abgase, sowie von Art und Menge der

Waschflüssigkeit ab. Austausch oder Regeneration der Waschflüssigkeit lassen sich im Falle hochbelasteter Abgasströme sinnvoll als kontinuierliches System auslegen.

6.2.4.2 Rotationswäscher

Die Bauform des Rotationswäschers besteht aus einem zylindrischen Wäscherkörper in dem sich eine oder mehrere Rotor–Stator Kombinationen befinden. Die Waschflüssigkeit wird auf die Rotor-Stator Kombination geleitet und durch die schnelle Rotation des Rotors zerstäubt. Der Anprall des beschleunigten Flüssigkeitsfilms am Stator sorgt für eine weitere Zerstäubung der Waschflüssigkeit. Das zu reinigende Abgas wird unterhalb der Zerstäuberstufen in den Wäscherkörper eingespeist, durchläuft im Gegenstrom den Zerstäuberraum und wird oberhalb der letzten Rotor-Stator Kombination aus dem Wäscher entnommen. Die Nachbehandlung der gereinigten Abgase kann ein oder mehrstufig mittels Tropfen- und Flüssigkeitsabscheidern stattfinden (Abb. 6.9).

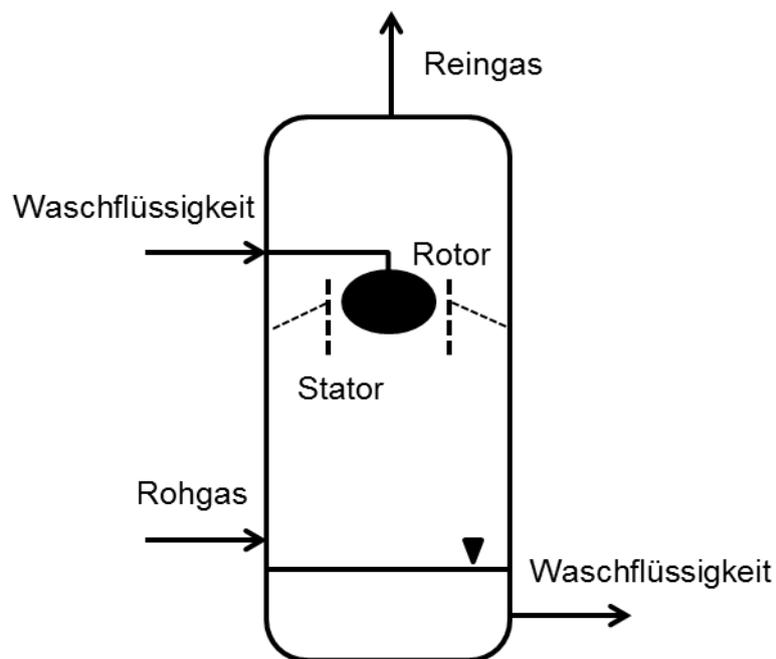


Abb. 6.9 Schematische Darstellung eines Rotationswäschers

6.2.4.3 Venturi-Wäscher

Die Bauform des Venturi-Wäschers erinnert an die Form einer Sanduhr. Das Rohgas wird von oben in das System eingebracht und durch den sich verringern den Durchmesser beschleunigt. Die Waschflüssigkeit wird oberhalb des geringsten Querschnitts im Gleichstrom zum Abgas an der Wandung des Wäschers eingebracht. Das beschleunigte Gas zerstäubt die Waschflüssigkeit an der Stelle des geringsten Querschnitts und bildet einen feinen Nebel, der auf der Reingasseite aufgefangen und getrennt wird. Eine schematische Darstellung eines Sprühwäschers ist in Abb. 6.10 dargestellt. Venturi-Wäscher erreichen hohe Geschwindigkeiten im Gasstrom und erreichen eine sehr effektive Gasreinigung. Ein Nachteil ist die wenig flexible Auslegung, da das Funktionsprinzip nur für einen definierten Bereich der Gasgeschwindigkeit und somit für konstante Volumenströme ausgelegt ist.

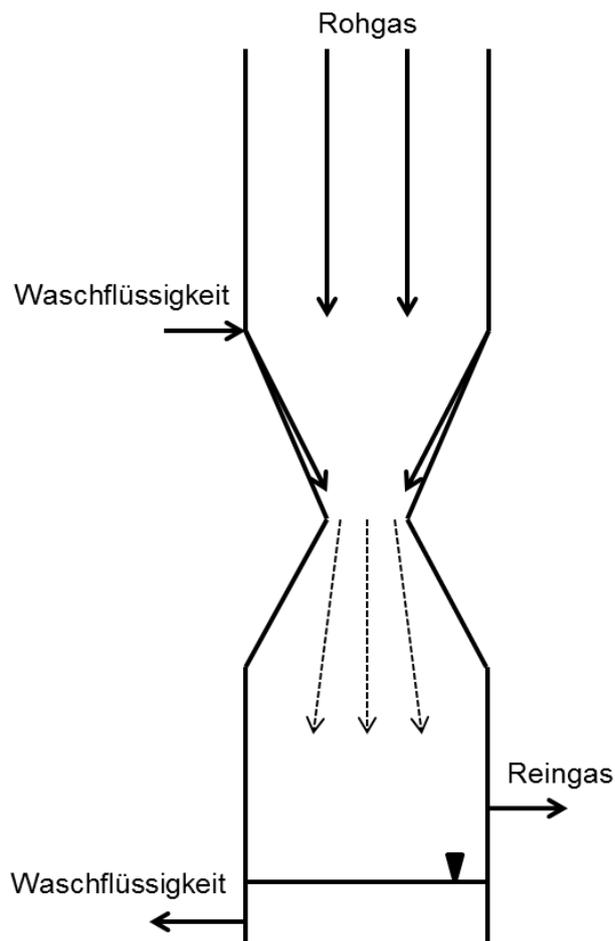


Abb. 6.10 Schematische Darstellung eines Venturi-Wäschers

6.2.5 Iodfiltersysteme

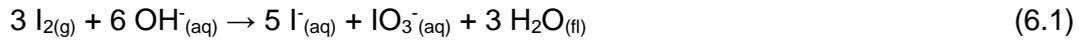
Radioaktives Iod („Radioiod“) kommt in großem Maße in Spaltproduktlösungen vor und stellt aufgrund seiner hohen Bioverfügbarkeit und biologischen Halbwertszeit ein wichtiges Element zum Schutz von Umwelt und Bevölkerung dar. Iod ist ein volatiles Element und kann im festen, sowie im gasförmigen Zustand auftreten. Es bildet zudem bioverfügbare flüchtige organische Verbindungen wie Methyljodid. Zur effektiven Rückhaltung von Radioiod aus Abgasströmen ist aufgrund seiner Eigenschaften eine reaktiv- adsorptive Filterung des Iods aus der Abluft notwendig. Aufgrund seiner Natur als Spaltprodukt, ist Radioiod für Anlagen der nuklearen Versorgung von vernachlässigbarer Bedeutung und tritt nur im Falle eines Kritikalitätsstörfalles einer solchen Anlage in sehr geringen Mengen als Spaltprodukt auf. Aufgrund der in den europäischen Nachbarstaaten vorhandenen Anlagen zum Umgang mit offenen bestrahlten Kernbrennstoffen, werden Iodfilter jedoch in diesem Störfallhandbuch behandelt.

Iodfilter sind in der Regel aus einer Kombination aus einer ersten Filterstufe zur Abscheidung von Schwebstoffen, und einer zweiten Stufe aus Iodsorptionsfiltern zur Abscheidung von gasförmigem Iod und organischen Iodverbindungen aufgebaut. Hierbei sind weitere zwischen- oder nachgeschaltete Filterstufen notwendig, um Emissionen aus den Iodfiltern zu entfernen. Die zur Entfernung des Iods wirksame Filterkombination besteht hierbei meist aus einem Gas-Nasswäscher in Kombination mit einem Feststoff-Sorptionsfilter /RIL 16/.

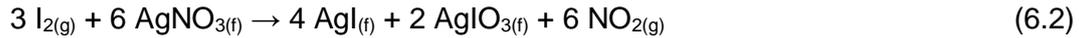
Eine adsorptive Filterung von Iod ist in Anlagen zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen nicht möglich, da die Filter, durch die beim Auflöseprozess in größeren Mengen entstehenden Stickoxide, vergiftet werden und ihre adsorptive Funktion für Iod verlieren. Zur effektiven Entfernung von Iod aus Abgasströmen dieser Art wurde früher das auf Quecksilbernitrat und HNO_3 basierende Mercurex-Verfahren eingesetzt. Modernere Abgasreinigungsverfahren basieren auf der basischen Wäsche der Abgase in Kombination mit einem auf Silbernitrat basierenden reaktiven Feststofffilter. Die basische Wäsche sorgt für eine Vorreinigung der Abgase. Hierbei werden die sauren Abgasbestandteile und Stickoxide sowie größere Mengen Iod entfernt. Im Anschluss stellt die Feststofffiltration der Abgase die Stufe der Feinreinigung dar. Hierbei wird das zur Filterung verwendete Silbernitrat aus Alumina (Al_2O_3 ; AgA) oder Silica (SiO_2 ; AgS) fixiert eingesetzt. Silber-basierte Feststofffilter sind auch in der Lage Iod aus organischen Iodverbindungen effektiv zurückzuhalten /RIL 16/.

Die Reinigungsprozesse laufen nach nachfolgenden Reaktionsgleichungen ab:

Basische Wäsche:



Feststoffabsorption:



aq wässrige Lösung
 f fest
 fl flüssig
 g gasförmig

Zur Vorreinigung und Nachbehandlung der Abgase zwischen den jeweiligen Stufen werden Faserfilter und Tropfenabscheider eingesetzt, die dem Gasstrom entsprechend korrosionsbeständig ausgelegt werden müssen. Tab. 6.4 zeigt die in ausgewählten Anlagen zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen verwendeten Verfahren /RIL 16/.

Tab. 6.4 Abgasreinigungssysteme ausgewählter Wiederaufarbeitungsanlagen zur Entfernung von Radioiod

/RIL 16/

Anlage	Land	Iod-Filterkombination
WAK*	Karlsruhe, Deutschland	AgS
Cogema (UP2-400)	La Hague, Frankreich	Basische Wäsche
Cogema (UP3)	La Hague, Frankreich	AgA, Basische Wäsche
THORP	Sellafield, Großbritannien	AgS, saure und basische Wäsche
Rokkasho SK	Rokkasho-mura, Japan	AgA, saure und basische Wäsche

6.2.6 Anordnungen von Rückhaltevorrichtungen

Eine zweckmäßige Anordnung der Rückhaltevorrichtungen erhöht die Lebensdauer und Kapazität des Systems und kann, in bestimmten Fällen, die Voraussetzung für eine ordnungsgemäße Funktion des Rückhaltesystems darstellen.

Bei der Auslegung von Rückhaltesystemen lassen sich die einzelnen Stufen entsprechend ihrer Charakteristik in eine oder mehrere primäre Stufen, zur Entfernung der adressierten Verunreinigung, und in eine oder mehrere sekundäre Stufen zur Vor- oder Nachbehandlung der in der Primärstufe zu behandelnden Gasströmen einteilen. Beispiele für solche Systeme sind die gestaffelte Filterung mit mehreren aufeinanderfolgenden Filterbänken zunehmender Feinheit oder das Zwischenschalten von Tröpfchenabscheidern zwischen basischem Wäscher und Feststofffilter bei der Iodfiltration.

Im kerntechnischen Bereich stellen Rückhaltesysteme oftmals die Kernkomponente des Lüftungstechnischen Systems zur Beherrschung eines Störfalls dar und müssen den Anforderungen der Sicherheitsnachweise gerecht werden. Bei Auslegung und Begutachtung von Rückhaltemechanismen ist hierbei aufgrund der gegenseitigen Beeinflussung der einzelnen Systemkomponenten das gesamte System inklusive eventueller Vorfilter und Reingasnachbehandlung zu betrachten. Zusätzlich muss die ordnungsgemäße Funktion der Abgasreinigung für den bestimmungsgemäßen Betrieb genauso wie für den Störfallbetrieb entsprechend der Anlagenauslegung gewährleistet sein.

6.2.7 Klappen und Türen

Klappen und Türen beeinflussen bei Veränderung ihrer Stellung die gerichtete Strömung der Luft und stellen daher ein wichtiges Element zur Steuerung der Luftströme dar. Neben Klappen, die primär zur Zu- und Abluftregelung herangezogen werden, werden Türen primär zum Transfer von Menschen und Material zwischen unterschiedlichen Betriebsräumen verwendet. Beim Öffnen einer Türe zwischen zwei Betriebsräumen, zwischen denen ein Differenzdruck besteht, entsteht u. U. eine Nebenströmung (Bypass-Strömung) durch die offene Türe. Durch die Bypass-Strömung einer im Verhältnis zum Raumvolumen nicht zu vernachlässigenden Türfläche kann der Differenzdruck bei ungeeigneter Auslegung der Lüftungsanlage schnell ausgeglichen werden, was die gewünschte gerichtete Strömung durch die Druckstaffelung aufheben kann. Des Weiteren kann ein hoher Differenzdruck über eine Türe bei ausreichender Türfläche einen erheblichen Gegendruck beim Öffnen der Türen erzeugen, der die Eignung einer Türe als

Fluchtweg oder Notausgang erheblich beeinträchtigen kann. Dies gilt es insbesondere für Lüftungssysteme zu prüfen, die zur Störfallbeherrschung herangezogen werden. Da die zum Öffnen der Türe benötigte Kraft mit steigendem Öffnungswinkel abnimmt, können Öffnungshilfen nach dem Hebelprinzip zur Überwindung eines erhöhten Öffnungswiderstandes installiert sein. Die Position von Türen sowie die Druckdifferenz über die Tür sind bei der Auslegung der Anlage zu betrachten und gegebenenfalls zu optimieren. Eine Möglichkeit zur Minimierung des Bypass-Effekts durch Türen ist der Einsatz von Schleusensystemen.

Aus Brandschutzgründen werden Anlagen in Brandabschnitte unterteilt, die die Eindämmung sowie die rasche Kontrolle eines ausgebrochenen Feuers unterstützen. Bei der Lüftungstechnischen Auslegung ist darauf zu achten, dass die Lüftungssysteme der Brandabschnitte unabhängig voneinander in das Lüftungssystem eingebunden sind, um eine Ausbreitung des Feuers (Gas, Rauchgas, Funkenflug) über das Lüftungssystem zu vermeiden.

Klappen dienen im Lüftungssystem zur Steuerung der Luftströmung und Luftverteilung, wodurch sie auch bedingt zur Regelung des Raumunterdrucks eingesetzt werden können. Ihre Hauptaufgabe ist es, die gerichtete Strömung über die möglichen Betriebszustände aufrecht zu halten, gezielte Spülungen eines Raums zu ermöglichen, oder Bypass-Strömungen zu kompensieren. Einen Sonderfall stellen Rückschlagklappen dar. Diese finden häufig in abgeschlossenen Systemen veränderbaren Volumens, wie Handschuhboxen, Verwendung und verhindern das Rückströmen des Gases in den Zuleitungstrakt bei Volumenreduktion. Rückschlagklappen können zudem im Lüftungssystem eingesetzt werden, um dem Gasstrom gegenläufige Druckstöße abzufangen, was im Störfallbetrieb von großem Interesse ist.

6.3 Rückhaltesysteme für radioaktiv kontaminierte Flüssigkeiten

Ebenso wie die zuvor behandelten Gase haften Flüssigkeiten ein erhebliches Potential der Aktivitätsverbreitung an. Flüssigkeiten sind hierbei jedoch insofern anders, dass sie sich durch ihre gegenüber Gasen deutlich höhere Dichte und ihre Inkompressibilität am Grund eines Gefäßes sammeln und den ihnen zur Verfügung stehenden Raum nicht vollständig einnehmen. Dies vereinfacht ihre Handhabung als Gefahrstoff, wobei jedoch zu beachten ist, dass sich Flüssigkeiten im kontinuierlichen Austausch mit einer in Kontakt stehenden Gasphase befinden (Dampfdruck).

Kontaminierte Flüssigkeiten lassen sich aus prozesstechnischer Sicht in zwei Kategorien unterteilen:

Flüssigkeiten mit heterogener Kontamination

Flüssigkeiten mit heterogener Kontamination lassen sich wiederum in zwei Kategorien einteilen. Suspensionen radioaktiver Stoffe in einer Flüssigkeit bilden hierbei einen Typus, der den Aerosolen ähnlich ist: Die radioaktive Verunreinigung liegt als Feststoff oder nicht mischbare Flüssigkeit fein suspendiert in der Trägerflüssigkeit vor. Hierbei treten ähnliche Effekte wie bei den gasbasierten Aerosolen auf. So sind von der Korngröße der Verunreinigung abhängige Sedimentations- und Filtrationsprozesse zu beobachten. Die gegenüber Gasen um ca. den Faktor 1000 erhöhte Dichte hat hierbei jedoch den Effekt, dass sich die Wirksamkeiten der unterschiedlichen Abscheidemechanismen signifikant verschieben (z. B. beim Impaktions- und Diffusionseffekt). Im Fall heterogen kontaminierter Flüssigkeiten in Form von echten Lösungen liegt das Radionuklid in einer im Lösungsmittel gelösten chemischen Form vor. Es handelt sich somit um die Lösung eines oder mehrerer radioaktiver Stoffe in einem nicht radioaktiven Lösungsmittel. Hierbei können der gelöste Stoff sowie das Lösungsmittel unterschiedlicher Natur sein. Die häufigste Form stellen wässrige Lösungen von radioaktiven Salzen dar. Weiterhin sind Lösungen radioaktiver Gase ($^{14}\text{CO}_2$ oder ^{85}Kr in Wasser) möglich. Neben dem gelösten Stoff lässt sich auch das Lösungsmittel variieren, womit grundlegend erst einmal alle Flüssigkeiten als Lösemittel für radioaktive Verunreinigungen in Frage kommen. Ein Großteil der prozesstechnisch anfallenden radioaktiven Abwässer fällt in die Kategorie der heterogen kontaminierten Flüssigkeiten. Als Beispiele dienen, die in der Kernbrennstoffverarbeitung verwendeten, Uran- und Plutoniumlösungen, Kernbrennstofflösungen oder die beladene organische Phase in der Wiederaufarbeitung. Weiterhin zählen die meisten im Betrieb von Kernkraftwerken anfallenden radioaktiven Flüssigkeiten in diese Kategorie.

Eine Sonderform der heterogen kontaminierten Flüssigkeiten stellen Kolloide dar. Kolloide sind Agglomerate feinsten Partikel, die durch Wechselwirkungen untereinander und mit den Lösungsmittelmolekülen eine gallertartige Masse bilden. Sie stehen somit in ihrem Verhalten zwischen den echten Lösungen und den Suspensionen und stellen eine verfahrenstechnische Herausforderung dar.

Flüssigkeiten mit homogener Kontamination

Im Fall einer homogenen Kontamination liegt eines oder mehrere radioaktive Nuklide in derselben chemischen Form vor, wie das Lösungsmittel. Kontaminationen dieses Typs stellen im verfahrenstechnischen Sinne ein sehr komplexes Problem dar, da sich die Komponenten nicht auf mechanischem und nur sehr begrenzt auf chemischem Weg trennen lassen. Klassische Beispiele aus der kerntechnischen Anwendung sind Kontaminationen von Tritium (^3H) in wässrigen Lösungen oder ^{14}C in Graphit. Die effektivste Vorgehensweise gegen Kontaminationen dieser Art ist die Vermeidung dieser Art von Radionukliden durch Optimierung der Prozessführung und Prozesschemie. Grundsätzlich lässt sich festhalten, dass die Abtrennbarkeit homogener Kontaminationen aus ihrem Lösungsmittel um ein vielfältiges aufwändiger gegenüber der Dekontamination heterogen kontaminierter Lösungen darstellt. Allgemein lässt sich sagen, dass der zur Trennung zu betreibendem Aufwand hierbei mit steigendem Atomgewicht des zu trennenden Elements ansteigt. Die wohl populärste Lösung dieser Kontaminationsart, wenn auch unter veränderter Ausgangssituation, ist die Anreicherung von ^{235}U . Diese ist aus Sicht der *Tails* im Grunde eine Dekontamination des ^{238}U von der „Verunreinigung“ ^{235}U .

6.3.1 Kontaminierte wässrige Lösungen

Kontaminierte wässrige Abfälle stellen den größten Teil der kontaminierten Flüssigkeiten, sowohl in der Kernbrennstofffabrikation als auch generell im Betrieb kerntechnischer Anlagen dar. Hierzu gehören zum Beispiel wässrige Rückstände aus der Fällung von Uran-Verbindungen bei der Uranreinigung, Schleifschlämme aus der Brennstofftabletten-Fertigung, oder Abwässer aus der Dekontamination von Anlagenteilen nach Wartungs- und Instandsetzungsarbeiten. Aufgrund der unterschiedlichen Entstehungsmechanismen besitzen die verschiedenen Abwasserströme verschiedene Eigenschaften bezüglich Aktivitätskonzentration, Feststoffgehalt, Partikel-Größenverteilung und gelöster Verunreinigungen. Für die betrieblich in großen Mengen anfallenden Abwässer werden in kerntechnischen Anlagen in der Regel Reinigungs- und Rezyklierungsmechanismen installiert, womit die Menge kontaminierter flüssiger Abfälle minimiert wird und womit beim Umgang mit Kernbrennstoffen die Moderator-Masse auf das im Umlauf befindliche Kühlmittel beschränkt wird. Für unregelmäßig anfallende oder in ihrer Qualität stark variierende flüssige radioaktive Abfälle werden in kerntechnischen Anlagen Abwassersysteme vorgehalten, die die individuelle und gezielte Behandlung solcher radioaktiver Flüssigabfälle ermöglichen.

6.3.2 Abwassersystem

In kerntechnischen Anlagen existieren meist parallele Abwassersysteme für kontaminierte und nicht kontaminierte Abwässer. Hierbei sollte durch bauliche Maßnahmen verhindert werden, dass eine Querkontamination aus dem System für kontaminierte Abfälle in das kontaminationsfreie Abwassersystem getragen wird. Bei Anlagen in denen großtechnisch chemische Umwandlungen stattfinden können weitere Abwasserstränge für chemisch separat zu behandelnden Abwässern installiert sein. In Kontroll- und Sperrbereichen, in denen mit offenen radioaktiven Stoffen hantiert wird, sollten aufgrund der Vermeidung der Kreuzkontamination ausschließlich kontaminationsführende Abwassersysteme zugänglich sein. In Anlagen mit Umgang mit offenen radioaktiven Stoffen sollte zudem die Entwässerung der Notduschen und der Sprinkleranlage für den Brandfall an das Abwassersystem für kontaminierte Flüssigabfälle angeschlossen sein. Innerhalb von Kontroll- und Sperrbereichen, in denen offene radioaktive Stoffe gehandhabt werden, können fest installierte Barriere-Schwellen im Fußboden die Ausbreitung kontaminierter Flüssigkeiten über mehrere Bereiche hinweg begrenzen. Hierzu sind Bereiche unterschiedlicher Kontaminationsgefahr voneinander zu trennen. Die Aufteilung verläuft hierbei häufig zwischen unterschiedlichen Räumen. Die Höhe der Barrieren ist nach dem bei einem Störfall maximal austretenden Flüssigkeitsvolumen zu bemessen. Beim Einsatz von Barrieren soll beachtet werden, dass diese sich oft in Fluchtwegen befinden, und diesen nicht beeinträchtigen sollten.

6.3.3 Abwasserbehandlung und Dekontamination

Potenziell kontaminierte Abwässer in kerntechnischen Anlagen werden in einem zentralen Abwassertank gesammelt und untersucht. Hierbei können Abwässer, die keine Kontamination aufweisen in die Kanalisation entlassen werden. Die Überprüfung der Kontaminationsfreiheit der Abwässer ist mit geeigneten Methoden nachzuweisen. Dabei sind insbesondere die im Kontrollbereich verwendeten Radionuklide und ihr Zerfallskanal für die Messmethode bestimmend. Kontaminierte Abwässer müssen der weiteren Behandlung mit dem Ziel der Dekontamination und Freigabe zugeführt werden. Aufgrund der zahlreichen Möglichkeiten der Kontamination von Flüssigkeiten stehen zur Weiterbehandlung kontaminierter Flüssigabfälle verschiedene Verfahren zur Verfügung. Die anzuwendenden Verfahren richten sich hierbei nach der chemisch-physikalischen Form der Kontamination. Im Folgenden werden verschiedene Methoden zur Dekontamination kontaminierter Flüssigabfälle beschrieben. Ein zielführender Einsatz der beschriebenen

Methoden führt in vielen Fällen zur Dekontamination und Freigabe der Flüssigkeiten und minimiert die Menge an Sekundärabfällen.

6.3.3.1 Filtration

Die Filtration stellt ein solides Verfahren zur mechanischen Dekontamination von Flüssigkeiten dar. Zur effizienten Dekontamination müssen die radioaktiven Verunreinigungen als Feststoff vorliegen. Der aus der Filtration hervorgehende Filterkuchen enthält die Kontamination und lässt sich als Feststoff der Behandlung radioaktiver Abfälle zuführen. Weiterhin ist zur effizienten Dekontamination die Partikelgröße und Partikelgrößenverteilung der Verunreinigung sowie die Porengröße des Filtermaterials entscheidend. Ist die Porengröße gegenüber dem zu filternden Material zu groß, so passieren kleinere Partikel den Filter und stellen eine Kontamination des Filtrats dar. Ist hingegen die Porengröße gegenüber der Partikelgröße klein, so wirkt sich dies negativ auf den Durchsatz aus und der Filter verstopft schneller. In einem fließenden Medium entsteht über den Filter ein Druckverlust, der von Viskosität und Fließgeschwindigkeit des Mediums, der Filterfläche, der Porosität des Filters und der Filterbeladung abhängt. Im Falle einer breiten Partikelgrößenverteilung lässt sich zur Optimierung des Druckverlustes die gestaffelte Filtration anwenden. Hierbei werden Filter mit sinkender Porengröße hintereinandergeschaltet, was sich positiv auf den Durchsatz und die Lebensdauer des Filtersystems auswirkt. Es existieren technische Lösungen zur, mit Bezug auf das Filtermaterial, kontinuierlichen Filtration, die beispielsweise in der Uranerz-Aufbereitung und der Urankonversion Anwendung finden (kontinuierliche Band- oder Trommelfilter). Bei der Behandlung radioaktiv kontaminierter Abwässer, aber auch bei der Kühlmittelreinigung in Kernkraftwerken, bietet sich jedoch aufgrund der Rahmenbedingungen der Chargenbetrieb von Filtersystemen an. Hierbei wird das Filtersystem häufig aus Gründen der Kapazitätserhöhung als auch zur Ermöglichung eines Filtertausches in mindestens zweifacher Ausführung vorgehalten. Zur Überwachung der Filtration eignen sich die Messung des Durchsatzes oder der Druckabfall über das Filtersystem. Ein Filterbruch hat häufig die Freisetzung großer Mengen Verunreinigung in das Filtrat zur Folge und sollte durch die optimale Auswahl des Filtersystems und eine gezielte Überwachung vermieden werden. Einen Sonderfall stellt die Verwendung eines Filterhilfsmittels dar. Bei der Filtration besonders feiner oder kolloidaler Niederschläge wird das Filtersystem lediglich als Träger für ein Filterhilfsmittel verwendet. Das Filterhilfsmittel entfaltet hierbei die Filtrationswirkung und bindet Verunreinigungen. Die Anwendung eines Filterhilfsmittels ermöglicht die effiziente Filtration kolloidaler Verunreinigungen, führt jedoch bei

einfacher Verwendung des Filterhilfsmittels zu einem signifikanten Anstieg der festen Sekundärabfälle.

6.3.3.2 Verdampfung

Die Verdampfung stellt eine universelle und effektive Methode zur Reinigung heterogen kontaminierter Flüssigkeiten mit Verunreinigungen mit hohem Siedepunkt dar. Bei dieser Methode wird die kontaminierte Flüssigkeit in einer Vorlage erhitzt und geht hierbei in den gasförmigen Zustand über. Durch Abkühlen wird der Dampf im Anschluss wieder in den flüssigen Zustand überführt und stellt die dekontaminierte Flüssigkeit dar. Nicht verdampfbare Verunreinigungen bleiben bei diesem Vorgang als Verdampferkonzentrat in der Vorlage zurück. Die Verdampfung wird gerne als universelle Dekontaminationsmethode angewendet, da sie sich gleichermaßen für gelöste, als auch für suspendierte oder kolloidale Verunreinigungen eignet. Ein großer Nachteil der Methode ist jedoch der hohe Energieaufwand, da die kontaminierte Flüssigkeit zur Verdampfung zuerst erhitzt werden muss, und im Anschluss die Verdampfungsenthalpie überwunden werden muss. Zur effizienteren Nutzung des Verfahrens kann während der Verdampfung der Druck im Verdampfersystem vermindert werden, wodurch der Siedepunkt abgesenkt wird. Die aus der Verdampfung gewonnene dekontaminierte Flüssigkeit wird auf eine erfolgreiche Dekontamination geprüft. Das in der Vorlage verbleibende Verdampferkonzentrat enthält im Idealfalle alle Verunreinigungen und kann der Verfestigung und Behandlung radioaktiver Abfälle zugeführt werden. Problematisch für die Verdampfung sind flüchtige Verunreinigungen wie z. B. Iod, die beim Verdampfungsprozess ebenfalls in die Gasphase übergehen und nach der Kondensation eine Kontamination des Produktes darstellen können.

6.3.3.3 Ionenaustausch

Die Reinigung kontaminierter Flüssigkeiten unter Zuhilfenahme von Ionentauschersystemen stellt eine häufig und im industriellen Maßstab angewandte Methode dar. Sie beschränkt sich jedoch auf gelöste Verunreinigungen in ionischer Form. Moderne Ionenaustauscher bestehen aus einem organischen Polymer, welches über ionisch austauschbare funktionalisierte Gruppen verfügt. Häufig werden für den Kationenaustausch Sulfonyl- ($\text{RSO}_3^-/\text{H}^+$) und für den Anionenaustausch tertiäre Aminofunktionen ($\text{R-NR}_3^+/\text{OH}^-$) verwendet, die an ein verlinktes Polystyrol-Trägerpolymer substituiert sind. Makroskopisch sind Ionenaustauscher in unterschiedlichen Konfigurationen vorhanden, so werden diese als Kugeln, Gel oder auch irreguläre Pulverschüttung vertrieben.

Ionentauschersysteme entfalten in einem homogen durchströmten Tiefbettfilter ihre ideale Wirkung, daher wird bei der Herstellung der Ionentauscher, besonders in der Kugelform, viel Wert auf eine möglichst enge Korngrößenverteilung gelegt. Ionentauscher können als reine Anionen- oder Kationenaustauscher, oder als gemischte „Mixed-Bed“ Austauscher eingesetzt werden. Wichtig ist hierbei, dass der Austausch von Kationen gegen Protonen und der Austausch von Anionen gegen Hydroxid-Ionen erfolgt. Der Einsatz reiner Kationen- oder Anionenaustauscher kann bei hohen Ionenfrachten daher großen Einfluss auf den pH-Wert haben und zu unerwünschten Effekten führen. Viele Ionentauschersysteme lassen sich durch Spülen mit starken Säuren oder Laugen regenerieren, wobei die adsorbierten Ionen freigesetzt werden. Die Adsorption und Desorption an Ionenaustauschern wird in erster Näherung durch die Konzentration und Dissoziationskonstante der Ionen mit dem Gegenion des Ionentauschers bestimmt. Neben den typischen Anionen und Kationenaustauschern sind Sonderformen im Einsatz, bei denen die Bindung eines gezielten Ions durch eine Komplexbildung an den funktionellen Gruppen des Ionentauschers erfolgt. Ionenaustauscher dieses Typs sind in der Regel nicht regenerierbar und stark selektiv auf eine begrenzte Art von Ziel-Ionen. Außerdem finden auch auf anorganischen Materialien basierende Ionentauscher Anwendung, die in der Kerntechnik jedoch von untergeordneter Bedeutung sind. Ionentauschersysteme finden in der Kühlmittelkonditionierung im Primärkreislauf, der Kühlmittelreinigung im Sekundärkreislauf und BE-Lagerbecken sowie in der Abwasserbehandlung Anwendung. Aufgrund der Natur der Ionentauschersysteme als lose Schüttung polymerbasierten Materials in einem Tiefbett, sind dem Ionentauschersystem mechanische Filtersysteme nachzuschalten, die einen Eintrag von Abrieb und Fein-Partikeln aus dem Ionentauscher in die gereinigte Flüssigkeit vermeiden. Historisch wurden ähnliche Systeme zur Plutonium-Produktreinigung in der Wiederaufarbeitung verwendet /BAU 69/. Beladene Ionentauscher können je nach Anwendungsbereich sehr hohe spezifische Aktivitäten aufweisen. Ihre Entsorgung erfolgt als Feststoff als getrocknete Schüttung in abgeschirmten Behältern oder durch Zementieren.

6.3.3.4 Co-Fällung/Adsorption

Als Co-Fällung wird eine Methode bezeichnet, die besonders bei schwer zu klärenden Abwässern, wie z. B. bei Abwässern mit kolloidalen Verunreinigungen, Anwendung findet. Bei der Co-Fällung werden in großem Maße feste Niederschläge eines Trägermaterials erzeugt, welche die Verunreinigungen adsorbieren oder umschließen. Bei der anschließenden mechanischen Filtration werden die Verunreinigungen mit dem Trägermaterial mitgerissen und verbleiben in der festen Phase. Aufgrund des Trägermaterials entstehen bei der Co-Fällung große Mengen Sekundärabfälle, womit diese nur in Ausnahmefällen angewendet werden sollte. Ein ähnlicher Prozess findet bei der Adsorption gelöster oder kolloidaler Verunreinigungen an einen Feststoff statt, der entweder in die Lösung gegeben und fein verteilt wird, oder als stationäre Schüttung vorliegt und durchflossen wird. Auch bei der Methode der Adsorption können große Mengen Sekundärabfälle anfallen. Die Übergänge zwischen den Dekontaminationsverfahren Ionenaustausch, Filtration und Co-Fällung sind fließend, so werden beispielsweise anorganische Ionenaustauscher (Zeolite) als adsorptives Filterhilfsmittel verwendet. Die Filtration ist hierbei ein grundlegendes, in allen genannten Verfahren angewandtes Prinzip.

