Abschlussbericht

zum Vorhaben

„Dekontamination silicatischer Oberflächen mittels Laserablation bei gleichzeitiger Abproduktkonditionierung"

FKZ: 02 S 8162

Projektträger: BMBF,
Forschungszentrum Karlsruhe GmbH

Laufzeit: 01.08.2002 - 30.09.2005

Projektleiter: Prof. Dr. Ing. H. Exner

Bearbeiter: Dipl.-Ing. S. Treptau
Dipl.-Ing. (FH) S. Geißler

Das diesem Bericht zugrunde liegende Vorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Bildung und Forschung, Forschungszentrum Karlsruhe, Projektträger für Wassertechnologie und Entsorgung im Forschungszentrum Karlsruhe unter dem Förderkennzeichen 02 S 8162 gefördert.

Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt bei den Autoren.

Inhaltsverzeichnis

0	**Einleitung**	**5**
1	**Aufgabenstellung**	**6**
2	**Voraussetzungen, unter denen das Vorhaben durchgeführt wurde**	**7**
2.1	Anlagentechnik	7
2.2	Eigener Entwicklungsstand/Eigene Vorarbeiten	7
3	**Planung und Ablauf des Vorhabens**	**9**
4	**Wissenschaftlicher und technischer Stand**	**10**
5	**Zusammenarbeit mit anderen Stellen**	**11**
6	**Wissenschaftlich-technische Ergebnisse**	**12**
6.1	Experimentelle Vorbetrachtungen	12
6.2	Untersuchungen/Ergebnisse Schmelzverhalten	15
6.3	Entwicklung einer Abtragstechnologie	21
6.3.1	Düsenform	24
6.3.2	Positionierung der Düsen	24
6.3.3	gepulstes Regime	25
6.4	Ergebnisse Ausblastechnologie	26
6.4.1	Proben geringer Korngröße	26
6.4.2	Übertrag auf Referenzproben	30
6.4.3	Flächige Bearbeitung durch getaktetes Ausblasen	32
6.5	Ergänzende Untersuchungen	34
6.5.1	Senkrechte Wand	34
6.5.2	Acetylen	34
6.5.3	Sauerstoff	35
6.6	Analysen der Abprodukte	35
6.7	Entwicklung von Zusatzgeräten und Messtechnik	46
6.7.1	Abproduktsammler, Filtertechnik	46
6.7.2	Messtechnik	46
6.8	Zusammenfassung	48
7	**voraussichtliche Nutzen, Verwertbarkeit der Ergebnisse im Sinne des fortgeschriebenen Verwertungsplanes**	**50**

8 während der Durchführung des Vorhabens dem ZE bekannt gewordenen Ergebnisse im Sinne des fortgeschriebenen Verwertungsplanes 51
8.1 Ergebnisse der Literaturrecherche 51
8.1.1 Radioaktive Kontamination 52
8.1.2 Dekontamination im allgemeinen Sinn 53
8.1.3 Laser in der Stilllegungstechnik 56
8.1.4 bisherige Arbeiten zum Verglasen von Beton 57
8.1.5 Glastechnologien für die Immobilisierung 64
8.1.6 Verhalten von Beton bei Temperaturerhöhung 67
8.2 Ergebnisse der Patentrecherche 75
9 erfolgte oder geplante Veröffentlichungen nach 6. 77
10 Literaturverzeichnis 78
11 Abbildungsverzeichnis 82
12 Tabellenverzeichnis 85
13 Anlagen 86
Anlage 1…3: Veröffentlichungen

