### 1 Einleitung und Motivation

Das Zerbrechen ungeordneter, spröder Materialien in Fragmente durch transienten Energieeintrag ist ein ubiquitärer Vorgang. Derartige Prozesse finden auf den unterschiedlichsten Zeit- und Längenskalen statt. Sie reichen von der Meteoritenkollision [88] in astronomischen Skalen bis hin zur Fragmentierung von Fullerenen durch Impaktionsvorgänge [20] und sie erstrecken sich bis zum Zusammenstoß schwerer Atomkerne in molekularen bzw. atomaren Dimensionen. Beispiele auf der Ebene der menschlichen Wahrnehmung sind das Zerspringen einer Tasse auf einem Steinboden und ebenso die industriell angewendeten Zerkleinerungsverfahren.

Die mannigfaltigen Anwendungen in Natur- und Ingenieurwissenschaften haben zu einer intensiven wissenschaftlichen Auseinandersetzung mit dem Thema der Fragmentierung sprödbrechender Festkörper geführt. Aufgrund der hohen Dynamik und der vielschichtigen Wechselwirkungen innerhalb eines Körpers ist man mit experimentellen Methoden bisher nicht in der Lage, das Phänomen in seiner gesamten Komplexität zu erfassen. Der Analyse des sogenannten Zerkleinerungsergebnisses, d.h. der Größenverteilung der Bruchstücke, kommt demzufolge eine besondere Bedeutung zu. Sie ist nahezu die einzige Möglichkeit, experimentell Rückschlüsse auf den Zerkleinerungsvorgang zu ziehen und Theorien sowie numerische Simulationen zu überprüfen.

Greift man das oben skizzierte Bild der zerbrochenen Tasse erneut auf und betrachtet die Größenverteilung der entstandenen Fragmente, so lässt sich leicht verifizieren, dass diese in sehr unterschiedlichen Größenklassen auftreten. Einige wenige Bruchstücke weisen Abmessungen in der Größenordnung der ursprünglichen Tasse auf. Eine wesentlich umfangreichere, aber immer noch abzählbare Anzahl an Bruchstücken kann einem mittleren Fragmentgrößenbereich von wenigen Zentimetern bis hinunter zu einigen Millimetern zugeordnet werden. Dagegen befindet sich die Mehrzahl der Bruchstücke im Bereich der Stäube und luftgetragenen Partikel. Im Vergleich zur Anzahl ist die in dieser Partikelfraktion zu findende Masse allerdings gering. Abbildung 1.1 zeigt ein typisches Beispiel für die Bruchstückgrößenverteilung nach einem Fragmentierungsprozess.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden schwerpunktmäßig phänomenologische Untersuchungen über die Bildung von Feinstäuben bei der Fragmentierung sprödbrechender Materialien durchgeführt. Ziel ist die Untermauerung theoretischer



Abbildung 1.1: Eine typische Bruchstückgrößenverteilung nach einem dynamischen Fragmentierungsprozess (487 kg schwerer Betonzylinder nach einem Fall aus 27 m Höhe auf ein unnachgiebiges Hindernis). Einige Bruchstücke weisen Abmessungen in der Größenordnung des Ausgangskörpers auf. Eine wesentlich größere Anzahl an Bruchstücken kann einem mittleren Fragmentgrößenbereich zugeordnet werden. Der größte Teil der Bruchstücke aber befindet sich im Bereich der Stäube und luftgetragenen Partikel.

Modelle, aber auch die direkte Anwendung der Daten auf Problemstellungen, die im Zusammenhang mit Sicherheits- und Konsequenzenanalysen für den Betrieb kerntechnischer Anlagen und den Transport radioaktiver Materialien aufgeworfen wurden. In der Literatur wird das Fragmentierungsverhalten ungeordneter Systeme im Bereich vergleichsweise grober Bruchstücke theoretisch und experimentell ausführlich beschrieben. Die hier durchgeführten Untersuchungen decken den Bereich der Feinstpartikel ab. Sie sollen neue Erkenntnisse über den Einfluss relevanter Parameter, wie die Qualität und Quantität des Energieeintrages, die Materialeigenschaften und die Geometrie, auf die Bildung von Feinstpartikel liefern.