6.4 Rechenmodelle für Rückhalteeinrichtungen

Zur Beschreibung von Gasströmungen sowie Aerosoltransport- und Ablagerung in miteinander verbundenen Räumen eignen sich u. a. Rechenprogramme, die für Sicherheitsbehälter von Kernkraftwerken entwickelt wurden. Dabei ist zwischen "Integralcodes" (s. Tab. 6.5) und "stand alone codes" (s. Tab. 6.6) zu unterscheiden.

Tab. 6.5 Integralcodes zur Berechnung von Gasströmungen sowie Aerosoltransport- und Ablagerungen in Kernkraftwerken

Rechenprogramm	Aerosolteil	Entwickler/Land	Kommentar
FIPLOC	MAEROS	GRS/Deutschland	
COCOSYS	MAEROS	GRS/Deutschland	Nachfolgeprogramm von FIPLOC und RALOC
CONTAIN	MAEROS	SNL/USA	
MELCOR	MAEROS	SNL/USA	
EGART	NAUA	Italien	

Tab. 6.6 Stand-alone Codes zur Berechnung von Gasströmungen sowie Aerosoltransport- und Ablagerungen in Kernkraftwerken

Rechenprogramm	Entwickler/Land
NAUA	Ursprungsversion KfK/Deutschland Weiterentwicklung durch zahlreiche internationale Institutionen
MACRES	NUPEC/Japan
REMOVAL	JAERI/Japan

Die Integralcodes simulieren die in Kap. 3 beschriebenen Phänomene des Aerosolverhaltens. Sie arbeiten mit der "lumped parameter Methode". Das heißt, die zu untersuchende Anlage wird in einzelne Räume (andere Bezeichnung Zonen oder Knoten) unterteilt. Die Strömungsverbindungen zwischen den Räumen werden durch Strömungspfade abgebildet. Ein Thermohydraulikteil simuliert die Gasströmungen zwischen den Räumen, sowie Atmosphärenfeuchten und Nebelbildung. Der Wärmeaustausch zwischen den Atmosphären und Strukturen wird erfasst. Ein Aerosolteil beschreibt das Anwachsen und die Ablagerung der Aerosolpartikel.

Die Stand-alone -odes arbeiten ebenfalls mit der "lumped parameter Methode". Sie bestehen nur aus einem Aerosolteil und benötigen die Atmosphärenzustände und -strömungen als Randbedingung.

Handhabung, Aufwand

Je nach erforderlicher Genauigkeit kann die zu untersuchende Anlage einfach oder detailliert für die Computerrechnung abgebildet werden. Der Aufwand für einfache Problemstellungen ist auf ein bis zwei Manntage und wenige Minuten Computerzeit begrenzt. Für detaillierte Untersuchungen, die eine größere Anzahl von Rechnungen erfordern, werden mehrere Mannmonate und mehrere hundert Computerstunden benötigt.

Real existierende Räume können zusammengefasst oder virtuell unterteilt werden. Es ist auch möglich, den gesamten zu untersuchenden Bereich mit einer einzigen Zone zu berechnen. Das Aerosol wird dann gleichmäßig auf diese Zone verteilt. Wenn der Wärmeübergang zwischen der Atmosphäre und den Strukturen keine oder nur eine untergeordnete Rolle spielt, kann die Dicke der Strukturen auch grob abgeschätzt werden.

Wenn ein Partikelwachstum aufgrund von Nebelbildung oder aufgrund des Hygroskopieeffektes nicht zu erwarten oder unbedeutend ist, oder zwecks einer konservativen Abschätzung vernachlässigt wird, können die entsprechenden Programmodule ausgeschaltet werden.

Als Rechenmaschinen sind in der Regel Workstations oder Großrechner erforderlich. Es ist aber auch möglich, die Programme auf leistungsstarken PCs zu installieren und zu betreiben.

7 Freisetzung und Verteilung in der Atmosphäre

7.1 Grundlagen

Der Transport von Stoffen aller Art in der Atmosphäre wird im Wesentlichen von drei Prozessen bestimmt: der Diffusion, der Dispersion und der Advektion bzw. Konvektion.

Die Diffusion ist ein physikalischer Mischvorgang, der auf der thermischen Eigenbewegung der beteiligten Teilchen (Atome, Moleküle oder Ionen) beruht und zum Abbau von Konzentrationsunterschieden (d. h. zu gleichmäßiger Verteilung der Teilchen) führt.

Der atmosphärische Transport bzw. die Verteilung von Partikeln erfolgen effizienter, wenn in der Atmosphäre kleine zufällige Wirbel bzw. Turbulenzen auftreten. Dieser Vorgang wird Dispersion genannt. Da in der Praxis beide Prozesse schwer voneinander zu trennen sind, wird häufig auch von der sog. turbulenten Diffusion gesprochen.

Das Mitführen von Stoffen durch ein Medium wird allgemein als Konvektion bezeichnet. In der Meteorologie wird anstelle des Begriffs der Konvektion häufig der der Advektion verwendet. Unter Advektion versteht man dabei den horizontalen Transport von Luftmassen oder Spurenstoffen mit dem mittleren Wind /THI 03a/.

Für die realitätsnahe Modellierung des Transports und der Ablagerung freigesetzter luftgetragener Radionuklide ist neben der Spezifikation des Quellterms (siehe hierzu Kap. 7.4.1) die Kenntnis des atmosphärischen Strömungs- und Turbulenzfeldes in der näheren und weiteren Umgebung der Anlage notwendig. Die analytische Bewertung des Transportverhaltens von Stoffen in der Atmosphäre setzt ein mathematisches Modell voraus, welches sowohl die turbulente Diffusion als auch die Advektion berücksichtigt. Die Grundzüge eines solchen Modells sollen an dieser Stelle kurz erläutert werden.

Die turbulente Diffusion kann – in Analogie zum 2. Fickschen Gesetz für die molekulare Diffusion – wie folgt beschrieben werden:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \vec{K} \cdot \Delta \cdot C \quad (7.1)$$

\vec{K}	turbulenter Diffusionskoeffizient
C	Schadstoffkonzentration
t	Zeit

In kartesischen Koordinaten wird der Laplace-Operator Δ in Gleichung (7.1) umgeschrieben zu:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -K_x \cdot \left(\frac{\partial^2 C}{\partial x^2}\right) - K_y \cdot \left(\frac{\partial^2 C}{\partial y^2}\right) - K_z \cdot \left(\frac{\partial^2 C}{\partial z^2}\right) \quad (7.2)$$

Die Advektion kann anhand des folgenden Zusammenhangs beschrieben werden:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -\vec{v} \cdot \vec{\nabla} \cdot C \quad (7.3)$$

\vec{v}	Windgeschwindigkeit
-----------	---------------------

Wird der Nabla-Operator $\vec{\nabla}$ in der Advektionsgleichung (7.3) in kartesischen Koordinaten aufgeschrieben, so erhält man folgenden Ausdruck:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -v_x \cdot \left(\frac{\partial C}{\partial x}\right) - v_y \cdot \left(\frac{\partial C}{\partial y}\right) - v_z \cdot \left(\frac{\partial C}{\partial z}\right) \quad (7.4)$$

Kombiniert man den Ausdruck (7.2) mit (7.4), erhält man die Eulersche Advektions-Diffusions-Gleichung. Diese Transportgleichung kann durch einen zusätzlichen Term P_c , der die Schadstoff-Nettoquellendichte (Quellen minus Senken pro Volumeneinheit) beschreibt, ergänzt werden (siehe Gleichung (7.5)) /STO 07/, /THI 02/:

$$\begin{aligned} \frac{\partial C}{\partial t} = & -v_x \cdot \left(\frac{\partial C}{\partial x}\right) - v_y \cdot \left(\frac{\partial C}{\partial y}\right) - v_z \cdot \left(\frac{\partial C}{\partial z}\right) + \frac{\partial}{\partial x} \left(K_x \cdot \frac{\partial C}{\partial x}\right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(K_y \cdot \frac{\partial C}{\partial y}\right) \\ & + \frac{\partial}{\partial z} \left(K_z \cdot \frac{\partial C}{\partial z}\right) + P_c \end{aligned} \quad (7.5)$$

Nach dieser Gleichung wird die atmosphärische Ausbreitung von Luftschadstoffen bestimmt durch

- die mittlere Windgeschwindigkeit, mit der eine Schadstoffwolke als Ganzes transportiert wird,
- die atmosphärische Turbulenz, die für die Ausdehnung einer Schadstoffwolke infolge diffusiver Prozesse bei gleichzeitiger Verringerung der Konzentration verantwortlich ist, und
- die zugehörigen Randbedingungen (Quellen und Senken).

Dies ist in Abb. 7.1 veranschaulicht. Dementsprechend müssen bei gekoppeltem Einsatz von Strömungs- und Ausbreitungsmodellen neben dem advektiven Windfeld die für die atmosphärische Ausbreitung erforderlichen Turbulenzparameter bereitgestellt werden.

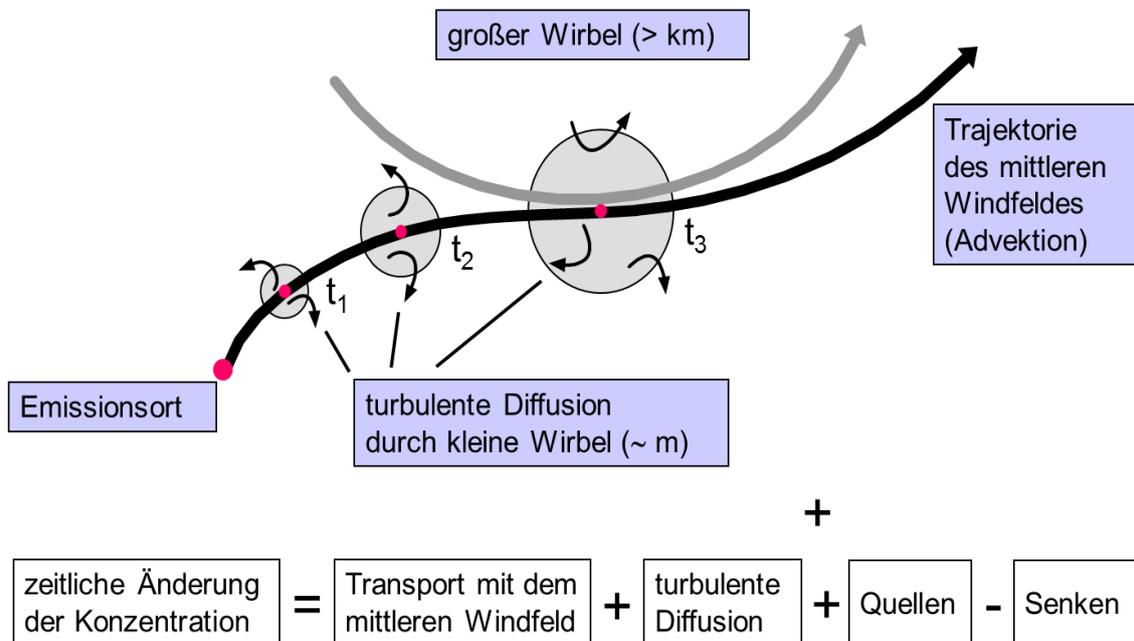


Abb. 7.1 Terme der Advektions-Diffusions-Gleichung

7.2 Strömungsmodelle

Die Lösung der Transportgleichung setzt eine räumliche und zeitliche Bewertung des Windfeldes voraus, das der Analyse zugrunde gelegt wird. Daher werden der Ausbreitungsmodellierung entweder unabhängige Strömungsmodellierungen vorangestellt, oder die entsprechenden Ausbreitungsmodelle sind an ein Strömungsmodell gekoppelt bzw. wurden in ein geeignetes Strömungsmodell integriert /KRÜ 99/. Je nach der Komplexität der zu bearbeitenden Problemstellung werden zur Windfeldmodellierung diagnostische oder prognostische Strömungsmodelle eingesetzt. Für die nachgeschalteten Ausbreitungsrechnungen stehen unterschiedliche Ausbreitungsmodelle zur Verfügung, wie z. B. Gauß-Fahnen-Modelle, Gauß-Puff-Modelle, Euler- oder Lagrange-Modelle.

7.2.1 Diagnostische Strömungsmodelle

Bei diagnostischen Strömungsmodellen werden die Stützstellen eines vorgegebenen Initialwindfeldes unter Berücksichtigung der zugrunde gelegten Topographie so interpoliert, dass eine massenkonsistente Strömung erreicht wird. Das Initialwindfeld wird dabei in der Regel durch punktuelle Windmessdaten angenähert und durch stabilitätsabhängige Windprofilfunktionen approximiert. Durch iterative Verfahren, numerische Ansätze oder geeignete Methoden der Variationsrechnung wird dann eine Annäherung an das vorgegebene Windfeld so vorgenommen, dass die interpolierten Windwerte die Kontinuitätsgleichung der Hydrodynamik erfüllen, d. h. die resultierenden Windvektoren genügen der Massenerhaltung. Im Ergebnis erhält man ein inhomogenes stationäres Windfeld, wobei das berechnete Strömungsfeld unabhängig von der Windgeschwindigkeit ist. Die Güte des berechneten Strömungsfeldes hängt stark von der Dichte der zur Initialisierung verwendeten Messungen und deren Interpolation ab. Aus diesem Grund ist die Bestimmung des Anfangsfeldes ein wesentlicher Bestandteil der Rechnungen mit einem massenkonsistenten Strömungsmodell. Die unter Verwendung eines diagnostischen Strömungsmodells berechneten Windfelder sind umso realitätsnäher, je mehr Windmessungen im Rechengebiet vorliegen /SEI 95/. Diese müssen zudem repräsentativ verteilt sein und bereits die Grundstruktur der Strömung richtig erfassen.

Der Einfluss der Schichtungsstabilität der Atmosphäre auf das Windfeld wird in diagnostischen Strömungsmodellen durch sogenannte Wichtungsfaktoren beeinflusst. Diese steuern, abhängig von der thermischen Stabilität der Atmosphäre, ob Geländestrukturen bevorzugt überströmt oder umströmt werden. So wird bei stabiler thermischer Schichtung ein Strömungsfeld erzeugt, bei dem Hindernisse eher seitlich

umströmt werden /THI 03b/. Die korrekte Berücksichtigung des Einflusses der atmosphärischen Schichtung und der Orographie (ortsabhängige Geländehöhe) bei der Wahl der Wichtungsfaktoren ist deshalb entscheidend für die realitätsnahe Abschätzung des mittleren Windfeldes.

Labile atmosphärische Schichtungen können bei diagnostischen Strömungsmodellen nur über die Erstellung eines Initialwindfeldes berücksichtigt werden. Eine explizite Berechnung vertikaler Ausgleichsbewegungen ist bei diesen Windfeldmodellen nicht möglich /ZEN 96/. Da das diagnostische Strömungsmodell keine Turbulenzfelder liefert, muss die turbulente Diffusion durch das entsprechende Ausbreitungsmodell berücksichtigt werden. Thermische Prozesse wie z. B. Berg- und Talwindssysteme sowie Kaltluftabflüsse, aber auch dynamische Effekte wie z. B. die Strömungsablösung hinter Geländeerhebungen („Leewirbel“), können mit diagnostischen Modellen nicht explizit berechnet werden /ZEN 96/.

Für die Berechnung des Strömungsfeldes in einem topographisch mäßig gegliederten Gelände, dessen maximale effektive Geländeneigung weniger als etwa 10 % beträgt (dann treten nach /TAY 87/ keine Leewirbel auf), und das nicht durch lokale Windsysteme sowie Wetterlagen mit labiler atmosphärischer Schichtung dominiert wird, liefern diagnostische Strömungsmodelle vergleichsweise gute Ergebnisse, sofern das Initialwindfeld realistisch vorgegeben werden kann /ZEN 96/.

Diagnostische Strömungsmodelle haben den Vorteil, dass der notwendige Rechenaufwand relativ gering ist. Ein Beispiel für ein diagnostisches Strömungsmodell ist das in das Programmpaket ARTM (**A**tmosphärisches **R**adionuklid-**T**ransport-**M**odell) integrierte TALdia /MAR 12/.

7.2.2 Prognostische Strömungsmodelle

Im Gegensatz zu diagnostischen Modellen berücksichtigen prognostische Strömungsmodelle neben der Massenerhaltung auch noch die Impuls- und Energieerhaltung. Damit lassen sich auch hydro-thermodynamische Effekte simulieren. Neben dem mittleren Windfeld liefert dieser Modelltyp auch Turbulenzgrößen wie z. B. Diffusionskoeffizienten, turbulente kinetische Energie, etc. Hierdurch ist es möglich, einem Ausbreitungsmodell konsistente, d. h. zueinander passende Wind- und Turbulenzfelder als Eingabedaten zu übergeben. Dieser Modelltyp erlaubt zudem die Berechnung der zukünftigen Entwicklung (Prognose) der Wind- und Turbulenzfelder.

Prognostische Strömungsmodelle basieren auf den dynamischen Grundgleichungen der atmosphärischen Strömungsmechanik (Navier-Stokes-Gleichung) /KRÜ 99/. Auf der Basis dieser Modelle wird die räumliche und zeitliche Entwicklung der Strömungsparameter Wind und Turbulenz unter Berücksichtigung der wesentlichen atmosphärischen Anfangs- und Randbedingungen sowie der Erhaltungssätze für Masse, Energie und Impuls ermittelt.

Durch prognostische Strömungsmodelle können die wesentlichen dynamisch und thermisch induzierten meteorologischen Phänomene berücksichtigt werden. Sie sind also in der Lage, ausgehend von den meteorologischen Randbedingungen, instationäre bzw. inhomogene Wind- und Turbulenzfelder für die entsprechenden Ausbreitungsmodelle zu berücksichtigen. Durch den Einsatz prognostischer Strömungsmodelle ist es möglich, die Berechnung des Ausbreitungsverhaltens von Stoffen in der Atmosphäre parallel zur Strömungsmodellberechnung vorzunehmen.

Bei prognostischen Strömungsmodellen unterscheidet man zwischen hydrostatischen und nicht-hydrostatischen Verfahren /THI 03a/. Bei den hydrostatischen Verfahren werden bei der Behandlung der vertikalen Windkomponente starke Vereinfachungen vorgenommen; dies wirkt sich insbesondere bei komplexer Orographie aus, d. h. wenn in den Modellen kleinere horizontale Maschenweiten zur Darstellung großer Geländesteigungen nötig sind. Im Gegensatz zu den hydrostatischen Verfahren können die nicht-hydrostatischen Verfahren mehr oder weniger uneingeschränkt eingesetzt werden, d. h. diese Modelle ermöglichen vergleichsweise hohe räumliche Auflösungen. Eine realistische Strömungssimulation bei komplexer Orographie und kleinen Maschenweiten ist nur mittels nicht-hydrostatischer Verfahren möglich. Bedingt durch die Lösung der vollständigen Differentialgleichungen (hydrodynamische Grundgleichungen, Navier-Stokes-Gleichungen), erhöht sich gegenüber den hydrostatischen Verfahren der Rechenaufwand und die Rechenzeit erheblich, sodass nicht-hydrostatische Verfahren in der Regel nur für Einzelfalluntersuchungen zum Einsatz kommen.

Ein Beispiel für ein nicht-hydrostatisches Strömungsmodell ist das vom Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln entwickelte FOOT3DK /BRÜ 97/.

7.3 Ausbreitungsmodelle

In der Praxis haben sich zwei Betrachtungsweisen durchgesetzt, die bei der Bewertung von Transportvorgängen angewendet werden /KRÜ 99/:

- die Eulersche Betrachtungsweise und
- die Lagrangesche Betrachtungsweise.

Bei der Eulerschen Betrachtungsweise wird der Ausbreitungsvorgang von einem ortsfesten Beobachter aus betrachtet. Die zu observierende Größe α , z. B. die Schadstoffkonzentration in einem Volumenelement am Ort (x, y, z) zur Zeit t , ist eine explizite Funktion des Orts und der Zeit, d. h. es gilt $\alpha = f(x, y, z, t)$. Die Bewertung des Transports und der Dispersion von Schadstoffen in der Atmosphäre erfolgt durch das Lösen der Advektions-Diffusions-Gleichung (siehe Gleichung (7.5)).

Im Unterschied zur Eulerschen Betrachtungsweise bewegt sich der Beobachter bei der Betrachtungsweise nach Lagrange mit dem relevanten Fluidteilchen oder Luftpaket mit. Damit hängen auch die Ortskoordinaten selbst von der Zeit ab. Für die zu observierende Größe α ergibt sich die explizit und implizit zeitabhängige Funktion $\alpha = f(x(t), y(t), z(t), t)$. Die Lagrangesche Betrachtungsweise eignet sich besonders gut, um die Flugbahnen (Trajektorien) von Teilchen zu simulieren. Der Simulationsalgorithmus erfordert die Verwendung einer großen Anzahl von Partikeln und ist deshalb sehr rechenzeitintensiv. Turbulenzeffekte können dabei über Zufallsvariablen, die eine statistische Bewertung der Teilchendisposition ermöglichen, berücksichtigt werden.

Mit Hilfe anerkannter Modelle zur Beschreibung der atmosphärischen Ausbreitung kann für den Luftpfad der zeitliche Verlauf der Konzentration der aus einer Anlage emittierten Stoffe in Abhängigkeit von der Entfernung zur Anlage berechnet werden. Zielsetzung eines atmosphärischen Ausbreitungsmodells ist die Bewertung des Transports von Stoffen in der Atmosphäre durch Advektion unter Berücksichtigung der turbulenten Diffusion auf Basis eines geeigneten Windfelds. Dabei kommen verschiedene Ausbreitungsmodelle zum Einsatz, die sich nach der unterstellten Betrachtungsweise (Eulersche oder Lagrangesche Betrachtungsweise), nach der Art der Behandlung der Transportgleichung (analytische oder numerische Lösung), nach dem zeitlichen Schadstofffreisetzungsverhalten bzw. der unterstellten Schadstoffkonzentrationsverteilung im jeweiligen Kontrollvolumen, oder entlang der Ausbreitungsachse einer Schadstofffahne

(z. B. Gaußsches Fahnen- bzw. Puffmodell) unterscheiden. Es werden im Wesentlichen die folgenden Modellkategorien unterschieden:

- Gaußsche Puffmodelle,
- Gaußsche Fahnenmodelle,
- Eulermodelle,
- Lagrangemodelle.

Abb. 7.2 zeigt schematisch, wie die unterschiedlichen Strömungs- und Ausbreitungsmodelle miteinander gekoppelt werden können /THI 03a/. Im oberen Teil der Abbildung befinden sich die physikalisch gehaltvolleren Modelle, im unteren Teil die einfacheren Modelle. Es ist im allgemeinen nicht sinnvoll, einfachere mit komplexeren Modellen zu kombinieren.

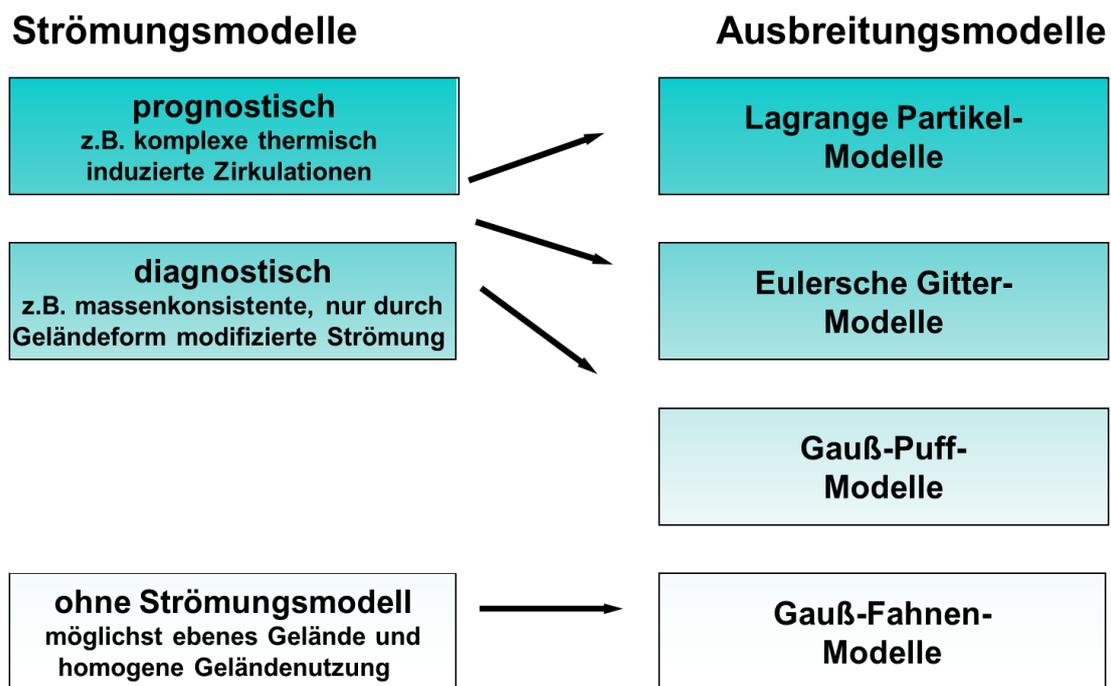


Abb. 7.2 Kopplungsmöglichkeiten zwischen Strömungs- und Ausbreitungsmodellen

Die genannten Ausbreitungsmodelle werden nachfolgend erläutert. Jedes dieser Modelle weist spezifische Vor- und Nachteile auf.

7.3.1 Gaußsche Puffmodelle

Gaußsche Puffmodelle werden gewöhnlich bei schlagartigen Schadstofffreisetzungen angewendet /PIS 00/. Dabei wird die Anfangsform der Freisetzungswolke durch eine Kugel, ein Ellipsoid oder einen Zylinder beschrieben. Generell kann auch eine zeitlich variable bzw. kontinuierliche Schadstofffreisetzung mithilfe von Puffmodellen bewertet werden, wenn das Freisetzungsverhalten als eine Folge von Emissionen simuliert wird. Das Umströmen von Hindernissen kann ebenfalls durch eine entsprechende Aufteilung des ursprünglichen Volumens in mehrere Einzelvolumina simuliert werden. Für die Massenverteilung innerhalb eines Puffs wird entweder eine homogene Verteilung oder – wie beim sog. Gaußschen Puffmodell – eine Gaußverteilung unterstellt. Die anfänglichen Puffabmessungen hängen im Wesentlichen von der freigesetzten Stoffmenge ab. Die Flugbahn eines Puffs wird durch das unterstellte Windfeld definiert.

Es wird weiterhin berücksichtigt, dass turbulente Prozesse eine Mischung des Puffvolumens mit der Umgebungsluft bedingen, was zu einer Verdünnung der Schadstoffkonzentration im Inneren des jeweiligen Puffs führt. Dies bedingt dementsprechend eine Vergrößerung des Puffvolumens. Gaußsche Puffmodelle haben den Nachteil, dass sie die Feinstruktur der Schadstoffkonzentration nicht gut erfassen. Auftriebseffekte können mit ihnen jedoch gut simuliert werden.

Als Beispiel für ein Gaußsches Puffmodell kann das auch in das Entscheidungshilfesystem RODOS integrierte Modell RIMPUFF /WEB 97/ genannt werden.

7.3.2 Gaußsche Fahnenmodelle

Für die Immissionsprognose aufgrund störfallereignisbedingter Freisetzungen aus Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung kann bei Erfüllung spezieller Randbedingungen ein spezielles Gaußsches Fahnenmodell verwendet werden. Gaußsche Fahnenmodelle beruhen auf der Eulerschen Betrachtungsweise, wobei die Advektions-Diffusions-Gleichung für idealisierte Ausbreitungsbedingungen unter Verwendung vereinfachender Annahmen analytisch gelöst wird. Die Eulersche Advektions-Diffusions-Gleichung besitzt unter folgenden Bedingungen bzw. Annahmen eine geschlossene Lösung /KRÜ 99/:

- stationäre Ausbreitungsbedingungen (d. h. zeitliche Konstanz von Windgeschwindigkeit, Windrichtung und Emissionsrate),
- homogene meteorologische Parameter,

- ebene Erdoberfläche von konstanter Rauigkeit,
- keine chemischen und physikalischen Veränderungen der Schadstoffe,
- die vertikale und horizontale Konzentrationsverteilung an der Schadstofffahnenachse (Linie von der Fahnenmitte in Windrichtung) entspricht jeweils einer Gaußverteilung.

Die analytische Lösung der Eulerschen Advektions-Diffusions-Gleichung führt schließlich zur Gaußschen Ausbreitungsgleichung, mit deren Hilfe die Immissionskonzentration für jeden Aufpunkt im Lee – also der vom Wind abgewandten Seite – einer Punktquelle in der Höhe h berechnet werden kann /THI 03a/, /THI 03b/:

$$C(x, y, z) = \frac{\dot{Q}}{2\pi v_x \sigma_y \sigma_z} \exp\left(-\frac{y^2}{2\sigma_y^2}\right) * \left[\exp\left(-\frac{(z-h)^2}{2\sigma_z^2}\right) + \exp\left(-\frac{(z+h)^2}{2\sigma_z^2}\right) \right] \quad (7.6)$$

x, y, z	Ortskoordinaten (in m)
$C(x, y, z)$	Schadstoffmassenkonzentration im Aufpunkt
σ_y, σ_z	horizontaler (y) und vertikaler (z) Ausbreitungsparameter (in m), Standardabweichungen der horizontalen und vertikalen Dichtefunktion der Gaußverteilung)
\dot{Q}	Freisetzungsrate (Quellstärke) des Schadstoffes (in Bq/s)
H	effektive Quellhöhe (in m)
v_x	mittlere Windgeschwindigkeit in Emissionshöhe in x -Richtung (in m/s).

Die „Spiegelterme“ $\exp\left(-\frac{(z-h)^2}{2\sigma_z^2}\right)$ und $\exp\left(-\frac{(z+h)^2}{2\sigma_z^2}\right)$ in Gleichung (7.6) berücksichtigen eine Reflexion der Schadstofffahne am Erdboden. Das kartesische Koordinatensystem, welches der Gaußschen Ausbreitungsgleichung zugrunde liegt, hat seinen Ursprung am Fußpunkt der Emissionsquelle, die x -Achse zeigt dabei in die Richtung des mittleren Windes (Abb. 7.3).

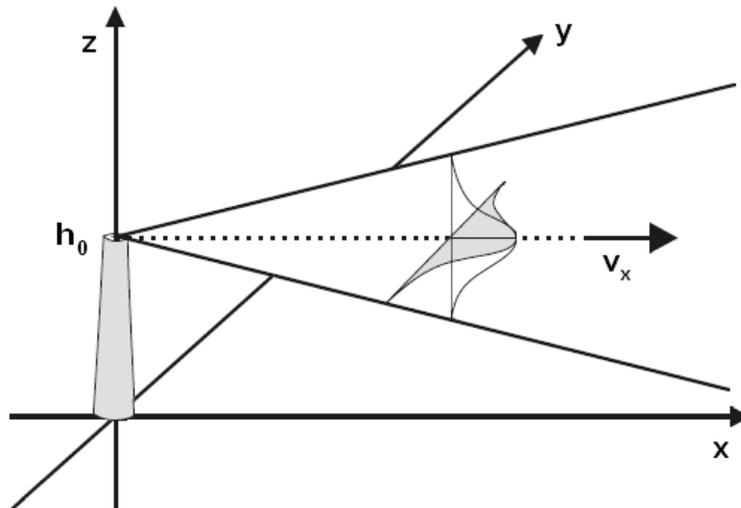


Abb. 7.3 Kartesisches Koordinatensystem für die Gaußsche Ausbreitungsgleichung

Die Erfahrung zeigt, dass Schadstofffahnen mit zunehmender Entfernung von der Quelle breiter werden. Daraus folgt, dass die Ausbreitungsparameter σ_y und σ_z des Gaußschen Fahnenmodells (Gleichung (7.6)) mit der Zeit t bzw. mit der Entfernung x vom Ort der Quelle anwachsen /THI 03a/:

$$\sigma_y = \sqrt{2 \cdot K_y \cdot t} \quad \text{bzw.} \quad \sigma_z = \sqrt{2 \cdot K_z \cdot t} \quad (7.7)$$

$$\text{Mit } t = \frac{x}{v_x} \quad (7.8)$$

Hierbei ist zu beachten, dass am Ort der Quelle ($x = 0$) die Ausbreitungsparameter σ_y und σ_z Null werden und die Gleichung (7.6) zur Berechnung der Schadstoffkonzentration nicht mehr definiert ist.

Die Diffusion entlang der Ausbreitungsrichtung des mittleren Windes wird durch die Gaußsche Ausbreitungsgleichung vernachlässigt. Der horizontale und der vertikale Ausbreitungsparameter sind ein Maß für Breite und Höhe der Schadstofffahne. Hierbei wird angenommen, dass sich die Diffusionseffekte durch eine Gaußverteilung beschreiben lassen. Relativ große Standardabweichungen haben beispielsweise zur Folge, dass die Maxima der resultierenden Dichtefunktionen klein ausfallen, was mit größeren Streuungen der Schadstoffkonzentrationswerte einhergeht. Relativ kleine Standardabweichungen bedeuten dementsprechend, dass die resultierenden Dichtefunktionen ausgeprägte Maxima mit vergleichsweise geringen Streuungen aufweisen. Die Ausbreitungsparameter werden stark vom Untergrund (Bodenrauigkeit) sowie von der topo-

graphischen Beschaffenheit des Geländes beeinflusst. Die Bodenrauigkeit hängt von der Art der Landnutzung ab. Bei hoher Rauigkeit resultieren breite Fahnen, bei geringer Rauigkeit schmale Fahnen /THO 76a/, /THO 76b/.