0 Einleitung

Aktuell beschränkt sich der Einsatz der Lasertechnologie beim Rückbau und der Stilllegung kerntechnischer Anlagen auf das Trennen von Materialien (vorwiegend Schneiden von Beton) [1]. Untersucht werden außerdem Methoden zum Abtragen durch Verdampfen von meist sehr dünnen kontaminierten Schichten wie Farbanstrichen. Eine kombinierte Methode stellt das Trockeneis-Laserstrahlentschichten dar [2, 3], bei dem durch einen Laserstrahl induzierte und den Trockeneiszusatz verstärkte thermische Spannungen zum mechanischen Abplatzen von Schichten größerer Dicke führen. Als Laser werden im Allgemeinen CO_2-Gaslaser und Nd:YAG-Festkörperlaser verwendet. Mit fortschreitender technischer Entwicklung und gesteigerter Leistungsfähigkeit werden jedoch zum heutigen Zeitpunkt Hochleistungsdiodenlaser (HLDL) immer interessanter.

Neben dem Erforschen geeigneter ablativer Methoden, untersuchen einige Wissenschaftler Möglichkeiten zum Einbinden der radioaktiv kontaminierten Bestandteile in eine glasartige Matrix, wobei diese erst im Nachhinein als versiegelte Oberfläche abgetragen und konditioniert wird [4, 5].

Das hier vorgestellte Verfahren soll die Möglichkeiten leistungsfähiger Lasertechnik nutzbar machen und Grundlagen bilden, für ein Verglasen und Einbinden radiaktiver Substanzen bei gleichzeitigem Abtragen in definierter, z.B. granulatartiger Form.

1 Aufgabenstellung

Ziel des Projektes war die Entwicklung eines effizienten und sicheren Verfahrens zum schmelzflüssigen Abtrag der radioaktiv kontaminierten Oberflächenschicht von Beton kerntechnischer Anlagen mit Hilfe von Laserstrahlung, wobei die schmelzflüssige Phase als Träger der kontaminierten Produkte dient und als solche abgeführt wird, ohne die Gesundheit des Bearbeiters zu gefährden. Das Volumen des endzulagernden Betons wird extrem minimiert.

Schwerpunkte bildeten die Untersuchungen zum Schmelzverhalten von Normalbeton unter Einwirkung von CO_2-, Nd:YAG- und Diodenlaserstrahlung und die Entwicklung eines effizienten Verfahrens zum Abtrag der Schmelze bei gleichzeitiger Konditionierung des kontaminierten Materials. Die Optimierung des Abtragsprozesses erfolgte durch das Abarbeiten eines Parameterfeldes und das Auswerten der Ergebnisse. Darauf aufbauend erfolgte die Ausgabe einer Investitionsempfehlung an den Projektpartner Institut für Energietechnik, unter Leitung von Prof. Dr. rer. nat. J. Knorr, der Technischen Universität Dresden. Des Weiteren beinhaltete die Aufgabenstellung die Konstruktion und den Aufbau notwendiger peripherer Geräte in Form von Zubehör und Messeinrichtungen.

2 Voraussetzungen, unter denen das Vorhaben durchgeführt wurde

Das Vorhaben wurde im Verbund mit dem Institut für Energietechnik der Technischen Universität Dresden unter dem Titel: „Dekontamination silicatischer Oberflächen mittels Laserablation bei gleichzeitiger Abproduktkonditionierung" realisiert. Die durchzuführenden Arbeiten und Teilschritte wurden unter den Projektpartnern entsprechend abgestimmt und sind in den einzelnen Arbeitspaketen festgelegt worden.

2.1 Anlagentechnik

Für das Laserinstitut Mittelsachsen e.V. bestand die Möglichkeit, über eine Kooperationsvereinbarung mit der Hochschule Mittweida, die Labore und die Anlagentechnik der Hochschule Mittweida zu nutzen. Aus den zur Verfügung stehenden ca. 20 Laseranlagen mit allen industriell angewendeten Laserwellenlängen wurden für die Bearbeitung des Projektes nachstehende Laser ausgewählt:

- CO_2-Laseranlage — 5 kW mit 4-Achs-Führungsmaschine
- Diodenlaseranlage — 2,9 kW, fasergekoppelt, mit 3-Achs-Koordinatentisch und Drehachse
- Nd:YAG-Laseranlage — 1 kW, cw, fasergekoppelt mit 3-Achs-Koordinatentisch und Drehachse