Für die Analyse und Beurteilung der Sicherheit bei der Beförderung und Lagerung radioaktiver Stoffe in Transport- oder Lagerbehältern sind fundierte Kenntnisse zur potentiellen Freisetzung von Radioaktivität in aerosolgebundener Form unter unfall- oder sabotagebedingter mechanischer Lasteinwirkung unerlässlich. Von besonderer Bedeutung ist in diesem Zusammenhang das Verhalten sprödbrechender Werkstoffe. Schwach- und mittelradioaktive Substanzen aus dem kerntechnischen und medizinischen Herkunftsbereich werden beispielsweise in Matrixmaterialien, wie Zement, Keramik, Bitumen etc., fixiert. Hochradioaktive Abfälle werden entweder durch eine Glasmatrix immobilisiert oder liegen in Form von keramischen Brennstoffpellets innerhalb der Brennstäbe vor. Die maßgebliche Kenngröße zur Beurteilung und Charakterisierung des Freisetzungsverhaltens ist der Quellterm. Er umfasst die luftgetragene Materialmenge in Form feiner Partikel in Abhängigkeit von dem aerodynamischen Äquivalentdurchmesser (AED) und der Schwere der mechanischen Lasteinwirkung. Im zweiten Kapitel dieser Arbeit soll zunächst ein kurzer Überblick über die Gefährdung von Mensch und Umwelt durch aerosolgebundene Radioaktivität gegeben werden.

Aufgrund der Bedeutung von Bruchprozessen in verschiedenartigen Bereichen existiert eine große Anzahl von Ansätzen, um sich diesem Thema zu nähern. Nach H.J. Herrmann [45] ist die Herangehensweise primär von der Längenskala des jeweils relevanten Größenbereichs abhängig. Auf dem Gebiet der Materialwissenschaften ist das Augenmerk beispielsweise vornehmlich auf die atomaren Strukturen und Bindungen gerichtet. Ingenieurwissenschaftliche Problemstellungen werden häufig mit elastizitätstheoretischen Methoden bearbeitet. Die bei der Fragmentierung beobachteten Universalitäten und selbstähnlichen Strukturen haben, neben den eher anwendungsbezogenen Ansätzen, auch zu einer grundlagenorientierten Beschäftigung mit diesem Thema geführt. Allerdings ist der Fragmentierungsprozess bis heute noch nicht vollständig erforscht, was sich in der Vielzahl der jüngst erschienenen Publikationen zu diesem Thema widerspiegelt. Ein Überblick über die wesentlichen theoretischen Modelle und experimentellen Befunde wird im dritten Kapitel gegeben. Der Maßstab der Betrachtungen wird hierbei ausgehend von der mikroskopischen Beschreibung eines Einzelbruches bis zur makroskopischen Behandlung vieler, sich zeitgleich ausbreitender Risse und der daraus gebildeten Fragmente Schritt für Schritt vergrößert. Insbesondere wird die Anwendbarkeit der Ergebnisse auf die Entstehung von Feinstaub herausgearbeitet.

In den nachfolgenden Abschnitten der vorliegenden Arbeit werden eine Reihe von eigenen phänomenologischen Untersuchungen vorgestellt. Zunächst werden im Kapitel 4.3 Experimente beschrieben, bei denen im Labormaßstab mittels einer pneumatischen Beschleunigungsapparatur ungeordnete Festkörper mit einem Volumen von wenigen Kubikzentimetern gegen ein unnachgiebiges Hindernis beschleunigt und zerkleinert werden. Die dabei entstehende Feinstaubfraktion wird mit einem von L. Mädler et al. [84] entwickelten direktem Verfahren *in situ* erfasst und anschließend klassiert. Freisetzungsbestimmende Parameter, wie Energieeintrag, Material und Probengeometrie, können so mit den Charakteristika des Quellterms (Größenverteilung und Gesamtmenge des Feinstaubes) korreliert werden. Im Zusammenhang mit der Konsequenzenanalyse soll die Frage beantwortet werden, ob sich radioaktive Substanzen, wie frischer oder abgebrannter Brennstoff, hinsichtlich ihrer Staubgenerierung durch nichtradioaktive Surrogatmaterialien ersetzen lassen. Wie einleitend erwähnt, erfolgt die Fixierung schwach- und mittelradioaktiver Substanzen typischerweise in Betonmatrizes mit einem Volumen von bis zu einem Kubikmeter. Inwieweit die im Labormaßstab gewonnenen Erkenntnisse extrapoliert werden können, wird in Abschnitt 4.4 untersucht. Hierzu wurden Betonprobekörper mit einem Volumen von maximal 220 Litern in Falltests zerkleinert und anschließend die freigesetzte Menge an Feinstaub unter Verwendung eines indirekten Messverfahrens bestimmt. Ein Vergleich des so ermittelten Quellterms mit den im Labor gewonnenen Ergebnissen ermöglicht es, Aussagen hinsichtlich der Skalierbarkeit zu treffen.