Der Aufstieg der aus einem Kamin einer nuklearen Anlage freigesetzten Schadstofffahne in die Atmosphäre wird durch drei Parameter beeinflusst /GRS 81/:

- Emissionsparameter (Geometrie des Schornsteins),
- meteorologische Parameter (atmosphärische Umgebungsbedingungen),
- physikalische und chemische Eigenschaften der Schadstoffe.

Die Aufstiegshöhe ist dabei durch den maximalen Wert von σ_z begrenzt.

Heiße Abgase erfahren in der Atmosphäre einen Auftrieb, sodass sich effektiv eine größere Quellhöhe ergibt (Abgasfahnenüberhöhung). Die effektive Quellhöhe h in Gleichung 7.6 setzt sich daher aus der geometrisch bedingten Freisetzungshöhe h_0 (z. B. der Kaminhöhe) und einer Überhöhung Δh infolge der freigesetzten thermischen Energie zusammen /GRS 81/:

$$h = h_0 + \Delta h \quad (7.9)$$

Der Aufstieg der Schadstofffahne infolge der freigesetzten thermischen Energie wird nach den Gleichungen von Briggs berechnet /BRI 69/, /THE 71/. /NES 78/ hat die Gleichungen erweitert, um den Einfluss von Gebäuden auf den Aufstieg zu erfassen. Das ursprünglich vorhandene Aktivitätsinventar einer freigesetzten Schadstofffahne verringert sich mit der Zeit durch trockene bzw. nasse Ablagerung sowie durch den radioaktiven Zerfall.

Das klassische Gaußsche Fahnenmodell gilt zunächst nur für punktförmige Emissionen. Deshalb bereitet die Erfassung bodennaher Flächenquellen mit unregelmäßigen Umrissen mit diesem Modelltyp Schwierigkeiten. In stark strukturiertem Gelände ist der Einsatz Gaußscher Fahnenmodelle zur Ermittlung von Schadstoffkonzentrationen problematisch, da mit diesem Modelltyp lokale, durch die Topographie beeinflusste Ausbreitungsmuster – z. B. die Strömungskanalisation in Tälern oder nächtliche Kaltluftabflüsse – i. a. nicht berücksichtigt werden können.

Grundsätzlich erfordert der Einsatz eines Gaußschen Fahnenmodells sowohl an die Emissionshöhe als auch an die jeweiligen Standortorteigenschaften angepasste Ausbreitungsparameter σ_y und σ_z , welche die durch Turbulenz bedingte Aufweitung der Schadstofffahne in horizontaler und vertikaler Richtung beschreiben.

In der Allgemeinen Verwaltungsvorschrift (AVV) zu § 99 StrlSchV /BMUB 12/ bzw. den Störfallberechnungsgrundlagen (SBG) zu § 104 StrlSchV /SSK 94/ werden die Ausbreitungsparameter unter Verwendung eines entfernungsabhängigen Potenzgesetzes berechnet, wobei jeder Ausbreitungskategorie (siehe hierzu Kap. 7.4.3.2) feste Koeffizienten und Exponenten zugeordnet waren. Diese Zuordnung erfolgte auf der Grundlage einer Vielzahl von Ausbreitungsexperimenten mit Freisetzungshöhen ≥ 50 m, die an den Forschungszentren in Jülich und Karlsruhe durchgeführt wurden /THO 76a/, /THO 76b/. Diese für relativ hohe Bodenrauigkeit abgeleiteten Ausbreitungsparameter sind jedoch nicht für die Berechnung von Schadstoffklimatologien bei bodennahen Quellen (aufgrund der starken Höhenabhängigkeit der Windgeschwindigkeit in Bodennähe) sowie bei Geländen mit niedriger Bodenrauigkeit geeignet /THI 03b/, /LOH 98/.

Gaußsche Fahnenmodelle sind zudem naturgemäß nur für die kontinuierliche Freisetzung von Schadstoffen einsetzbar.

7.3.3 Eulermodelle

Bei Eulermodellen wird die Advektions-Diffusions-Gleichung (siehe Gleichung 7.5) auf der Basis eines räumlich fixierten diskreten Rechengitters mit definierter Auflösung in geeigneten Zeitschritten numerisch gelöst. Bei diesen Modellen sind die Abstände der räumlichen Gitterpunkte, die berechneten Zeitschritte und die Windgeschwindigkeiten voneinander abhängig und können daher nicht beliebig gewählt werden /LOH 98/. Derartige Modelle werden häufig als Eulersche Gittermodelle oder K-Modelle bezeichnet. Der turbulente Diffusionskoeffizient K kann orts-, höhen- und zeitabhängig explizit vorgegeben werden /ZEN 96/. Hierdurch kann das Ausbreitungsmodell sehr gut an die jeweils vorliegenden topographischen und meteorologischen Gegebenheiten angepasst werden. Eulersche Ausbreitungsmodelle können auf der Basis diagnostisch oder prognostisch ermittelter Strömungsfelder zum Einsatz gebracht werden und sind entsprechend der Qualität des verwendeten Windmodells vielseitig einsetzbar. Die im Gegensatz zu den einfachen analytischen Lösungsformen eines Gaußschen Modells erforderliche numerische Lösung der Advektions-Diffusions-Gleichung an den einzelnen Gitterpunkten bedingt jedoch einen deutlich höheren Rechenaufwand. Letzterer wird

zusätzlich durch die Einhaltung des Kriteriums nach Courant, Friedrichs und Levy (so genanntes CFL-Kriterium) für numerische Rechnungen in einem Eulerschen Gittermodell bestimmt. Das CFL-Kriterium gibt den maximalen Zeitschritt an, der eine stabile numerische Integration der Modellgleichungen garantiert /PIE 01/.

Die Ergebnisqualität von Ausbreitungsrechnungen mit Eulermodellen hängt entscheidend von der Festlegung der Gitterweite des Rechengitters ab. Um eine gute räumliche Auflösung der Konzentrationsverteilung zu erzielen, sollte die Gitterweite möglichst klein sein. Eine Reduzierung der Gitterweite bei Beibehaltung der Größe des Modellgebietes führt zu einer Erhöhung der Anzahl der Gitterpunkte. Die Rechenzeit wächst umgekehrt proportional zum Quadrat der Verhältnisse der Gitterweiten. Gleichzeitig reduziert sich jedoch aufgrund des CFL-Kriteriums der Integrationszeitschritt, was zu einer zusätzlichen Erhöhung der Rechenzeit führt, sodass diese insgesamt mindestens kubisch mit der Verkleinerung der Gitterweite ansteigt /THI 03a/. Durch die Verwendung geeigneter Lösungsverfahren kann der Anstieg jedoch begrenzt werden. Einzelheiten über numerische Verfahren zur Lösung der Advektions-Diffusions-Gleichung finden sich z. B. in /ZEN 98/.

Euler-Modelle eignen sich besonders für die Berechnung der Schadstoffausbreitung aus mehreren, gleichzeitig emittierenden (Volumen-)quellen. Auch lassen sich mit solchen Modellen die Wechselwirkungen zwischen den sich ausbreitenden Schadstoffen, wie z. B. chemische Reaktionen, behandeln. Ein Beispiel für diesen Modelltyp ist das Modell TRADI /STE 95/.

7.3.4 Lagrangemodelle

Bei den Lagrangemodellen wird eine Anzahl von Partikeln freigesetzt und ihre Verfrachtung mit dem Windfeld verfolgt. Notwendige Voraussetzung hierfür ist die Vorgabe eines dreidimensionalen Windfeldes, das entweder aus Messungen oder mittels eines geeigneten Windfeldmodells bestimmt wird. Lagrangemodelle bewerten die Schadstoffausbreitung in der Atmosphäre, indem sie die Flugbahnen (Trajektorien) einer Vielzahl angenommener Teilchen, sogenannter Lagrangeteilchen, für das vorgegebene Windfeld berechnen (Abb. 7.4). Dabei werden die Lagrangeteilchen unabhängig voneinander simuliert, wobei ihre Bewegung in einen advektiven und einen zufälligen Anteil unterteilt wird. Der advektive Anteil beschreibt die Teilchenausbreitung mit dem mittleren Wind. Der Zufallsanteil der Teilchenbewegung berücksichtigt Turbulenzeffekte über einen stochastischen Prozess, der die Teilchen auseinander driften lässt und somit zur Verdünnung der Schadstofffahne entlang des Transportweges führt. Lagrangemodelle werden häufig auch als Partikeltrajektorien- oder Monte-Carlo-Modelle bezeichnet /KRÜ 99/.

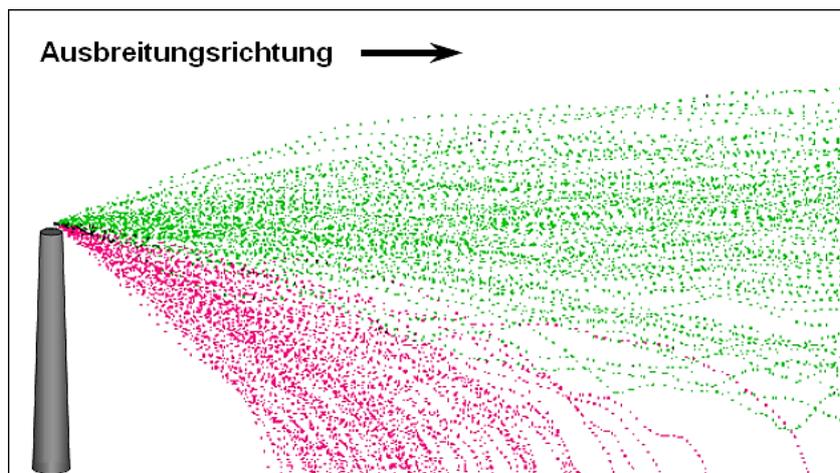


Abb. 7.4 Prinzip des Lagrangeschen Partikelmodells

Schematische Darstellung der Ausbreitung eines nicht-sedimentierenden (grün) und eines sedimentierenden Schadstoffs (violett).

Aus dem Ortsvektor $\vec{X}(t) = (x(t), y(t), z(t))$ eines Teilchens in kartesischen Koordinaten und seiner momentanen Geschwindigkeit $\vec{v}(\vec{X}, t)$ zur Zeit t erhält man den Ortsvektor desselben Teilchens zur Zeit $t + \Delta t$ entsprechend der Gleichung

$$\vec{X}(t + \Delta t) = \vec{X}(t) + \vec{v}(\vec{X}, t) * \Delta t \quad (7.10)$$

Die momentane Geschwindigkeit des Teilchens setzt sich zusammen aus einem mittleren Anteil $\vec{v}(\vec{X}, t)$ der dem Betrag des advektiven Windes entspricht, sowie einem fluktuierenden Anteil $\vec{v}'(\vec{X}, t)$ der die Turbulenzeffekte am Ort \vec{X} zur Zeit t beschreibt /THI 03a/:

$$\vec{v}(\vec{X}, t) = \vec{v}(\vec{X}, t) + \vec{v}'(\vec{X}, t) \quad (7.11)$$

Atmosphärische Bewegungsvorgänge weisen ein trägheitsbedingtes „Gedächtnis“ auf, d. h. zwischen den Bewegungsformen (Geschwindigkeit und Richtung) eines Partikels zu den Zeiten t und $(t + \Delta t)$ besteht ein Zusammenhang (Korrelation). Die Stärke dieser Korrelation ist abhängig von der thermischen Schichtung der Atmosphäre (siehe hierzu Kap. 7.4.3.2) bzw. von der Größe der am atmosphärischen Transport beteiligten turbulenten Wirbel. Ein Maß für das „Gedächtnis“ atmosphärischer Bewegungszustände ist die sogenannte Lagrangesche Korrelationszeit T_L (Zeitskala der Turbulenz), wobei gilt:

$$T_L (\text{labile Schichtung}) > T_L (\text{neutrale Schichtung}) > T_L (\text{stabile Schichtung}) \quad (7.12)$$

Lagrangemodellen liegt die Annahme zugrunde, dass die Flugbahn eines Teilchens mit Hilfe eines sog. Markov-Prozesses simuliert werden kann, d. h. der Zustand eines Teilchens zur Zeit $(t + \Delta t)$ hängt nur von seinem Zustand zur Zeit t ab /THI 03a/. Diese Annahme bedeutet, dass sich der fluktuierende Anteil der Windgeschwindigkeitskomponente $\vec{v}'(\vec{X}, t)$ aufteilen lässt in

- einen korrelierten Anteil, der das trägheitsbedingte „Gedächtnis“ repräsentiert und der fluktuierenden Geschwindigkeitskomponente $\vec{v}'(\vec{X}, t - \Delta t)$ proportional ist, und
- einen zufälligen Anteil, der aus einer geeigneten, die Turbulenzstruktur widerspiegelnden Zufallsverteilung gezogen wird.

Die gesuchte Immissionskonzentration an einem Aufpunkt wird durch Auszählen der Partikel auf der Grundlage einer geeigneten Zeit- und Raumdiskretisierung ermittelt /ZEN 96/, /LOH 98/. Die Genauigkeit der Simulationsergebnisse hängt stark von der Anzahl der betrachteten Teilchen ab. Lagrangemodelle sind deshalb in der Regel sehr rechenzeitintensiv /KOI 99/.

Lagrangemodelle beschreiben die Schadstoffausbreitung in direkter Nähe zur Quelle besser als andere Modelle. Sie eignen sich daher sehr gut zur Bestimmung der Feinstruktur eines Schadstoffkonzentrationsfeldes. Auftriebseffekte radioaktiver Gase als Schadstoffe, die in Relation zur umgebenden Atmosphäre schwerer bzw. leichter sind, lassen sich jedoch mit ihnen nicht simulieren, da die virtuellen Lagrangeteilchen weder Masse noch Volumen besitzen /KOI 99/. Da diesen Teilchen allerdings die Eigenschaft eines aerodynamischen äquivalenten Durchmessers (AED) zugewiesen werden kann, eignen sie sich gut zur Modellierung von Prozessen wie Sedimentation und Deposition.

Generell besitzen Lagrangemodelle ein hohes Potential zur realistischen Simulation von Ausbreitungs- und Ablagerungsvorgängen, auch bei inhomogenen Wind- und Turbulenzfeldern. Dies zeigt sich insbesondere bei der Simulation von komplizierten vertikalen Temperaturschichtungen, starken Windscherungen oder komplexen, von der Orographie beeinflussten Windfeldern. Die erzielbare Qualität der Rechenergebnisse hängt weitgehend nur noch davon ab, mit welcher Genauigkeit die benötigten Wind- und Turbulenzfelder dem Ausbreitungsmodell zur Verfügung gestellt werden können /THI 03a/. Wenn aus den meteorologischen Messdaten des Standorts – einschließlich weiterer direkt verfügbarer meteorologischer Informationen aus der Umgebung und der topographischen Struktur des Geländes – realistische Wind- und Turbulenzfelder konstruiert werden können, sind Lagrange-Partikelmodelle bei der Ausbreitungsrechnung anderen Modelltypen überlegen.

Ein Lagrangesches Ausbreitungsmodell ist ebenfalls im Programmpaket ARTM /MAR 12/ enthalten.

7.4 Beschreibung von Modellparametern

Das Ausbreitungsverhalten von Stoffen in der Atmosphäre wird durch die Art, den Ort und die Menge des Schadstoffaustritts, die lokalen topographischen Verhältnisse, sowie die meteorologische Situation wesentlich mitbestimmt. Von grundlegender Bedeutung für die Ergebnisqualität von Ausbreitungsrechnungen ist daher, dass alle relevanten Einflussgrößen korrekt erfasst und entsprechend modelliert werden.

7.4.1 Quelltermspezifikation

Bei Nuklearanlagen versteht man unter dem Quellterm bzw. Source-Term die Menge an radioaktivem Material, ausgedrückt in Massen- oder Aktivitätsangaben, die bei einem Störfallereignis aus der Anlage in die Umgebung freigesetzt wird /DOE 94/. Für die Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung sind hinsichtlich der Freisetzung von radioaktivem Material die luftgetragenen Pfade – unter Berücksichtigung des jeweiligen lungengängigen Materialanteils – von entscheidendem Interesse. Es wird davon ausgegangen, dass der Belastungspfad auf der Grundlage der Inhalation von luftgetragendem radioaktivem Material alle anderen Belastungspfade dominiert /DOE 92/, /DOE 94/. Basierend auf diesem Ansatz wurde die sogenannte Source-Term-Formel abgeleitet (siehe hierzu Teil A dieses Handbuchs, Kapitel 3 „Methodik der Störfallanalyse“ /SOM 19/), mit deren Hilfe die lungengängigen Materialanteile der luftgetragenen Belastungspfade spezifiziert werden /DOE 94/:

$$Source = MAR * DR * ARF * RF * LPF \quad (7.13)$$

<i>MAR</i>	Material-at-Risk
<i>DR</i>	Damage Ratio
<i>ARF</i>	Airborne Release Fraction (Airborne Release Rate bei kontinuierlicher Freisetzung)
<i>RF</i>	Respirable Fraction
<i>LPF</i>	Leakpath Factor

In der Praxis unterscheidet man häufig zwischen dem Initial-Source-Term, also der Menge an radioaktivem Material, die prinzipiell als Folge eines entsprechenden Störfallereignisses luftgetragen freigesetzt wird, und dem lungengängigen Initial-Source-Term, welcher diejenige Teilmenge des Initial-Source-Terms repräsentiert, die effektiv eingeatmet werden kann. Der Initial-Source-Term kann als Produkt der ersten drei Faktoren der Source-Term-Formel ausgedrückt werden; der lungengängige Anteil des Initial-Source-Terms ergibt sich entsprechend aus dem Produkt der ersten vier Faktoren der Formel. Der Initial-Source-Term bzw. dessen lungengängiger Anteil sind in erster Linie

für das Anlagenpersonal relevant. Weitere Informationen bezüglich der Bestimmung der einzelnen Faktoren der Source-Term-Formel können aus Teil A dieses Handbuchs, Kap. 3.12 entnommen werden /SOM 19/.

Der Schadstoffaustritt kann kontinuierlich (z. B. bei Rohrbrüchen) oder diskontinuierlich (z. B. bei geborstenen Behältern) erfolgen. Ist die genaue Größe der Austrittsöffnung unbekannt, wird in der Regel auf konservative Annahmen zurückgegriffen. Im Falle von Rohrleitungen wird z. B. der Bruch jener Rohrleitung unterstellt, die den größten Massenstrom führt. Bei Behältern wird im Sinne der Konservativität häufig unterstellt, dass im Verlauf eines Störfalls die gesamte eingelagerte Menge des betreffenden Stoffes freigesetzt wird /PIS 00/.

7.4.2 Topographische Parameter

Topographische Hindernisse beeinflussen wesentlich das Strömungsverhalten in der Atmosphäre. Täler beispielsweise kanalisieren die Strömung in Richtung der Talachse. Dieser Effekt ist unabhängig von der Richtung der Grundströmung über dem Tal, wobei die Strömungsgeschwindigkeit am Talboden umso kleiner ist, je größer die Winkelabweichung zu der relevanten Grundströmung ausfällt. Zudem ist die Strömungsgeschwindigkeit in Kessel- oder Beckenlagen meist deutlich kleiner, auf freistehenden Bergen hingegen größer als in ebenem Gelände /MAN 04/.

Neben den topographischen Verhältnissen übt auch die vorhandene bauliche Infrastruktur einen starken Einfluss auf die lokalen Strömungsfelder aus. Bei freistehenden angeströmten Gebäuden entstehen auf der dem Wind zu- und abgewandten Seite Verwirbelungen. Im Lee der Gebäude bilden sich Nachlaufbereiche aus, in denen die Strömung bodennah gegen die Anströmung gerichtet ist; erst in einer Entfernung, die etwa dem 100-fachen der Gebäudehöhe entspricht, geht die Strömung wieder in den ungestörten Zustand über. Des Weiteren sind in Gebäudenähe vertikale und horizontale Strömungskomponenten in der gleichen Größenordnung. Im Lee der Gebäude findet man deshalb abwärtsgerichtete Luftströmungen, die im Dachniveau freigesetzte Schadstoffe verstärkt nach unten führen können /LAN 04/. Beispiele hierfür sind in Abb. 7.5 schematisch dargestellt.

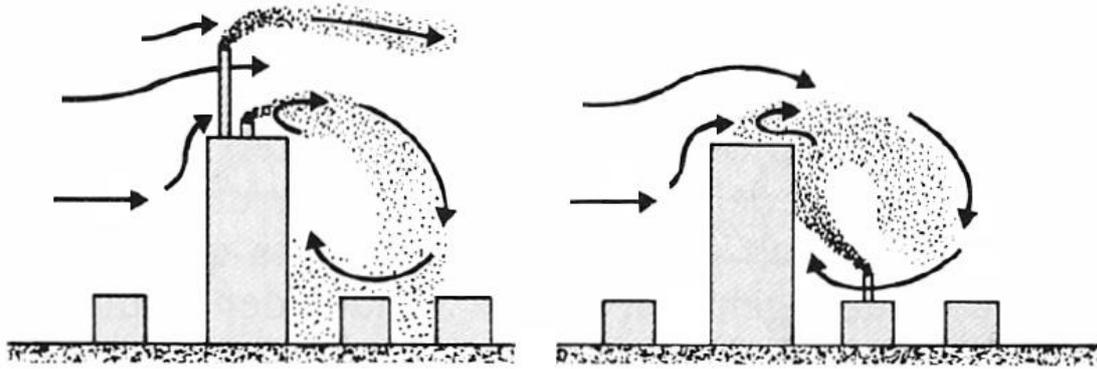


Abb. 7.5 Typische Beeinflussungen der Ausbreitung im Nahbereich von Gebäuden

Für komplexe Gebiete mit komplexer Gebäudestruktur (z. B. Städte, Industrieanlagen) ergeben sich naturgemäß äußerst komplexe Strömungsfelder. Derartige Strömungsfelder werden in der Regel nicht über Messungen, sondern über Windkanaluntersuchungen bzw. numerische Simulationen erfasst. Zudem sind gegebenenfalls lokale, thermisch bedingte Strömungsfelder zu berücksichtigen.

Komplexe Ausbreitungsrechnungen in strukturiertem Gelände können auf der Grundlage von topographischen Parametern, die die dreidimensionale Geländeform als auch Informationen zur Landnutzung berücksichtigen, durchgeführt werden /THI 03a/, /THI 03b/. Hierzu wird über das betreffende Gelände ein diskretes Gitter mit einer hinreichend guten Auflösung gelegt. Nachfolgend werden jedem Raster eine mittlere Geländehöhe sowie ein klassifizierter Landnutzungsparameter (z. B. Wald, Ackerland, Wasserfläche, Gebirgsregion, Innenstadt, Industriegebiet) zugeordnet, siehe Abb. 7.6. Die Anzahl der möglichen Landnutzungsklassen ist je nach Modell unterschiedlich.

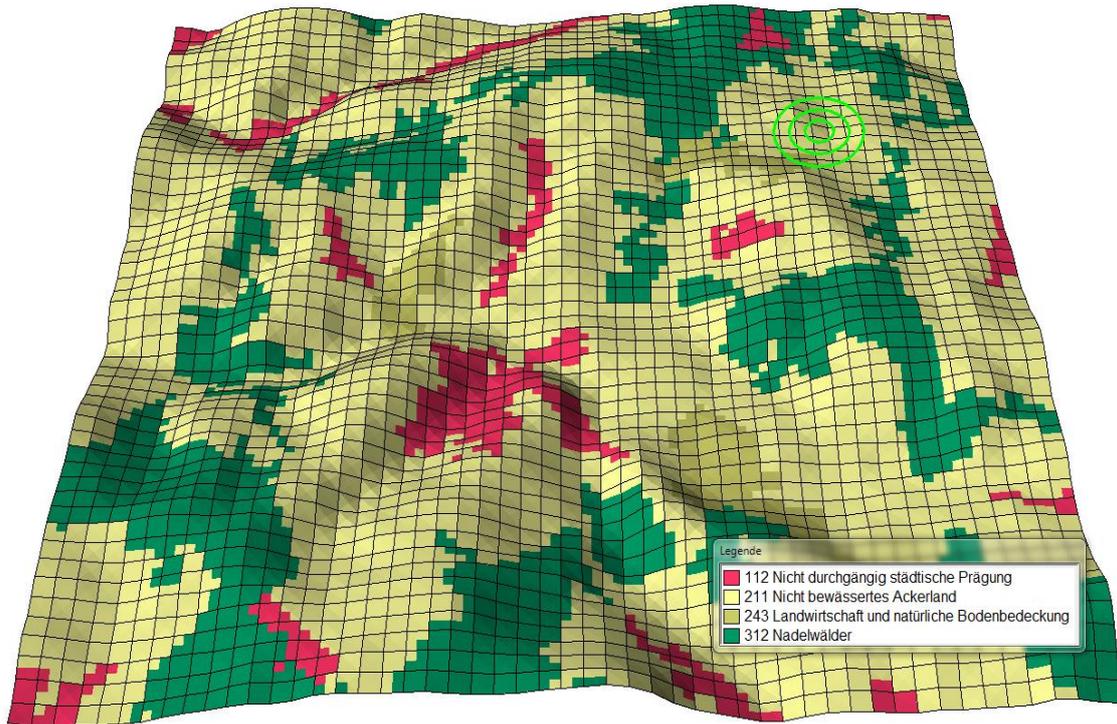


Abb. 7.6 Typisches Topografiekataster zur Verwendung in einem komplexen Ausbreitungsmodell

7.4.3 Meteorologische Parameter

7.4.3.1 Meteorologischer Antrieb

Die meteorologische Situation zum Zeitpunkt einer Schadstoffemission beeinflusst ebenfalls sehr wesentlich die atmosphärische Stoffausbreitung. Erfolgt die Schadstofffreisetzung beispielsweise unter Niederschlagsbedingungen (z. B. Regen), so ist damit zu rechnen, dass der luftgetragene Stofftransport von Aerosolen im Vergleich zu einer niederschlagsfreien Wetterperiode nur in einem relativ eingeschränkten Maße möglich ist. Rechnerische Vorhersagen (Prognosen) zur Schadstoffimmission können sowohl auf der Grundlage von repräsentativen meteorologischen Zeitreihen als auch auf der Basis von mittleren jährlichen Häufigkeitsstatistiken durchgeführt werden /BUN 02a/.

Werden die meteorologischen Parameter (z. B. Windrichtung, Windgeschwindigkeit, atmosphärische Stabilität und ggf. Niederschlag), die einer Ausbreitungsrechnung zugrunde gelegt werden sollen, in Form einer Zeitreihe zur Verfügung gestellt, so beruhen die entsprechenden Daten auf Stundenmittelwerten, die sich über einen relativ langen Zeitraum erstrecken (z. B. 5-10 Jahre). Bei der Bewertung der atmosphärischen

Ausbreitung auf der Grundlage von meteorologischen Zeitreihen wird für jeden Stundenmittelwert eine Ausbreitungsrechnung durchgeführt.

Ausbreitungsrechnungen sind andererseits auch auf der Grundlage sogenannter Ausbreitungsklassenstatistiken möglich. Diese Methode beruht auf der statistischen Aufbereitung von Zeitreihen meteorologischer Daten, wobei im Falle einer dreiparametrischen Häufigkeitsstatistik jeder einzelne Stundenmittelwert in eine entsprechende Matrix eingeordnet wird. Dabei werden folgende meteorologische Parameter erfasst: Windrichtung, bodennahe Windgeschwindigkeit und Diffusionskategorie. Die Diffusionskategorie – häufig auch als Ausbreitungskategorie bezeichnet – ist ein Maß für die atmosphärische Turbulenz (siehe hierzu Kap. 7.4.3.2) und bestimmt die Verdünnung der Schadstoffe durch turbulente Diffusion. Die Diffusionskategorie ist gemäß der KTA-Richtlinie 1508 /KTA 06/ zu bestimmen. Letztlich wird für jede Kategorie eine Ausbreitungsrechnung durchgeführt und mit der entsprechenden Häufigkeit gewichtet. Vierparametrische Häufigkeitsstatistiken enthalten als zusätzlichen meteorologischen Parameter die Niederschlagsrate, mit der die Ablagerung von Schadstoffen z. B. auf Pflanzen und Boden infolge von Auswaschung berücksichtigt werden kann.

Die meteorologischen Ausgangsdaten für beide Rechenverfahren zur atmosphärischen Schadstoffausbreitung – Zeitreihe oder Ausbreitungsklassenstatistik – können grundsätzlich auf zwei unterschiedlichen Wegen generiert werden /THI 03a/:

- auf der Basis von Messwerten meteorologischer Messstationen, die sich in dem zu untersuchenden Gebiet befinden, oder
- unter Verwendung meteorologischer Daten einer übergeordneten Strömungssimulation („Modell-Nesting“).

Bei der Verwendung von Daten meteorologischer Messstationen im Untersuchungsgebiet werden in der Regel die an einer oder mehreren Stellen gemessenen Parameter für die Initialisierung der Strömungs- und Ausbreitungsmodelle verwendet. Dabei sollte bei Messungen der Windgeschwindigkeit darauf geachtet werden, dass diese nach Möglichkeit nicht nur das skalare Mittel, sondern auch die vektoriell gemittelten Windgeschwindigkeiten erfassen. Die Verfügbarkeit der meteorologischen Daten sollte mindestens 90 % der Jahresstunden betragen, wobei Messlücken von nicht mehr als zwei Stunden durch Interpolation überbrückt werden können /BUN 02b/. Für konkrete Ausbreitungsrechnungen ist natürlich stets vorher zu klären, welche Messdaten aus dem vorhandenen Pool der jeweiligen Untersuchung zugrunde gelegt werden sollen.

Die Verwendung der Daten eines repräsentativen Jahres ist nur auf der Basis einer langjährigen Statistik am Messstandort möglich. Die Qualität der Ergebnisse hängt maßgeblich von der örtlichen Auflösung der Messpunkte bzw. von der Anzahl der zur Verfügung stehenden Messstationen im Untersuchungsgebiet ab. Je mehr Messstationen zur Verfügung stehen, desto besser ist das Endergebnis. Eine wesentliche Voraussetzung ist dabei allerdings, dass die Messungen für das Rechengebiet repräsentativ sind. Dieses gilt insbesondere bei der Einbeziehung von Messstationen, die außerhalb des Rechengebietes liegen. In diesem Fall muss die Übertragbarkeit der Messdaten nachgewiesen werden. Besonderer Wert sollte auf die Qualitätssicherung der Daten und die regelmäßige fachgerechte Wartung der Messstationen gelegt werden.

Ein Vorteil von Ausbreitungsrechnungen auf der Basis von messtechnisch erfassten meteorologischen Zeitreihen besteht darin, dass sie relativ einfach die Möglichkeit bieten, periodische Effekte zu berücksichtigen, die die lokale Ausbreitung beeinflussen und die beispielsweise durch Fabrikanlagen, die nur am Tage betrieben werden, hervorgerufen werden können.

Beim sogenannten „Modell-Nesting“ werden die meteorologischen Daten, die für die Parametrisierung des Ausbreitungsmodells notwendig sind, mittels einer übergeordneten Strömungssimulation generiert. Dieses Verfahren beruht auf der Grundidee, die für das Untersuchungsgebiet repräsentative Teilmenge der Daten eines übergeordneten, großskaligen Strömungsmodells zur Parametrisierung eines engmaschigeren, kleiner-skaligen Ausbreitungsmodells zu verwenden /THI 03a/. Relevante Beispiele für übergeordnete Strömungsmodelle sind das Deutschland-Modell (DM) oder das Lokal-Modell (LM) des Deutschen Wetterdienstes (DWD). Ende 1999 wurden beim DWD Änderungen in der Struktur der numerischen Wettervorhersagemodelle vorgenommen: Das früher zur lokalen Wettervorhersage verwendete hydrostatische Deutschland-Modell mit einer horizontalen Gitterweite von ca. 14 km wurde erst das räumlich und zeitlich höher auflösende, nicht-hydrostatische Lokal-Modell mit einer horizontalen Gitterweite von ca. 7 km ersetzt und dann um das Regionalmodell mit einer horizontalen Gitterweite von 2,8 km ergänzt.

Problematisch ist das „Modell-Nesting“ aufgrund der Tatsache, dass für klimatologische Rechnungen (also über einen Zeitraum von mehreren Jahren) eine sehr große Datenmenge bereitzustellen und zu verarbeiten ist.

7.4.3.2 Einfluss der atmosphärischen Schichtung

Die Ausbreitung luftgetragener Schadstoffe erfolgt hauptsächlich in dem als planetarische Grenzschicht bezeichneten Teil der unteren Atmosphäre. Die planetarische Grenzschicht kann als etwa 1000 Meter hohe Schicht definiert werden, in der die Luftströmung durch den Druckgradienten getrieben und durch Bodenreibung, durch thermische Kräfte infolge Bodenerwärmung und -abkühlung, sowie durch die Rotation der Erde beeinflusst wird. Mit zunehmender Höhe über dem Erdboden nehmen die Reibungskräfte ab, wodurch die Windgeschwindigkeit wächst. Nach der Art der auftretenden Reibungskräfte ist die planetarische Grenzschicht in drei verschiedene Schichten gegliedert:

- die laminare (viskose) Grenzschicht, in der Scherkräfte durch die Viskosität der Luft eine wichtige Rolle spielen; sie umfasst maximal einige Zentimeter Höhe.
- die Prandtl-Schicht, in der sämtliche turbulenten Flüsse als höhenkonstant angenommen werden (Abweichung maximal 10 %) und keine Windscherung auftritt. Sie reicht bis in eine Höhe von maximal 100 Metern.
- die Ekman-Schicht, bei der eine markante Winddrehung auftritt (Ekman-Spirale) und zudem die turbulenten Flüsse nicht mehr höhenkonstant sind.