2.2 Eigener Entwicklungsstand/Eigene Vorarbeiten

Die Arbeitsgruppe Keramik konnte sich bei der Realisierung des Vorhabens auf eine Vielzahl an Erfahrungen stützen, die sie beim Bearbeiten von Keramik mit Laserstrahlung, den damit verbundenen Problemen und deren teilweisen Lösung bereits seit 1986 gesammelt hat. Hierzu zählen unter anderem das Schweißen von Al_2O_3-Keramiken und von Gläsern sowie das Verbinden von Metallen mit Keramik. Verfahren zur Oberflächenmodifizierung oxidischer/silicatischer Materialien wurden ebenfalls entwickelt.

Nachfolgend sind einige Veröffentlichungen mit Beteiligung von Mitarbeitern des LIM zur Bearbeitung von Keramik zusammengestellt:

1 Nagel, A.-M.: Untersuchungen zum Laserschweißen von Keramik. Diplomarbeit an der Hochschule für Technik und Wirtschaft (FH) 1996

2 Nagel, A.-M.; Exner, H.: Rissfreies Laserschweißen von Keramik. Laser Magazin Nr. 4, 1996, Magazin Verlag, S. 46-50

3 Nagel, A.-M.; Exner, H.: Rissfreies Laserschweißen von Keramik. Keramische Zeitschrift Nr.12, 1996, Verlag Schmidt GmbH, S. 1120-1122

4 Nagel, A.-M.; Exner, H.: Laserschweißen von Keramik - Dreidimensionale Strukturen. Tagungsband der 12. Internationalen Fachtagung Mittweida, 1996, S. 27-34

5 Nagel, A.-M.; Exner, H.: Successful 3-dimensional laser welding of ceramics. ICALEO ´97, San Diego / USA, Volume 83, Part 1, 1997, S. 11-20

6 Nagel, A.-M.; Exner, H.: Schweißen von Keramikbauteilen mit Hilfe von zwei Laserstrahlen. MM Maschinenmarkt, Nr. 33, 1998, S. 24-26

7 Nagel, A.-M.; Exner, H.: Ist Keramik mit dem Laser schweißbar?. Das internationale Zahntechnik Magazin. Nr. 9, 1998, S. 506-510

8 Nagel, A.-M.; Exner, H.: Innert weniger Minuten verbunden. SMM Schweizer Maschinenmarkt, Nr. 45, 1998, S. 98-101

9 Exner, H.; Nagel, A.-M.: Laserwelding of alumina - newest results. Tome 1, Cisffel 6, Toulon, France, 1998, S. 273-281

10 Doppleb, C.; Lipfert, R.; Hülsenberg, D.; Nagel, A.-M.; Exner, H.: Generation of magnetic areas by laser treatment. Scientific Reports, Journal of the university of applied scienes Mittweida, No. 9, 1998, S. 135-142, ISSN 1430-3698

11 Exner, H.; Nagel, A.-M.: Laser welding of functional and constructional ceramics for microelectronics. SPIE´S International Symposium on high power lasers and applications, San Jose / USA, 1999, S. 262-268

12 Nagel, A.-M.: Laserstrahlschweißen von Aluminiumoxidkeramik. Dissertation der Technischen Universität Ilmenau, Fakultät für Maschinenbau, 1999

3 Planung und Ablauf des Vorhabens

Die Planung erfolgte in 2 Arbeitspaketen.

Das erste Arbeitspaket stellte die Ermittlung technisch-technologischer Parameter der Laserablation an inaktiven Referenzproben dar und gliederte sich in Untersuchungen zum Schmelzverhalten silicatischer Basismaterialien, d.h. von Normalbeton mit quarzitischem, calcitischem und gemischtem Zuschlag, in die Entwicklung von Verfahren zum Trennen der schmelzflüssigen Phase vom Basismaterial unter Berücksichtigung der optimalen Konditionierung sowie in die Entwicklung von Zusatzgeräten und notwendiger Messtechnik.

