PTB
-----

# Physikalisch-Technische Bundesanstalt

ļ

	D	ECKBLATI	Г	в	0248037	
	Projekt	PSP-Element	Obj. Kenn.	Aulgabe	UA Lid. Nr.	R
	NAAN	NNNNNNNNN	NNNNN	XAAXX	AANNNN	N
шо 165.1	9K	35132		EBG 1	RB 0003	(
fitel der Unterlage: Experimente bestimmung bei mechani Substanzen gefüllten A	zur Fi scher H bfallbe	reisetzung ur Belastung vor ehältern	nd Quellt mit pul	erm- vrigen	Seite: I. Stand: 25.07.87	,
Fraunhofer-Instit hologie	ut für	Umweltchemie	e und Oko	toxi-	lexinummer:	
Stempelfeld:				· · · · ·		
			•			
`						
	•					
				-		
•						
		•				
SP-Element TP	,	zu Plan-Ki	upitel: 3.5.	2		
······································			•			
		Freigal	be für Bekärden	ļ	Freigabe im Projekt	
						-

					****				-
	2.5			Projekt	PSP-Eleme		Obj. Kenn. Autgabe	UA Ltd. Nr	Rev N N N
EU	J_165.1		9	)K	35132	i 1	: EBG	RB 0003	00
Titel st Su	der Unterlage: Limmung b Ibstanzen	Exper ei med gefü	imente zu chanische llten Abf	ir Fre er Bel allbe	eisetzung lastung v ehältern	y und ( yon mit	Quelltermbe- t pulvrigen	Seite: II. Stand:	
Rev.	Revisionsst.	verant. Stelle	Gegenzeichn.	rev. Seite	Kat.		Erläuterung der Revi	25.07.87	
	Datom	Otene		Conto					
				0		*			
					I				
				i.					
					-				
					·				
	1		!		•				
Ų.				1					
	•								
						-	•		
	,	: 							
	:	,							
		7							
			1				,		
		:		Ì					
		1							

14/33-19/EBG/RB/ 300; 35-132

EU 1651

Fraunhofer-Institut für Umweltchemie und Ökotoxikologie

D-5948 Schmallenberg-Grafschaft

Experimente. zur Freisetzung und Quelltermbestimmung bei mechanischer Belastung von mit pulvrigen Substanzen gefüllten Abfallbehältern

Im Auftrag der Gesellschaft für Reaktorsicherheit (GRS) mbH Schwertnergasse 1 5000 Köln 1

Grafschaft, den 25. 7. 1987

### Zusammenfassung

Im Zwischenlager Zeche Konrad werden radioaktive Abfälle in pulvriger Form gelagert. Im Rahmen dieses Berichtes wird ein Störfallereignis untersucht, bei dem eine mit Pulver gefüllte Transporteinheit bei Umladevorgängen aus einer Höhe von maximal 5 m abstürzt, beim Aufprall zerbricht und dabei Fartikeln in die Hallenatmosphäre freisetzt. Entsprechend den beiden in Konrad zur Verfügung stehenden Hallen wurden hier Experimente in einer 36 m<sup>3</sup> großen Aerosolkammer durchgeführt, in der ein Umluft-Abluft-System bzw. nur ein Abluft-System installiert war. Es wurde die realistische Luftwechselzahl von 0.25/h gewählt. Die Freisetzung aus den Hallen erfolgt über das Lüftungssystem. Als Transporteinheit wurde ein Behälter mit aufklappbaren Wänden von 8 1 Volumen benutzt, der zunächst durch einen Fallschacht bis zu 2 m und dann im freien Fall in der Kammer weitere 3 m auf den Kammerboden fallengelassen wurde.

Hausasche und Kieselgur wurden als Substanzen gewählt, weil in gewissem Sinne ähnliche Pulver bei den radioaktiven Abfällen vorliegen. Variable Versuchsparameter waren die eingesetzte Masse und die Fallhöhe, zusätzlich wurde mit und ohne Umluft gearbeitet.

Es wurden die Massenverteilungen der Pulver untersucht, die für Hausasche einen Feinstaubanteil ( $D_{ab} < 10$  um) von ca. 20 %, für Kieselgur von gut 50 % aufweisen.

Die gemessenen Massenkonzentrationen waren unabhängig von der Partikelgröße sehr stark zeit- und höhenabhängig. Dabei war die Höhenabhängigkeit bei eingeschalteter Umluft wesentlich schwächer ausgeprägt als ohne Umluft.

Hinsichtlich der Freisetzung von Fein- und Gesamtstaub (bezogen auf die eingesetzte Masse) gilt folgendes:

- 1. die Freisetzung nimmt mit abnehmender Masse zu.
- 2. die Freisetzung nimmt mit der Fallhöhe zu.

3. die Freisetzung ist stark substanzabhängig.

4. Durch die eingeschaltete Umluft wird die Freisetzung erhöht. Die Untersuchung der Freisetzung der Partikeln (Normierung mit der verfügbaren Partikelmasse im jeweiligen Durchmesserbereich) als Funktion des aerodynamischen Durchmessers ergibt folgendes:

1. Unabhängig vom Durchmesserbereich ist die Freisetzung von Kieselgur viel größer als jene von Hausasche.

- 2. Die Freisetzung von Feinstaub liegt unter 1 %.
- 3. Die maximale Freisetzung wurde für die geringe eingesetzte Masse von 0.25 kg Kieselgur, eine Fallhöhe von 5 m und bei eingeschalteter Umluft erreicht. Sie lag bei 0.3 %.
- 4. Die Freisetzung wächst mit zunehmendem aerodynamischen Durchmesser bei demselben Pulver für größere Partikeln an, wobei zu bedenken ist, daß Partikeln von 140 um (70 um) sich bei einer Kammerhöhe von 3 m maximal 5 s (20 s) in der Kammeratmosphäre halten können.

Bis auf eine Ausnahme wurden alle Versuche mit Videofilm dokumentiert, von 6 ausgewählten Experimenten wurden vom Videofilm Einzelbildaufnahmen von verschiedenen Stadien der Experimente bis 200 ms nach Aufprall abgerufen.

# Inhaltsverzeichnis

Tabellen

	Zusammenfassung	
1.	Zielsetzung	1
2.	Beschreibung der Aerosolkammer	1
2.	Versuchsaufbau	Ż
4.	Versuchsdurchführung	4
5.	Auswertung	4
6.	Ergebnisse	6
6.1	Fulvermaterialien und ihre Größenverteilungen	6
6.2	Elektronenmikroskopische Aufnahmen von Kieselgur- und	
	Hausascheproben ,	8
6.3	Beschreibung der Fallversuche	9
۵.4	In der Aerosolkammer gemessene Gesamtstaubkonzentrationen	
	(Filtermessungen)	10
6.4.1	Zeitabhängigkeit	10
6.4.2	Höhenabhängigkeit	11
6.5	Freisetzung von Fein- und Gesamtstaub als Funktion der	
	eingesetzten Masse während der ersten 10 Minuten nach dem	
	Aufprall	12
4.6	Vergleich der originalen, gleichzeitig gemessenen	
	Freisetzungswerte von Gesamtstaub (Filter) und	
	und Feinstaub (APS) während der ersten 10 Minuten nach dem	
	Aufprall	12
6.7	Freisetzung von verschiedenen Partikelfraktionen in	
	Relation zum Angebot in der eingesetzten Masse	14
6.8	Elektronenmikroskopische Aufnahmen von Hausasche- und	
	Kieselgurpartikeln	15
6.9	Einzelbildauswertung der Videoaufnahmen vom Versuchsverlauf	15
	Literaturverzeichnis	17

Seite

Abbildungen 21

# 1. Zielsetzung der Untersuchungen

Im Zwischenlager Zeche Konrad werden radioaktive Abfälle zum Teil in pulvriger Form zwischengelagert. Im Rahmen dieser Untersuchungen soll ein Störfallereignis betrachtet werden, bei dem eine Transporteinheit mit radioaktivem Pulver während des Umladens mit einem Kran von einem Eisenbahnwaggon bzw. LKW aus 3 - 5 m Höhe auf den Hallenboden stürzt /1/. Beim Aufprall soll die Transporteinheit so zerbrechen, daß ihr pulverförmiger Inhalt zum Teil in die Hallenatmosphäre freigesetzt werden kann.