Die laminare Grenzschicht und die Prandtl-Schicht werden zusammengefasst auch als bodennahe Grenzschicht bezeichnet. Die physikalischen Prozesse innerhalb dieser Schicht, wie Impulsübertragung sowie Transport von Wärme und Feuchtigkeit, werden maßgeblich von den Eigenschaften der nahen Erdoberfläche bestimmt.

Bedingt durch die solare Einstrahlung, den Wärmeaustausch zwischen Erdoberfläche und Atmosphäre sowie den vertikalen Luftdruckgradienten, entsteht in der Atmosphäre ein vertikaler Temperaturgradient. Die Temperaturänderung mit der Höhe ergibt sich aus der Zustandsgleichung eines idealen Gases und der barometrischen Höhenformel.

Für trockene Luft beträgt der trocken-adiabatische Temperaturgradient

$$\Gamma = -\frac{dT}{dh} = \frac{g}{c_p} \approx \frac{1K}{100m} \quad (7.14)$$

g	$9,81 \text{ m} \cdot \text{s}^{-2}$	Fallbeschleunigung
c_p	$1004 \text{ J} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$	spezifische Wärmekapazität bei konstantem Druck

Für mit Wasserdampf gesättigte Luft verringert sich der vertikale Temperaturgradient durch das Freiwerden von Kondensationswärme. Der feucht-adiabatische Temperaturgradient ist deshalb kleiner als der trocken-adiabatische Temperaturgradient. Er wächst jedoch mit abnehmender Temperatur und nähert sich bei sehr tiefen Temperaturen dem Wert des trocken-adiabatischen Temperaturgradienten an. Die verschiedenen Schichtungszustände der Atmosphäre sind über das Verhältnis des realen Temperaturgradienten γ einer Luftsäule zum trocken-adiabatischen Temperaturgradienten Γ definiert [ROE 00]. Anschaulich kann man sich ein Luftpaket vorstellen, für dessen Auftriebskraft seine Dichte im Vergleich zur Dichte der Umgebung entscheidend ist. Man unterscheidet

- die stabile Schichtung: $\gamma > \Gamma$. Das Luftpaket kühlt sich beim Aufsteigen stärker ab als seine Umgebung, die Dichte nimmt zu, weshalb es eine rücktreibende Kraft erfährt. Eine stabile Schichtung wirkt somit einer turbulenten Durchmischung entgegen. Im klimatologischen Mittel liegt in den mittleren Breiten Europas eine leicht stabile Schichtung der Atmosphäre vor.
- die neutrale Schichtung: $\gamma = \Gamma$. Ein zufällig bewegtes Luftpaket erfährt keine zusätzlichen Kräfte, es verbleibt am Ort und es erfolgt kein Energietransport in vertikaler Richtung in Form von Wärme durch turbulente Mischung.
- die instabile Schichtung: $\gamma < \Gamma$. Das Luftpaket ist wärmer als seine Umgebung, die Dichte sinkt, und zufällige vertikale Auslenkungen werden verstärkt. In der Folge kommt es zu einer turbulenten Durchmischung der Atmosphäre.

Ein Extremfall einer stabilen Schichtung, eine sog. Inversion, liegt vor, wenn $\frac{dT}{dh} > 0$ ist, d. h. wenn die Temperatur mit der Höhe zunimmt. Oft tritt eine Selbstverstärkung von Inversionen durch die Anreicherung der Luft mit Wasserdampf und durch Nebelbildung ein. Inversionswetterlagen können insbesondere bei schwacher solarer Einstrahlung (d. h. in den Wintermonaten) über längere Zeiträume (Tage bis Wochen) bestehen bleiben und zur Anreicherung von Luftschadstoffen in der bodennahen Grenzschicht führen.

Die Ausbreitung luftgetragener Stoffe erfolgt über mehrere Größenordnungen der Längen- und Zeitskalen im atmosphärischen Turbulenzspektrum (Abb. 7.7). Vereinfacht lassen sich drei Skalen unterscheiden /FOR 82/:

- kleinräumige Skala („micro-scale“-Turbulenzen): Zeitliche Schwankungen zwischen Bruchteilen einer Sekunde und knapp 10 Minuten, charakteristische Längen zwischen einigen Zentimetern und knapp 100 Metern. Beispiel: kleine, mit dem Wind driftende Staubwirbel,
- konvektive Skala („meso-scale“-Turbulenzen): Die Zeitskala bewegt sich hier zwischen 10 Minuten und einigen Stunden, die Längenskala zwischen einem Kilometer und einigen hundert Kilometern. Beispiel: Schönwetter-Kumuluswolken,
- großräumige Skala („macro-scale“-Turbulenzen): Hier liegt die Zeitskala typischerweise zwischen 1 und 10 Tagen, die Längenskala zwischen 1.000 und 10.000 Kilometern. Beispiel: Tiefdruckgebiete.

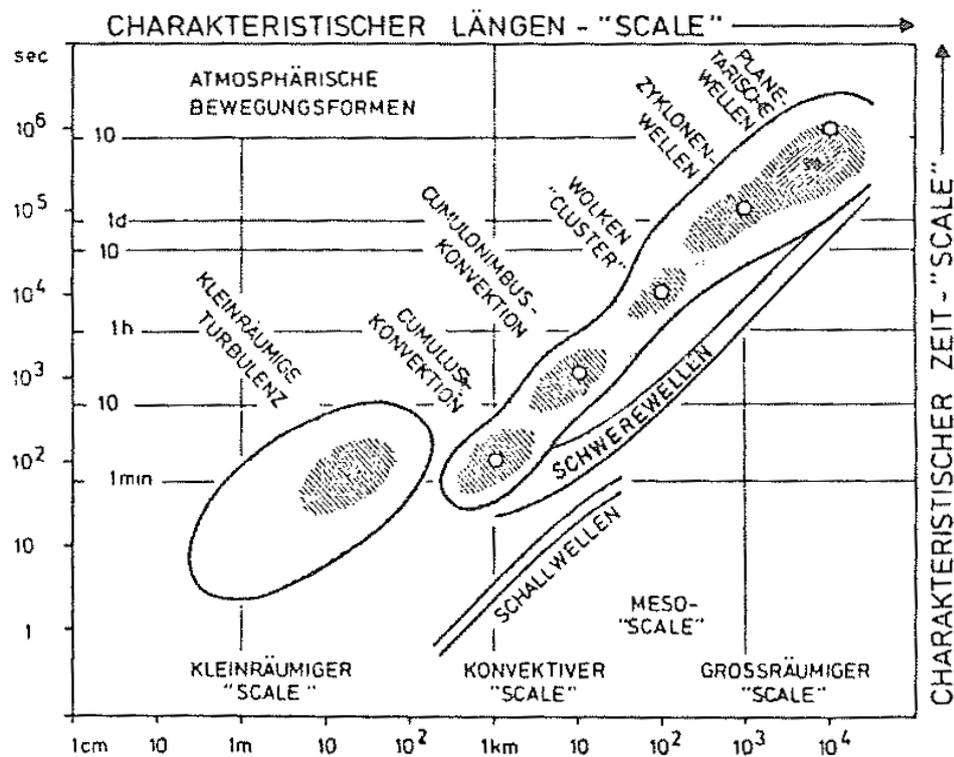


Abb. 7.7 Schematische Darstellung der charakteristischen Längen- und Zeitskalen für Ausbreitungsvorgänge in der Atmosphäre

/FOR 82/

In Abb. 7.8 ist schematisch das Verhalten einer Schadstofffahne in den drei Bereichen des Turbulenzspektrums dargestellt. Während die Eigenschaften im „micro-scale“ durch die kleinen Wirbel und die dadurch hervorgerufenen turbulenten Fluktuationen gekennzeichnet sind, rufen größere Wirbel im „meso-scale“ die typische Mäanderform von Schadstofffahnen hervor. Im „macro-scale“ werden lediglich die groben Bewegungsänderungen einer Fahne – wie z. B. ein Richtungswechsel – registriert.

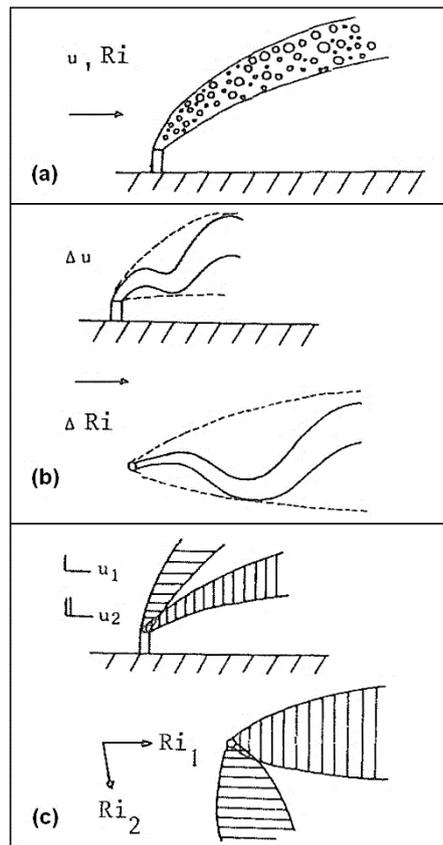


Abb. 7.8 Auswirkungen der unterschiedlichen Zeitskalen auf die Gestalt der von einer kontinuierlichen Quelle emittierten Schadstofffahne

/FOR 82/; (a) micro-scale, (b) meso-scale, (c) macro-scale. u: Geschwindigkeit, Ri: Richtung

Für Untersuchungen zur Ausbreitung luftgetragener Schadstoffe interessiert eine möglichst einfache, aus leicht zu gewinnenden Wetterdaten aufgebaute Klassifikation meteorologischer Situationen, die die Ausbreitungsvorgänge in parametrisierter Form beschreiben. Sie werden als Ausbreitungskategorien bezeichnet. Am gebräuchlichsten ist die Einteilung von Pasquill /PAS 61/: Die Ausbreitungskategorien werden mit den Buchstaben A bis F bezeichnet, wobei die atmosphärische Turbulenz, die den vertikalen Austausch zwischen den Luftschichten bestimmt, von A nach F abnimmt. Turbulenz-

zustände mit überwiegend konvektivem Charakter werden durch die Kategorien A und B beschrieben. Bei Kategorie C spielt sowohl die konvektive als auch die mechanische Turbulenz eine Rolle. Die neutrale Kategorie D tritt vor allem bei starken Winden auf und wird durch die mechanische Turbulenz, verursacht durch Bodenrauigkeiten, geprägt. Die Kategorien E und F beschreiben Zustände mit stabiler thermischer Schichtung in der Atmosphäre (Bodeninversion).

Aus der Art der atmosphärischen Schichtung resultieren charakteristische Unterschiede in der Gestalt einer Schadstofffahne /GRS 81/:

- „Looping“ (Abb. 7.9 a): Eine schleifenförmige Gestalt entwickelt sich nur unter instabilen Verhältnissen. Sie stellt sich bei Quellen bis maximal 100 Meter Höhe relativ häufig ein (in bis zu 40 % aller Fälle). Während des „Looping“ wird in quellnahen Bereichen (bis 300 Meter Entfernung vom Ort der Quelle) die größte Bodenkonzentration an Luftschadstoffen erreicht.
- „Coning“ (Abb. 7.9 b): Eine kegelförmige Ausbreitung der Schadstofffahne ergibt sich unter neutralen Bedingungen. Sie liegt über Land in ca. 10 % aller Fälle vor, an den Küsten häufiger. Diese Erscheinungsform entwickelt sich bei mäßigen bis starken Wind und bedecktem Himmel. Sie stellt eine Übergangsform zwischen stabilen und instabilen Verhältnissen dar und tritt zumeist morgens und abends auf. Unter neutralen Bedingungen ist der Querschnitt einer Schadstofffahne relativ gleichförmig und besitzt die Gestalt einer Ellipse. Diese spiegelt die Anisotropie der atmosphärischen Verhältnisse wider.
- „Fanning“ (Abb. 7.9 c): Diese für stabile Schichtungen charakteristische Form einer Schadstofffahne tritt nachts in 30-40 % aller Fälle auf. Ihre Gestalt ist in der Draufsicht für hinreichend lange Mittelungszeiten durch eine fächerförmige Verteilung gekennzeichnet (sogenanntes „Mäandern“ der Schadstofffahne).
- „Lofting“ (Abb. 7.9 d): Hierbei handelt es sich um eine Übergangsform, bei der die Atmosphäre auf der Unterseite der Schadstofffahne stabil, auf der Oberseite instabil geschichtet ist.

- „Fumigation“ (Abb. 7.9 e): Diese Erscheinung tritt bevorzugt morgens auf. Unter nächtlichen stabilen Bedingungen muss sich dazu eine Form des „Fanning“ ausgebildet haben. Die Bodenerhitzung durch die aufgehende Sonne verursacht dann in den frühen Morgenstunden den allmählichen Aufbau einer instabilen Mischungsschicht, die beim Erreichen der Schadstofffahnenhöhe zur Durchmischung der Fahne bis in Bodennähe führt.
- „Trapping“ (Abb. 7.9 f): Hierbei liegt – im Gegensatz zum „Lofting“ – eine instabile Schichtung in Bodennähe und eine stabile Schichtung über der Schadstofffahne vor. Eine solche Situation tritt häufig über Städten in bis zu 300 m Höhe über dem Erdboden auf.

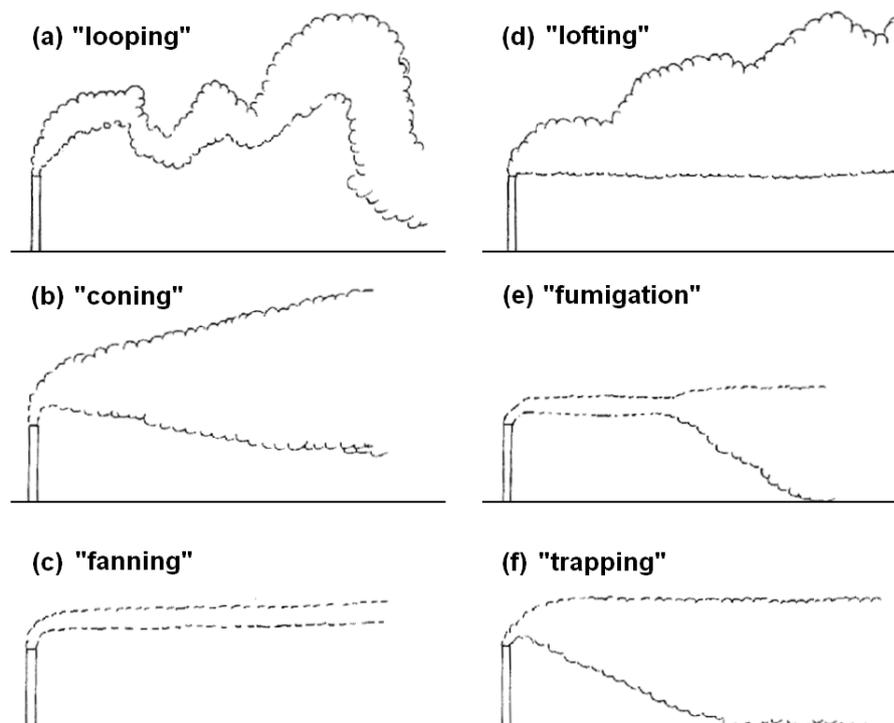


Abb. 7.9 Äußere Gestalt einer Schadstofffahne in Abhängigkeit von der Schichtung der Atmosphäre

Zusammengefasst lässt sich feststellen: Bei stabiler Schichtung resultieren meist schmale Fahnen, bei labiler Schichtung in der Regel breite Fahnen /THI 02/.

Die vertikale Ausdehnung einer Aktivitätsfahne wird meist durch eine Sperrschicht begrenzt, die den Turbulenzaustausch in der Atmosphäre zu größeren Höhen hin unterbindet oder zumindest stark einschränkt. Diese Sperrschicht wird als Mischungsschichthöhe bezeichnet; sie ist eng verknüpft mit der Obergrenze der planetarischen Grenzschicht. Im Gaußschen Fahnenmodell (siehe Kap. 7.3.2) wird die Sperrschicht simuliert, indem der vertikale Ausbreitungsparameter σ_z , der die vertikale Ausdehnung einer Aktivitätsfahne beschreibt, bei Erreichen eines (von der Ausbreitungskategorie abhängigen) Maximalwertes $\sigma_{z,max}$ konstant gehalten wird. Eine Verminderung der Bodenkonzentration erfolgt dann nur noch durch den horizontalen Ausbreitungsparameter σ_y .

Die Mischungsschichthöhe h_m und $\sigma_{z,max}$ stehen in einem festen Verhältnis zueinander /GRS 81/:

$$\sigma_{z,max} = \sqrt{\frac{2}{\pi}} * h_m \cong 0,8h_m \quad (7.15)$$

In /SPR 77/ konnte für die amerikanische Reaktorsicherheitsstudie gezeigt werden, dass die Unsicherheit bei der Wahl der Begrenzung von σ_z die Maximalwerte der Exposition im Falle einer Freisetzung radioaktiver Stoffe nur geringfügig beeinflusst: Die weitgehende Unabhängigkeit der Maximalwerte der Exposition von der Mischungsschichthöhe wird damit erklärt, dass die Aktivitätsfahne diese Obergrenze erst in größeren Entfernungen erreicht und die Maxima der Exposition in der Regel näher an der Quelle zu finden sind. Die aus der Schadstofffahne ausgewaschene Aktivität, die die Bodenstrahlung erzeugt, ist aber unabhängig von der Mischungsschichthöhe.

8 Freisetzung von Radionukliden im Boden und Grundwasser

Die Freisetzung von Radionukliden im Boden und Grundwasser kann in nahezu allen kerntechnischen Anlagen auftreten. Gelöste Radionuklide finden sich in den Primärkühlkreisläufen von Kernreaktoren, bei der Brennstoffanreicherung (in Form von Uranylfluorid oder -nitrat), der Brennelementherstellung und –wiederaufbereitung und können bei der Endlagerung von radioaktiven Abfällen auftreten. Radionuklidlösungen finden auch als Tracer in der Medizin Anwendung, jedoch mit einer vernachlässigbar geringen Aktivität. Weitere Möglichkeiten der Kontamination des Bodens und des Grundwassers können durch Auswaschen von Aerosolen aus der Luft (z. B. nach einem Unfall mit Freisetzung von Radionukliden in die Atmosphäre) durch Niederschlag stattfinden oder bei Kontakt von radioaktivem Material mit Lösungsmitteln (z. B. beim Austritt von Uranhexafluorid und Reaktion mit der Luftfeuchtigkeit). Eine Ausbreitung von Radionukliden in das Grundwasser kann zu einer großräumigen Kontamination und Gefährdung der Biosphäre führen. Dabei geht die größte Gefahr von der Inkorporation aus, bei der die Radiotoxizität und die Belastung als Schwermetall zu befürchten sind.

8.1 Radionuklidhaltige Flüssigkeiten

Bei einer Kontamination des Bodens und des Grundwassers ist die wahrscheinlichste Ursache der unkontrollierte Austritt einer radionuklidhaltigen Flüssigkeit. Eine oberflächliche Kontamination des Bodens kann ebenfalls durch den Austritt von gasförmigen oder festen Radionukliden stattfinden. Dieser Sachverhalt wird in Kap. 0 thematisiert. Bei einer oberflächlichen Bodenkontamination kann der betreffende Bereich abgetragen und als radioaktiver Abfall der Entsorgung zugeführt werden.

Die Probleme bei der Freisetzung von radionuklidhaltigen Flüssigkeiten sind hingegen:

- die schnelle Verteilung über eine große Oberfläche (Fließen)
 - ein Vergrößern der Oberfläche fördert zudem das Verdampfen von radioaktiven Aerosolen

- Sickersen und Diffundieren in tiefere Bodenschichten
 - große Mengen Boden müssen abgetragen werden
 - aufwändige Dekontaminationsmaßnahmen
- Mögliche Kontamination des Grundwassers
 - unkontrollierte Ausbreitung und Gefährdung der Biosphäre
- Kritikalität
 - unterkritische Mengen an Spaltmaterial können gelöst, zusammengespült und dadurch kritisch werden, Lösungsmittel kann als Moderator fungieren

In folgender Übersicht sind die geläufigsten Flüssigkeiten aufgelistet, die Radionuklide enthalten, gefolgt von einigen radionuklidhaltigen Feststoffen die in Lösung mit in den jeweiligen Anlagen benutzten Materialien (z. B. Wasser) gehen können.

Radionuklidhaltige Flüssigkeiten

- Lösungen mit Uranylinitrat $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$,
- Lösungen mit Uranylsulfat UO_2SO_4 ,
- Lösungen mit Ammoniumdiuranat $(\text{NH}_4)_2\text{U}_2\text{O}_7$,
- Lösungen mit Plutoniumnitrat $\text{Pu}(\text{NO}_3)_3$,
- Kontaminiertes Kühlwasser (oder Natrium bei schnellen Brüttern),
- Kontaminiertes Wasser aus Abklingbecken,
- Kontaminierte Öle aus Betriebsabfällen,
- Flüssige Dekontaminationsmittel,
- Kontaminiertes Wasser in Zwischen- und Endlagern (ASSE),
- Kontaminiertes Wasser aus dem Uranerzbergbau (Bergwerkdrainage, Auswaschung des Haldenmaterials durch Niederschläge),
- Kontaminierte Abwässer aus Konversionsanlagen (^{234}U , ^{235}U , ^{238}U),
- Kontaminierte Abwässer aus Anreicherungsanlagen (Gronau: ^{234}U , ^{235}U , ^{238}U),

- Kontaminierte Abwässer aus der Brennelementherstellung:
- nasschemische Konversion: geringste Konzentrationen von ^{234}U , ^{235}U , ^{238}U ,
- Trockenkonversion: unter der Nachweisgrenze,
- MOX-Fabrik (MELOX): Pu, Am in geringen Konzentrationen,
- Kontaminierte Abwässer aus KKW: Spalt- und Aktivierungsprodukte,
- Kontaminierte Abwässer aus der Nasslagerung (bei der Trockenlagerung fallen im Normalbetrieb keine kontaminierten Abwässer an).

Radionuklidhaltige wasserlösliche Feststoffe

- Urantetrafluorid UF_4 ,
- Uranylfluorid UO_2F_2 , hygroskopisch,
- Uranyltetraammoniumtricarbonat $(\text{NH}_4)_4(\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3)$,
- Natriumuranat Na_2UO_4 .

Uranbergbau und Konversion des Erzes finden nicht in Deutschland, sondern nur in Anlagen im Ausland statt. In Deutschland selbst sind Stand August 2022, 3 Kernkraftwerke in Betrieb, eine Anreicherungsanlage zur Trockenkonversion (URENCO, Gronau), eine Brennelementefabrik (ANF, Lingen), drei zentrale Zwischenlager (Gorleben, Ahaus und Lubmin (Greifswald)), zwölf dezentrale Standortzwischenlager und einige Forschungsreaktoren (der größte ist der FRM II in Garching) in Betrieb /BfS 14/. Damit reduziert sich das Gefährdungspotential der Kontamination des Bodens und des Grundwassers gegenüber früheren Jahren drastisch, da hierzulande keine Kernbrennstoff-verarbeitungsschritte mehr durchgeführt werden, in denen radionuklidhaltige Flüssigkeiten in großen Mengen involviert sind (Aufbereitung, Konversion, Wiederaufarbeitung).

Die Abwässer aus den nuklearen Anlagen unterliegen strengen Kontrollen und die Radionuklidkonzentration darf gewisse Grenzwerte nicht unterschreiten /THO 99/. Eine größere Gefährdung geht von eventuellen Störfällen bzw. Unfällen aus. Für Deutschland relevant sind daher die Urananreicherung, Brennelementfertigung und die KKW. Das bei der Anreicherung genutzte Uranhexafluorid reagiert sehr heftig mit Wasser (s. Kap. □) zu Flusssäure und Uranylfluorid, welches hygroskopisch ist. Bei einem Unfall in der Brennelementfabrik des Betreibers Siemens in Hanau am 12.12.1990, hat UF_6 mit

Luftfeuchtigkeit zu HF und UO_2F_2 reagiert, und beim anschließenden Bruch einer Frischwasserleitung wurde die uranhaltige Mischung auf einer Fläche von ca. 1600 m² in der Betriebshalle verteilt /BUN 09c/. Ein Bruch im primären Kühlkreislauf eines Kernreaktors hätte noch katastrophalere Folgen. Für den Reaktor ist die verringerte Kühlleistung problematisch. Die freigesetzte Menge radioaktiver Flüssigkeit kann bei einem gleichzeitigen Bruch des Containments und der Betonabschirmung ins Freie gelangen und Boden und Grundwasser gefährden. Solch ein Szenario ist jedoch sehr unwahrscheinlich.

8.2 Grundlagen

Bei der Ausbreitung von Radionukliden im Boden und im Grundwasser muss zunächst die Diffusion des Materials in den Boden und die anschließende Strömung des Grundwassers berücksichtigt werden.

Als Grundwasser wird nach DIN 4049 das unterirdische Wasser bezeichnet, das die Hohlräume der Erdrinde zusammenhängend ausfüllt und dessen Bewegung ausschließlich oder nahezu ausschließlich von der Schwerkraft und den durch die Bewegung selbst ausgelösten Reibungskräften bestimmt wird.

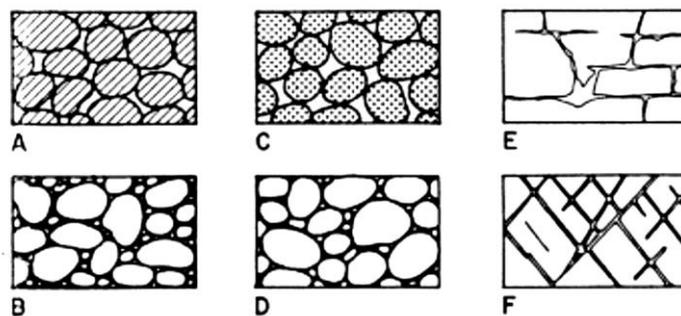


Abb. 8.1 Verschiedene Hohlraumtypen

/ENE 87/

In Abb. 8.1 sind einige Hohlraumtypen gezeigt. Bei Typ A handelt es sich um hochporöse, sedimentäre Ablagerung mit einheitlicher Korngröße, während Typ B heterogene Korngrößen und geringere Porosität hat. Typ C hat ebenfalls homogene Körnung und die Steine sind selbst porös, was die ganze Schicht als hochporös klassifiziert. Typ D zeigt homogene Korngröße mit mineralischen Einlagerungen in den Zwischenräumen,

welche die Gesamtporosität herabsetzen. Bei Typ E und F handelt es sich um Felsgestein, in denen durch Flüssigkeiten (E) und Brüche (F) Hohlräume geschaffen wurden.

An der Grundwasseroberfläche ist der hydrostatische Wasserdruck gleich dem umgebenden Luftdruck. Diese Höhe wird Grundwasserspiegel bezeichnet. Die Wassermenge oberhalb einer undurchlässigen Gesteinsschicht wird als ungespannt und unterhalb einer begrenzenden Sedimentschicht als gespannt definiert. Die wasserführenden Bodenschichten werden Aquifer bezeichnet.

8.2.1 Grundwasserströmung in der gesättigten Zone

Das Grundwasser ist in permanenter Bewegung. Durch Evapotranspiration (Verdunstung aus dem Boden: Evaporation; Verdunstung aus den Porenöffnungen der Pflanzen: Transpiration), Niederschläge und Entnahme ändert sich der Grundwasserspiegel. Zur Beschreibung der dadurch verursachten Ausgleichsströmungen dient die Betrachtung der Potentiale. Das Gesamtpotential ist das Resultat des Zusammenwirkens von Gravitation, Osmose, Bodensättigung (Matrixpotential) und weiteren, vom jeweiligen Standort abhängigen Faktoren.

Tab. 8.1 Potentiale des Grundwassers; m: Masse, g: Erdbeschleunigung, h: Höhe

Potential	
Bodenwasser	$P = mgh$
Gravitationspotential	P_z
Matrixpotential (ungesättigt)	P_m
Osmotisches Potential	P_o
Gaspotential	P_g
Druckpotential (gesättigt)	P_h

Als Näherung für das Gesamtpotential wird das hydraulische Potential P_h als die Summe der am einfachsten zu bestimmenden Potentiale betrachtet.

$$P_h = P_z + P_m + P_o + P_g \quad (8.1)$$

Bezogen auf die Wassermasse mg hat das Potential die Einheit einer Länge und wird Piezometerhöhe h genannt.

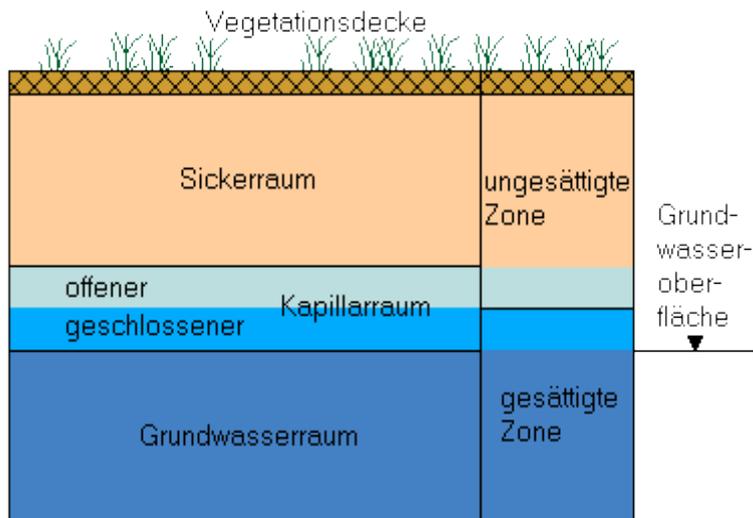


Abb. 8.2 Einteilung des Bodenraumes nach DIN 4049

/HYD 16/

Die gesättigte und ungesättigte Bodenschicht ist nach ihrem Wassergehalt definiert (s. Abb. 8.2). Der Sickerraum enthält dabei weniger Wasser als der Grundwasserraum. In der gesättigten Zone wird die Wasserbewegung von der Darcy-Gleichung² beschrieben.

In einer Dimension und unter der Annahme einer stationären Strömung durch eine Querschnittsfläche A , der Länge L , bei einer Höhendifferenz (h_1-h_2) ergibt sich die Darcy-Gleichung:

$$\dot{Q} = KA \cdot \frac{h_1-h_2}{L} = KA \frac{\Delta p}{\rho g L} = v_f A \quad (8.2)$$

λ und η	Viskositätskonstanten
f	Volumenkraftdichte
v	Geschwindigkeit
p	Druck
ρ	Dichte

Hierbei wurde Linearität der Höhendifferenz vorausgesetzt. Allgemein ist der zeitliche Verlauf des Flusses Q (Durchflussrate) die örtliche Ableitung des hydraulischen Potentials entlang der Fließstrecken, der hydraulische Gradient. Der Proportionalitätsfaktor K ist der Durchlässigkeitsbeiwert oder die hydraulische Leitfähigkeit.

² Die Darcy-Gleichung ist eine spezielle Lösung der Navier-Stokes-Gleichung.

Die Stärke des Stofftransports hängt von der Höhe des hydraulischen Gradienten und der Durchlässigkeit \dot{Q} des Mediums ab:

$$\dot{Q} = -K\nabla P_h \quad (8.3)$$

Die Geschwindigkeit v_f ist die Durchgangsgeschwindigkeit (oder Filtergeschwindigkeit):

$$v_f = -K \frac{\partial h}{\partial x}; \quad \vec{v}_f = -K\nabla h \quad (8.4)$$

Die Abstandsgeschwindigkeit v ist in guter Näherung über die Porosität ε bestimmbar:

$$v = \frac{v_f}{\varepsilon} \quad (8.5)$$

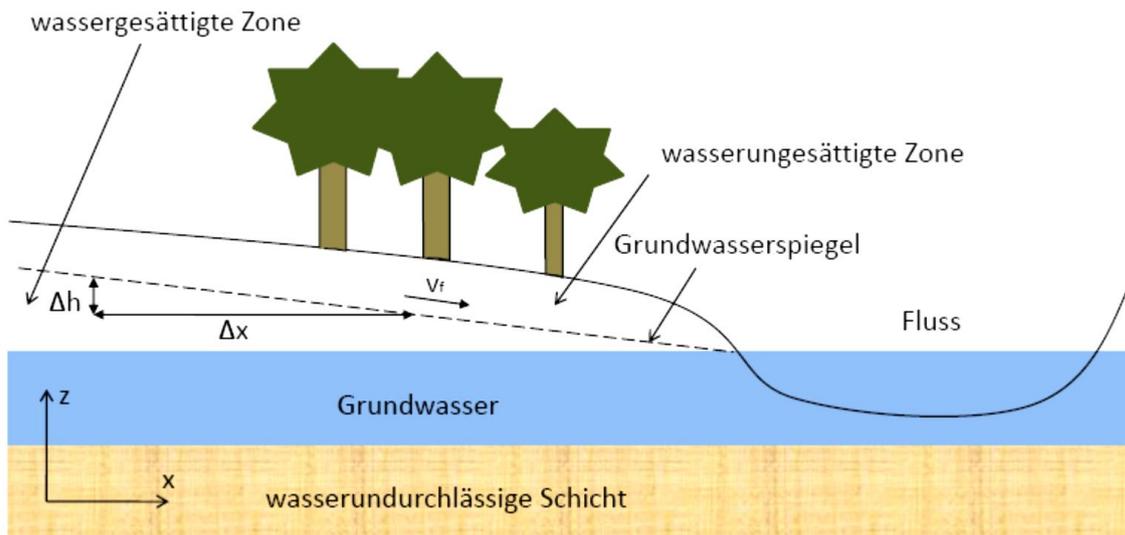


Abb. 8.3 Grundwasserfluss in ein Fließgewässer

/BON 04/

Die Porosität ε ist das Verhältnis vom Porenvolumen V_P zum Gesamtvolumen V :

$$\varepsilon = \frac{V_P}{V} \quad (8.6)$$

In Tab. 8.2 sind einige Durchlässigkeitsbeiwerte aufgeführt. Die Durchlässigkeitsbeiwerte werden empirisch ermittelt. Je grösser K , desto schneller fließt eine Flüssigkeit ab. Somit ist Kies besonders durchlässig und Ton stellt eine Barriere dar.