In der Literatur werden zwei grundsätzlich unterschiedliche Prozesse für die Entstehung feiner Partikel angegeben. Die erste Vorstellung ist, dass die kleinen Fragmente das Ende einer Bruchkaskade von sich immer weiter verzweigenden bzw. zusammenlaufenden Rissen darstellen [53]. Folglich ist die Größe der kleinsten Bruchstücke von dem Energieeintrag abhängig. Das zweite, im wesentlichen von J.A. Åström et al. [9] entwickelte Modell, sieht eine weitere Quelle für Feinstaub in von der Bruchoberfläche ausgehenden und sich erneut verzweigenden Rissen. Führt man diesen Gedankengang fort, so bedeutet dies, dass bei jedem Bruch Feinstaub entsteht. Die Generierung von Feinstaub ist in diesem Fall unabhängig von der eingetragenen Energie. Zur experimentellen Überprüfung dieser Modellvorstellung wird im fünften Kapitel ein einfaches Verfahren vorgestellt, mit dem es möglich ist, die bei einem makroskopischen Einzelbruch gebildeten Partikel quantitativ zu erfassen und ihre Größenverteilung zu beschreiben. Anhand ausgewählter Materialien wird eine Reihe von Experimenten beschrieben, bei denen der Quellterm in Abhängigkeit von der Bruchoberfläche ermittelt wurde.

Ein weiteres, besonders in Anbetracht potentieller Sabotageanschläge auf Transport- und Lagerbehälter radioaktiver Substanzen, relevantes Freisetzungsszenario ist die Wechselwirkung eines Hochgeschwindigkeitsprojektils mit einem spröden Festkörper [75, 93]. Im sechsten Kapitel werden einige grundsätzliche Untersuchungen zum Freisetzungsverhalten sprödbrechender Materialien unter Einwirkung von Projektilen beschrieben. Die Belastungsgeschwindigkeiten reichen dabei von einigen hundert bis hin zu Geschwindigkeiten von siebentausend Metern pro Sekunde. Zur Beschleunigung der Projektile wurden unterschiedliche Verfahren eingesetzt. Vergleichsweise geringe Geschwindigkeiten wurden mit einem konventionellen Jagdgewehr erzielt. Für Geschwindigkeiten oberhalb von tausend Metern pro Sekunde wurden eine zweistufige Leichtgaskanone bzw. ein explosives Hochenergiegeschoss eingesetzt. Diese Versuche wurden in Kooperation mit dem Fraunhofer Institut für Kurzzeitdynamik in Efringen-Kirchen durchgeführt.

## 2 Aerosolgebundene Radioaktivität

Kommt es zu einer unkontrollierten Freisetzung von radioaktiven Stoffen, so stellt aerosolgebundene Radioaktivität ein besonderes Gefährdungspotential für Bevölkerung und Umwelt dar. Unter dem Begriff Aerosol versteht man im Allgemeinen ein System aus einer festen oder flüssigen Phase in einem gasförmigen Medium. Die in der Literatur verwendeten Definitionen für den Partikelgrößenbereich, der als Aerosol bezeichnet wird, sind unterschiedlich. Im Folgenden wird in Anlehnung an S.K. Friedlander [33] von Aerosolen gesprochen, wenn die lineare Ausdehnung der Partikel zwischen 0,001  $\mu$ m und etwa 100  $\mu$ m liegt. Auf der einen Seite sind die Partikel so groß, dass sie sich deutlich von der Gasphase unterscheiden, auf der anderen Seite ist ihre Sedimentationsgeschwindigkeit so gering, dass sie für gewisse Zeit im luftgetragenen Zustand verbleiben.

Die Ausbreitung der Partikel in der Atmosphäre und die Inkorporation über die Atemwege werden im Wesentlichen über ihre aerodynamischen Eigenschaften bestimmt. Durch die Einführung des sogenannten aerodynamischen Äquivalentdurchmessers kann das physikalische Verhalten nichtisometrischer Partikel mit den vergleichsweise einfachen Methoden für kugelförmige Partikel in Einklang gebracht werden. Der aerodynamische Äquivalentdurchmesser ist definiert als der Durchmesser einer Kugel mit der Dichte  $\rho_0 = 1 \text{ g/cm}^3$ , die die gleiche Sinkgeschwindigkeit in Luft wie das unregelmäßig geformte Partikel besitzt.