Neben der Freisetzung von Partikeln nach dem Aufprall sind die Wandabscheidung (insbesondere durch sich ausbreitende turbulente Wirbel nach dem Aufprall) und die Sedimentation (für größere Partikeln) wirksam.

Eine Freisetzung von Partikeln außerhalb der Halle ist nur über das Lüftungssystem der Umladehalle mit Umluft und definiertem Umluft-Abluft-Anteil möglich. Im ungünstigsten Falle kann der Absturzort einer Transporteinheit nur einige m von der nächsten Absaugöffnung in der Umladehalle entfernt sein. Die Freisetzung von radioaktiven Stoffen durch einen Störfall aus der Halle wird somit durch die Rückhaltung der Partikeln in der Halle und die größenabhängigen Freisetzungsanteile bestimmt.

Parallel dazu ist als Störfallereignis der Absturz einer Transporteinheit von der Hebevorrichtung eines Seitenstapelfahrzeuges bei Umladevorgängen zu betrachten. Die Pufferhalle hat eine geringere Höhe als die Umladehalle, und die gesamte Luft wird innerhalb einer knappen halben Stunde durch Frischluft ersetzt. Die Umwälzanlage fehlt hier völlig. In ihr sind für den Bereich kleinerer Partikeln kleinere Rückhaltefaktoren zu erwarten.

<u>Es wurden einige Simulationsexperimente in einer Aerosolkammer</u> <u>vorgenommen, um die zu diesem Fragenkomplex durchgeführten theoretischen</u> <u>Untersuchungen der Gesellschaft für Reaktorsicherheit zu überprüfen.</u>

### 2. Beschreibung der Aerosolkammer

Für die Experimente stand eine Aerosolkammer aus Edelstahl mit einem Volumen von 36 m<sup>3</sup> (l = 4 m, b = 3 m, h = 3 m) zur Verfügung. Auf ihrem Dach wurde ein gut 2 m hoher Fallschacht angebracht, dessen Querschnittsfläche 25 x 25 cm<sup>2</sup> betrug. Der Fallschacht war auch für geringere Fallhöhen (h < 5 m) durch eine kleine Tür zugänglich.

- 1 -

Als fallender Behälter wurde ein Behälter mit aufklappbaren Wänden aus lackiertem Sperrholz der Kantenlänge 25 cm (Volumen ca. 8 1) benutzt. Die Seitenwände wurden durch Klavierband mit dem Boden des Behälters verbunden. Am oberen Rand der Klappwände wurden in der Mitte Haken angebracht, je zwei gegenüberliegende Haken wurden durch Bindfäden so verbunden, daß die Klappwände gegeneinander gepreßt wurden und das Innere des Behälters dicht verschlossen war (Bild 1). Somit konnte ohne Probleme der Behälter mit der Staubmasse gefüllt und transportiert werden. Während der Versuche wurde der Behälter per Hand im Fallschacht festgehalten und fallengelassen. Bild 2 zeigt, wie die Seitenwände des Behälters nach dem Aufprall im Idealfall zur Seite klappen.

Bild 3 zeigt eine Aufsicht der Aerosolkammer, die an ihrer Breitseite durch eine Tür zugänglich ist. In der Nähe der Tür sind die drei Absaugöffnungen (trichterförmig) zu sehen, über die das Aerosol abgesogen wurde. Die aerosolbeladene Abluft wurde über die Abluftleitung (Bild 3) durch die Aerosolkammer nach außen geführt, dort nach oben auf das Dach geleitet und über ein Filter durch den Dachboden wieder als Reinluft der Aerosolkammer zugeleitet. Zusätzlich bestand die Möglichkeit, über einen Ventilator an der der Tür gegenüberliegenden Wandseite eine Umluft mit einer Strömungsgeschwindigkeit von ca. 1 m/s am Aufprallort zu erzeugen. Der Aufprallort befand sich etwa in der Mitte der Kammer. Um den Kammerboden nicht zu beschadigen, wurde auf den Aufprallort eine 1.3 x 0.7 m<sup>2</sup> große eiserne Frallplatte gelegt.

### 3. Versuchsaufbau

Auf der rechten Seite der Kammer befand sich in ca. 1 m Höhe auf einem Bord (Bild 3) ein Ansaugrohr aus Kunststoff, das krümmungsfrei zu dem Ansaugstutzen eines APS 3300 der Firma TSI (Messung des Feinstaubes) führte. Der APS war nebst Verdünnungssystem unterhalb des Ansaugrohres und außerhalb der Kammer in einer Aushöhlung untergebracht. Der Fußpunkt unterhalb des Ansaugrohres befand sich in ca. 1.20 m Abstand vom Aufprallort.

Im Abstand von 0.76 m bzw. 1.14 m vom Aufprallort wurden insgesamt 6 Glasfaserfilter in horizontaler Anordnung (Ansaugung von unten) - Versongungs- und Meßeinrichtungen wie Fumpen und Gaszähler standen außerhalb der Kammer - aufgestellt. Die Filter 1 - 3 waren in der Nähe des mittleren Absaugtrichters postiert und zur Ermittlung der Zeitabhängigkeit des Gesamtstaubes (Einschaltung nacheinander) bestimmt. Die Filter 4 - 6 waren in 0.4, 1.0 und 1.6 m

- 2 -

über dem Kammerboden angebracht und dienten der Ermittlung der Höhenabhängigkeit (Einschaltung gleichzeitig) des Gesamtstaubes in der Kammer. Der aerodynamische Grenzdurchmesser der Partikel, die gerade noch vom Filter für einen Volumenstrom von 30 l/min festgehalten wird, kann durch eine einfache Betrachtung abgeleitet werden: Er ergibt sich aus der Formel

$$D_{AB}^{2} = 72 \times ETA \times Q/(RHO_{O} \times G \times C \times C \times D_{P}^{2})$$
(1)

ETA : dynamische Zähigkeit, 18.2E-6 kg m<sup>-1</sup> s<sup>-1</sup> bei 20° C Q : Volumenstrom durch das Filter, 5E-4 m<sup>3</sup> s<sup>-1</sup> RHO<sub>0</sub> : Dichte der Partikel, 1000 kg m<sup>-3</sup> D<sub>F</sub> : effektiver Filterdurchmesser, 0.045 m PI : 3.141593

Nimmt man wie üblich eine parabolische Abscheidekurve an, so liegt der 50 - % - Wert bei  $D_{ae}$  = 70 um.

In der Nähe und auf der Höhe des linken Absaugtrichters war eine Filterhalterung mit Nucleporefilter (ebenfalls horizontale Anordnung des Filters) angebracht, diese Messung diente dazu, anhand elektronenmikroskopischer Bilder die größten noch in der Kammer verbleibenden Partikeln zu bestimmen.

In der linken Ecke der Kammer (Dreieckssymbol) wurde ein ca. 30 cm hohes Becherglas am Kammerboden angeklebt, in das eine Glasplatte auf eine im Becherglasboden befindliche Petrischale gelegt wurde. Mit dieser Versuchsanordnung sollte festgestellt werden, wieviele und welche Partikeln am Boden aussedimentierten. Das hohe Becherglas sollte verhindern, daß sehr große Teilchen bzw. Partikelagglomerate direkt nach dem Aufprall des Behälters auf die Sedimentationsglasplatte geschleudert wurden.

An der linken Wand der Kammer wurden (Bild 4), in horizontaler und vertikaler Richtung verteilt, insgesamt 8 quadratische Glasplatten der Fläche 24 cm<sup>2</sup> angebracht. Sie sollten Abschätzungen darüber zulassen, welche Pulvermasse sich nach dem Aufprall an den Wänden abscheidet. Die wesentlichen Abscheidemechanismen sind Turbulenz und Diffusion. In der Kammertür befand sich ein kleines Glasfenster, vor dem das Objektiv einer Videokamera postiert wurde. Damit war es möglich, in einem gewissen Ausschnitt um den Aufprallort den Fall des Behälters und die Freisetzung und Ausbreitung – insbesondere die Ausdehnung der Staubwolke – in der Anfangsphase nach dem Sturz auf einem Farbmonitor zu beobachten. Außerdem ist es möglich, vom Videofilm Einzelbildfotos vom

- 3 -

Aufprall des Behälters und der Ausbreitung der Staubwolke herzustellen. Außerhalb der Kammer wurde bei insgesamt 7 Versuchen der Abluftleitung eine Teilprobe auf Glasfaserfilter mit einem Durchsatz von 20 l/min entnommen.