Tab. 8.2 Durchlässigkeitsbeiwerte einiger Bodenarten

/IGE 09/

Lockergestein	K [m/s]
reiner Kies	10^{-1} – 10^{-2}
sandiger Kies	10^{-2} – 10^{-4}
Grobsand	um 10^{-3}
Mittelsand	10^{-3} – 10^{-4}
Feinsand	10^{-4} – 10^{-5}
schluffiger Sand	10^{-5} – 10^{-7}
Schluff, je nach Tongehalt	10^{-6} – 10^{-8}
reiner Kies	10^{-1} – 10^{-2}

8.2.2 Grundwasserströmung in der ungesättigten Zone

Beim Austritt von Flüssigkeiten sickern diese zunächst in den Boden ab und erreichen so erst nach einer gewissen Zeit den Grundwasserspiegel (Migration). Zur Beschreibung der Wasserbewegung in der ungesättigten Zone, dem Absickern von Flüssigkeiten, müssen Inhomogenitäten der Wasserverteilung berücksichtigt werden. Durch Niederschläge oder Evapotranspiration ändert sich permanent der Wassergehalt W . Der Durchlässigkeitsbeiwert wird dafür in Abhängigkeit des Matrixpotentials geschrieben: $K(P_m)$. Der Fluss im ungesättigten Boden bestimmt sich aus der *Richards-Gleichung*:

$$\frac{\partial W}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left[K(P_m) \cdot \left(\frac{\partial P_m}{\partial z} - \mathbf{1} \right) \right] \quad (8.7)$$

Sie wird aus der Kontinuitätsgleichung, zur Beschreibung des Massenerhalts, und einer speziellen Formulierung der Darcy-Gleichung hergeleitet und enthält nur noch das Matrixpotential:

$$\frac{\partial W}{\partial t} = -\frac{\partial \dot{Q}}{\partial z} \quad \text{mit} \quad \dot{Q} = -K(P_m) \frac{\partial P_H}{\partial z} \quad (8.8)$$

Bei einer instationären Strömung muss die Richards-Gleichung um einen Quell- bzw. Senkenterm ergänzt werden hat für drei Dimensionen folgende Gestalt:

$$\frac{\partial}{\partial r} \left[K(W) \left(\frac{\partial h_p}{\partial r} + 1 \right) \right] = \frac{\partial W}{\partial t} - w_0 \quad \text{mit} \quad \frac{\partial W}{\partial t} = C(h_c) \frac{\partial h_p}{\partial t} \quad (8.9)$$

Die Zeit t und der Ort $r(x,y,z)$ sind dabei unabhängige Variablen, die Druckhöhe h_p , der Wassergehalt W und der Quell-/Senkenterm w_0 sind abhängig. Die Funktion der Speicherkapazität $C(h_c)$ ist dabei die erste Ableitung der Hysterese-Retentionsfunktion $W=f(h_c)$.

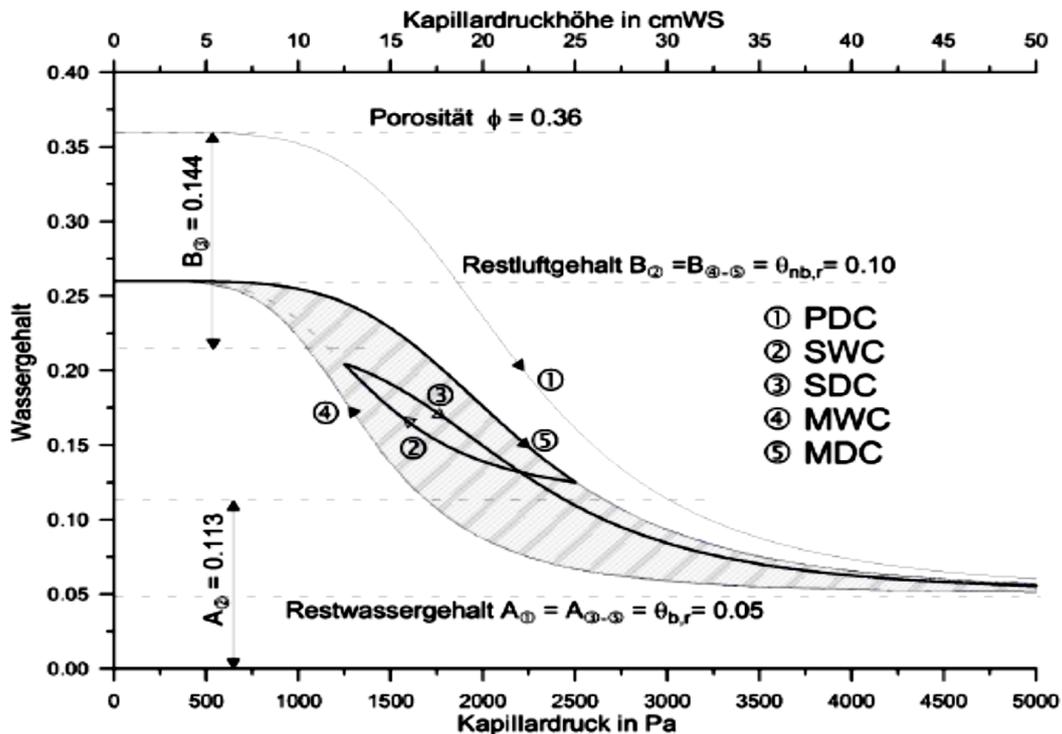


Abb. 8.4 Hysterese-Retentionsfunktion eines Zwei-Phasen-Gemisch von Wasser und Luft in einem porösen Medium

Die Hysterese-Retentionsfunktion $f(h_C)$ (siehe Abb. 8.4) kann bei einem Zwei-Phasen-Gemisch von Wasser und Luft in einem porösen Medium in fünf typische Verläufe unterschieden werden:

1. Primäre Drainagekurve (Primary Drainage Curve, PDC),
2. Arbeitsimbibitionskurven (Scanning Wetting Curves, SWC),
3. Arbeitsdrainagekurven (Scanning Drainage Curves, SDC),
4. Hauptimbibitionskurve (Main Wetting Curve, MWC),
5. Hauptdrainagekurve (Main Drainage Curve, MDC).

Die Unterscheidungskriterien dieser Kurven sind die Startpunkte, Prozessrichtungen und die Sättigungszustände.

Zur mathematischen Beschreibung existieren Parametermodelle. Ein physikalisch begründeter Ansatz ist das Modell nach Luckner /LUC 89/, welches auf den empirischen Beziehungen von van Genuchten basiert.

$$W = A + \frac{\varepsilon - A - B}{[1 + (\alpha h_C)^n]^{1 - \frac{1}{n}}} \quad \text{für } h_C > 0 \quad (8.10)$$

$$W = \varepsilon - A \quad \text{für } h_C < 0 \quad (8.11)$$

Die Funktionen $A(W(r))$ und $B(L(r))$ ³ und die Porosität ε skalieren und begrenzen den Bereich des Phasengehalts der benetzenden Phase (Sickerwasser). Der Faktor α ist ein Maßstabsfaktor und n kennzeichnet den Anstieg der Zustandsfunktion. Bei der Entwässerung eines Bodens fließt das Wasser zunächst durch die größeren Poren ab. Da diese eine höhere Durchflusskapazität haben, nimmt die ungesättigte hydraulische Leitfähigkeit mit sinkendem Wassergehalt stark ab.

³ L: Luftgehalt

Aus dem Modell von Luckner /LUC 89/ kann dieser Zusammenhang mathematisch beschrieben werden:

$$K_r(W) = \frac{k(W)}{k_0} = \left(\frac{S}{S_0}\right)^\lambda \left[\frac{1 - \left(1 - S \frac{1}{m}\right)^m}{1 - \left(1 - S_0 \frac{1}{m}\right)^m} \right]^\lambda \quad (8.12)$$

Dabei sind m , λ Parameter (λ wird i. A. auf 0,5 gesetzt), S dem Mobilitätsgrad und k_0 die Mobilität beim Mobilitätsgrad S_0 . Für m gilt $m = 1-1/n$.

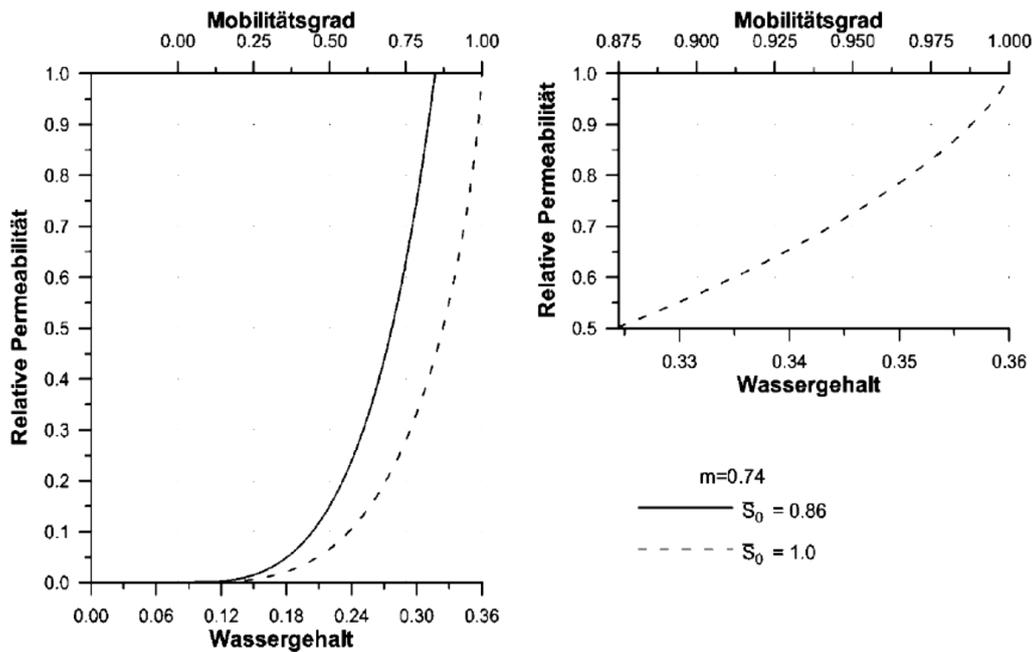


Abb. 8.5 Relative Permeabilität in Abhängigkeit des Wassergehalts

Weltweit hat sich der Ansatz von van Genuchten zur mathematischen Beschreibung der Retentionsfunktionen durchgesetzt, obwohl es auch andere Modelle gibt.

8.2.3 Stofftransport im Grundwasser

Der Stofftransport im Grundwasser ist durch Diffusion, Adsorption, Advektion und Dispersion charakterisiert.

Für ein Radionuklid lässt sich die Diffusion über die Diffusionsgleichung des 2. Fick'schen Gesetzes für ein Volumenelement dV berechnen:

$$[\varepsilon + (1 - \varepsilon)\rho_B K_D] \frac{dc}{dt} dV + \varepsilon \left[u_a \frac{dc}{dx} + v_a \frac{dc}{dy} + w_a \frac{dc}{dz} \right] dV = \varepsilon \left[\frac{d}{dx} D_x \frac{dc}{dx} + \frac{d}{dy} D_y \frac{dc}{dy} + \frac{d}{dz} D_z \frac{dc}{dz} \right] dV - [\varepsilon + (1 - \varepsilon)\rho_B K_D] c\lambda dV \quad (8.13)$$

Dabei ist c die Aktivitätskonzentration des betrachteten Radionuklids im gefilterten Wasser. Die D_i bezeichnen die Diffusionskoeffizienten als Summe aus dem Dispersionskoeffizienten und dem molekularen Diffusionskoeffizienten. Mit R wird der Retardationsfaktor definiert:

$$R = 1 + \frac{1-\varepsilon}{\varepsilon} \rho_B K_D \quad (8.14)$$

Mit den vereinfachten Annahmen, dass v_a und w_a Null sind, und mit der x-Achse in Fließrichtung u_a ergibt sich:

$$\frac{dc}{dt} + \frac{u_a}{R} \frac{dc}{dx} = \frac{d}{dx} \frac{D_x}{R} \frac{dc}{dx} + \frac{d}{dy} \frac{D_y}{R} \frac{dc}{dy} - c\lambda \quad (8.15)$$

$$\frac{dc}{dt} + u'_a \frac{dc}{dx} = \frac{d}{dx} D'_x \frac{dc}{dx} + \frac{d}{dy} D'_y \frac{dc}{dy} - c\lambda \quad (8.16)$$

Dabei ist u'_a die Geschwindigkeit, mit der das Radionuklid im Mittel transportiert wird. Jedoch ohne Berücksichtigung von Dispersion und Diffusion. Die Zeit, in der die Radionuklide über eine Länge L transportiert werden lautet:

$$t_T = \frac{L}{u_a} R \quad \text{mit} \quad t_L = \frac{L}{u_a} \quad (8.17)$$

t_L beschreibt die Laufzeit des Wassers. Bei konstanten R und D_i , lässt sich der Ausdruck für c für Punkt- oder Linienquellen analytisch lösen und führt zu Normalverteilungen. Für eine Linienquelle mit E_0 über der Höhe h an der Stelle $x=y=0$ ergibt sich:

$$c = \frac{E_0}{4\pi h \sqrt{(D'_x \cdot D'_y)}} \cdot \exp\left[-\frac{(x-w'_a \cdot t^2)}{4D'_x t} - \lambda t\right] \cdot \exp\left[-\frac{y^2}{4D'_y t}\right] \quad (8.18)$$

Die Diffusion sorgt sowohl für eine longitudinale (in Strömungsrichtung) als auch für eine transversale Verteilung der Radionuklide.

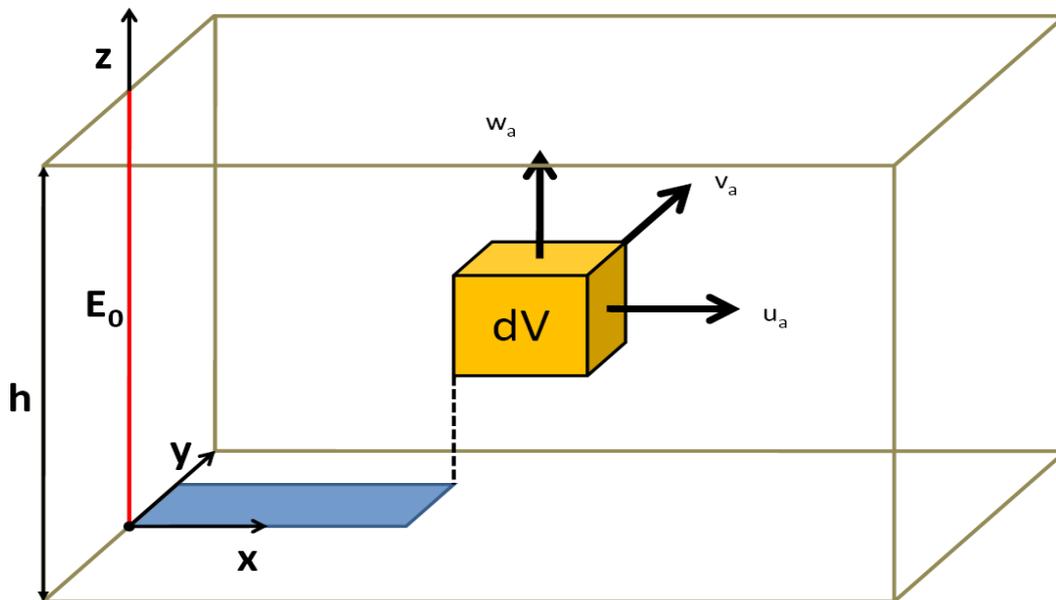


Abb. 8.6 Idealisierte Grundwasserschicht mit Punktquelle

/BON 04/

Um Stofftransportprozesse realistisch über Diffusion zu beschreiben, muss die allgemeine Transportgleichung erweitert werden. Ausgehend von einem 3-Phasen-Gemisch werden Konzentrationsänderungen so beschrieben:

$$\frac{\partial}{\partial t} \left[C_i + \left(S_i \frac{\rho}{\varepsilon} + \frac{G_i}{\varepsilon} \right) \right] = D_L \frac{\partial^2 C_i}{\partial z^2} + D \frac{\partial^2 C_i}{\partial z^2} - v \frac{\partial C_i}{\partial z} \quad (8.19)$$

- | | |
|---------------|--|
| C_i | Konzentration des im Wasser gelösten Stoffes |
| S_i | Konzentration des Stoffes auf einer festen Phase |
| G_i | Konzentration des Stoffes in einer Gasphase |
| ε | Porosität |
| v | Porengeschwindigkeit |
| ρ | Dichte |
| D_L | longitudinaler Diffusionskoeffizient |

D	Diffusionskoeffizient
t	Zeit

Für $i=1, \dots, k$ Stoffe hat die allgemeine Transportgleichung (für die z-Richtung) folgenden Ausdruck:

$$\begin{aligned}
 (\varepsilon S_r \rho) \frac{\partial C_i}{\partial t} + ((1 - \varepsilon_a) \rho_s) \frac{\partial C_{S,i}}{\partial t} + (\varepsilon S_r \rho) \vec{v} \nabla C_i - \nabla (\varepsilon S_r \rho (d_{m,i} I + D) \nabla C_i) = \\
 q(C_i^{in} - C_i) + q_{c,i} + (\varepsilon S_r \rho) f_i(C_i) + ((1 - \varepsilon_a) \rho_s) f_{S,i}(C_{S,i}) + \sum_{j=1, j \neq i}^k q_i^j \quad (8.20)
 \end{aligned}$$

Für die Stoffe $i=1, \dots, k$ ist

C_i	Konzentration des i -ten Stoffes im Fluid
$C_{S,i}$	die absorbierte Konzentration des i -ten Stoffes in der Matrix
C_i^{in}	die Zuflusskonzentration
$q_{c,i}$	der vorgegebener Massenzu- / abfluss
q_i^j	der Massenzu- / abfluss des Stoffes i aus der Reaktion des Stoffes j

Die Parameter sind:

ε	durchflusswirksame Porosität des Aquifers
ε_a	totale Porosität des Aquifers
S_r	Sättigungsgrad
ρ	Dichte des Fluides
ρ_s	Dichte der Matrix
q	Fluid-Quell- / Senkenterm
\vec{v}	Abstandsgeschwindigkeitsvektor (Porenwassergeschwindigkeit)
I	Einheitsmatrix
$d_{m,i}$	molekularer Diffusionskoeffizient für Stoff i
D	symmetrischer Dispersionstensor

Die Quell- und Senkenterme sind:

f_i	Quellen-/Senkenterm durch Produktions-, Abbau bzw. Zerfallsprozesse des Stoffes i im Fluid
$f_{S,i}$	Quell-/Senkenterm durch Produktions-, Abbau bzw. Zerfallsprozesse des Stoffes i in der Matrix

Beim Transport von Radionuklidketten muss der Zerfallsanteil in den Quell-/Senkentermen berücksichtigt werden:

$$f_i(C_i) = -\lambda_i C_i \text{ und } f_{S,i}(C_{S,i}) = -\lambda_{S,i} C_{S,i} \text{ mit der jeweiligen Zerfallskonstante } \lambda_i$$

Die Adsorption bezeichnet den Vorgang, bei dem sich gelöste Stoffe eines Fluids an einem Festkörper anlagern. Im Folgenden werden drei gängige Modelle zur mathematischen Beschreibung vorgestellt:

- lineares Adsorptionsmodell nach Henry,
- Adsorption nach Freundlich,
- Adsorption nach Langmuir.

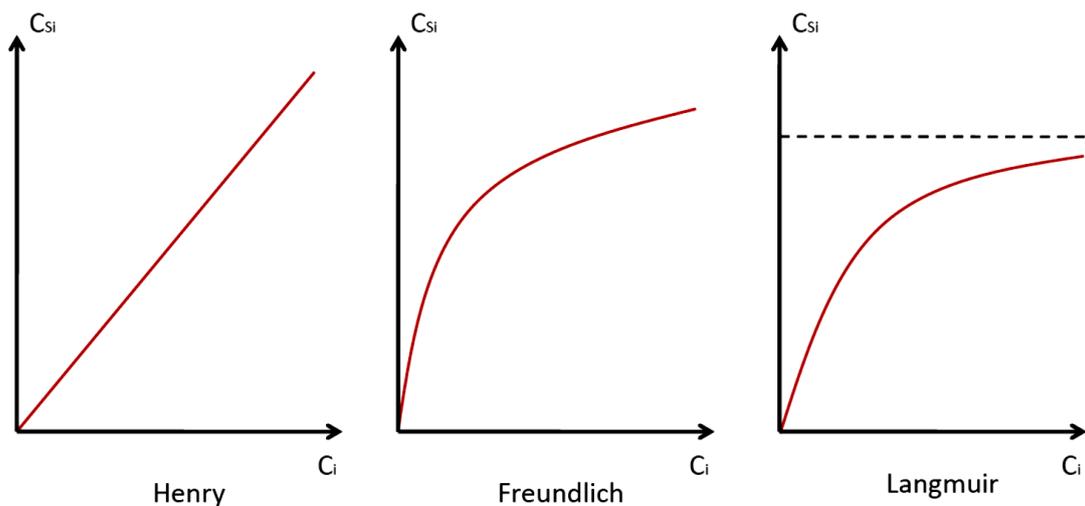


Abb. 8.7 Adsorptionsmodelle

/BLÖ 98/

In Abb. 8.7 sind die Abhängigkeiten der Konzentration eines Stoffes i im Fluid relativ zur Konzentration dieses Stoffes in der Matrix dargestellt.

Ein besonderer Aspekt beim Transport von Radionukliden im Boden ist der Massenzu- und Abfluss durch radioaktiven Zerfall. Der Quell-/Senkenterm hat folgenden Ausdruck.

$$q_i^j = m_{ij} \lambda_j [(\varepsilon S_r \rho) C_j + ((1 - \varepsilon_a) \rho_S) C_{S,j}] \quad (8.21)$$

Die Matrix m_{ij} beschreibt die jeweiligen Zerfallsreihen. Mit den Zerfalls- und Produktionsparametern lässt sich die Zerfallsgleichung für Nuklidketten aufstellen.

$$\begin{aligned}
 (\varepsilon S_r \rho) \frac{\partial C_i}{\partial t} + ((1 - \varepsilon_a) \rho_S) \frac{\partial C_{S,i}}{\partial t} + (\varepsilon S_r \rho) \vec{v} \nabla C_i - \nabla (\varepsilon S_r \rho (d_{m,i} I + D) \nabla C_i) = \\
 q(C_i^{in} - C_i) + q_{c,i} - \lambda_j [(\varepsilon S_r \rho) C_j + ((1 - \varepsilon_a) \rho_S) C_{S,j}] (\varepsilon S_r \rho) f_i(C_i) + \\
 \sum_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^k m_{ij} \lambda_j [(\varepsilon S_r \rho) C_j + ((1 - \varepsilon_a) \rho_S) C_{S,j}]
 \end{aligned} \tag{8.22}$$

Unter Advektion ist der Stofftransport eines im Wasser gelösten Stoffes mit der Strömungsrichtungsrichtung und Geschwindigkeit des Wassers zu verstehen. Die Bestimmung erfolgt über die Darcy- oder Richards-Gleichung.

Die Dispersion beschreibt den Stofftransport analog zur Diffusion ebenfalls in Abhängigkeit eines Konzentrationsgradienten. Dieser resultiert aus dem Geschwindigkeitsgefälle, den das Wasser beim Durchströmen von Poren besitzt. Laminar strömende Flüssigkeiten besitzen aufgrund ihrer Viskosität eine Geschwindigkeitsverteilung. Diese hängt auch vom umgebenden Medium ab und ist sowohl transversal als auch longitudinal vorhanden. Die Stromstärke verhält sich longitudinal und transversal analog zum 1. Fickschen Gesetz:

$$j_L = -\varepsilon_f D_L \frac{\partial C_i}{\partial z_L} \quad j_T = -\varepsilon_f D_T \frac{\partial C_i}{\partial z_T} \tag{8.23}$$

ε_f durchflossene Porositäten
 D_i Dispersionskoeffizienten ($D_L > D_T$)

8.2.4 Transport im Boden

Beim Transport von Radionukliden im Boden muss zwischen ungestörtem (unbearbeiteten) und gestörtem (bearbeiteten) Boden unterschieden werden.

Ungestörte Böden

Die Ausbreitung und der Transport von Radionukliden in ungestörten Böden hängen im Wesentlichen von der Sorption (Ad- und Absorption) und von der Desorption ab. Bei Einbringen einer Radionuklidlösung in den Boden steigt die dortige Aktivitätskonzentration durch Sorptionsprozesse und die Konzentration der Lösung nimmt ab. Es stellt sich ein Gleichgewicht ein. Dieser Vorgang ist durch ein geschlossenes 2-Kompartimentmodell beschreibbar.

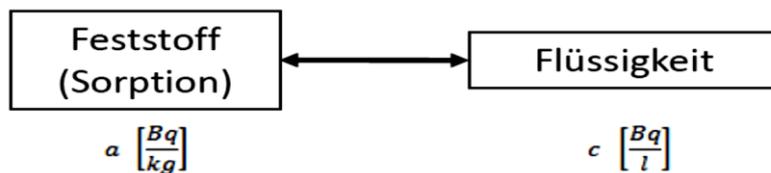


Abb. 8.8 Kompartimentmodell für den Radionuklidtransport Flüssigkeit – Feststoff

/BON 04/

Das Verhältnis der pro kg Feststoff sorbierten Aktivität a und der pro Liter Flüssigkeit gelösten Aktivität c wird *Verteilungskoeffizient* K_d genannt (Abb. 8.8):

$$K_d = \frac{a}{c} \quad (8.24)$$

Der Verteilungskoeffizient hängt von der Beschaffenheit des Bodens, der Oberfläche der Bodenpartikel, dem Tonanteil, der Tonmineralart, dem pH-Wert des Bodenwassers, der Art der Ionen, Fremdionenkonzentration usw. ab.

Tab. 8.3 Verteilungskoeffizienten für verschiedene Böden und Elemente

/BON 04/

Element	$K_d \left[\frac{1}{\text{kg}} \right]$		
	Sand	Ton	organischer
Co	60	550	1000
Sr	15	110	150
I	1	1	25
Cs	280	1900	270
Pb	270	550	22000
Ra	500	9000	2400
U	35	1600	400
Pu	550	5000	1900

Der Transport von Radionukliden in tiefere Bodenschichten lässt sich ebenfalls mit der Diffusionsgleichung des 2. Fick'schen Gesetzes beschreiben. Die jahresgemittelte Abstandsgeschwindigkeit v ist abhängig von der Jahresniederschlagsmenge, der Evapotranspiration und der Porosität ε . Bei einem unendlich ausgedehnten Boden verhält sich die Konzentration der Radionuklide im Porenwasser wie folgt:

$$[\varepsilon + (1 - \varepsilon)\rho_B K_D] \frac{\partial c}{\partial t} = -\varepsilon v \frac{\partial c}{\partial z} + \varepsilon D_z \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} - [\varepsilon + (1 - \varepsilon)\rho_B K_D] c \lambda \quad (8.25)$$

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \frac{v}{1 + \frac{1-\varepsilon}{\varepsilon} \rho_B K_D} \left[-v \frac{\partial c}{\partial z} + D_z \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} \right] - c \lambda \quad (8.26)$$

Dabei ist ρ_B die Dichte des Bodens und D_z der Diffusionskoeffizient des Radionuklids im Porenwasser. Mit der Geschwindigkeit v_a wandert das Radionuklid im Mittel in tiefere Bodenschichten.

$$v_a = \frac{v}{1 + \frac{1-\varepsilon}{\varepsilon} \rho_B K_D} \quad (8.27)$$

Das Eindringen in tiefere Bodenschichten geschieht bei Radionukliden mit einer Geschwindigkeit von einigen Millimetern im Jahr.

Gestörte Böden

Unter gestörtem Boden ist die Bearbeitung durch Pflügen und Graben zu verstehen. Dadurch gelangen Radionuklide in tiefere Bodenschichten. Andererseits werden sie auch aus tieferen Bodenschichten wieder nach oben befördert. In der Gesamtheit findet somit eine Homogenisierung der Aktivitätsverteilung in der bearbeiteten Schicht statt.

8.3 Mögliche Freisetzungs- und Verteilungspfade

Die unkontrollierte Freisetzung von radionuklidhaltigen Flüssigkeiten kann zur Kontamination des Bodens im näheren Umkreis des Unfallorts führen. Ferner können, wie beim Unfall von Tschernobyl, Radionuklide in die Atmosphäre gelangen und sich über große Flächen auf den Boden verteilen. Das gesundheitsgefährdende Potential in Abhängigkeit der Konzentration der luftgetragenen Schadstoffe ist in den AEGL-Werten (Acute Exposure Guideline Levels) zusammengestellt.

8.3.1 Bodenkontamination

Die Kontamination einer Bodenfläche kann zum Verlust einer oder mehrerer Bodenfunktionen (Lebensraumfunktion, Filterfunktion, Speicherfunktion) führen und zu einer Sekundärkontamination des Grundwassers führen. Bei Überschreiten einer bestimmten Schadstoffkonzentration können negative Auswirkungen auf die Nahrungsmittelkette und dadurch auf die Gesundheit des Menschen ergeben. Zur Beschreibung des Gefährdungspotentials wird in lokale und diffuse Kontaminationen unterschieden.

Lokale Kontamination

Unter lokaler Kontamination versteht man Verunreinigungen aus Punktquellen. Das können Endlager oder Anlagen des Brennstoffkreislaufs sein. Aber auch die Beregnung von Anbauflächen mit möglicherweise kontaminierten Wässern kann eine Ursache für eine lokale Kontamination sein. Bei der Freisetzung von Radionukliden aus Punktquellen ist die Kontamination lokal beschränkt, es können aber höhere Schadstoffkonzentrationen in den Boden eingebracht werden.

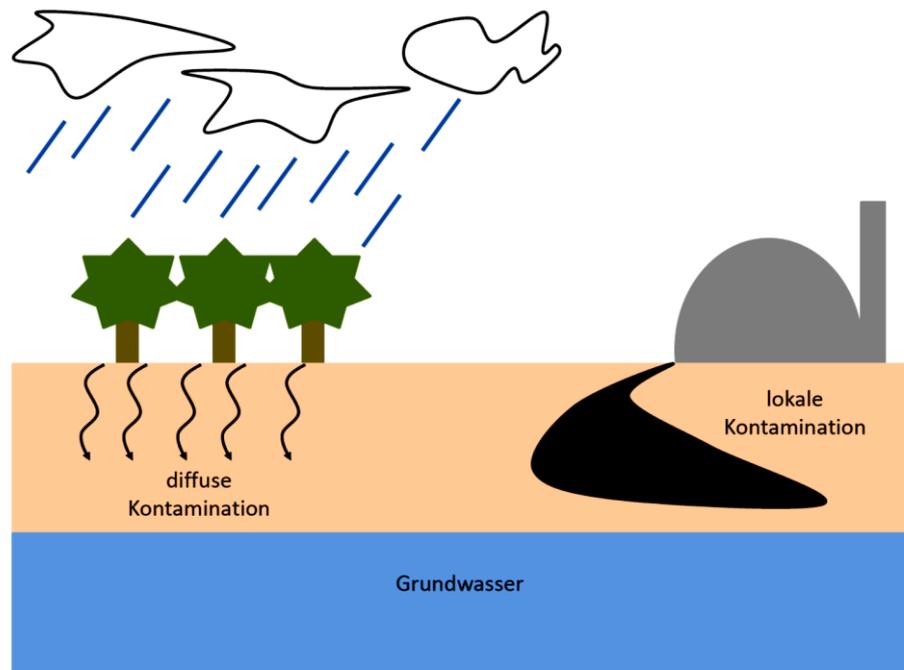


Abb. 8.9 Kontaminationsarten

Diffuse Kontamination

Zur diffusen Kontamination mit Radionukliden kann es bei atmosphärischer Deposition (s. Abb. 8.9) und bei unsachgemäßem Umgang mit Abfällen und Abwässern kommen. Die Konzentration der eingebrachten Schadstoffmenge ist geringer, dafür aber auf eine größere Fläche verteilt. Eine besondere Rolle spielen dabei Waldböden. Die dort niedergeschlagenen Radionuklide werden nicht abgebaut (außer durch radioaktiven Zerfall) und zirkulieren in der dortigen Nahrungskette. In Waldpilzen sammeln sie sich bevorzugt an (z. B. ^{137}Cs und ^{134}Cs aus der Freisetzung beim Unfall von Tschernobyl). Der unsachgemäße Umgang mit Abfällen und Abwässern kann bei radionuklidhaltigen Materialien weitestgehend ausgeschlossen werden. Alle Abfälle werden in speziellen Bereichen gelagert und sind über geeignete Barrieren eingedämmt.