Die Strahlenexposition von Menschen und Umwelt kann durch radioaktive Aerosole auf zwei unterschiedlichen Expositionspfaden erfolgen:

- Strahlenquellen, die von außen auf den Menschen einwirken (exkorporale Strahlenexposition),
- radioaktive Stoffe, die über den Pfad der Inhalation bzw. Ingestion in den Körper gelangen (inkorporale Strahlenexposition).

#### 2.1 Exkorporale Strahlenexposition

Exkorporale Strahlenexposition wird im Wesentlichen durch Elektronen- und Photonenstrahlung aus Bodenablagerungen verursacht. Dabei hängt die Kontamination des Untergrundes von der Quellstärke, dem Abstand zur Quelle und den meteorologischen sowie geographischen Gegebenheiten ab. Die sogenannte trockene Deposition ("fall-out") ist direkt proportional zur Sedimentationsgeschwindigkeit der Partikel und der Aerosolkonzentration in Bodennähe. Im Fall der Auswaschung von Partikeln durch Niederschlag ("wash-out" oder "rain-out") müssen die vertikalen Konzentrationsprofile und die physiko-chemischen Eigenschaften des Aerosols berücksichtigt werden.

### 2.2 Inkorporale Strahlenexposition

Inkorporale Strahlenexposition wird durch radioaktive Stoffe, die entweder über den Respirations- oder den Verdauungstrakt in den Körper aufgenommen werden, verursacht. Für die Ermittlung der effektiven Strahlendosis sind die chemische Form und der Aufnahmeweg eines Radionuklids, die Reichweite seiner Strahlung und seine biokinetischen Daten wichtig. Zu den biokinetischen Daten gehören neben der Verteilung der Substanz im Körper, die Anreicherung in bestimmten Organen sowie Stoffwechsel- und Ausscheidungsvorgänge [30].

Die unmittelbare Einwirkung luftgetragener Partikel auf den menschlichen Organismus erfolgt primär über die Atemwege und ist deshalb von besonderer radiotoxikologischer Bedeutung. Entscheidend für den Depositionsort der Partikel in der Lunge ist deren aerodynamischer Durchmesser. Die international anerkannte Norm DIN EN 481 [1] teilt Stäube in drei gesundheitsrelevante Fraktionen ein (vgl. Abbildung 2.1):

- einatembarer Staub,
- thoraxgängiger Staub,
- alveolengängiger Staub.

Die einatembare Fraktion entspricht dem mittleren Massenanteil der Partikel, die durch Mund und Nase inhaliert werden können. Die Mittelung erfolgt über die Partikelgröße. Die als thoraxgängiger Staub bezeichnete Fraktion dringt bis über den Kehlkopf hinaus vor. Alveolengängige Partikel gelangen bis in Bereiche der feinen Zweige der Bronchien (Bronchioli terminales) und der Lugenbläschen (Alveolus pulmonis). Abgelagert werden die Partikel in den unterschiedlichen Lungenregionen über die Mechanismen Impaktion, Sedimentation, Diffusion, Interzeption und elektrostatische Deposition. Wobei die beiden letztgenannten Mechanismen eine eher untergeordnete Rolle spielen [47].



Abbildung 2.1: Definitionskurven für physiologisch relevante Staubfraktionen nach DIN EN 481 [1].

Lagern sich unlösliche Partikel im oberen Bereich der Atemwege (Nase, Rachen, Kehlkopf, Luftröhre und Bronchialbaum) ab, so wird der größte Teil durch den Flimmerstrom und Husten über den Magen-Darm-Trakt nach außen befördert. Typische biologische Halbwertzeiten<sup>1</sup> für diesen Vorgang betragen weniger als 24 Ein geringerer Teil des deponierten Staubes wird von Makrophagen Stunden. (Fresszellen) im Lungenbindegewebe phagozytiert und in die Lymphknoten transportiert. Gelangen Partikel in Folge ihrer Größe bis in den Bereich der Lunge ohne Flimmerepithel (Bronchioli terminales, Alveolus pulmonis), so ist mit Halbwertzeiten zwischen 200 und 2 000 Tagen zu rechnen. Hier werden unlösliche Partikel ausschließlich über den Weg der Phagozytose durch Alveolarmakrophagen in die oberen Atemwege abtransportiert oder - in geringerem Ausmaß - in das lymphatische System bis in die Lymphknoten [77, 121] verbracht. Lösliche Substanzen können über den Prozess der Diffusion durch die Lungenbläschen in die Blutbahn gelangen und sich in den Organen anreichern. Beispielsweise lagert sich Jod-131 bevorzugt in der Schilddrüse ab. Cäsium-137 verteilt sich hingegen