#### 4. Versuchsdurchführung

Der mit dem pulvrigen Material gefüllte Behälter wurde in den Fallschacht gehängt und, nachdem die Videokamera eingeschaltet war, fallengelassen. Dabei wurde der Zeitpunkt des Absturzes so festgelegt, daß der AFS kurz vor der nächsten Probenahme stand. Der APS registrierte im Abstand von 3 Minuten bis etwa 1 h nach dem Aufprall die Größenverteilungen. Nach dem Aufprall des Behälters wurden die Filter 4 - 6 (Höhenabhängigkeit) und das Filter 1 (Zeitabhängigkeit) eingeschaltet und 10 Minuten beaufschlagt: Danach wurden für jeweils 10 Minuten nacheinander Filter 2 und 3 (Zeitabhängigkeit des suspendierten Partikelmaterials) beaufschlagt. Die Versuche wurden immer mit Zuluft-Abluft und teilweise mit Ventilierung am Ort des Aufpralls gefahren. Das Zuluft-Abluft-System wurde entsprechend der Luftwechselzahl in der Umladehalle der Zeche Konrad dimensioniert. Die Luftwechselzahl betrug hier 0.25/h = 1 Luftwechsel/4 h. Im Falle der Aerosolkammer ist eine solche Luftwechselzahl bei einem Volumen von 36 m<sup>3</sup> mit einem Volumenstrom von 150 l/min verbunden. Für die Stromungsgeschwindigkeit der Umluft am Aufprallort wurde in ubereinstimmung mit der GRS ein Wert von 1 m/s festgelegt. Die mit dem Ventilator eingestellte Strömungsgeschwindigkeit (Bild 3) wurde in 10 -15 cm uber Boden am Aufprallort mehrfach mit einem Schalenkreuzanemometer gemessen.

#### 5. Auswertung

Die AFS-Messungen wurden on-line auf einem Mikrocomputer ausgewertet, zusätzlich zu den geplotteten Anzahl-, Massen- und Summenverteilungen wurden die Masse des atemfähigen Anteils des freigesetzten Staubes ( $D_{ab}$ < 10 um) und Gesamtstaubes bis 16.4 um berechnet.

Die Filter wurden netto und beaufschlagt gewogen und daraus die Zeitund Höhenabhängigkeit des Gesamtstaubes berechnet.

Das in der Nähe einer Absaugung angebrachte Nucleporefilter wurde elektronenmikroskopisch ausgewertet und versucht, die größte gerade noch in die Abluft gelangende Partikel zu bestimmen. Unglücklicherweise sind infolge eines Bedienungsfehlers nur zwei Versuche in dieser Hinsicht

- 4 -

auswertbar. Außerdem ist zu bedenken, daß an eine Beaufschlagung des Filters in den ersten Sekunden nach dem Aufprall wegen der großen Aerosoldichte nicht zu denken ist, wenn man eine einigermaßen sinnvolle Probenahmedauer einhalten will. Der in beiden Fällen gewählte Frobenahmebeginn lag daher bei 2 Minuten nach dem Aufprall, trotz dieser langen Zeit konnte für ein nicht zu dicht belegtes Niederschlagsbild nur eine Probenahmedauer von 5 s gewählt werden, was als extrem kurz für eine vernünftige Probenahme erscheint.

Die im Becherglas ausgelegte Glasplatte wurde netto und beaufschlagt gewogen und so die aussedimentierte Masse bestimmt. Eine Größenverteilung von den auf der Platte aussedimentierten Partikeln abzuleiten, erscheint als ziemlich aussichtslos. Die Gläser sind zum großen Teil ziemlich dicht mit großen Aggregaten belegt. An diesen Aggregaten haften eine Vielzahl von mittleren bis sehr kleinen Partikeln, von denen man nicht weiß, ob sie nicht im Laufe der 2 bis 3 Stunden nach dem Aufprall erst auf dem Aggregat aussedimentiert sind bzw. durch elektrische Kräfte vom großen Aggregat angezogen wurden. Eine Auswertung rein nach der Erscheinungsform der Aggregate führt eventuell zu einer Unterschätzung der Masse der kleinen bzw. überschätzung der Masse der großen Partikeln.

Die fast vertikal an der Glaswand angebrachten B Glasplatten wurden ebenfalls netto und beaufschlagt gewogen und die so bestimmten Partikelmassen gemittelt.

Alle so ermittelten Partikelmassen wurden auf das gesamte Kammervolumen von 36 m<sup>3</sup> bzw. die innere Kammeroberfläche – von 42 m² umgerechnet. Wo es möglich war, wurde die Abnahme der Konzentration mit der Höhe berücksichtigt und ein integraler Massewert bestimmt.

### 6. Ergebnisse

#### 6.1 Pulvermaterialien und ihre Größenverteilungen

Als Pulvermaterialien wurden möglichst realistische Substanzen gewählt, die die in Bild 5 aufgeführten Kriterien ("gewählte Kurve") erfüllten. Dabei konnten die Verteilungen im Hinblick auf eine konservative Betrachtungsweise des Problems auch zu kleineren Durchmessern hin verschoben sein.

In Absprache mit der GRS wurden als Substanzen Hausasche und eine Mischung aus 10 % Kieselgur und 90 % Pulverharz ausgewählt. Die Hausasche wurde vor Benutzung mit Hilfe eines Grobsiebes von ihren Grobteilen befreit und nochmals in einem Sieb der Maschenweite 2 mm

- 5 -

gesiebt.

Kieselgur und Pulverharz wurden von der GRS besorgt. Der Kieselgur hat den Markennamen Hyflo, Super-Cel, A-Celite Diatomite, Filter Aid und das Pulverharz den Namen Lewasorb OC 1818. Entsprechend Untersuchungen der Fa. Transnuklear in Hanau lag der Feuchtigkeitsgehalt des Kieselgurs bei < 5 %, des OC 1818 bei < 25 %. Siebanalysen der oben angegebenen Pulvermischung aus OC 1818 und Kieselgur ergaben, daß 99.9 % der Partikeln < 2.5 um, und ca. 50 % im Bereich zwischen 0.25 und 0.5 um lagen. Es konnte nicht geklärt werden, ob es sich hierbei um eine Trocken- oder Naßsiebung handelte. Nach Lage der Dinge ist jedoch anzunehmen, daß die obige Größenverteilung über eine Naßsiebung ermittelt wurde. Eigene Siebanalysen (frockensiebung) ergaben, daß bei Benutzung von feineren Sieben (Maschenweite 45 um) der Kieselgur vom OC 1818 - Fulver wieder getrennt wurde, so daß diese Methode als nicht sehr sinnvoll anzusehen war. Außerdem wurden die kleinen Kieselgurpartikeln offensichtlich an den feuchten Lewasprbpartikeln gebunden, da Fallversuche mit der Mischung ergaben, daß kaum Partikeln freigesetzt wurden. Auch eine eingehende Trocknung der Mischung führte hier nur zu einer unzureichenden Verbesserung, zumal das Pulver in der normalen Laboratmosphäre stark hygroskopisch war und sehr schnell wieder zu dem Zustand zurückkehrte, den es vor der Trocknung einnahm. Aus diesem Grunde wurde nach Absprache mit der GRS vereinbart, statt der Mischung die Reinsubstanz Kieselgur zu verwenden.

Von beiden Substanzen Hausasche und Kieselgur wurden mit Hilfe der Siebanalyse /2/ die Größenverteilungen (Bild 6) bestimmt. Kurve 2a und Sa zeigen die so bestimmten Verteilungen von Kieselgur und Hausasche. Die Größenverteilungen werden hierbei durch den geometrische Durchmesser der Partikeln charakterisiert, so daß bei einer Umrechnung in den aerodynamischen Durchmesser immer noch die Partikeldichte zu berucksichtigen ist. Die Partikelintervalle waren durch die verfügbaren Siebe vorgegeben. Es wurden Siebe mit Maschenweiten 800 um, 200 um, 100 um, 63 um, 45 um und 25 um benutzt. Aus den obigen Intervallen wurde der mittlere Durchmesser durch Bestimmung des geometrischen Mittels bestimmt. Bei der Fraktion < 25 um war diese Methode fragwürdig, da die Untergrenze massenmäßig noch "wirksamer" Partikeln nicht bekannt war. Hier wurde angenommen, daß diese Untergrenze bei ca. 4 um lag, damit ergibt sich ein geometrisches Mittel von 10 um.