8.3.2 Atmosphärische Deposition

Radionuklide können auch über Niederschläge in den Boden gelangen, falls es zu einer unbeabsichtigten Freisetzung gekommen ist. Dabei können Schnee oder Regen die Radionuklide aus den Wolken auswaschen, was als nasse Deposition bezeichnet wird. Unter trockener Deposition ist die Sedimentation (Fallout) und die Impaktion (Anlagern an Hindernisse in der Flugbahn der Teilchen) zu verstehen.

Eine weitere Form der Ablagerung ist die okkulte Deposition, bei der die atmosphärisch-getragene Bestandteile sich als Nebel oder Tau niederschlagen. Die Deposition von Schadstoffen aus der Luft setzt eine atmosphärische Freisetzung und einen eventuellen Transport voraus. Dieser wird in Kap. 7 behandelt.

Trockene Deposition

Unter trockener Deposition ist zunächst die Sedimentation von Feststoffen (Stäuben), Gasen und Aerosolen zu verstehen. Dabei spielt die Schwerkraft die Hauptrolle. Diese wächst mit der Teilchenmasse, daher ist die Sedimentation nur für Korngrößen von mehr als 10 µm relevant. Die Sedimentationsgeschwindigkeit v_s errechnet sich nach Stokes:

$$v_s = \frac{(\rho_p - \rho_L)d^2g}{18\eta} \quad (8.28)$$

ρ_L	Luftdichte
ρ_p	Partikeldichte
d	Partikeldurchmesser
g	Erdbeschleunigung
η	dynamische Viskosität der Luft

Für Partikel $< 1 \mu\text{m}$ ist die Stokes-Gleichung nicht mehr exakt und muss mit einem Korrekturfaktor versehen werden. Wird der Zähler um den Cunningham-Korrekturfaktor K_C erweitert, behält die Gleichung ihre Gültigkeit (dabei ist λ die freie Weglänge der Gasmoleküle):

$$K_C = 1 + \frac{2,52\lambda}{d_p} \quad (8.29)$$

Alle kleineren Partikel sind der Bewegung der Luftströmung unterworfen. Diese muss bei der Ablagerung berücksichtigt werden. Das geschieht über die Depositionsgeschwindigkeit. Die Depositionsgeschwindigkeit v_D lässt sich aus dem Teilchenfluss zum Boden F und der Konzentration in der Bodennahen Luft C_{BN} bestimmen:

$$v_D = \frac{F}{C_{BN}} \quad (8.30)$$

Die Angaben des Flusses und der Konzentration sind in $\text{g/m}^2\text{s}$ bzw. g/m^3 oder in $\text{Bq/m}^2\text{s}$ bzw. Bq/m^3 . Die Depositionsgeschwindigkeit ist abhängig von der Teilchengröße, dem Turbulenzzustand der Atmosphäre (Schubspannungsgeschwindigkeit) und der Rauigkeit und Feuchtigkeit der Oberfläche /MÜL 07/. Die trockene Deposition lässt sich ebenfalls mit Widerständen beschreiben /BAN 09/.

$$v_D = \frac{1}{r_A + r_D + r_A r_D v_s} + v_s \quad (8.31)$$

r_A	turbulente Transferwiderstand
r_D	quasi laminare Transferwiderstand
v_s	Sedimentationsgeschwindigkeit

In der Tab. 8.4 sind typische Depositions- und Sedimentationsgeschwindigkeiten in Abhängigkeit von der Partikelgröße angegeben.

Tab. 8.4 Depositions- und Sedimentationsgeschwindigkeiten in Abhängigkeit von der Partikelgröße

Partikeldurchmesser in μm	Depositionsgeschwindigkeit v_d [m/s]	Sedimentationsgeschwindigkeit v_s [m/s]
kleiner 2,5	0,001	0
2,5 bis 10	0,01	0
10 bis 50	0,05	0,04
größer 50	0,2	0,15

Der dominante Prozess zur Ablagerung von Teilchen $< 1 \mu\text{m}$ ist die Impaktion. Dabei stellen Gebäude und Pflanzen Hindernisse dar.

Durch trockene Deposition abgelagerte Stoffe können durch den Wind weitertransportiert werden. Dieser Prozess wird *Resuspension* bezeichnet. Dadurch kann sich nachträglich die Verteilung der Radionuklide ändern. Dieses Phänomen tritt vermehrt in trockenen Regionen der Erde auf. In Mitteleuropa ist es aufgrund der hohen Bodenfeuchte weitgehend ausgeschlossen /BAY 06a/.

Nasse Deposition

Die nasse Deposition findet über Niederschläge (Regen, Schnee, Hagel) statt. Dabei spielen die Partikeleigenschaften wie Größe, Form, Dichte, usw. und die gegenwärtigen Niederschlags- (Intensität, Tropfengröße) und Wolkeneigenschaften (Wassergehalt) eine Rolle. In der Nassdeposition sinkt die Konzentration C eines Stoffes i mit der Zeit wie:

$$\frac{dC_i}{dt} = -\Lambda_i C_{i0} \quad (8.32)$$

Dabei ist Λ_i der Auswaschkoeffizient. Bei der nassen Deposition wird die Art der Niederschlagsbildung unterschieden. Wäscht der Niederschlag von höher gelegenen Wolken-schichten die Partikel aus der Schadstoffwolke heraus, handelt es sich um *Wash-Out*. Beim *Rain-Out* vermischt sich die Schadstoffwolke mit der Regenwolken-schicht. Die Schadstoffe stellen Kondensationskeime dar und beim Absinken der Temperatur unter

den Taupunkt regnen diese als Niederschlag ab. Diese Art der Verbreitung der Radionuklide ist sehr effektiv, wie der Unfall von Tschernobyl 1986 gezeigt hat. Die dort freigesetzten Radionuklide haben sich über einen großen Teil Mitteleuropas verteilt.

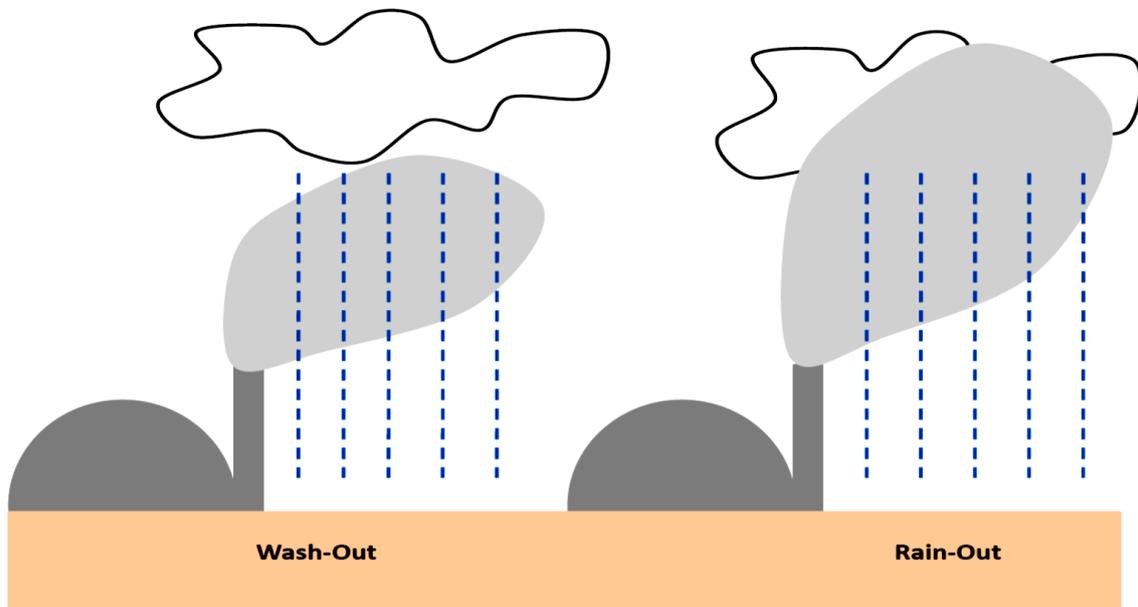


Abb. 8.10 Nasse Deposition über Wash-Out und Rain-Out

Okkulte Deposition

Die okkulte Deposition spielt bei der Verbreitung von Radionukliden eine untergeordnete Rolle. Bei der okkulten Deposition handelt es sich um den Niederschlag von Schadstoffen aus der Atmosphäre über Tau, Raureif oder über das Auskämmen von Nebelschwad den an Baumkronen.

Eine Folge der nassen und okkulten Deposition von Radionukliden aus der Atmosphäre ist die Interzeption. Dabei handelt es sich um das Anhaften von radioaktiven Partikeln auf der ansässigen Vegetation. Gefahr besteht dabei besonders bei Pflanzen aus der Nahrungskette des Menschen. Der Grad der Interzeption hängt vom Entwicklungsgrad der Pflanze, der Regenmenge und von den Sorptionseigenschaften des jeweiligen Radionuklides ab. Je größer die Vegetationsdichte und je weiter die Pflanze entwickelt ist, desto höher ist die Interzeption. Bei erhöhter Niederschlagsmenge sinkt die Interzeption, da der Regen die sorbierten Stoffe wieder abwäscht. Die Pflanzen können im Boden abgelagerte Schadstoffe auch über die Wurzel aufnehmen. Dadurch können Radionuklide (über Tierfutter oder direkt) ebenfalls in die menschliche Nahrungskette gelangen.

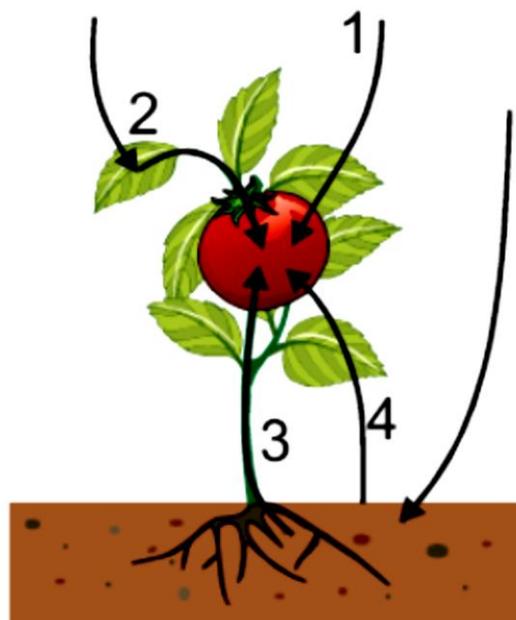


Abb. 8.11 Pfade zur Kontamination von Pflanzenprodukten

/BAY 06b/

In Abb. 8.11 sind die möglichen Kontaminationswege für pflanzliche Produkte angegeben:

1. Direkte Deposition auf dem Pflanzenprodukt,
2. Deposition auf dem Blattwerk und anschließender Transport (Translokation) zum Pflanzenprodukt,
3. Deposition auf dem Boden und Aufnahme und Transport über die Wurzel zum Pflanzenprodukt,
4. Deposition und Resuspension (durch Wind oder Regenwasser).

8.4 Rechenmodelle

Alle Rechenmodelle, die den Stofftransport im Boden und Grundwasser beschreiben, basieren im Wesentlichen auf der Lösung der Darcy- bzw. der Richards-Gleichung. Andere Ansätze bevorzugen die Betrachtung der Diffusion beim Aufstellen der Transportgleichung. Die partiellen Differentialgleichungen sind meist nicht analytisch lösbar und werden durch numerische Modelle genähert. Dabei kommen vor allem die Methoden der finiten Differenzen (FDM), der finiten Volumen (FVM) und der finiten Elemente (FEM) zum Einsatz (für Details siehe /HOL 96/). Es gibt zahlreiche Computerprogramme zur Simulation der Grundwasserströmung und des Schadstofftransports. Im Folgenden ist eine Auswahl zusammengestellt, die jeweilige Methodik wird in kurzer Form dargestellt.

8.4.1 Die finite Differenzen-Methode

Bei der finiten Differenzen-Methode werden die analytischen Ausdrücke der zu lösenden partiellen Differentialgleichungen durch algebraische Ausdrücke ersetzt. Dieser Prozess wird als Diskretisierung bezeichnet. Diese diskretisierten Ausdrücke sind nur Näherungen für die analytischen Ausdrücke und folglich ist das Ergebnis ebenfalls eine Näherung. Es gilt den Fehler bei der Diskretisierung, so wie bei der Berechnung der punktuellen Funktionswerte zu minimieren. Das Modellgebiet wird mit einem Gitter versehen. Die Gitterlinien werden üblicherweise parallel zu den Koordinatenachsen gewählt, mit äquidistanten Knotenpunkten der Schrittweite Δx .

Die analytischen Ausdrücke können aus einer Taylor-Entwicklung abgeleitet werden, wobei sich die Genauigkeit mit der verwendeten Ordnung erhöht. Ist der Funktionswert $f(x)$ an der Stelle x bekannt, können die Werte für $x+\Delta x$ und $x-\Delta x$ mit der Taylor-Entwicklung approximiert werden:

$$f(x + \Delta x) = f(x) + \frac{\Delta x}{1!} f'(x) + \frac{(\Delta x)^2}{2!} f''(x) \quad (8.33)$$

$$f(x - \Delta x) = f(x) - \frac{\Delta x}{1!} f'(x) + \frac{(\Delta x)^2}{2!} f''(x) \quad (8.34)$$

Mit steigender Ordnung der Taylor-Entwicklung werden die einzelnen Terme immer kleiner. Der Ausdruck für die erste Ableitung kann dann wie folgt dargestellt werden:

$$f'(x) = \frac{f(x+\Delta x)-f(x)}{\Delta x} + \left(-\frac{(\Delta x)}{2!} f''(x) - \frac{(\Delta x)^2}{3!} f'''(x) \right) \quad (8.35)$$

$$f'(x) = \frac{f(x)-f(x-\Delta x)}{\Delta x} + \left(+\frac{(\Delta x)}{2!} f''(x) - \frac{(\Delta x)^2}{3!} f'''(x) \right) \quad (8.36)$$

Die Terme in der Klammer werden von der Größenordnung der Gitterweite Δx dominiert. Die Ausdrücke

$$f'(x) = \frac{f(x+\Delta x)-f(x)}{\Delta x} + \mathcal{O}(\Delta x) \quad f'(x) = \frac{f(x)-f(x-\Delta x)}{\Delta x} + \mathcal{O}(\Delta x) \quad (8.37)$$

werden vorwärtiger und rückwärtiger oder rechtsseitiger und linksseitiger Differenzenquotient der ersten Ableitung erster Ordnung bezeichnet. Aus der Differenz der beiden lässt sich der zentrale Differenzenquotient der ersten Ableitung, zweiter Ordnung bilden:

$$f'(x) = \frac{f(x+\Delta x)-f(x-\Delta x)}{2\Delta x} + \mathcal{O}(\Delta x)^2 \quad (8.38)$$

Je höher die Fehlerordnung der Schrittweite Δx , desto kleiner der Fehler. Der Ausdruck wird als „Truncated Error“ bezeichnet. Im Fall der Transportgleichung tauchen partielle Differentiationen zweiter Ordnung auf. Der Ausdruck für den zentralen Differenzenquotienten der zweiten Ableitung, zweiter Ordnung ist:

$$f''(x) = \frac{f(x+\Delta x)-2f(x)+f(x-\Delta x)}{(\Delta x)^2} + \mathcal{O}(\Delta x)^2 \quad (8.39)$$

Das Modellgebiet wird äquidistant in N Intervalle diskretisiert (x_0, x_1, \dots, x_N) , wobei x_0 und x_N den Rand des Gebietes bilden.

$$x_i = x_0 + i\Delta x \quad \text{mit } i = 1, \dots, N \quad (8.40)$$

Zu jedem der N Gitterpunkte gehört ein approximierter Funktionswert $f_i \approx f(x_i)$ für $i = 1, \dots, N - 1$.

$$f_i' \approx \frac{f_{i+1} - f_{i-1}}{2\Delta x} \quad \text{für } i = 1, \dots, N - 1 \quad (8.41)$$

Die Grenzpunkte $f(x_0)$ und $f(x_N)$ müssen durch spezielle Randbedingungen festgelegt werden. Die Berechnung erfolgt in einem linearen Gleichungssystem:

$$\begin{pmatrix} 1 & -1 & & & \\ & 1 & -1 & & \\ & & \ddots & \ddots & \\ & & & 1 & -1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} f_1 \\ f_2 \\ \vdots \\ f_N \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 2\Delta x f_1' \\ 2\Delta x f_2' \\ \vdots \\ 2\Delta x f_N' \end{pmatrix} \quad (8.42)$$

Zur Lösung des Gleichungssystems sind die Randbedingungen erforderlich. Die Anzahl der Randbedingungen entspricht dem höchsten Grad der Ableitung in die betreffende Richtung.

- Dirichlet-Randbedingung: Der Funktionswert f_0 ist am Rand vorgegeben.
- Neumann-Randbedingung: Der Fluss ist in Richtung der Rand-Normalen gegeben: $\left. \frac{\partial f}{\partial x} \right|_{x=0} = \mathcal{F}_N$. Die Diskretisierung dieses Ausdrucks erfolgt mit dem rechtsseitigen Differenzenquotienten erster Ordnung.
- Cauchy-Randbedingung: Der Fluss ist in Richtung der Rand-Normalen als Vielfaches der Potentialdifferenz $f_0 - f_a$ gegeben: $\left. \frac{\partial f}{\partial x} \right|_{x=0} + f_0 = \mathcal{F}_C$. Die Diskretisierung ist analog dem Neumann-Fall.

Bei instationären Problemen muss eine zeitliche Diskretisierung vorgenommen werden. Dabei wird in explizites und implizites Verfahren unterschieden.

Die Zeitintervalle n sind, analog den räumlichen Intervallen i , äquidistant mit Δt . Im Unterschied zu den stationären Problemen handelt es sich hier jedoch um ein Anfangswertproblem. Zusammen mit der räumlichen Beschreibung ergibt sich so ein

Anfangsrandwertproblem. Der zu berechnende Punkt muss mit mindestens zwei Nachbarn gekoppelt sein. Bei der Zeitberechnung muss nur zum jeweils vorherigen Schritt gekoppelt werden.

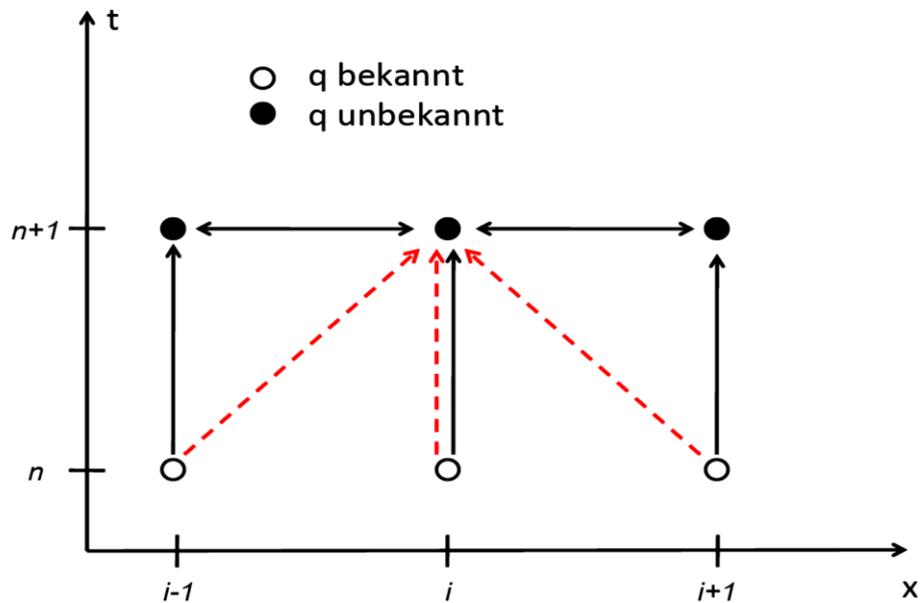


Abb. 8.12 Übersicht zur zeitlichen Diskretisierung. Rot ist die explizite Methodik, schwarz zeigt das implizite Verfahren

Damit ergibt sich für das gesamte zu betrachtende Gebiet ein lineares Gleichungssystem:

$$\frac{\partial q}{\partial t} = \frac{q^{n+1} - q^n}{\Delta t} \quad (8.43)$$

Explizites Verfahren

Beim expliziten Verfahren werden nur die zeitlich vorangegangenen Zeitschritte zur Bestimmung benötigt. Der Vorteil liegt in der einfachen und schnellen Berechnung. Der Nachteil besteht in der Entkopplung der Funktionswerte einer Zeitebene. Dadurch besteht eine Zeitbeschränkung. Fehler können sich dadurch leicht aufschaukeln und die Berechnung destabilisieren.

$$\frac{q^{n+1}-q^n}{\Delta t} = \mathcal{A}q^n \quad (8.44)$$

Implizites Verfahren

Beim impliziten Verfahren wird für jeden Zeitschritt $n+1$ ein lineares Gleichungssystem gelöst. Die benachbarten Zeitpunkte werden mitberücksichtigt. Die Methode ist weniger anfällig gegen Instabilitäten. Der Rechenaufwand ist jedoch wesentlich höher, dafür besteht keine Zeitbegrenzung.

$$\frac{q^{n+1}-q^n}{\Delta t} = \mathcal{A}q^{n+1} \quad (8.45)$$

Einige Rechenmodelle, welche die Finite-Differenzen-Methode nutzen, werden im Folgenden vorgestellt.

EMOS

Zur Modellierung der Stoffaustausch- und Transportprozesse im Nah- und Fernbereich eines Endlagers und in der Biosphäre wird der Rechencode EMOS (Endlagerbezogene Modellierung von Szenarien) verwendet. Das Programmpaket besteht aus mehreren Komponenten (s. Abb. 8.13) und erlaubt die Berechnung der Nuklidausbreitung in einem als Endlager vorgesehenen Bereich. Es wurde in den achtziger Jahren von der GRS entwickelt und wird ständig aktualisiert. In dem darin implementierten Modul REPOS (final repository) wird der Nuklidaustritt aus einem Endlager simuliert, und es können Freisetzungsberechnungen durchgeführt werden /STO 96/. Das Programmpaket LOPOS (Loop Structures in Repositories) ist ebenfalls ein Bestandteil des EMOS-Paketes. Es dient zur Berechnung der Zirkulation von wasserhaltigen Salzformationen /HIR 99/.

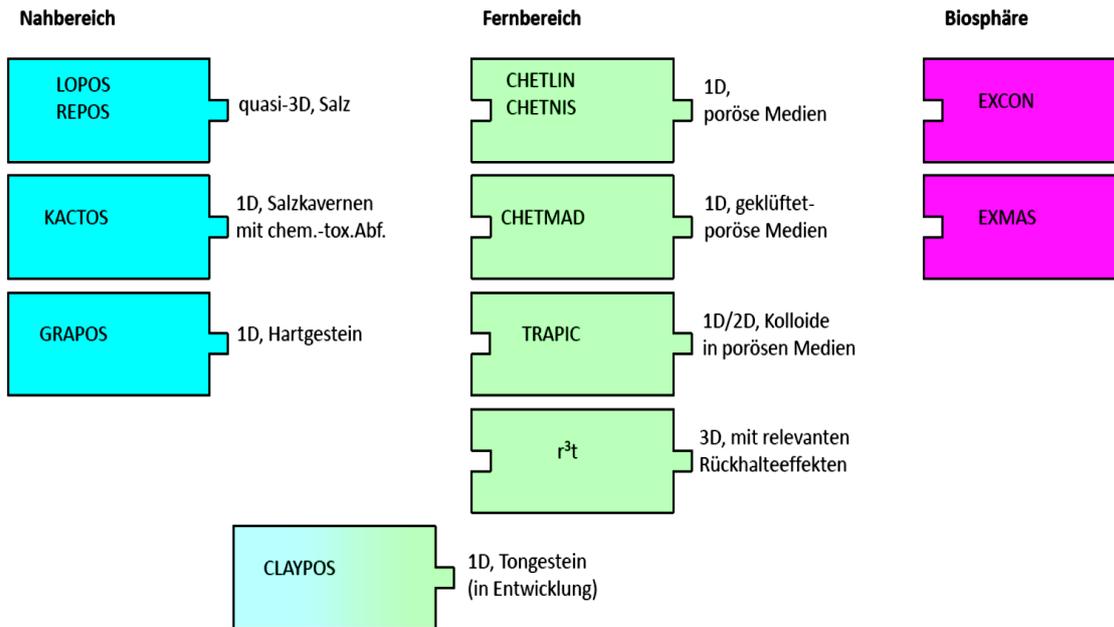


Abb. 8.13 Verfügbare Werkzeuge in EMOS

/STO 96/

TOUGH 2

Der Rechencode TOUGH 2 (Transport of unsaturated Groundwater and Heat) wurde vom LBL (USA) entwickelt und beschreibt den Stofftransport durch Naturkonvektion, hydrodynamische Dispersion und molekulare Diffusion in porösen Medien. Es wurde von der GRS zur Untersuchung des Stofftransports in der Schachanlage Konrad verwendet /JAV 95/. Der Nachteil dieses Programms liegt in der fehlenden Kompatibilität mit Monte-Carlo-Simulationen. In diesem Punkt bot EMOS eine Verbesserung.

SWIFT

Der Rechencode SWIFT (Simulator for Waste Injection, Flow and Transport) wurde von der Scientific Software Group (Sandy, Utah, USA) erstellt. Damit wurden vom GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, Neuherberg ebenfalls die möglichen Transportwege für Radionuklide aus dem Endlager Konrad untersucht /BON 04/. Er bietet die Möglichkeit einer dreidimensionalen Simulation des instationären Transports von Radionuklidketten in porösen Medien.

8.4.2 Die finite Elemente-Methode

Bei der finite Elemente Methode handelt es sich ebenfalls um ein numerisches Verfahren zur Lösung partieller Differentialgleichungen mit Randbedingungen. Der Modellraum wird in endlich viele Elemente (Dreiecke, Rechtecke oder Quader) zerlegt, die einander nicht überlappen. Beispiele von finiten Elementgittern mit dreieckigen und viereckigen Knoten ist in Abb. 8.14 gezeigt.

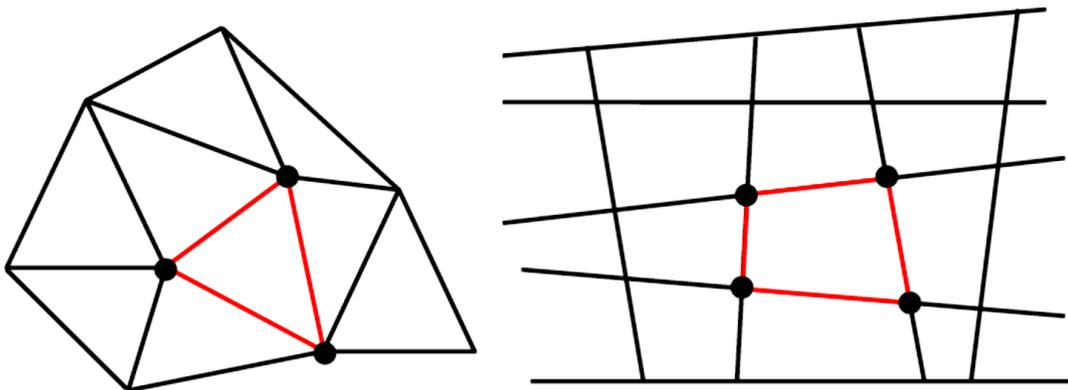


Abb. 8.14 Beispiele von finiten Elementgittern mit Knoten: links Dreiecke, rechts Vierecke

Die Basisfunktionen in diesen endlichen Volumina werden möglichst einfach gewählt (meistens Polynome), um die unbekannte Funktion als Approximation darzustellen. Je größer die Anzahl der Elemente, desto größer die Genauigkeit der Approximation aber desto größer ist auch der Rechenaufwand. Die Finite-Elemente-Methode lässt sich in drei Arbeitsschritte gliedern:

- Aufstellen des diskreten Gleichungssystems (Pre-Processing),
- Lösen dieses Gleichungssystems (Analysis),
- Verifizieren der Lösung (Post-Processing).

Die auf das Modell einwirkenden Kräfte werden auf den Anteil reduziert, der auf die Knoten wirkt. Als Knoten werden die Verbindungspunkte der finiten Elemente bezeichnet.

Um das Gleichungssystem aufzustellen, gibt es mehrere Ansätze /HOL 96/. Hier wird das Galerkin-Verfahren kurz vorgestellt. Beim Galerkin-Verfahren oder „Verfahren des

gewichteten Residuums“ wird die gesuchte Funktion f (hier in zwei Dimensionen) zunächst als gewichtete Linearkombination von N Basisfunktionen Φ dargestellt /HOL 96/:

$$f(x, y, t) = \sum_{i=1}^N \lambda_i \phi_i(x, y) \quad (8.46)$$

Die Wichtungsfaktoren λ_i sind meistens Skalare. Ihre Wahl und die Wahl der Basisfunktionen hängen mit der Wahl des Gitters zusammen. Dabei werden möglichst einfache Funktionen angestrebt. Aus dem Ansatz und der Richards-Gleichung wird das Residuum L definiert:

$$L(f) = \left[-\phi \beta S \frac{\partial}{\partial t} + \nabla K_f K \nabla \right] h + \frac{q}{\rho} = \sum_{i=1}^N -\phi \beta S \phi_i \frac{\partial \lambda_i}{\partial t} + \lambda_i [\nabla K_f K \nabla] \phi_i + \frac{q}{\rho} \quad (8.47)$$

Die Galerkin-Methode besteht darin, L zu minimieren. Dabei werden Integralkriterien mit Gewichtsfunktionen μ_j verwandt. Über einem Modellgebiet G ergibt sich:

$$\int_G L(f) \mu_j dx dy = 0 \quad j = \{1, \dots, N\} \quad (8.48)$$

Damit ergeben sich N Bestimmungsgleichungen für die λ_j Wichtungsfaktoren. Die Suche nach der Funktion f hat sich auf die Lösung eines Gleichungssystems reduziert. Bei der Unterteilung von G wird darauf Wert gelegt, dass die ϕ_i nur teilweise ungleich Null sind. Dies wird durch die Wahl des Gitters bzw. der Wahl der finiten Elemente bewerkstelligt. Die Grenzpunkte oder die Mittelpunkte der Elementkanten werden Knoten bezeichnet. Für ein einfaches Dreieckselement hat die Basisfunktion folgende Gestalt.

$$\phi_i = \begin{cases} a_{ik}x + b_{ik}y + c_{ik} & \text{in angrenzenden Elementen} \\ 0 & \text{sonst} \end{cases} \quad (8.49)$$

Der Index k bezeichnet das Element, das am Knoten i anliegt. Die Koeffizienten a_{ik} , b_{ik} , c_{ik} lassen sich eindeutig aus den Werten der Basisfunktion an den Ecken genau bestimmen. Als Basisfunktionen werden bevorzugt stückweise lineare oder quadratische Funktionen bevorzugt, um das Integrieren zu vereinfachen. Analog zu der finiten Differenz-Methode sind mit den in Kap. 7.4.1 erwähnten Randbedingungen geeignete Grenzen festzulegen. Die Lösung der FEM ergibt sich dann aus der Summe der Funktionswerte an den zugehörigen Knoten und den zugehörigen Basisfunktionen:

$$f = \sum_{i=1}^n f(\vec{r}_i) \phi_i \quad (8.50)$$

SPRING

Dieser Code nutzt die Finite Elemente-Methode um ein ein-, zwei- oder dreidimensionales Grundwasserströmungs- oder Stofftransportmodell in der ungesättigten und gesättigten Zone sowie porösen und geklüfteten Aquifern zu erstellen. Entwickelt wurde er von der delta h Ingenieurgesellschaft mbH in Dortmund.

8.4.3 Die finite Volumen-Methode

Bei der finiten Volumen-Methode werden physikalische Erhaltungsgrößen im Rechenverfahren berücksichtigt. Diese Annahmen werden konservativ bezeichnet. Beim Stofftransport durch Strömungen sind diese Erhaltungsgrößen Massen- und Energieerhaltung. Das finite Volumen-Verfahren ist eine Verallgemeinerung der finiten Differenzen-Methode auf nichtstrukturierte Gitter aus allgemeinen Vielecken.

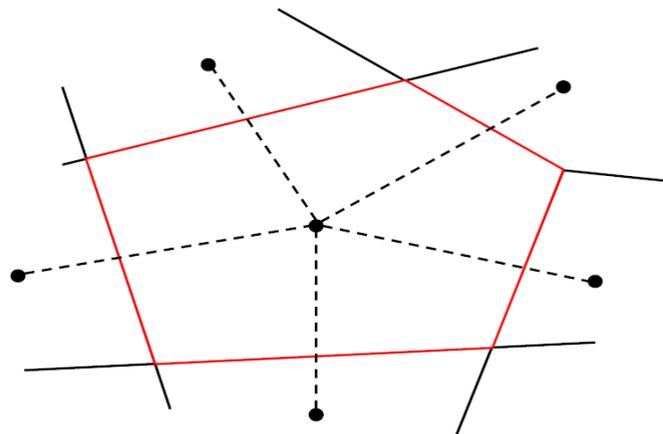


Abb. 8.15 Finites Volumenelement in einem 2D-Gitter mit Knoten

Für eine stationäre Strömung ist das Integral über das Volumen Null, da keine Quell- und Senkterme berücksichtigt werden:

$$0 = \int_V \left[\nabla(K\nabla h) + \frac{q}{\rho} \right] dV = \oint_V (K\nabla h) n dS + \int_V \frac{q}{\rho} dV \quad (8.51)$$

Über den linken Rand kann folglich folgende Näherung für das Integral gemacht werden:

$$\oint K_x \frac{\partial h}{\partial x} dy dz = \left(K_x \frac{\partial h}{\partial x} \right) \left(r - \frac{\Delta x}{2} \right) \Delta y \Delta z \quad (8.52)$$

Dabei steht r für den Elementmittelpunkt. Es können alle Parameterfunktionen innerhalb des Volumenelements als konstant gewählt werden oder es wird gemittelt. Die Mittelung über den Durchlässigkeitsbeiwert ist von entscheidender Bedeutung für die Durchlässigkeit des Gesamtsystems. Bei einer undurchlässigen Schicht ist das gesamte System undurchlässig.