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Die biologische Halbwertzeit gibt an, nach welcher Zeit eine vorgegebene Menge einer inkorporierten Substanz auf natürlichem Wege (Stuhl, Schweiß, Atmung) zur Hälfte aus einem Organismus ausgeschieden worden ist (Eliminationshalbwertszeit).

annähernd gleichmäßig über den gesamten Körper [30]. Die Ausscheidung der körperfremden Substanzen erfolgt über Niere oder Leber.

Nach den Sicherheitsvorschriften der Internationalen Atomenergie-Organisation in Wien (IAEO) darf die maximal inhalierte effektive Dosis im Fall der Freisetzung von schwach- und mittelradioaktiven Stoffen für Personen in der Nähe des Unfallortes 50 mSv [54] nicht überschreiten. Im Vergleich dazu beträgt die Bronchial- und Lungendosis durch natürliches Blei-210 und Polonium-210 aus dem Tabakrauch für einen Raucher bis zu 8 mSv pro Jahr [30]. Nach den Richtlinien der IAEO beträgt die maximale exkorporale Dosisleistung für die Haut 0,5 Sv und für die Linsen des Augen 0,15 Sv. Auf Basis dieser Obergrenzen und der bei einem Unfall potentiell freigesetzten Aktivität wird das maximale Aktivitätsinventar für Transportbehälter festgelegt.

# 3 Beschreibung von Zerkleinerungsvorgängen

Fragmentierungsvorgänge in ungeordneten Festkörpern sind hochdynamische, irreversible Phänomene, die bei vielen physikalischen Prozessen auftreten und dementsprechend intensiv untersucht worden sind. Eine umfassende Würdigung der Entwicklung auf diesem Gebiet ist im Rahmen der hier vorliegenden Arbeit nicht möglich und auch nicht gewollt. Im dritten Kapitel sollen die für das Verständnis notwendigen Konzepte und Definitionen der Bruchmechanik kurz vorgestellt und ihre Anwendbarkeit auf die Problematik der Feinstaubentstehung überprüft werden. Wobei in Abschnitt 3.2 "Beschreibung des Zerkleinerungsergebnisses" insbesondere solche Veröffentlichungen diskutiert werden, die für diese Studie wesentliche Impulse und Anregungen geliefert haben. Weitere für dieses Thema wesentliche Publikationen werden in der Diskussion zu dem jeweiligen Abschnitt erörtert.

#### 3.1 Konzepte der Bruchmechanik

Jeder Körper lässt sich durch Einwirkung genügend großer Kräfte zerstören. Begibt man sich auf die molekulare Ebene, so ist der Prozess der Fragmentierung gleichbedeutend mit dem Zerfall atomarer Bindungen. Die potentielle Energie zwischen den Atomen wird dabei anhand des Lennard-Jones-Potentials beschrieben. Durch eine einfache Approximation der Potentialfunktion lässt sich die theoretische Festigkeit  $\sigma_{theo}$  eines Werkstoffs aus dem Elastizitätsmodul E abschätzen:  $\sigma_{theo} \approx E/\pi$  [41]. Für Glas erhält man bei einem Elastizitätsmodul von bis zu  $1 \cdot 10^5 \text{ N/mm}^2$  eine maximale theoretische Festigkeit von  $3 \cdot 10^4 \text{ N/mm}^2$ . Aus experimentellen Beobachtungen weiß man jedoch, dass die statische Zugfestigkeit des Werkstoffs um drei Größenordnungen unterhalb der theoretisch ermittelten Werte liegt. Für Quarzglas beträgt sie beispielsweise 90 N/mm<sup>2</sup> [17].

Bestimmt wird die Festigkeit demnach nicht durch die Struktur der atomaren Bindungen, sondern vielmehr durch Korngrenzen, mikroskopische Defekte und Poren innerhalb des Körpers. Anschaulich bedeutet dies, dass ein Teil des Volumens nicht mehr für elastische Deformationen zur Verfügung steht und es deshalb, wie in Abbildung 3.1 dargestellt, zu einer Spannungserhöhung in der Nähe der Rissspitze kommt. Dies führt schließlich zur Nukleation und Ausbreitung von Rissen.