Bei einer Betrachtung des Anteils D $_{o}$  < 10 um bemerkt man, daß im Falle der Hausasche nur 0.07 %, im Falle des Kieselgurs nur 0.1 % in diesen Bereich fallen. Setzt man als mittleren Durchmesser einen Wert < 10 um

- 6 -

an, so erhöhen sich die prozentualen Werte nur unwesentlich. Berechnet man aus den eingesetzten Pulvermassen beim Fallversuch und obigen prozentualen Feinstaubanteilen die angebotene Feinstaubmasse und und vergleicht sie mit der während der Versuche freigesetzten Feinstaubmasse, so ergaben sich zum Teil Freisetzungsraten > oder nahe 100 %.

Dieser physikalische Widerspruch führte zu der Annahme, daß der mit der Siebanalyse ermittelte Feinstaubanteil nicht korrekt ist. Bei genauer Betrachtung des Siebvorganges insbesondere für die Fraktion < 25 um ist festzustellen, daß sich im Verlauf der halbstündigen Siebung beim Kieselgur kugelförmige Aggregate von mehr als 2 mm Durchmesser ähnlich einem auf einem schneebedeckten Hang herunterrollenden Schneeball bei Temperaturen > 0° C entwickelten. Außerdem bildeten sich am Rand des Siebes "rotierende" Kieselgurwülste. Diese Beobachtungen führten zu der Annahme, daß bei weitem nicht das gesamte Pulvermaterial mit der Sieboberfläche in Berührung kam und somit die gemessenen Feinstaubanteile des Angebots bei weitem zu gering sind. Dies scheint in abgeschwächtem Maße auch für Hausasche zu gelten. Eine Erhöhung der Amplitude und Schüttelfrequenz der Siebapparatur ergab hier nur wenig Anderungen.

Diese unbefriedigenden Ergebnisse führten zu überlegungen, wie man eine verläßliche Verteilungsfunktion des Angebotes mit dem aerodynamischen Durchmesser als Größenparameter gewinnen konnte. Es wurde eine Reihe von Versuchen mit dem Schwingbettaerosolgenerator durchgeführt, dessen Meßprinzip im folgenden kurz beschrieben wird /3/. Der Generator besteht aus einem Behälter aus Plexiglas und Aluminium, der an einer Seite einer Reziprotorpumpe befestigt ist (Bild 7). Diese Reziprotorpumpe wird mit einer Wechselspannung betrieben und vibriert mit einer Frequenz von 50 Hz. Durch den Fulverbehälter wird von unten nach oben eine einstellbare Gasströmung geleitet, wobei der auf einem Glasfaserfilter befindlichen Fulverschuttung gleichzeitig die mechanischen Schwingungen der Reziprotorpumpe mitgeteilt werden.

Bei vorgegebenem aeodynamischem Durchmesser und bekannter effektiv durchströmter Filterfläche im Vorratsbehälter kann man den erforderlichen Durchfluß aus Formel (1) bestimmen. Es wird so vorgegangen, daß eine definierte Menge an Pulver (1 - 2 g) in das Vorratsgefäß auf das Filter gefüllt wird und das Vorratsgefäß geschlossen wird. Danach wird der berechnete Durchfluß eingestellt, der für den Bereich eines aerodynamischen Durchmessers von 10 um bei etwa 100 cm<sup>3</sup>/min liegt. Für den niedrigen Durchmesserbereich wurde eine Versuchdauer von 24 h gewählt, um sicher zu sein, daß alle feinen

- 7 -

Partikeln auch ausgetragen wurden. Das ausgetragene Material wurde auf einem Mebranfilter (Forendurchmesser 0.8 um) aufgefangen und gewogen. In dieser Weise wurden nach und nach eine Reihe von Durchflüssen eingestellt und die Partikeln in der gleichen Weise ausgetragen, Bei Teilchengrößen von > 150 um bestand die Gefahr, daß sich infolge der notwendigen hohen Strömungsgeschwindigkeit das Fließbett und Filter vom Boden des Vorratsgefäßes abhoben. Daher wurde hier das Vorratsgefäß geöffnet und die verbliebene Masse auf dem Filter durch Wägung bestimmt. Die Partikelverluste bei diesem Verfahren waren überraschend gering und lagen bei 1 %. Die Obergrenzen der aerodynamischen Durchmesser bei den Kurven 2b und 3b (Bild 6) sind etwas vage, so wurde angenommen, daß sich entsprechend der Vorsiebung die obere Grenze des aerodynamischen Durchmessers im Falle von Hausasche bei gut 2000 um befand. Im Falle von Kieselgur führten einfache Sedimentationsversuche zu Obergrenzen des aerodynamischen Durchmessers von ca. 400 úm. In Bild 6 erkennt man, daß die mit den zwei Methoden gewonnenen Größenverteilungen sich sehr stark unterscheiden. Unberührt bleibt eigentlich nur die Tatsache, daß Kieselgur wesentlich feinteiliger ist als Hausasche. Hingegen sind für beide Materialien die mit dem Schwingbett-Aerosolgenerator bestimmten Feinstaubanteile < 10 um

deutlich höher, sie erreichen jetzt ca. 20 % (Hausasche) bzw. 50 % (Kieselgur). Dafür sind die Massen der gröberen Fraktion > 40 - 50 um wesentlich geringer.

# 6.2 Elektronenmikroskopische Aufnahmen von Kieselgur- und Hausascheproben.

Um die Oberflächenstruktur der Partikeln zu untersuchen, wurden von ihnen elektronenmikroskopische Bilder angefertigt. Dabei wurde so vorgegangen, daß in die Auffangschale unterhalb des Siebes an einer Stelle eine kreisförmige öffnung gebohrt wurde, so daß hier ein Kunststoffrohr luftdicht eingeführt werden konnte, das mit seiner öffnung bis in das Zentrum der Schale reichte. An das Rohr wurde außen eine Filterhalterung und eine Reziprotorpumpe angeschlossen, in die Filterhalterung wurde ein Nucleporefilter eingespannt. Ein Sieb der Maschenweite < 25 um wurde auf die Schale gelegt, mit einer geringen Menge der Substanz im g-Bereich gefüllt und mit dem Siebdeckel verschlossen. Während des Schüttelvorganges wurde vom Sieb eine Teilfraktion der durch das Sieb fallenden Partikeln auf das Nucleporefilter gesogen. Bild 8 zeigt zeigt ein Kollektiv von Partikeln aus Hausasche, die sich durch eine sehr unregelmäßige Struktur der

- 8 -

Oberfläche und eine Vielzahl von Aggregaten auszeichnen. Dies ist besonders für die große mittlere Partikel im oberen Bild zu erkennen, die im unteren Bild noch einmal vergrößert zu sehen ist. Die Partikel hat einen geometrischen Durchmesser /4/ von ca. 18.6 um, was bei einer angenommenen Dichte der Hausaschepartikeln von 2000 kg/m<sup>3</sup> einem aerodynamischen Durchmesser von 26 um entspricht. Bild 9 zeigt ein Kollektiv von Partikeln aus Kieselgur, wobei diese Partikeln eine regelmäßige und sehr glatte Oberfläche aufweisen. Im unteren Bild ist die in der Bildmitte erkennbare weiße Partikel vergrößert dargestellt, man sieht eine glatte Oberfläche und zum Teil sehr scharfe Kanten und wenig an diese Partikel angelagerte Aggregate. Die Partikel hat einen geometrischen Durchmesser von ca. 10.5 um, was bei einer Dichte der Kieselgurteilchen von 1800 kg/m<sup>3</sup> einem aerodynamischen Durchmesser von 14 um entspricht.

Eigene Messungen der Partikeldichte mit einem Pyknometer und Volumenometer ergaben für Hausasche eine Dichte von 2100 kg/m³ und für Kieselgur von 1800 kg/m³.

Um die Partikelstruktur des Kieselgurs näher kennzulernen, wurden einige Partikeln unter dem Transmissionselektronenmikroskop untersucht. Bild 10 zeigt eine Aufnahme einiger Kieselgurteilchen mit 3300-facher Vergößerung. Man erkennt zunächst die vernetzte Struktur des Filtermaterials und in den etwas helleren kreisförmigen Strukturen von ca. 1.5 mm Durchmesser die Poren des Filters. Die dunkleren Flecken auf dem Filterstück sind Kieselgurpartikeln, sie weisen <u>nicht</u> die für den Kieselgur sonst typischen regelmäßigen Porenstrukturen auf, wie sie etwa in Bild 11 zu erkennen sind.