FEFLOW

Das Finite Element Subsurface FLOW System-Programm des Herstellers DHI ist ein dreidimensionales Programmpaket zur Simulation der Grundwasserströmung und des Wärme- und Schadstofftransports.

d^{3f}

Das Rechenmodell d^{3f} (distributed density driven flow) wurde unter anderem bei der GRS entwickelt. Es berechnet die Grundwasserbewegung unter Berücksichtigung der Salinität für große, komplexe dreidimensionale hydrogeologische Gebiete /FEI 99/. Die Berechnung erfolgt durch finite Volumendiskretisierung.

SOLA VOF

Der Solution Algorithm - Volume of Fluid - Code wurde in den Oak Ridge National Laboratories, USA entwickelt. Er dient zur Berechnung von instationären Flüssigkeitsströmungen in zwei Dimensionen. Die Differentialgleichungen zur Strömung werden auf kleinen Skalen gelöst, in Zellen auf einer Masche.

8.5 Maßnahmen zur Eindämmung eines erfolgten Radionuklidaustritts in Boden und Grundwasser

Ist ein Austritt von radionuklidhaltigen Flüssigkeiten erfolgt, gibt es Möglichkeiten zur Dekontamination des betroffenen Bodenabschnitts. Bei oberflächigen Verschmutzungen ist in erster Linie von keiner Belastung des Grundwassers auszugehen, da die Abstandsgeschwindigkeit der Radionuklide bei weniger als einem Zentimeter im Jahr liegt. Es kommt zur sogenannten Fixation der Radionuklide im Boden. Bei dem Reaktorunglück 1986 in Tschernobyl freigesetztes ¹³⁷Cs ist heute noch fast vollständig in den obersten Bodenschichten zu finden. Ein Problem stellen allerdings Klüfte dar, an denen gelöste Stoffe (z. B. im Regenwasser) schnell in tiefere Bodenschichten gelangen können. Damit

ist bei einer Oberflächenkontamination immer die Bodenbeschaffenheit zu berücksichtigen. Die Verweildauer ist zudem noch von der Oberflächenglätte und der Neigung abhängig. Nachfolgender Niederschlag sorgt für Abwaschen und Abspülen der Schadstoffe, dem sogenannten Abwittern, und es besteht die Gefahr der Kontamination nahegelegener Oberflächengewässer.

Bei lokaler Kontamination lässt sich die betroffene Bodenschicht abtragen. Bei diffuser, großflächiger Kontamination ist dieses Vorgehen eher problematisch. Dafür können einige biologische Verfahren herangezogen werden.

Bioremediation

Die Bioremediation ist ein biologisches Verfahren zur Bodenreinigung. Dabei werden Bakterien oder Mikroben eingesetzt, die auf die kontaminierte Bodenfläche auf- bzw. eingebracht werden. Im Idealfall können diese Bakterien die Schadstoffe in harmlose Bestandteile zerlegen. Bei radioaktiver Kontamination besteht die Aufgabe der Bakterien in erster Linie in der Bindung der Radionuklide und Sorption an die Bodenmatrix.

Biosorption, Bioakkumulation

Bei der Biosorption (Bioakkumulation) handelt es sich um die Fähigkeit von Bakterien oder Pflanzen, Schadstoffe aus wässrigen Lösungen zu akkumulieren und sie dem Boden dadurch zu entziehen.

In einigen stillgelegten Uranbergwerken in Deutschland wurde die Biosorption mit verschiedenen Pflanzenarten bereits untersucht /BER 03/. Die Dekontaminationsleistung der Pflanzen ist dabei vom mobilen Anteil der Schadstoffe und vom nachlieferbaren Anteil aus dem Boden abhängig. Darüber werden der Transferfaktor T und Phytoextraktionsfaktor P definiert.

$$T = \frac{\text{Radionuklidkonzentration in der Biomasse}}{\text{Radionuklidkonzentration im Boden (mobil und nachlieferbar)}} \quad (8.53)$$

$$P = \frac{\text{über Pflanzen extrahierte Radionuklide}}{\text{mobile und nachlieferbare Radionuklide}} \quad (8.54)$$

Anhand dieser Faktoren konnten in /BER 03/ Beta-Rüben, Mairüben, Holunder, Phaseolus-Bohnen und Tabak mit hohem Transferpotential für Uran bestimmt werden. Einige Algenarten zeigen ebenfalls die Eigenschaft, Uran zu absorbieren wie z. B. in /KHA 06/

und /BHA 08/ zu lesen. Des Weiteren gibt es eine Vielzahl von Pilzen, Bakterien und Hefen, die die gleichen Eigenschaften zeigen /NAK 01/. Eine weitere Möglichkeit Uran aus Lösungen (wie aus dem Grundwasser) zu extrahieren, besteht in der Reduktion. Urandioxid liegt in verschiedenen Oxidationszuständen vor. Uran(VI)-Oxid (UO_2)²⁺ zum Beispiel ist wasserlöslich und würde sich leicht über den Grundwasserpfad ausbreiten /SUZ 06/. Durch Einsatz von Bakterien, die zur Energiegewinnung eine Reduktion von U(VI)-Oxid zu U(IV)-Oxid (UO_2) vornehmen, welches nicht wasserlöslich ist und somit im Boden adsorbiert werden kann, können belastete Grundwasserströme bereinigt werden.

Literaturverzeichnis

- /AIHA 09/ American Industrial Hygiene Association (AIHA): Current AIHA ERPG Values. 2009.
- /ANL 09/ Argonne National Laboratory (ANL): Depleted UF6 Guide. Argonne, Illinois, erreichbar unter <https://web.evs.anl.gov/uranium/guide/>, Stand von 2009.
- /ANS 97/ Ansoborlo, E., Boulaud, D., Leguen, B.: Distribution granulométrique d'aérosols d'uranium dans l'industrie française de fabrication du combustible. Radioprotection, Bd. 32, Nr. 3, S. 319–330, 1997.
- /ANS 02/ Ansoborlo, E., Chazel, V., Hengé-Napoli, M. H., Pihet, P., Rannou, A., Bailey, M. R., Stradling, N.: Determination of the Physical and Chemical Properties, Biokinetics, and Dose Coefficients of Uranium Compounds Handled During Nuclear Fuel Fabrication in France. Health Physics, Bd. 82, Nr. 3, S. 279–289, 2002.
- /ANSI 81/ American National Standard Institute (ANSI): American National Standard for Packaging of Uranium Hexafluoride for Transport. Standard ANSI N14.1-1982:1981-07, Institute of Nuclear Materials Management: New York, NY, USA, 1981.
- /ASS 79/ Assmann, H., Becker, M.: Technology of UO₂ Fuel Fabrication by the AUC Powder Process. In: European Nuclear Society (ENS), FORATOM: Kernprobleme 1979. European nuclear conference '79, Hamburg, Germany, 6. - 11. Mai 1979, S. 147, Mai 1979.
- /BAI 07/ Bailey, M. R., Ansoborlo, E., Guilmette, R. A., Paquet, F.: Updating the ICRP human respiratory tract model. Radiation protection dosimetry, Bd. 127, Nr. 1-4, S. 31–34, DOI 10.1093/rpd/ncm249, 2007.
- /BAN 09/ Banzhaf, S.: Vortrag zum Thema: Trockene und nasse Deposition. Februar 2009.

- /BAR 88/ Barber, E. J.: The Physical and Chemical Properties of Uranium Hexafluoride. In: U.S. Department of Energy (DOE): Uranium Hexafluoride - Safe Handling, Processing, and Transporting, Conference Proceedings. Oak Ridge, Tennessee, 24. - 26. Mai 1988, Conf-880558, S. 1–6, Mai 1988.
- /BAR 05/ Baron, P. A.: Aerosol measurement, Principles, techniques, and applications. A Wiley-Interscience publication, 2. Aufl., 1131 S., ISBN 0-471-78492-3, Wiley-Interscience: New York, N.Y., 2005.
- /BAU 69/ Baumgaertner, F., Philipp, H.: Die Wiederaufarbeitung von Uran-Plutonium-Kernbrennstoffen. DOI 10.5445/IR/270003595, 1969.
- /BAY 06a/ Bayerisches Staatsministerium für Umwelt: Radioaktivität, Röntgenstrahlen und Gesundheit, Strahlenschutz. Oktober 2006.
- /BAY 06b/ Bayerisches Staatsministerium für Umwelt: Pfade zur Kontamination von Pflanzenprodukten. Erreichbar unter <https://www.stmuvm.bayern.de/>, abgerufen am Oktober 2006.
- /BAY 88/ Bayer, H., Grillenberger, T.: UF₆-Release in a German Fuel Fabrication Plant - Sequence and Consequences. In: U.S. Department of Energy (DOE): Uranium Hexafluoride - Safe Handling, Processing, and Transporting, Conference Proceedings. Oak Ridge, Tennessee, 24. - 26. Mai 1988, Conf-880558, S. 61–65, Mai 1988.
- /BER 03/ Bergmann, H., Voigt, K.-D., Schonbuchner, H.: Entwicklung von Sanierungstechniken für schwermetall- und radionuklidkontaminierte Böden durch Nutzung des Kontaminantentransfers in Pflanzen, Poster. In: Kontec Gesellschaft für Technische Kommunikation mbH: KONTEC 2003: 6. Internationales Symposium "Konditionierung Radioaktiver Betriebs- und Stilllegungsabfälle" einschliesslich 6. Statusbericht des BMBF "Stilllegung und Rückbau kerntechnischer Anlagen", Proceedings. KONTEC 2003, Berlin, 19. - 21. März 2003, S. 492, ISBN 3-9806415-6-2: Hamburg, 2003.
- /BfS 14/ Bundesamt für Strahlenschutz (BfS): Stand von 2014, erreichbar unter <http://www.bfs.de/>, abgerufen 2014.

- /BGB 19/ Verordnung über die innerstaatliche und grenzüberschreitende Beförderung gefährlicher Güter auf der Straße, mit Eisenbahnen und auf Binnengewässern (Gefahrgutverordnung Straße, Eisenbahn und Binnenschifffahrt - GGVSEB) in der Fassung vom 11. März 2019 (BGBl. I 2019, S. 258).
- /BHA 08/ Bhat, S. V., Melo, J. S., Chaugule, B. B., D'Souza, S. F.: Biosorption characteristics of uranium(VI) from aqueous medium onto *Catenella repens*, a red alga. *Journal of hazardous materials*, Bd. 2008, Nr. 158, 2-3, S. 628–635, DOI 10.1016/j.jhazmat.2008.02.042, 2008.
- /BLE 03/ Bleise, A., Danesi, P. R., Burkart, W.: Properties, use and health effects of depleted uranium (DU): a general overview. *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 64, Nr. 2-3, S. 93–112, 2003.
- /BLÖ 98/ Blömer, C., König, C., Larue, J., Beuth, T.: A three-dimensional Model for Radionuclid Transport in Groundwater and its application to an Industrial Settling Pond. In: Merkel, B., Helling, C. (Hrsg.): *Uranium mining and hydrogeology II*, Proceedings of the international conference and workshop, Freiberg, Germany, September 1998. *International Uranium Mining and Hydrogeology Conference, Freiberg in Sachsen, Germany, 15. - 17. September 1998*, Vol. 2-Supplements, ISBN 3-87361-267-4: Köln, 1998.
- /BMU 04/ Sicherheitsanforderungen für Kernbrennstoffversorgungsanlagen in der Fassung von April 1997 und Juni 2004, zuletzt geändert 2004 (Handbuch Reaktorsicherheit und Strahlenschutz 3-11).
- /BMUB 12/ Allgemeine Verwaltungsvorschrift zu § 47 Strahlenschutzverordnung: Ermittlung der Strahlenexposition durch die Ableitung radioaktiver Stoffe aus kerntechnischen Anlagen oder Einrichtungen in der Fassung vom 28. August 2012 (BAnz AT 05.09.2012 B1), zuletzt geändert 2012.
- /BMUB 15/ Rahmenempfehlungen für den Katastrophenschutz in der Umgebung kerntechnischer Anlagen in der Fassung vom 19. Februar 2015 (BAnz AT 04.01.2016 B4), zuletzt geändert 2015.

- /BMVI 16/ Richtlinie für das Verfahren der Bauart-Zulassung von Versandstücken zur Beförderung radioaktiver Stoffe, von radioaktiven Stoffen in besonderer Form und gering dispergierbaren radioaktiven Stoffen, (R 003) in der Fassung vom 9. Juni 2016 (VkBfI 2016, Nr. 12, S. 430).
- /BON 04/ Bonka, D. H.: Vorlesung Radioökologie. RWTH Aachen, 2004 Sommersemester.
- /BRI 69/ Briggs, G. A.: Plume rise. AEC critical review series, TID-25075, U.S. Atomic Energy Commission, 1969.
- /BRO 97/ Brown, D. F., Dunn, W. E., Policastro, A. J., Maloney, D.: FIREPLUME Model for Plume Dispersion from Fires: Application to Uranium Hexafluoride Cylinder Fires. Argonne National Laboratory (ANL), ANL/EAD/TM-69, DOI 10.2172/510554: Argonne, Illinois, 1. Juni 1997.
- /BRÜ 97/ Brücher, W.: Numerische Studien zum Mehrfachnesting mit einem nicht-hydrostatischen Modell. Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln, Bd. 119: Köln, 1997.
- /BUN 75/ Bundesministerium der Justiz und für Verbraucherschutz (Hrsg.): Gesetz über die Beförderung gefährlicher Güter, Gefahrgutbeförderungsgesetz - GGBefG. BGBl. I, August 1975.
- /BUN 79/ Genehmigungen gemäß § 3 Abs. 1 StrISchV oder § 6 AtG Genehmigungsvoraussetzungen für die Zwischenlagerung von abgereichertem bzw. natürlichem und angereichertem Uran in Form von Uranhexafluorid (UF₆), hier: Genehmigungsvoraussetzungen und Auflagen in der Fassung vom 15. Februar 1979 (GMBI. 1979, Nr. 8, S. 91).
- /BUN 98/ Bundesministerium der Justiz und für Verbraucherschutz (Hrsg.): Gesetz über den Deutschen Wetterdienst, DWD-Gesetz. BGBl. I, Bd. 63, 2871 S., September 1998.

- /BUN 02a/ Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU): Erste Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Bundes-Immissionsschutzgesetz (Technische Anleitung zur Reinhaltung der Luft – TA Luft). GMBI. 2002, Heft 25-29, S. 511-605, 24. Juli 2002.
- /BUN 02b/ Erste Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Bundes-Immissionsschutzgesetz (Technische Anleitung zur Reinhaltung der Luft - TA Luft) in der Fassung vom 24. Juli 2002 (GMBI. 2002, Nr. 25-29, S. 511–605).
- /BUN 06/ Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Integrierten Mess- und Informationssystem zur Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt nach dem Strahlenschutzvorsorgegesetz (AVV-IMIS) in der Fassung vom 13. Dezember 2006 (BAnz. 2006, Nr. 244a).
- /BUN 08/ Gesetz zum vorsorgenden Schutz der Bevölkerung gegen Strahlenbelastung (Strahlenschutzvorsorgegesetz - StrVG) in der Fassung vom 19. Dezember 1986 (BGBl. I Nr. 69, S. 2610), zuletzt geändert durch Art. 1 Erstes ÄndG vom 8. April 2008 (BGBl. I 2008, Nr. 14, S. 686).
- /BUN 09a/ Bundesamt für Arbeitsschutz und Arbeitsmedizin (BAUA): Technische Regeln für Gefahrstoffe (TRGS). 2009.
- /BUN 09b/ Richtlinien zur Durchführung der Gefahrgutverordnung Straße, Eisenbahn und Binnenschifffahrt (GGVSEB) und weiterer gefahrgutrechtlicher Verordnungen (Durchführungsrichtlinien-Gefahrgut - RSEB) in der Fassung vom 15. Oktober 2009 (VkB I 2009, Nr. 19, S. 666).
- /BUN 09c/ Bundesamt für Strahlenschutz (BfS): Datenbank VIBS – Meldepflichtige Ereignisse in Anlagen des Kernbrennstoffkreislaufs. 2009.
- /BUN 13/ Verordnung zum Schutz vor Gefahrstoffen (Gefahrstoffverordnung - GefStoffV) in der Fassung vom 23. Dezember 2004 (BGBl. I 2004, Nr. 74, S. 3758), zuletzt geändert durch Artikel 2 der Verordnung vom 15. Juli 2013 (BGBl. I 2013, S. 2514).

- /BUN 18a/ Arbeitsplatzgrenzwerte (TRGS 900) in der Fassung vom Januar 2006 (BARbBl. 1/2006, S. 41-55), zuletzt geändert und ergänzt: GMBI 2018, Nr. 28, S. 542-545 (v. 7. Juni 2018).
- /BUN 18b/ Verordnung zum Schutz vor der schädlichen Wirkung ionisierender Strahlung (Strahlenschutzverordnung - StrlSchV) (Ersetzt V 751-1-8 v. 20.7.2001 I 1714; 2002 I 1459 (StrlSchV 2001)) in der Fassung vom 29. November 2018.
- /BUN 18c/ Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (BMUB): Verordnung über den kerntechnischen Sicherheitsbeauftragten und über die Meldung von Störfällen und sonstigen Ereignissen, Atomrechtliche Sicherheitsbeauftragten- und Meldeverordnung - AtSMV. vom 14. Oktober 1992 (BGBl. I S. 1766), zuletzt geändert durch Artikel 18 der Verordnung vom 29. November 2018 (BGBl. I S. 2034), 29. November 2018.
- /BUN 20/ Gesetz zur Suche und Auswahl eines Standortes für ein Endlager für hochradioaktive Abfälle (Standortauswahlgesetz - StandAG) (StandAG) in der Fassung von 05.05.2017, das zuletzt durch Artikel 247 der Verordnung vom 19. Juni 2020 (BGBl. I S. 1328) geändert worden ist (https://www.gesetze-im-internet.de/standag_2017), zuletzt geändert 19. Juni 2020.
- /CAM 15/ Camfil KG: Filterhandbuch 2015. 150 S., erreichbar unter , Stand von 2015.
- /CAM 17/ Camfil KG (Hrsg.): Filtertechnologie. Erreichbar unter <http://www.camfil.de/Filtertechnologie/>, abgerufen am 4. April 2017.
- /CHP 00/ U.S. Army Center for Health Promotion and Preventative Medicine (CHPPM): Depleted Uranium. Human Exposure Assessment and Health Risk Characterization, in Support of the Environmental Exposure Report „Depleted Uranium in the Gulf“ of the Office of the Special Assistant to the Secretary of Defense for Gulf War Illnesses, Medical Readiness and Military Deployments. alth Risk Assessment Consultation No. 26-MF-7555-00D, 15. September 2000.

- /DAR 04/ Darrough, M. E., Jones, R. H., Chambers, D. B., Lowe, L. M.: Analysis of Risk and Dose when using Thermal Protection on Non-Fissile and Fissile-Excepted UF₆ 48-inch Cylinder Packages. In: Proceedings of the 14th International Symposium on the Packaging and Transportation of Radioactive Materials (PATRAM): Berlin, 20. September 2004.
- /DAV 45/ Davies, C. N.: Definitive equations for the fluid resistance of spheres. Proceedings of the Physical Society, Vol. 57, No. 4, S. 259-270, 1945.
- /DEK 02/ Dekker, B. G.: Transport of UF₆ under TS-R-1. In: Proceedings of the Radioactive Materials Transport (RAMTRANS) Conference: Edinburgh (UK), 2002.
- /DEK 04/ Dekker, B. G.: Transport of UF₆ in Compliance with TS-R-1. In: Proceedings of the 14th International Symposium on the Packaging and Transportation of Radioactive Materials (PATRAM): Berlin, 20. September 2004.
- /DEK 07/ Dekker, B. G.: Industry Experience with Thermal Protectors on 48 inch UF₆ Cylinders. In: Proceedings of the 15th International Symposium on the Packaging and Transportation of Radioactive Materials (PATRAM): Miami, Florida, 21. Oktober 2007.
- /DEU 17/ Gesetz zur Suche und Auswahl eines Standortes für ein Endlager für hochradioaktive Abfälle (Standortauswahlgesetz - StandAG) (StandAG) in der Fassung von 05.05.2017, das durch Artikel 25 des Gesetzes vom 27. Juni 2017 (BGBl. I S. 1966) geändert worden ist (https://www.gesetze-im-internet.de/standag_2017/index.html), zuletzt geändert 27. Juni 2017.
- /DEU 22/ Deutscher Bundestag: Gesetz über die friedliche Verwendung der Kernenergie und den Schutz gegen ihre Gefahren (Atomgesetz - AtG) in der Fassung vom 15. Juli 1985 (BGBl. I 1985, S. 1565), zuletzt geändert durch die Bekanntmachung vom 3. Januar 2022 (BGBl. I 2022, S. 14). 2022.
- /DOE 87/ U.S. Department of Energy (DOE): Uranium Hexafluoride: Handling Procedures and Container Descriptions. ORO-651, Rev. 5, September 1987.

- /DOE 92/ U.S. Department of Energy (DOE): Hazard Categorization and Accident Analysis Techniques for Compliance with DOE Order 5480.23, Nuclear Safety Analysis Reports, Change Notice No. 1: September 1997. DOE-STD-1027-92, Dezember 1992.
- /DOE 94/ U.S. Department of Energy (DOE): Airborne Release Fractions / Rates and Respirable Fractions for Nonreactor Nuclear Facilities. Volume 1 – Analysis of Experimental Data. DOE-HDBK-3010-94, Dezember 1994.
- /DOE 99/ U.S. Department of Energy (DOE): Final Programmatic Impact Statement for Alternative Strategies for the Long-Term Management and Use of Depleted Uranium Hexafluoride, Appendix A: Chemical Forms and Properties of Uranium. DOE-EIS 0269, April 1999.
- /DÖR 02/ Dörfel, H.: Inkorporationsüberwachung auf Transurane durch Messung der Aktivitätskonzentration in der Raumluft mit festinstallierten Aerosolsammlern. Hrsg.: Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Wissenschaftliche Berichte, FZKA 6728, DOI 10.5445/IR/270051964: Karlsruhe, Mai 2002.
- /DÖR 06/ Dörfel, H., Andrasi, A., Bailey, M., Berkovski, V., Blanchardon, E., Castellani, C.-M., Hurtgen, C., Leguen, B., Malatova, I., Marsh, J., Stather, J.: General Guidelines for the Estimation of Committed Effective Dose from Incorporation Monitoring Data, Project IDEAS - EU Contract No. FIKR-CT2001-00160. Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Wissenschaftliche Berichte, FZKA 7243: Karlsruhe, August 2006.
- /DOR 95/ Dorrian, M.-D., Bailey, M. R.: Particle size distributions of radioactive aerosols measured in workplaces. Radiation protection dosimetry, Bd. 60, Nr. 2, S. 119–133, DOI 10.1093/oxfordjournals.rpd.a082709, 1995.
- /ENE 87/ Ene, H. L., Polisevski, D.: Thermal Flow in Porous Media. Reidel Publishing Company: Dordrecht, 1987.
- /EPA 04a/ U.S. Environmental Protection Agency (EPA): Acute Exposure Guideline Levels for Selected Airborne Chemicals - Volume 4, Appendix 5: Uranium Hexafluoride. 250. Aufl., ISBN 0-309-09147-0: Washington, D.C., 2004.

- /EPA 04b/ U.S. Environmental Protection Agency (EPA): Acute Exposure Guideline Levels for Selected Airborne Chemicals – Volume 4, Appendix 3: Hydrogen Fluoride. ISBN 0-309-09147-0: Washington, D.C, 2004.
- /EPA 06/ U.S. Environmental Protection Agency (EPA): Depleted Uranium. Technical Brief. EPA 402-R-06-011, Dezember 2006.
- /EPA 13/ U.S. Environmental Protection Agency (EPA): Final AEGLs. 30. Oktober 2013.
- /FEI 99/ Fein, E., Schneider, A.: d3f-Ein Programmpaket zur Modellierung von Dich-
teströmungen. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS)
gGmbH, A-139, Oktober 1999.
- /FIS 78/ Fissan, H., Helsper, C., Franzen, H.: Particle Size Distribution of Combustion Aerosols, In: „Atmospheric Pollution 1978. Proceedings of the 13th International Colloquium“ (Editor: M.M. Benarie); Studies in Environmental Science. ISBN 0-444-41691-9, Elsevier: Amsterdam, 1978.
- /FOR 82/ Fortak, H.: Meteorologie. 2. Aufl., ISBN 3-496-00506-8, Dietrich Reimer Verlag: Berlin, 1982.
- /FRI 02/ Fritsch, P., Guillet, K.: Granulometry of Aerosols Containing Transuranium Elements in the Work-place: An Estimate Using Autoradiographic Analysis. Vol. 46, Suppl. 1, S. 292-295, 2002.
- /GER 19/ Geringer, B., Tober, W. K.: Partikel bzw. Feinstaub. Institut für Fahrzeugantriebe und Automobiltechnik, Technische Universität Wien, erreichbar unter http://www.auto-umwelt.at/_luftqu/luftqu_part.htm, abgerufen am 18. März 2019.
- /GRI 88/ Grillenberger, T.: Stand der Sicherheitsvorkehrungen gegen UF6-Freisetzungen. Hrsg.: Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-A-1419, März 1988.

- /GRI 98/ Grillenberger, T.: Auswertung der Erfahrungen mit der Trockenkonversion im Vergleich zu Nassverfahren für die Konversion von UF₆ zu UO₂-Pulver. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-A-2566, März 1998.
- /GRS 81/ Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: Deutsche Risikostudie Kernkraftwerke. Fachband 8: Unfallfolgenrechnung und Risikoergebnisse, Studie im Auftrag des Bundesministeriums für Forschung und Technologie. ISBN 3-88585-019-2, Verlag TÜV Rheinland GmbH: Köln, 1981.
- /GRS 19/ Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: Handbuch zur Kritikalität, Band 2: Kritische Kurven von Uran-Systemen. GRS-380: Garching b. München, 2019.
- /GRÜ 87/ Gründler, D.: Systemanalyse Konrad, Teil 3, Bestimmung störfallbedingter Aktivitätsfreisetzung. GRS-A-1389: Köln, November 1987.
- /HEI 91/ Heinicke, W.: Sicherheitstechnischer Vergleich zwischen Nass- und Trockenkonversion von UF₆ zu sinterfähigem UO₂ für Leichtwasserreaktoren. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-A-1838, September 1991.
- /HHS 99/ U.S. Department of Health and Human Services (HHS): Toxicological Profile for Uranium. Hrsg.: Public Health Service, Agency for Toxic Substances and Disease Registry, September 1999.
- /HIN 99/ Hinds, W. C.: Aerosol Technology – Properties, Behavior, and Measurement of Airborne Particles. ISBN 0-471-19410-7, John Wiley & Sons, 1999.
- /HIR 99/ Hirsekorn, R.-P., Boese, B., Buhmann, D.: LOPOS, Programm zur Berechnung der Schadstofffreisetzung aus netzwerkartigen Grubengebäuden. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-167: Braunschweig, 1. Juni 1999.

- /HOC 05/ Hock, B. N.: Massenspektrometrische in-situ Messungen zur Bestimmung der chemischen Zusammensetzung von natürlichem und anthropogenem Aerosol, Dissertationsschrift, Fachbereich Physik. Johannes-Gutenberg-Universität Mainz, März 2005.
- /HOL 96/ Holzbecher, E.: Modellierung dynamischer Prozesse in der Hydrologie, Grundwasser und ungesättigte Zone ; eine Einführung ; mit 21 Tabellen. 211 S., ISBN 3540605169, Springer: Berlin, Mai 1996.
- /HOR 09/ Hormann, V., Fischer, H.: Materialsammlung zur internen Radio-dekontamination von Personen, Studie im Auftrag des Bundesamts für Strahlenschutz (BfS); Vorhaben Nr. 0046/07/BMS; August 2008 (überarbeitet Februar 2009). In: Ressortforschungsberichte zur kerntechnischen Sicherheit und zum Strahlenschutz, BfS-RESFOR-18/09: Salzgitter, Oktober 2009.
- /HYD 16/ hydroskript.de: Einteilung des Bodenraumes nach DIN 4049. Erreichbar unter <http://www.hydroskript.de/>, Stand von 2016.
- /IAEA 87/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Recommendations for Providing Protection During the Transport of Uranium Hexafluoride. IAEA-TECDOC-423, Juni 1987.
- /IAEA 91/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Interim Guidance on the Safe Transport of Uranium Hexafluoride. IAEA-TECDOC-608, Juni 1991.
- /IAEA 95/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Manual on Safe Production, Transport, Handling and Storage of Uranium Hexafluoride. IAEA-TECDOC-771, Januar 1995.
- /IAEA 99/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Minimization of Waste from Uranium Purification, Enrichment and Fuel Fabrication. IAEA-TECDOC-1115, 48 S.: Vienna, 1999.
- /IAEA 02/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Planning and Preparing for Emergency Response to Transport Accidents Involving Radioactive Material. IAEA Safety Standards Series No. TS-G-1.2, Juli 2002.

- /IAEA 07/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Management of reprocessed uranium: Current status and future prospects. IAEA-TECDOC, Bd. 1529, 99 S., ISBN 9201145063: Vienna, 2007.
- /IAEA 08a/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Advisory Material for the IAEA Regulations for the Safe Transport of Radi-oactive Material. IAEA Safety Standards Series No. TS-G-1.1 (Rev. 1), August 2008.
- /IAEA 08b/ International Atomic Energy Agency (IAEA): INES – The International Nuclear and Radiological Event Scale. IAEA Information Series No. 08-26941/E, 2008.
- /IAEA 09a/ IAEA: Nuclear Fuel Cycle Information System, IAEA-TECDOC-1613. International Atomic Energy Agency, IAEA TECDOC Series, Nr. 1613, 82 S.: Vienna, Austria, 2009.
- /IAEA 09b/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material. 2009 Edition. IAEA Safety Standards Series No. TS-R-1, Mai 2009.
- /IAEA 09c/ IAEA - International Atomic Energy Agency: INES – The International Nuclear and Radiological Event Scale. User's Manual, 2008 Edition. Mai 2009.
- /IAEA 12/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Experiences and Trends of Manufacturing Technology of Advanced Nuclear Fuels, IAEA-TECDOC-1686. IAEA-TECDOC, Bd. 1686, 125 S.: Wien, 2012.
- /IAEA 17/ IAEA: Safety of Nuclear Fuel Cycle Facilities. International Atomic Energy Agency (IAEA), Safety Standards Series, SSR-4, 160 S., ISBN 978-92-0-103917-0: Vienna, 2017.
- /IAEA 18/ IAEA - International Atomic Energy Agency: IAEA Safety Standards, Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material, Specific Safety requirements. IAEA Safety standards series, SSR-6 (Rev.1), International Atomic Energy Agency: Vienna, 2018.

- /ICRP 79/ International Commission on Radiological Protection (ICRP): Limits for Intakes of Radionuclides by Workers. Part 3. Hrsg.: Elsevier Science Ltd., ICRP Publication 30, Vol. 6, No. 2-3: Oxford, 1979.
- /ICRP 94a/ International Commission on Radiological Protection (ICRP): Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection. Hrsg.: Elsevier Science Ltd., ICRP Publication 66, Vol. 24, No. 1-3: Oxford, 1994.
- /ICRP 94b/ International Commission on Radiological Protection (ICRP): Dose Coefficients for Intakes of Radionuclides by Workers. Hrsg.: Elsevier Science Ltd., ICRP Publication 68, Vol. 24, No. 4: Oxford, 1994.
- /ICRP 95a/ International Commission on Radiological Protection (ICRP): Age-dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides. Part 4: Inhalation Dose Coefficients. Hrsg.: Elsevier Science Ltd., Vol. 25, No. 3-4: Oxford, 1995.
- /ICRP 95b/ International Commission on Radiological Protection (ICRP): Age-dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides. Part 3: Ingestion Dose Coefficients. Hrsg.: Elsevier Science Ltd., Vol. 25, No. 1: Oxford, 1995.
- /ICRP 07/ International Commission on Radiological Protection (ICRP): Supporting Guidance Document - Interpretation of Bioassay Data, ICRP Committee 2 (Doses from Radiation Exposures); Draft document. 21. Februar 2007.
- /IGE 09/ IGEWA GmbH.: Durchlässigkeitsbeiwert von Böden. April 2009.
- /ILK 00/ Internationale Länderkommission Kerntechnik (ILK) der Bundesländer Baden-Württemberg, Bayern und Hessen: ILK-Stellungnahme zur Beförderung von abgebrannten Brennelementen und verglasten hochradioaktiven Abfällen. Report Nr. ILK-01 D, Juli 2000.
- /ISO 05/ International Organization of Standardization (ISO): Nuclear energy - Packaging of uranium hexafluoride (UF₆) for transport. ISO 7195:2005; 2nd Edition, 1. September 2005.