#### 6.3 Beschreibung der Fallversuche

Insgesamt wurden 17 Experimente durchgeführt, dabei wurden neben der Fulverart die eingesetzte Pulvermasse und die Fallhöhe ( 3 und 5 m) variiert. Die Varianten der Pulvermasse lagen für Hausasche zwischen 0.5 und 6 kg, für Kieselgur bei 0.25 und 1 kg. Es wäre an sich wegen der leichteren Vergleichbarkeit wünschenswert gewesen, für beide Pulvermaterialien die gleichen Varianten der eingesetzten Pulvermasse zu wählen, jedoch erwies sich die Schüttdichte von Kieselgur im Behälter als ungleich niedriger als im Falle von Hausasche. Der Behälter faßte 1 kg Kieselgur oder 6 kg Hausasche.

Bei 9 Versuchen wurde mit einer Ventilierung von etwa 1 m/s am Aufprallort gearbeitet, bei allen Versuchen war in der Kammer das Zuluft-Abluft-System mit einer Luftwechselzahl von 0.25/h eingeschaltet.

- 9 -

Tabelle 1 gibt eine übersicht über die Versuchsvarianten. Die Bilder 12 - 18 zeigen eine Folge von ausgewählten Fotografien der Experimente. In Bild 12 erkennt man das ca. 30 cm hohe Becherglas, in das die Glasplatte zur Sedimentationsprobenahme gelegt wurde und im Vordergrund die Abluftleitung mit einem Ansaugtrichter. Bild 13 zeigt den Versuch 7, in dem 1 kg Kieselgur aus einer Höhe von 3 m auf den Boden aufprallte. Man erkennt die typische Anhäufung des Pulvers am Aufprallort auf dem aufgeklappten Behälter bei Einsatz einer großen Pulvermasse. Hierdurch hat ein großer Teil des Pulvers nach dem Aufprall keinen Kontakt zur Kammeratmosphäre und kann nicht freigesetzt werden, was eine niedrige relative Freisetzung zur Folge hat.

In Bild 14 (Versuch 9, 0.25 kg Kieselgur,  $h \approx 3$  m, ohne Ventilation) sind am Rand der quaderförmigen Ausbuchtung der Kammer für den AFS (außerhalb der Kammer) Ablagerungen von Kieselgur zu erkennen, die nach Aufprall des Behälters an die Wand geschleudert wurden.

Der Einfluß der eingesetzten Masse ist besonders deutlich in Bild 15 und 16 zu sehen, wo unter sonst gleichen Bedingungen einmal 6 und einmal 0.5 kg Hausasche eingesetzt wurden. Absolut wurde bei großer eingesetzter Masse offensichtlich sehr viel freigesetzt, wie man an dem durchgehend braun gefärbten Boden erkennen kann, während bei geringer Masse (Bild 16) noch der metallene Glanz des Kammerbodens zu sehen ist. Die relative Freisetzung jedoch (Verhältnis aus freigesetzter Pulvermasse zur eingesetzten Masse) ist im Falle der geringen eingesetzten Masse deutlich höher, das gilt übrigens generell. Bei geringerer Fallhöhe (Bild 17) ist die Anhäufung von Aerosol deutlich intensiver als in Bild 15, was hier auf eine deutlich geringere relative Freisetzung schließen läßt.

In 3 Versuchen wurde ein Effekt beobachtet, wie er in Bild 18 zu sehen 1st. Der Behälter richtete sich unmittelbar nach dem Aufprall derart wieder auf, daß sein Boden abgehoben vom Kammerboden auf den Klappwänden in der Aerosolkammer stand. Moglicherweise fuhrt dieser Effekt zu einer etwas verstärkten Freisetzung, beeinflußte die Aussagefähigkeit der Ergebnisse jedoch nicht entscheidend, wie später zu sehen ist.

# 6.4 In der Aerosolkammer gemessene Gesamtstaubkonzentrationen (Filtermessungen)

### 6.4.1 Zeitabhängigkeit

Bild 19 - 22 enthalten die über einen Zeitraum von 10 Minuten ermittelten integralen Gesamtstaubkonzentrationen in mg/m<sup>3</sup> bis 30

- 10 -

Minuten nach dem Aufprall. Allen Bildern gemeinsam ist, daß die Konzentration mit zunehmender Zeitdauer nach dem Aufprall stark zurückgeht. Bei der Hausasche (Bild 19) sinken die Konzentrationen mit abnehmender eingesetzter Pulvermasse relativ stark ab. Bild 20 enthält für die Substanz Kieselgur die Fallhöhe und die eingesetzte Pulvermasse als variable Parameter. Das Verhalten der Konzentration als Funktion der Pulvermasse entspricht dem der Hausasche, überraschend ist jedoch, daß die Konzentration mit abnehmender Fallhöhe unabhängig von der eingesetzten Masse zunimmt. Alle obigen Bilder beziehen sich auf Versuche ohne Ventilierung.

Bild 21 hingegen zeigt das Ergebnis aus 5 Versuchen mit Ventilierung. Variable Parameter sind hier wieder die eingesetzte Masse und die Fallhöhe. Bei allen Versuchen zeigt sich eine Zunahme der Konzentration mit zunehmender eingesetzter Masse wie oben, während im Gegensatz zu Bild 20 die Konzentration mit der Fallhöhe mehr oder weniger deutlich zunimmt. Versuch 17 ist eine Wiederholung von Versuch 15, bei dem der Behälter sich entsprechend Bild 18 nach dem Aufprall aufgerichtet hatte. Wie man sieht, ist der Effekt nicht allzu groß.

Bei den Versuchen 11 und 12 (Bild 22) mit Hausasche zeigt sich eine extrem starke Zunahme der Massenkonzentration mit der eingesetzten Masse. Versuch 13 und 14 unterscheiden sich bei gleicher eingesetzter Masse und Fallhöhe nur durch die ein- bzw. ausgeschaltete Umluft (Ventilation), hier ergibt sich eine deutlich höhere Massenkonzentration bei eingeschalteter Umluft.

### 6.4.2 Höhenabhängigkeit

Alle Versuche zeigen zunächst das erwartete Ergebnis, daß die Massenkonzentartionen des Gesamtstaubes, von wenigen Ausnahmen abgesehen, mit der Höhe abnehmen (Bild 23 - 26). Sehr hohe Konzentrationen wurden bei den Versuchen mit Kieselgur (Versuch 4, Versuch 6, Versuch 10) und den Versuchen mit Hausasche (Versuch 11, 13, 16) - alle Werte für h = 40 cm - gemessen, absoluter Spitzenreiter ist hier Versuch 6 (Kieselgur), wo bei h = 100 cm Höhe über Boden ein größerer Wert als in 40 cm ermittelt wurde. Analog zur Zeitabhängigkeit ergaben auch die Versuche zur Höhenabhängigkeit eine starke Abhängigkeit der Massenkonzentration von der eingesetzten Masse (Bild 24, Versuch 4 und 5 oder Bild 26, Versuch 11 und 12). Ein wichtiges Ergebnis ist, daß die Höhenabhängigkeit bei abgeschalteter

Ventilierung wesentlich stärker ausgeprägt ist als bei

- 11 -

eingeschalteter. Hier trägt die Ventilierung zu einer besseren Durchmischung der freigesetzten Partikelwolke in der Kammer bei.

# 6.5 Freisetzung von Fein- und Gesamtstaub als Funktion der eingesetzten Masse während der ersten 10 Minuten nach dem Aufprall

Die prozentualen Anteile der Fein- und Gesamtstaubmasse an der eingesetzten Masse sind für die Experimente 1 - 17 in Tabelle 2 zusammengefaßt. Die einzelnen Größen sind in der Legende unterhalb der Tabelle erklärt. Der in der Kammer freigesetzte Gesamtstaub und Feinstaub wurde dabei als integraler Wert über die Höhenabhängigkeit bzw. Zeitabhängigkeit ermittelt. Soweit die Experimente in einem logischen Zusammenhang stehen, wurden die Ergebnisse der besseren übersicht halber graphisch dargestellt (Bild 27 und Bild 28). Man erkennt die freigesetzte Fein- bzw. Gesamtstaubmasse als Funktion der eingesetzten Masse für eine Reihe von Versuchsvarianten. Folgende Aussagen lassen sich aus diesen Darstellungen gewinnen:

- 1. In der Tendenz verhalten sich Fein- und Gesamtstaub ähnlich.
- 2. mit zunehmender Masse nimmt die relative Freisetzung ab.
- Die Einschaltung der Umluft in der Kammer bedingt eine im allgemeinen höhere Freisetzung.
- 4. Die Freisetzung wächst mit zunehmender Fallhöhe.
- 5. Die Freisetzung ist sehr stark substanzabhängig. für Kieselgur ergibt sich eine deutlich höhere Freisetzung als für Hausasche.
- 6.6 Vergleich der originalen, gleichzeitig gemessenen Freisetzungswerte von Gesamtstaub (Filter) und Feinstaub (APS) während der ersten 10 Minuten nach dem Aufprall.

Die Bilder 29 bis 32 zeigen die relative Freisetzung von Fein- und Gesamtstaub für die verschiedenen Versuchsvarianten als Balkendiagramme. Die Höhe der Balken entspricht dabei den Konzentrationswerten aus Bild 19 – 22, die mit dem Kammervolumen von 36 m<sup>3</sup> multipliziert wurden. Alle sonstigen notwendigen Erklärungen sind in der Legende der Bilder enthalten.

In etwa vergleichbar sind in Tabelle 2 die jeweiligen Gesamtstaubwerte mit den in Bild 29 -32 dargestellten jeweils zweiten Balken, wobei beide Werte unterschiedlich sind, da die Tabellenwerte integrale Werte sind. Der jeweils 5. Balken ist der freigesetzte Feinstaub, wie er auch in Tabelle 2 angegeben ist.

Man stellt fest, daß neben der Höhenabhängigkeit der Werte bei einigen

- 12 -

Versuchen (Versuch 1, 2, 4, 5, 6 und 17) auch eine horizontale Komponente der Freisetzung zu beachten ist (Vergleich 1. und 2. Balken). Man erkennt auch hier deutlich die stärkere Freisetzung von Kreselgur, wobei das Maximum immer einer kleinen eingesetzten Masse zuzuordnen ist. Der absolute Spitzenreiter (Mittel über alle 4 Balken) ist Versuch 15 (Kieselgur, 5 m, 0.25 kg, mit Ventilation), das gilt sowohl für den Gesamt- wie den Feinstaub. Dieses Ergebnis wird durch den Wiederholungsversuch Nr. 17 eindeutig bestätigt, der durchgeführt wurde, da sich während Versuch 15 nach dem Aufprall der Behälter wieder aufgerichtet hat.

# 6.7 Freisetzung von verschiedenen Partikelfraktionen in Relation zum Angebot in der eingesetzten Masse

Tabelle 3 zeigt die Freisetzung verschiedener Staubfraktionen in Abhängigkeit vom aerodynamischen Durchmesserintervall (Normierung mit dem Angebot der Substanzen an Staub entsprechend Bild 6), wobei der Cut-off-Durchmesser des Feinstaubes, me mit 10 um festgelegt wurde. Der Cut-off-Durchmesser des Gesamtstaubes, m2 ergab sich aus der Ansauggeschwindigkeit im Bereich des Filters zu 70 um (siehe auch Abschnitt 6.1). APS- wie Filterwerte gelten für die ersten 10 Minuten nach dem Aufprall und sind integrale Werte über die Zeit. mas ist die Massenfraktion > 70 um. Sie folgt aus der Differenz der Summe der Partikelmassen aus Wandabscheidung und Sedimentation auf dem Kammerboden sowie aus Gesamt- und Feinstaub. Es ist davon auszugehen, daß insbesondere der Sedimentationsvorgang am Boden hinsichtlich der Masse nach Bruchteilen von 1 Minute abgeschlossen ist. So ergibt sich für eine Partikel, die nach dem Aufprall des Behälters bis unter die Kammerdecke geschleudert wurde, für einen Durchmesser von 70 um eine Sedimentationsdauer von 20 s, für 140 um von 5 s. Die in der 3. Spalte aufgeführten Feinstaubwerte sind dieselben wie in Tabelle 2 (Spalte 6), die Gesamtstaubwerte in Spalte 4 ergeben sich aus der Differenz der Gesamt - und Feinstaubwerte in Tabelle 2. Die Werte ma wurden bereits oben erklärt, jedoch ist zu bemerken, daß die eingeklammerten Werte keine Meßwerte sind. Es wurde mit der Sedimentationsanalyse erst mit Versuch 5 begonnen, Versuch 12 war nicht auswertbar. Eine Korrelation der gemessenen Werte aus Wandabscheidung und Sedimentation mit den Gesamtstaubwerten aus den Filtermessungen war jedoch so eng (Bild 33), daß die fehlenden Werte (Versuche 1 - 4, 12) aus der Ausgleichskurve dieser Punktwolke entnommen werden konnten.

Folgendes läßt sich aus Tabelle 3 ablesen:

- In allen Durchmesserbereichen ist die Freisetzung von Kieselgun viel größer als jene von Hausasche.
- 2. Alle Freisetzungswerte liegen für Feinstaub unter 1 %.
- 3. Die maximale Freisetzung von 0.28 bzw. 0.15 % weisen die Versuche 15 und 17 auf, die beide mit einer Masse von 0.25 kg, einer Fallhöhe von 5 m und mit Ventilation durchgeführt wurden.
- 4. Die Freisetzung ist bei gröberen Stäuben intensiver als bei feinen, wobei zu beachten ist, daß die Aufenthaltsdauer der größten Partikel in der Kammeratmosphäre im Bereich von weniger als 1 Minute liegt.

 Die Abhängigkeit der Freisetzung von den gewählten Versuchsbedingungen entspricht im wesentlichen denen von Bild 27 und 28.

# 6.8 Elektronenmikroskopische Aufnahmen von Hausasche- und Kieselgurpartikeln

Es wurden in der Nähe des Absaugtrichters in der Kammer Partikeln auf Nucleporefilter gezogen, wobei auf die in Abschnitt 5 gemachten Einschränkungen zu achten ist. Da die Zeit zwischen dem Aufprall und dem Beginn der Beaufschlagung schon 2 Minuten beträgt, sind auf dem Filter keine allzu großen Teilchen mehr zu erwarten. Bild 34 und 35 zeigen Hausascheteilchen mit verschiedener Vergrößerung, im ersten Fall entspricht 1 cm = 5 um, im zweiten 1 cm = 1um. Man erkennt eine Vielzahl von Aggregaten und eine sehr unregelmäßige porige Oberflächenstruktur bei diesen Partikeln. Im Gegensatz dazu weisen Kieselgurteilchen (Bild 36 und 37) eine regelmäßige Oberflächenstruktur mit scharfen Kanten auf (Vergroßerung 1 cm = 1.43 um bzw 0.067 um). Auch hier sind Aggregate zu beobachten, jedoch weisen die Frimärpartikeln eine etwa gleiche Größe auf. Bei Betrachtung der stärkeren Vergrößerung fällt auf, daß sich sich auf der glatten Oberfläche der großen Partikeln eine Vielzahl von kleinen Partikeln im Durchmesserbereich von 0.1 bzw 0.8 um angelagert hat.

### 6.9 Einzelbildauswertung der Videoaufnahmen vom Versuchsverlauf

Alle Versuche mit Ausnahme von Versuch 2 wurden auf Videofilm aufgezeichnet und von den Versuchen 7. 8, 9, 10, 11 und 12 wiederum Einzelbildaufnahmen (Bild 38 - 43) entsprechend verschiedenen Stadien des Fallversuchs abgerufen. Jeder Versuch wird durch eine Serie von mindestens 4 Einzelbildern dargestellt, die den Aufprall und drei Stadien nach dem Aufprall (zwischen 0 und normalerweise 260 ms), insbesondere die Ausbreitung der Staubwolke zeigen.