- /JAV 95/ Javert, V.: Orientierende Analysen zum Nuklidtransport durch Naturkonvektion, Gesteinskonvergenz und Dispersion in porösen Medien mit dem Rechenprogramm TOUGH 2. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, A-2240, Mai 1995.
- /JUS 88/ Just, R. A.: Acute Toxicity of Uranium Hexafluoride, Uranyl Fluoride and Hydrogen Fluoride, In: Proceedings of the conference „Uranium Hexafluoride - Safe Handling, Processing, and Transporting“ (Editors: W.D. Strunk und S.G. Thornton). CONF-880558, S. 7-10: Oak Ridge, Tennessee, 24. Mai 1988.
- /KEL 96/ Kelso, S. M., Wraight, J. C.: The measurement of aerosol size distributions (AMAD) in buildings on BNFL's Sellafield site. Hrsg.: Radiation Protection Dosimetry, Vol. 63, No. 2, S. 127-131, 1996.
- /KER 16/ KTA Begriffe-Sammlung (2016-06) (KTA-GS-12) zuletzt geändert Juni 2016.
- /KHA 06/ Khani, M. H., Keshtkar, A. R., Meysami, B., Zarea, M. F., Jalali, R.: Biosorption of uranium from aqueous solutions by nonliving biomass of marine algae *Cystoseria indica*. Electronic Journal of Biotechnology, Bd. 2006, Nr. 2, S. 100–106, DOI 10.2225/vol9-issue2-fulltext-8, 2006.
- /KOI 99/ Koinig, H.: Referenzszenarien zur Richtlinie 96/82/EG, erstellt im Auftrag des Bundesministeriums für Umwelt, Jugend und Familie. Wien, 1999.
- /KOT 94/ Kotthoff, K.: Internationale Bewertungsskala für bedeutsame Ereignisse in kerntechnischen Einrichtungen. Benutzerhandbuch. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-111, ISBN 3-923875-61-4, Juni 1994.
- /KRÜ 99/ Krüger, T.: Simulation der Ausbreitung von Schadstoffen in der Atmosphäre unter Einsatz zellulärer Automaten. Westfälische Wilhelms-Universität Münster, Institut für Geoinformatik, IfGI prints, Band 4, Mai 1999.
- /KTA 05/ Sicherheitstechnische Regeln des KTA in der Fassung von 2013 (2013), zuletzt geändert 2005.

- /KTA 06/ Kerntechnischer Ausschuß (KTA): Instrumentierung zur Ermittlung der Ausbreitung radioaktiver Stoffe in der Atmosphäre, Sicherheitstechnische Regel des KTA. KTA 1508, BAnz Nr. 245b, 30. Dezember 2006.
- /LAF 74a/ Lafuma, J.: Les Radioéléments Inhalés. Vol. 9, No. 1, S. 15-25, 1974.
- /LAF 74b/ Lafuma, J., Nenot, J. C., Morin, M., Masse, R., Metivier, H., Nobile, D., Skupinski, W.: Respiratory carcinogenesis in rats after inhalation of radioactive aerosols of actinides and lanthanides in various physicochemical forms. Hrsg.: Springer Verlag, Experimental Lung Cancer: Carcinogenesis and Bioassays, (Editors: E. Karbe und J.F. Park): Berlin, Heidelberg, New York, 1974.
- /LAF 75/ Lafuma, J., Nenot, J. C., Morin, M., Masse, R., Metivier, H., Nobile, D.: An experimental study on the toxicity of several radionuclides inhaled at different doses. Amsterdam, 13. Mai 1975.
- /LAN 04/ Landesanstalt für Umweltschutz Baden-Württemberg: Leitfaden zur Beurteilung von TA Luft – Ausbreitungsrechnungen in Baden-Württemberg. Ergänzt Dezember 2004, August 2004.
- /LIE 01/ Lieser, K.-H.: Nuclear and Radiochemistry, Fundamentals and Applications. 2. Aufl., ISBN 3-527-30317-0, Wiley-VCH: Weinheim, 2001.
- /LOH 98/ Lohmeyer, A., Rühling, A.: Modellierung des Ausbreitungsverhaltens von luftfremden Schadstoffen / Gerüchen bei niedrigen Quellen im Nahbereich, FuE-Vorhaben im Auftrag des Sächsischen Landesamtes für Umwelt und Geologie. Ingenieurbüro Dr.-Ing. Achim Lohmeyer GmbH & Co. KG: Karlsruhe und Dresden, Dezember 1998.
- /LUC 89/ Luckner, L., van Genuchten, M. T., Nielsen, D. R.: A consistent set of parametric models for the two-phase flow of immiscible fluids in the subsurface. Water Resources Research, Bd. 1989, Nr. 10, S. 2187–2193, DOI 10.1029/WR025i010p02187, 1989.

- /MAG 00/ Magill, J.: Nuclides 2000, An Electronic Chart of the Nuclides on CD-ROM. Atw. Internationale Zeitschrift für Kernenergie, Bd. 45, Nr. 10, S. 599–602, 2000.
- /MAN 04/ Manier, G.: Die Atmosphäre. Technische Universität Darmstadt, Institut für Meteorologie, Vorlesungsskript, Sommersemester, 2004.
- /MAR 12/ Martens, R., Brücher, W., Richter, C., Sentuc, F.-N., Sogalla, M., Thielen, H.: Erweiterung und Validierung von ARTM für den Einsatz als Ausbreitungsmodell in AVV und SBG. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-A-3637, Februar 2012.
- /MAS 19/ Masson, O., Steinhauser, G., Zok, D., Saunier, O., Angelov, H., Babić, D., Bečková, V., Bieringer, J., Bruggeman, M., Burbidge, C. I., Conil, S., Dalheimer, A., Geer, L.-E. de, Vismes Ott, A. de, et al.: Airborne concentrations and chemical considerations of radioactive ruthenium from an undeclared major nuclear release in 2017. Proceedings of the National Academy of Sciences, Bd. 116, Nr. 34, S. 16750, DOI 10.1073/pnas.1907571116, 2019.
- /MAX 01/ Max, A.: Verbleib und Nutzung von Tails-Uran, BMU-Schriftenreihe Reaktorsicherheit und Strahlenschutz. BMU-2001-556, 2001.
- /MCQ 88/ McQuire, S. A.: A Regulatory Analysis on Emergency Preparedness for Fuel Cycle and Other Radioactive Material Licensees. U.S. Nuclear Regulatory Commission (U.S.NRC), NUREG-1140, Januar 1988.
- /MOR 06/ Morss, L. R., Edelstein, N. M., Fuger, J., Katz, J. J.: The Chemistry of the Actinide and Transactinide Elements. ISBN 9781402035555, DOI 10.1007/1-4020-3598-5, Springer: Dordrecht, 2006.
- /MÜL 07/ Müller, H.: Transportmechanismen von Radionukliden in der Umwelt. Präsentation, GSF, 2007.
- /NAK 01/ Nakajima, A.: Effect of selenium on uranium biosorption. Bd. 2001, 247, 2, S. 347–350, DOI 10.1023/A:1006709803055, 2001.

- /NEI 15/ NEI: Fuel review, Design Data. Nuclear Engineering International, September, 2015.
- /NES 78/ Nester, K.: WINDOW – Ein Computerprogramm zur Berechnung von Statistiken der integrierten Schadstoffkonzentration in der Atmosphäre an Aufpunkten in der Umgebung einer Einzelquelle. Kernforschungszentrum Karlsruhe, Hauptabteilung Sicherheit, KfK-2547, März 1978.
- /NOV 19/ Novotech Enterprises Limited: Camfil Filters. Erreichbar unter <https://twitter.com/novotechz?lang=de>, Stand von 2019.
- /NRC 86a/ U.S. Nuclear Regulatory Commission (U.S.NRC): Rupture of Model 48Y UF6 Cylinder and Release of Uranium Hexafluoride. Sequoyah Fuels Facility, Gore, Oklahoma, January 4, 1986. NUREG-1179, Vol. 1, Februar 1986.
- /NRC 86b/ U.S. Nuclear Regulatory Commission (U.S.NRC): Assessment of the Public Health Impact From the Accidental Release of UF6 at the Sequoyah Fuels Corporation Facility at Gore, Oklahoma. NUREG-1189, Vol. 1, März 1986.
- /NRC 90/ U.S. Nuclear Regulatory Commission (U.S.NRC): Evaluation of Health Effects in Sequoyah Fuels Corporation Workers from Accidental Exposure to Uranium Hexafluoride. NUREG/CR-5566, Mai 1990.
- /NRC 91/ U.S. Nuclear Regulatory Commission (U.S.NRC): Chemical Toxicity of Uranium Hexafluoride Compared to Acute Effects of Radiation. NUREG-1391, Februar 1991.
- /NRC 86c/ U.S. Nuclear Regulatory Commission (U.S.NRC): Rupture of Model 48Y UF6 Cylinder and Release of Uranium Hexafluoride. Cylinder overfill, March 12-13, 1986. Investigation of a failed UF6 shipping container. NUREG-1179, Vol. 2, Juni 1986.
- /NUC 06/ Nuclear Engineering International: World Nuclear Industry Handbook 2006. 2006.

- /NUK 89/ NUKEM GmbH: Untersuchungen von Korngrößenverteilungen radioaktiver Stäube an Arbeitsplätzen und an Quellen, die radioaktiven Staub in die Umwelt emittieren, und Ermittlung der Lungenretentionsklasse von radioaktiven chemischen Stoffen durch Laborverfahren. Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU), BMU-Schriftenreihe Reaktorsicherheit und Strahlenschutz, BMU-1989-211, 1989.
- /PAS 61/ Pasquill, F.: The Estimation of the Dispersion of Windborne Material. Meteorological Magazine 90, S. 33-49, 1961.
- /PFE 98/ Pfenning, G., Klewe-Nebenius, H., Seelmann-Eggebert, W.: Karlsruher Nuklidkarte. Institut für Instrumentelle Analytik, Forschungszentrum Karlsruhe GmbH: Karlsruhe, Dezember 1998.
- /PIE 01/ Pielke, R. A.: Mesoscale meteorological modeling, 2nd Edition. ISBN 0-12-554766-8, Academic Press, Inc: Orlando, 2001.
- /PIS 00/ Pischinger, R.: Referenzszenario ‚Ausbreitung toxischer Gase‘ für Zwecke der Raumordnung/Flächenwidmung nach Artikel 12 der ‚Seveso II-Richtlinie‘, Erstellt im Auftrag der Landesregierungen der Bundesländer Kärnten, Salzburg, Tirol, Steiermark, Vorarlberg und Wien sowie der Stadt Linz. Technische Universität Graz, Institut für Verbrennungskraftmaschinen und Thermodynamik, Bericht Nr. Pi-46/2000 Ba-99/13-1/630, Oktober 2000.
- /RID 05/ Ridder, K.: 1984: Uran-Frachter sank im Ärmelkanal. Der Gefahrgut-Beauftragte, Bd. 16, Nr. 8, S. 9, 2005.
- /RIL 16/ Riley, B. J., Vienna, J. D., Strachan, D. M., McCloy, J. S., Jerden, J. L.: Materials and processes for the effective capture and immobilization of radioiodine, A review. Journal of Nuclear Materials, Bd. 470, S. 307–326, DOI 10.1016/j.jnucmat.2015.11.038, 2016.

- /RIN 88/ Ringot, C., Hamard, J.: The Toxic and Radiological Risk Equivalence Approach in UF₆ Transport, In: Proceedings of the conference „Uranium Hexafluoride - Safe Handling, Processing, and Transporting“ (Editors: W.D. Strunk und S.G. Thornton). CONF-880558, S. 29-36: Oak Ridge, Tennessee, 24. Mai 1988.
- /ROE 00/ Roedel, W.: Physik unserer Umwelt: Die Atmosphäre. 3. Aufl., ISBN 3-540-67180-3: Berlin, Heidelberg, 2000.
- /ROT 82/ Roth, L., Weller, U.: Gefährliche Chemische Reaktionen. Hrsg.: Ecomed Verlagsgesellschaft, Lose-Blatt-Sammlung, 28. Ergänzungslieferung, 3/99: Landsberg/Lech, 1982.
- /RUM 72/ Rumpf, H.: Zerkleinern, in: Ullmanns Encyklopadie der technischen Chemie. Band 2, 1972.
- /SEE 83/ Seehars, H. D., Hochrainer, D.: Durchführung von Experimenten zur Unterstützung der Annahmen zur Freisetzung von Plutonium bei einem Flugzeugabsturz. Fraunhofer-Institut für Umweltchemie und Ökotoxikologie, Schriftenreihe Reaktorsicherheit und Strahlenschutz, 1983.
- /SEI 95/ Seibel, C., Maßmeyer, K.: Berechnung von Windfeldern über Nordrhein-Westfalen mit einem massenkonsistenten Windfeldmodell, Staub - Reinhaltung der Luft 55. S. 205-210, 1995.
- /SHI 97/ Shirai, K., Wataru, M., Pinton, E., Duret, B.: Mechanical evaluation of a natural UF₆ transport cylinder vessel at high temperature. In: Transactions of the 14th International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology (SMiRT 14): Lyon, 17. August 1997.
- /SOM 19/ Sommer, F.: Handbuch zur Störfallanalyse von nuklearen Ver- und Entsorgungseinrichtungen, Teil A - Grundlagen der Störfallanalyse. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-507, ISBN 978-3-946607-92-2, April 2019.

- /SPE 21/ Spektrum.de: Lexikon der Physik - Gaszentrifuge. Erreichbar unter <https://www.spektrum.de/lexikon/physik/gaszentrifuge/5591>, abgerufen am 20. Juli 2021.
- /SPR 77/ Sprung, J. L., Church, H. W.: Sensitivity of the Reactor Safety Study Consequence Model to Mixing Heights. Sandia National Laboratories, Technical Report SAND-76-0618, NUREG-0174: Albuquerque, NM (USA), 1977.
- /SSK 85/ Strahlenschutzkommission (SSK): Zur Toxizität inhalierter heißer Partikel, insbesondere von Plutonium, Empfehlung der SSK, Bonn, 19. Februar 1976. ISBN 3-437-11034-9, Gustav-Fischer Verlag: Stuttgart / New York, 1985.
- /SSK 89/ Strahlenschutzkommission (SSK): Strahlenexposition und Strahlengefährdung durch Plutonium. Veröffentlichungen der SSK, Band 14, Gustav-Fischer Verlag: Stuttgart / New York, 1989.
- /SSK 94/ Strahlenschutzkommission (SSK): Bekanntmachung einer Empfehlung der Strahlenschutzkommission: Neufassung des Kapitels 4 "Berechnung der Strahlenexposition" der Störfallberechnungsgrundlagen für die Leitlinien zur Beurteilung der Auslegung von Kernkraftwerken mit DWR gemäß § 28, Abs. 3 StrlSchV. Bundesanzeiger, Nr. 222a, 26. November 1994.
- /STE 95/ Steffany, F.: Verfahren zur Diagnose und Prognose anthropogener Klimamodifikationen in der Meso- und Mikroskala. Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln, Heft 103, 1995.
- /STE 98/ Stellman (Editor), J. M.: Encyclopaedia of Occupational Health and Safety, 4th Edition; Volume I, Part I, Chapter 10: Respiratory System. ISBN 92-2-109814-1, International Labour Organization (ILO): Genf, 1998.

- /STO 96/ Storck, R., Buhmann, D., Hirsekorn, R.-P., Kühle, T., Lührmann, L.: Das Programmpaket EMOS zur Analyse der Langzeitsicherheit eines Endlagers für radioaktive Abfälle, Version 5, BMBF-Vorhaben, FKZ 02E85223. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-122, 345 S.: Braunschweig, 1996.
- /STO 07/ Stocker, T.: Einführung in die Klimamodellierung, Vorlesungsskript, Sommersemester. Universität Bern, Physikalisches Institut, 2007.
- /SUZ 06/ Suzuki, Y., Suko, T.: Geomicrobiological factors that control uranium mobility in the environment: Update on recent advances in the bioremediation of uranium-contaminated sites. *Journal of Mineralogical and Petrological Sciences*, Bd. 2006, 101, 6, S. 299–307, DOI 10.2465/jmps.060322, 2006.
- /TAM 99/ Tamm, E., Mimre, A., Sievert, U., Franken, D.: Aerosol Particle Concentration and Size Distribution Measurements of Test-Fires as Background for Fire Detection Modelling, Tagungsband der 11. Internationalen Konferenz über automatische Brandentdeckung (AUBE '99), Duisburg. ISBN 3-926875-31-3, Joachim Agst Verlag: Moers, März 1999.
- /TAY 15/ Taylor, R. (Hrsg.): *Reprocessing and Recycling of Spent Nuclear Fuel*. ISBN 978-1-78242-212-9, Woodhead: Cambridge, 2015.
- /TAY 87/ Taylor, P. A., Mason, P. J., Bradley, E. F.: Boundary-layer flow over low hills. *Boundary-Layer Meteorology*, Bd. 39, Nr. 1-2, S. 107–132, 1987.
- /TEC 85/ Technischer Überwachungs-Verein (TÜV) Rheinland: *Sicherheitstechnische Fragen bei der Handhabung von UF₆ Behältern in Urananreicherungsanlagen und Brennelementfabriken*. 1985.
- /THE 71/ The Air Pollution Control Association: *Proceedings of the Second International Clean Air Congress*. Washington, DC, 6. - 11. Dezember 1970, ISBN 9781483272436, Academic Press; Elsevier Science: Burlington, 1971.

- /THI 02/ Thielen, H., Martens, R., Schatzmann, M., Leitl, B., Barthel, R., Lohmeyer, A., Stockhause, M.: Untersuchungen zur Festlegung von Parametern für die Modellierung der Radonfreisetzung aus bodennahen Flächenquellen. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-A-3039, September 2002.
- /THI 03a/ Thielen, H., Martens, R., Maßmeyer, K., Biesold, H.: Modellierung der atmosphärischen Ausbreitung von Radon und Schwebstaub aus bergbaulichen Hinterlassenschaften, Fachband. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-A-3152, September 2003.
- /THI 03b/ Thielen, H., Martens, R., Biesold, H.: Leitfaden zur radiologischen Untersuchung und Bewertung bergbaulicher Altlasten, Leitfadenelement Modellierung der atmosphärischen Ausbreitung von Radon und Schwebstaub aus bergbaulichen Hinterlassenschaften. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-A-3129, Februar 2003.
- /THO 91a/ Thomas, W.: Sicherheitsanforderungen für Urananreicherungsanlagen nach dem Gasultrazentrifugenprinzip. Hrsg.: Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-A-1869, Dezember 1991.
- /THO 91b/ Thomas, W.: "Sicherheitsanforderungen für die Herstellung von Leichtwasserreaktor-Brennelementen mit niedrig angereichertem Uran", GRS-A-1460, Auftragsnummer: 84731. Dezember 1991.
- /THO 76a/ Thomas, P., Hübschmann, W., König, L. A.: Experimental Determination of the Atmospheric Dispersion Parameters over Rough Terrain. Part 1: Measurements at the Karlsruhe Nuclear Research Center. Kernforschungszentrum Karlsruhe, KfK-2285, Juli 1976.
- /THO 76b/ Thomas, P., Nester, K.: Experimental Determination of the Atmospheric Dispersion Parameters over Rough Terrain. Part 2: Evaluation of Measurements. Kernforschungszentrum Karlsruhe, KfK-2286, Juni 1976.
- /THO 94/ Thomas, W., Pfeffer, W., Wiesemes, J.: Entscheidungsgrundlagen bei Notfällen in Brennelementfabriken. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-A-2133, Dezember 1994.

- /THO 99/ Thomas, W., et. al.: Zwischenbericht: Fachliche Grundlagen für eine umweltgerechte, nachhaltige Entwicklung bei Kernbrennstoffeinsatz und Entsorgung. SR 2275, 1999.
- /TRA 01/ Trampe, A., Fissan, H.: Kalibrierung von Brandmeldern im Sub-Mikron Bereich. Proceedings to the 12th International Conference on Automatic Fire Detection (AUBE '01), S. 43-57: Gaithersburg, Maryland, 25. März 2001.
- /ULL 77/ Ullmann: Ullmanns Encyclopädie der technischen Chemie, Band 23: Uran. Hrsg.: Verlag Chemie, 4. Aufl.: Weinheim, 1977.
- /URE 77/ URENCO Deutschland GmbH: Unfallmerkblatt für den Straßentransport von Uranhexafluorid. November 1977.
- /URE 97/ URENCO Deutschland GmbH: Lagerung, Weiterverwendung und Entsorgung von abgereichertem Uran und hierfür getroffene Vorsorgemaßnahmen. Erläuterungsbericht E 205, Juni 1997.
- /URE 01/ URENCO Deutschland GmbH: Uranhexafluorid-Transporte. Informationsbroschüre, 1. Auflage, März 2001.
- /URE 02/ URENCO Deutschland GmbH: Urananreicherungsanlage Gronau, Kurzbeschreibung des Endausbaus und der voraussichtlichen Auswirkungen auf die Umgebung. 4. Aufl., Dezember 2002.
- /URE 03/ URENCO Deutschland GmbH: Urananreicherung. Informationsbroschüre, 5. Auflage, Juni 2003.
- /USEC 95/ United States Enrichment Corporation: Uranium Hexafluoride: A Manual of Good Handling Practices. USEC-651, Rev. 7, Januar 1995.
- /VOG 07/ Vogt, H.-G., Schultz, H.: Grundzüge des praktischen Strahlenschutzes. 4. Aufl., ISBN 3-446-40978-5, Carl Hanser Verlag: München, Wien, 2007.
- /WEB 97/ Weber, G.: Einbau eines Faserfiltermodells in FIPLOC. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-A-2516, Oktober 1997.

- /WKK 09/ Wirtschaftsverband Kernbrennstoff-Kreislauf und Kerntechnik e.V (WKK): Urananreicherung. 2009.
- /WKK 12/ Wirtschaftsverband Kernbrennstoff-Kreislauf und Kerntechnik e.V (WKK): Homepage. 8. November 2012.
- /WNTI 06/ World Nuclear Transport Institute (WNTI): Radioactive Materials Transport - The International Safety Regime. An Overview of Safety Regulations and the Organisations Responsible for their Development. Juli 2006.
- /ZEN 96/ Zenger, A.: Unterschiedliche Verfahren zur Prognose atmosphärischer Immissionen im Rahmen von Umweltverträglichkeitsprüfungen – Methoden, Möglichkeiten und Grenzen, In: H. Pfaff-Schley (Hrsg.): Die Umweltverträglichkeitsprüfung: Probleme in der Planungspraxis und ihre Ursachen. ISBN 3-540-59422-1, Springer Verlag: Berlin / Heidelberg, 1996.
- /ZEN 98/ Zenger, A.: Atmosphärische Ausbreitungsmodellierung – Grundlagen und Praxis. ISBN 3-540-64757-0, Springer Verlag: Berlin / Heidelberg, 1998.

Abbildungsverzeichnis

Abb. 2.1	Ausschnitt aus der $4n+2$ Zerfallsreihe ausgehend vom Uranisotop ^{238}U	5
Abb. 2.2	Ausschnitt aus der $4n+3$ Zerfallsreihe mit den Schwermetallisotopen ^{239}Pu und ^{235}U	5
Abb. 2.3	Aktivitätsverlauf von ^{238}U (schwarz) und seiner Töchter der ersten Generation ^{234}Th und zweiten Generation ^{234}Pa als Funktion der Zeit nach einer vollständigen chemischen Uranreinigung nach.....	8
Abb. 3.1	Größenverteilung von Aerosolpartikeln natürlichen und anthropogenen Ursprungs	23
Abb. 3.2	Anzahlgrößenverteilung von Aerosolen in Abhängigkeit von der Umgebung nach	25
Abb. 3.3	Typische Volumenverteilung von Aerosolen nach DIN ISO 7708.....	29
Abb. 3.4	Partikelgrößenverteilung von UO_2 -Pulver aus dem AUC-Verfahren	31
Abb. 3.5	Inhalabilität von Aerosolen als Funktion der Partikelgröße (aerodynamischer Äquivalentdurchmesser) nach dem ICRP-Modell.....	35
Abb. 3.6	Inhalabilität von Aerosolen als Funktion der Partikelgröße (aerodynamischer Äquivalentdurchmesser) nach dem ISO-Modell.....	36
Abb. 3.7	Abscheidecharakteristik von Partikeln in der menschlichen Lunge	37
Abb. 3.8	Abscheidegrad für Aerosole in verschiedenen Bereichen des Atemtraktes als Funktion der Partikelgröße	38
Abb. 3.9	Kompartimente des menschlichen Atemtrakt-Modells der ICRP	40
Abb. 3.10	Abscheidegrad für Aerosole in verschiedenen Bereichen des Atemtraktes als Funktion der Partikelgröße nach dem ICRP-Modell.....	45
Abb. 3.11	Erläuterung der Parameter zur Modellierung des Absorptionsverhaltens radioaktiver Aerosole im ICRP-Modell.....	47
Abb. 3.12	Partikelbildung durch Nukleation, Kondensation und Koagulation.....	52
Abb. 3.13	Größenverteilungen verschiedener Testbrandaerosole.....	53
Abb. 4.1	Aerosolgenerierungsfaktor als Funktion der Beaufschlagungsenergie	62
Abb. 4.2	Temperaturfeld 1 h nach Brandbeginn (in 38 cm Tiefe von der Containerwand)	68

Abb. 4.3	Temperaturfeld 3 h nach Brandbeginn (in 38 cm Tiefe von der Containerwand)	68
Abb. 4.4	Entwicklung der betrachteten Teilvolumina für vorgegebene Isotherme im Abfallprodukt in einem Container Typ IV	69
Abb. 4.5	Entwicklung der Freisetzungssanteile aus einem Container Typ IV	69
Abb. 4.6	Schema der Freisetzung bei mechanischer Belastung mit Berücksichtigung der Barrierewirkung.....	73
Abb. 4.7	Barrierenqualität für einen Container für die Belastungsart Fall	74
Abb. 4.8	Schema der Austragung radioaktiver Stoffe aus einer Umschließung mit spezifizierter Dichtheit	75
Abb. 4.9	Temperatur- und Druckaufbau in einem Gussbehälter bei einem 1-Stunden Brand.....	75
Abb. 5.1	Uranhexafluorid führende Prozesse im Brennstoffkreislauf.....	78
Abb. 5.2	Uranhexafluorid-Kristalle in einer Glasampulle	79
Abb. 5.3	Phasendiagramm von Uranhexafluorid.....	80
Abb. 5.4	Dichte von Uranhexafluorid im festen und flüssigen Aggregatzustand.....	81
Abb. 5.5	Prozessschema der Konversion von Uranerz zu UF ₆	93
Abb. 5.6	48G-Lagerbehälter und 30B-Transportbehälter beim Verladen in den Overpack	97
Abb. 5.7	Allgemeines Prozessschema bei der Anreicherung von UF ₆	99
Abb. 5.8	Schema der UF ₆ -Strömung in einer Gaszentrifuge	100
Abb. 5.9	Fließschema einer Trockenkonversion	106
Abb. 5.10	Siedephänomene von UF ₆ in einem Transportbehälter nach	117
Abb. 6.1	Druckstaffelung in Einrichtungen zur Behandlung radioaktiver Stoffe	130
Abb. 6.2	Konstruktionsbeispiele für Fasermattenfilter	135
Abb. 6.3	Schematische Darstellung des Diffusionseffekts.....	136
Abb. 6.4	Schematische Darstellung des Sperreffekts.....	137
Abb. 6.5	Schematische Darstellung des Trägheitseffekts	138
Abb. 6.6	Schematische Darstellung des Siebeffekts	138

Abb. 6.7	Wirksamkeit der verschiedenen Abscheidemechanismen als Funktion der Partikelgröße für einen Faserfilter	139
Abb. 6.8	Schematische Darstellung eines Sprühwäschers.....	145
Abb. 6.9	Schematische Darstellung eines Rotationswäschers	146
Abb. 6.10	Schematische Darstellung eines Venturi-Wäschers.....	147
Abb. 7.1	Terme der Advektions-Diffusions-Gleichung	163
Abb. 7.2	Kopplungsmöglichkeiten zwischen Strömungs- und Ausbreitungsmodellen	168
Abb. 7.3	Kartesisches Koordinatensystem für die Gaußsche Ausbreitungsgleichung	171
Abb. 7.4	Prinzip des Lagrangeschen Partikelmodells.....	175
Abb. 7.5	Typische Beeinflussungen der Ausbreitung im Nahbereich von Gebäuden.....	180
Abb. 7.6	Typisches Topografiekataster zur Verwendung in einem komplexen Ausbreitungsmodell	181
Abb. 7.7	Schematische Darstellung der charakteristischen Längen- und Zeitskalen für Ausbreitungsvorgänge in der Atmosphäre	186
Abb. 7.8	Auswirkungen der unterschiedlichen Zeitskalen auf die Gestalt der von einer kontinuierlichen Quelle emittierten Schadstofffahne	187
Abb. 7.9	Äußere Gestalt einer Schadstofffahne in Abhängigkeit von der Schichtung der Atmosphäre.....	189
Abb. 8.1	Verschiedene Hohlraumtypen.....	194
Abb. 8.2	Einteilung des Bodenraumes nach DIN 4049.....	196
Abb. 8.3	Grundwasserfluss in ein Fließgewässer.....	197
Abb. 8.4	Hysterese-Retentionsfunktion eines Zwei-Phasen-Gemisch von Wasser und Luft in einem porösen Medium	199
Abb. 8.5	Relative Permeabilität in Abhängigkeit des Wassergehalts	201
Abb. 8.6	Idealisierte Grundwasserschicht mit Punktquelle	203
Abb. 8.7	Adsorptionsmodelle	205
Abb. 8.8	Kompartimentmodell für den Radionuklidtransport Flüssigkeit – Feststoff.....	207

Abb. 8.9	Kontaminationsarten.....	209
Abb. 8.10	Nasse Deposition über Wash-Out und Rain-Out.....	213
Abb. 8.11	Pfade zur Kontamination von Pflanzenprodukten.....	214
Abb. 8.12	Übersicht zur zeitlichen Diskretisierung. Rot ist die explizite Methodik, schwarz zeigt das implizite Verfahren.....	218
Abb. 8.13	Verfügbare Werkzeuge in EMOS.....	220
Abb. 8.14	Beispiele von finiten Elementgittern mit Knoten: links Dreiecke, rechts Vierecke.....	221
Abb. 8.15	Finites Volumenelement in einem 2D-Gitter mit Knoten.....	223

Tabellenverzeichnis

Tab. 2.1	Uranisotope in angereicherten, natururanbasierten UO ₂ -Kernbrennstoffen	3
Tab. 2.2	Schwermetallisotope in RepU und MOX-Kernbrennstoffen	4
Tab. 2.3	Aktivitäten der einzelnen Stoffströme bei Förderung und Erzaufbereitung	9
Tab. 2.4	Relative Aktivitäten der einzelnen Stoffströme bei der Urananreicherung	14
Tab. 3.1	Klassifizierung von Aerosolen	21
Tab. 3.2	Definition von Partikelfractionen in der Aerosolmesstechnik nach DIN ISO 7708	28
Tab. 3.3	Eigenschaften von Uranverbindungen im Brennstoffkreislauf	30
Tab. 3.4	Klassifizierung von Partikelfractionen nach DIN EN 481	37
Tab. 3.5	AMAD-Messwerte für Anlagen des Brennstoffkreislaufs in Frankreich.....	43
Tab. 3.6	AMAD-Messwerte für verschiedene nukleare Anlagentypen weltweit	43
Tab. 3.7	Ablagerungscharakteristik von Aerosolen mit 1 µm, 5 µm bzw. 10 µm AMAD	44
Tab. 3.8	Standartparameter für die Absorptionstypen F, M und S.....	47
Tab. 3.9	Absorptionstypen von Uranverbindungen im Brennstoffkreislauf	49
Tab. 3.10	Klassifizierung von Testbränden. W: Wärmeentwicklung, R: Rauchentwicklung.....	54
Tab. 4.1	Gemessener kumulierter Massenanteil unfixierter radioaktiver Abfälle in Abhängigkeit des aerodynamisch äquivalenten Durchmessers AED	60
Tab. 4.2	Aerosoldispersierungsfaktoren für Zementprodukte.....	62
Tab. 4.3	Freisetzungsteile bei thermischer Beaufschlagung	67
Tab. 4.4	Größen- und belastungsabhängige Freisetzungsteile für Partikelsysteme	71
Tab. 5.1	Neutronenstrahlungscharakteristik von mit UF ₆ gefüllten Behältern	84
Tab. 5.2	AEGL-Werte für UF ₆	85

Tab. 5.3	AEGL-Werte für HF	86
Tab. 5.4	ERPG-Werte für UF ₆ und HF	86
Tab. 5.5	Technische Daten der UF ₆ -Transportbehälter.....	97
Tab. 6.1	Korrelation zwischen verschiedenen Filterparametern und der Wirksamkeit von Abscheideprozessen.....	140
Tab. 6.2	Klassifikation von Grob- und Feinstaubfiltern nach DIN EN 779.....	141
Tab. 6.3	Klassifikationen von HEPA-und ULPA-Filtern nach DIN EN 1822-1.....	142
Tab. 6.4	Abgasreinigungssysteme ausgewählter Wiederaufarbeitungsanlagen zur Entfernung von Radioiod	149
Tab. 6.5	Integralcodes zur Berechnung von Gasströmungen sowie Aerosoltransport- und Ablagerungen in Kernkraftwerken	159
Tab. 6.6	Stand-alone Codes zur Berechnung von Gasströmungen sowie Aerosoltransport- und Ablagerungen in Kernkraftwerken	159
Tab. 8.1	Potentiale des Grundwassers; m: Masse, g: Erdbeschleunigung, h: Höhe.....	195
Tab. 8.2	Durchlässigkeitsbeiwerte einiger Bodenarten	198
Tab. 8.3	Verteilungskoeffizienten für verschiedene Böden und Elemente.....	207
Tab. 8.4	Depositions- und Sedimentationsgeschwindigkeiten in Abhängigkeit von der Partikelgröße	212

**Gesellschaft für Anlagen-
und Reaktorsicherheit
(GRS) gGmbH**

Schwertnergasse 1
50667 Köln

Telefon +49 221 2068-0

Telefax +49 221 2068-888

Boltzmannstraße 14

85748 Garching b. München

Telefon +49 89 32004-0

Telefax +49 89 32004-300

Kurfürstendamm 200

10719 Berlin

Telefon +49 30 88589-0

Telefax +49 30 88589-111

Theodor-Heuss-Straße 4

38122 Braunschweig

Telefon +49 531 8012-0

Telefax +49 531 8012-200

www.grs.de