Die auf dem Videoband für Einzelbilder angegebenen Versuchsnummern entsprechen leider nicht den Versuchsnummern im Meßprogramm. Die Zuordnung ist aus Tabelle 4 zu ersehen:

- 15 -

### Literatur

/1/ F. Lange, B. M. Schmitz Systemanalyse Konrad, Teil 3 Ermittlung der potentiellen Strahlenexpositionen in der Umgebung der Anlage bei Störfällen und Ableitung von Aktivitätsgrenzwerten für Einzelnuklide unter Berücksichtigung von Planungsänderungen GRS-A-1263/I (Juni 1986)

### /2/ VDI-Richtlinie 2031

Feinheitsbestimmungen an technischen Stäuben Abschnitt 3: Feinheitsbestimmungen durch Sieben (Ermittlung von Korngrößenfraktionen).

,

#### 737 K. R. Spurny

Schwingbett-Aerosolgenerator und seine Anwendungsgebiete Staub 41, 330 - 335. B., 1981

### /4/ VDI-Richtlinie 3491, Blatt 1

Messen von Partikeln. Prüfkriterien und Prüfmethoden für Verfahren und Geräte zum Bestimmen partikelförmiger Beimengungen in Gasen. Begriffe und Definitionen.

# Versuchsvarianten

Vers.	Nr -	Fulverart	Пo	h	Vent.
			(kg)	(m)	
1		Hausasche	6.00	5	nein
2		Hausasche	2.00	5	nein
З		Hausasche	0.50	5	nein
4		kieselgur	1.00	5	nein
5a		Kieselgur	0.25	5	nein
6		Kieselgur	1.00	5	ją
7		Kieselgur	1.00	1000 1000	,) æ
8		Kieselgur	0.25	3	ja
9		Kieselgur	0.25	3	hein
10		kieselgur	1.00	공	nein
11		Hausasche	6.00	Ð	ja
12		Hausasche	0.50	5	ja
13		Hausasche	6.00	3	nein
14		Hausasche	6.00	Z.	ja
15		Kieselgur	0.25	5	ja
16		Hausasche	6.00	Ċ	ja
17		Kieselgur	0.25	5	ja

### <u>Erklärungen:</u>

m <sub>o</sub>	:	eingesetzte	Pulvermasse
h	2	Fallhöhe	
Vent.	1	Ventilierung	g (Umluft)

Prozentuale Anteile von Fein- und Gesamtstaub an der eingesetzten Fulvermasse

Mat.	ν.	Nr.	ന്നം	h	Vent.	<b>m<sub>P</sub></b> (36 m <sup>3</sup> )	m⊭/m <sub>⇔</sub>	_m <sub>ca</sub> (36_m <sup>3</sup> )	ጠ <b>⊡</b> /ጠ <b>⇔</b>
			(kg)	(m)		(pm)	(%)	(mg)	( 1/2 )
НА	<u> </u>	1	6.00	5	nein	144.7	0.24 E-2	1317.6	2.20 E-2
HA		2	2.00	5	nein	100.1	0.50 E-2	1119.6	5.60 E-2
НА		2	0.50	þ	nein	33.8	0.68 E-2	583.2	11.70 E-2
KG		4	1.00	5	nein	73.4	0.73 E-2	2397.0	24.00 E-2
KG		5	0.25	5	nein	42.5	1.70 E-2	1542.0	61.68 E-2
KG		6	1.00	ъ	ja	176.4	1.76 E-2	3432.0	34.32 E-2
KG		7	1.00	З	je	61.2	0.61 E-2	1712.2	17.20 E-2
ΚG		8	0.25	3	ja	118.8	4.75 E-2	1477.2	59.10 E-2
KG		9	0.25	3	nein	20.2	0.81 E-2	853.2	34.13 E-2
KG		10	1.00	<sup>1</sup>	nein	67.7	0.68 E-2	2134.2	21.34 E-2
HA	:	11	6,00	Ľ	ja	381.6	0.64 E-2	3894.0	6.49 E-2
HA	1	12	0.50	đ	ja	32.4	0.65 E-2	661.2	13.20 E-2
HA	1	13	6.00	3	nein	424.8	0.71 E-2	1888.8	3.10 E-2
HA	1	14	6.00	3	ja	92.9	0.15 E-2	1666.8	2.80 E-2
KG	1	15	0.25	5	ja	349.2	13.97 E-2	1659.6	66.40 E-2
HA	t	16	6.00	5	ja	860.4	1.43 E-2	3477.5	5,79 E-2
KG	1	17	0.25	5	ja	183.6	7.34 E-2	1486.8	59.47 E-2

In den Versuchen 5, 6 und 15 hat sich der Behälter nach dem Aufprall wieder aufgerichtet. Erklärungen:

ffter	:	In der Kammer freigesetzter Peinstaub (APS-Messung)
m⊭∕m⇔	3	prozentualer Anteil des Feinstaubes an der eingesetzten
		Gesamtpulvermasse
m <sub>a</sub>	÷	In der Kammer freigesetzter Gesamtstaub (Filtermessung),
		ermittelt als integraler Wert unter Berücksichtigung der
		Höhenabhängigkeit.
ma∕ma	:	prozentualer Anteil des Gesamtstaubes an der eingesetzten
		Gesamtpulvermasse
HA	1	Hausasche
N.G	:	Kieselgur

Freisetzungsnaten als Funktion des aerodynamischen Durchmesserbereiches

Vers.	Mat.	നട (നവ്)	m⊋ (mg)	ոշ (mg)	™⊭/™⇔⊭ (%)	<sup>m</sup> ≈∕™ <sub>⇔⊰</sub> (%)	തട∕ ഷം≊ (%)
1	HA	144.7	1173	(10000)	0.010	0.15	0.27
2	ΗA	100.1	1020	(9500)	0.022	0.39	0.67
2	HA	33.8	549	(4000)	0.030	0.39	1.29
4	×Θ	73.4	2324	(24500)	0.015	2.02	6.97
5	KG	42.5	1500	14000	0.034	5.17	11.58
6	KG	176.4	3286	69500	0.035	2.83	18.29
2	ΝG	61.2	1651	15300	0.012	1.44	4.03
8	ъG	118.8	1358	16300	0.094	4.68	17.16
9	KG	20.2	833	9000	0.015	2.37	9.47
1 O	K.G	67.7	2066	20700	0.013	1.80	8.45
11	HA	331.6	3513	69000	0,028	0.45	1.35
1,2	HA	31.4	629	(4500)	0.029	0.97	1.45
1.3	HA	414.8	1464	15200	0.031	0.19	0.41
14	HA	92.9	1574	19500	0.007	0.20	0.52
15	KĢ	349.2	1310	23500	0,278	4,51	24.70
17	HA	860.4	2617	32000	0.062	0.33	0.94
17	$\ltimes G$	183.6	1302	12000	0.146	4,49	12.53
18	КØ	77.Q	778	5350	0.015	0.74	1.39
19	KG	19.1	905	2219	0,004	0.86	0.58
20	КG	115.2	1381	9113	0,023	1.31	2.37
21	KG	19.4	1002	3827	0.004	0.95	0.77

### Erklärungen:

m⊨	:	Feinstaub, (D_=<=10 um), genessen mit dem APS 3300 und um-
		gerechnet auf das gesamte Kammervolumen (nähere Erklärungen
		siehe Anhang zum Zusatzbericht, September 1987).
Ш <u>э</u>	:	Staubfraktion 10 um < $D_{a=}$ <=70 um - $m_{\pi}$ = $m_{\sigma}$ - $m_{\pi}$ ( $m_{\sigma}$ : auf dag

- gesamte Kammervolumen umgerechneter Wert der Filtermessung) Der obere Grenzwert D<sub>=e</sub> = 70 um wurde aus der Gleichgewichtsbedingung zwischen Ansauggeschwindigkeit an der Filterfläche und Sedimentationsgeschwindigkeit der Partikeln (50-%-Wert) berechnet.
- m<sub>3</sub> : Staubfraktion D<sub>ee</sub>> 70 um, bestimmt aus der Wandabscheidung und Sedimentation unter der Annahme, daß in den ersten 10 Minuten bereits alle "schweren" Partikeln > 70 um aussedimentiert bzw. an der Wand abgeschieden sind (m<sub>3</sub> = m<sub>eed</sub> + m<sub>wd</sub>) - (m<sub>P</sub> + m<sub>0</sub>).
- $m_{\rm OF}$  : Mit dem Schwingbettgenerator bestimmter, insgesamt verfügbarer Anteil an Feinstaub (D<sub>ee</sub> < 10 um).

 $m_{0,2}$  : Mit dem Schwingbettgenerator bestimmter, insgesamt verfügbarer Anteil an Staub für die Fraktion 10 um < D<sub>ae</sub> <= 70 um).

 $m_{\rm OCS}$  : Mit dem Schwingbettgenerator bestimmter, insgesamt verfügbarer Anteil an Staub für die Fraktion  $D_{\rm es}$  > 70 um.

HA : Hausasche

KG : Kieselgur

Zuordnung der Versuchsnummern auf Videoband (Einzelbilder) und des Meßprogramms

Vers.	Nr .	Video	Vers.	Nr.	Meßprogr.	Pulverart	mο	(kg)	h(m)	Vent.
	1			9		KG	Ο,	25	2	nein
	2			10		KG	1.	00	3	nein
	3			7		KG.	1.	00	3	ja
	4			8		KG	О.	25	3	ja
	5			12		HA	О,	50	5	ja
	6			11		HA	6.	00	5	ja

.



Eild 1: Behälter im geschlossenen Zustand



Bild 2: Behälter im aufgeklappten Zustand

Bild 3 Meßanordnung Aerosolkammer (Aufsicht)







Bild 5

Partikelsysteme zur Bildung eines mittleren Spektrums für dispergierbare Stoffe



Bild 6: Größenverteilungen der Substanzen Kleselgur und Hausasche

Kurve 1 : vorgegebene "GRS"-Verteilung Kurve 2a : Kieselour (Siebanalyse) Kurve 3a : Hausasche (Siebanalyse) Kurve 2b : Kieselour (Schwingbettgenerator) Kurve 3b : Hausasche (Schwingbettgenerator)



. .

Bild 7: Schematische Darstellung des Schwingbett-Aerosolgenerators

.



Bild 8: Elektronenmikroskopische Aufnahmen von Hausasche-Partikeln oben : 1 cm = 13 um unten: 1 cm = 3.8 um; Durchmesser der Partikel ca. 18.5 um



Bild 9: Elektronenmikroskopische Aufnahmen von Kieselgur-Partikeln oben: 1 cm = 13 um unten: 1 cm = 3.8 um; Durchmesser der Partikel ca. 10.5 um



Bild 10: Kieselgur-Teilchen unter dem Transmissionselektronenmikroskop (TEM) 3300-fache Vergrößerung



Bild 11: Porenstrukturen des Kieselgurs (TEM-Aufnahme) 25000-fache Vergrößerung



Bild 12: Becherglas (links neben dem Ablufttrichter) für die Sedimentationsglasplatte



Bild 13: Versuch Nr. 7 (1 kg Kieselgur, h = 3 m, mit Ventilation)


Bild 14: An die Kammerwand (quaderförmige Umhüllung des APS, siehe Bild 3) geschleuderte Pulvermasse (Versuch 9, 0.25 kg Kieselgur, h = 3 m, ohne Ventilation)



Bild 15: Fallversuch 11 6 kg Hausasche, h = 5 m, mit Ventilation



Bild 16: Fallversuch 12 0.5 kg Hausasche, h = 5 m, mit Ventilation



Bild 17: Fallversuch 14 6 kg Hausasche, h = 3 m, mit Ventilation



Bild 18: Fallversuch 15 0.25 kg Kieselgur, h = 5 m, mit Ventilation



## Bild 19: Integrale Gesamtstaubkonzentration als Funktion der Zeit nach dem Aufprall (Substanz Hausasche)

t(min)

- 34 -



# Bild 20: Integrale Gesamtstaubkonzentration als Funktion der Zeit nach dem Aufprall (Substanz Kieselgur)

t(min)



Bild 21: Integrale Gesamtstaubkonzentration als Funktion der Zeit nach dem Aufprall (Substanz Kieselgur)

t(min)

# Zu Bild 21: Integrale Gesamtstaubkonzentration als Funktion der Zeit nach dem Aufprall (Substanz Kieselgur)



t(min)

- 37 -

.



## Bild 22: Integrale Gesamtstaubkonzentration als Funktion der Zeit nach dem Aufprall (Substanz Hausasche)

t(min)



- 39 -



h(cm)



### Bild 25: Integrale Gesamtstaubkonzentration als Funktion der Höhe in der Kammer (Substanz Kieselgur)

- 41 -



h(cm)

- 42 -



27:

Bild

- 43 -





- 44 -

Bild 29: Gleichzeitig gemessene Freisetzungsraten von Fein- und Gesamtstaub (Verhältnis aus freigesetzter Staubmasse zum entsprechendem Angebot an Staub in der Pulversubstanz). Substanz: Hausasche (Erklärungen s. Bild 32)





- 46 -





Bild 32: Gleichzeitig gemessene Freisetzungsraten von Fein- und Gesamtstaub (Verhältnis aus freigesetzter Staubmasse zum entsprechendem Angebot an Staub in der Pulversubstanz), Substanz: Hausasche







Bild 34: Elektronenmikroskopische Aufnahmen von in der Nähe der Kammerabsaugung auf Nucleporefilter beaufschlagten Hausaschepartikeln. – Maßstab 1 cm = 5 um – Aufnahme 2 Minuten nach Aufprall, Probenahmedauer 3 s.



Bild 35: Elektronenmikroskopische Aufnahmen einer in der Nähe der Kammerabsaugung auf Nucleporefilter beaufschlagten Hausaschepartikel. – Maßstab 1 cm = 1 um – Aufnahme 2 Minuten nach Aufprall, Probenahmedauer 3 s.



Bild 36: Elektronenmikroskopische Aufnahmen von in der Nähe der Kammerabsaugung auf Nucleporefilter beaufschlagten Kieselgurpartikeln. - Maßstab 1 cm = 1.43 um -Aufnahme 2 Minuten nach Aufprall, Probenahmedauer 3 s.



Bild 37: Elektronenmikroskopische Aufnahmen einiger in der Nähe der Kammerabsaugung auf Nucleporefilter beaufschlagter Kieselgurpartikeln. – Maßstab 1 cm = 0.067 um – Aufnahmen 2 Minuten nach Aufprall, Probenahmedauer 3 s.



t = 0 s



t = 0.08 s

Bild 38: Video-Einzelbilder von Versuch Nr. 9 (Kieselgur, 0.25 kg, 3 m, 0. Vent.)



t = 0.16 s



t = 0.2 s

· Bild 38:

Video-Einzelbilder von Versuch Nr. 9 (Kieselgur, 0.25 kg, 3 m, o. Vent.)



t = 0 s



t = 0.06 s

Bild 39: Video-Einzelbilder von Versuch Nr. 10 (Kieselgur, 1 kg, 3 m, o. Vent.)



t = 0.10 s



#### t = 0.18 s

Bild 39: Video-Einzelbilder von Versuch Nr. 10 (Kieselgur, 1 kg, 3 m, o. Vent.)



t = 0 s



#### t = 0.04 s

Bild 40:

Video-Einzelbilder von Versuch Nr. 7 (Kieselgur, 1 kg, 3 m, m. Vent.)



t = 0.08 s



t = 0.2 s

Bild 40:

Video-Einzelbilder von Versuch 7 (Kieselgur, 1 kg, 3 m, m. Vent.)



t = 0



t = 0.08 s

Bild 41: Video-Einzelbilder von Versuch Nr. 8 (Kieselgur, 0.25 kg, 3 m, m. V.)



t = 0.14 s



t = 0.24 s

Bild 41: Video-Einzelbilder von Versuch Nr. 8 (Kieselgur, 0.25 kg, 3 m, m. V.)



. t = 0 s



t = 0.06 s

Bild 42: Video-Einzelbilder von Versuch Nr. 12 (Hausasche, 0.5 kg, 5 m, m. V.)



t = 0.1 s



t = 0.16 s

Bild 42: Video-Einzelbilder von Versuch Nr. 12 (Hausasche, 0.25 kg, 5 m, m. V.)



t = 0.04 s



t = 0.08 s

Bild 43: Video-Einzelbilder von Versuch Nr. 11 (Hausasche, 6 kg, 5 m, m. V.)



t = 0.12 s



t = 0.16 s

· Bild 43: Video-Einzelbilder von Versuch Nr. 11 (Hausasche, 6 kg, 5 m, m. V.)



t = 0.20 s



t = 0.24 s

Bild 43: Video-Einzelbilder von Versuch Nr. 11 (Hausasche, 6 kg, 5 m, m. V.)


t = 0.28 s



t = 0.32 s