Der Aufbau und die Inbetriebnahme eines Leistungslasers am Kernreaktor der Technischen Universität Dresden stellte das zweite Arbeitspaket dar. In einem ersten Schritt sollten alle gewonnenen Ergebnisse ausgewertet werden und auf deren Grundlage die Laserempfehlung für die Investitionsvorbereitungen an der Technischen Universität Dresden erfolgen. Nach getätigter Investition sollte sich der Aufbau und die Inbetriebnahme des Leistungslasers am Kernreaktor der Technischen Universität Dresden anschließen.

Die Projektarbeit wird mit der Auswertung und Aufbereitung der erzielten Ergebnisse in Form eines Abschlussberichtes abgeschlossen.

4 Wissenschaftlicher und technischer Stand

Die Wahl der Lasertechnik für dieses Vorhaben wird damit begründet, dass der Nachteil mechanisch arbeitender Verfahren, wie das Abfräsen von Oberflächen mit dem Freisetzen immenser Mengen an lungengängigen Feinstäuben einhergeht. Diese instantan während des Abtrags mit der geforderten Sicherheit zu binden, bedarf eines enormen gerätetechnischen Aufwands. Der gebundene Staub muss nachfolgend separiert und in einen Zustand der sicheren Endlagerung überführt werden.

Der Vorteil beim Verwenden von Laserstrahlung ist thermischer Natur. Unter Nutzung des Absorptionsverhaltens der zu wählenden Laserwellenlänge kann erreicht werden, dass die Laserstrahlung nicht zum Verdampfen der Oberfläche führt, sondern größere Volumina in eine Schmelzphase überführt. Durch das gute Benetzungsverhalten der entstehenden Schmelze von Fremdmaterie, soll diese abgetragen, abgekühlt und direkt dem Endlager zugeführt werden. Diese Vorgehensweise unterscheidet sich von allen bisherigen Anwendungsvarianten dahingehend, dass das Beseitigen kontaminierter Stoffe, ohne die Gefahr der Inhalation giftiger Bestandteile besteht und keine komplizierte Technologie zum Binden und nachfolgenden Trennen der radioaktiven Bestandteile erfolgen muss.

5 Zusammenarbeit mit anderen Stellen

Das Vorhaben gehört zum Verbundvorhaben: „Dekontamination silicatischer Oberflächen mittels Laserablation bei gleichzeitiger Abproduktkonditionierung". Die Zusammenarbeit erfolgte mit dem Institut für Energietechnik, der Technischen Universität Dresden nach den im Arbeitsplan festgelegten Punkten.

Diverse Arbeitstreffen dienten der Darstellung von Zwischenergebnissen, der Verifizierung der am Laserinstitut Mittelsachsen e.V. erzielten Ergebnisse an die Technische Universität Dresden, die Erarbeitung von Konkurrenzverfahren sowie der Absprache und Abstimmung weiterer Vorgehensweisen.

6 Wissenschaftlich-technische Ergebnisse

6.1 Experimentelle Vorbetrachtungen

Probematerial

Die enorme Vielfalt der real vorkommenden Zusammensetzungen natürlicher Zuschläge, die je nach lokaler Verfügbarkeit stark variierende silicatische und carbonatische Bestandteile aufweisen, verursacht ein immenses Spektrum anzutreffender Betone im Bereich kerntechnischer Anlagen. Um die sich daraus ergebende Mannigfaltigkeit an Untersuchungen einzugrenzen, wurden als Grenzfälle rein silicatische (quarzitischer Beton) und rein carbonatische (carbonatischer Beton) Zuschläge sowie deren Gemisch aus gleichen Teilen, d.h. 50 % silicatische + 50 % carbonatische Zuschläge (gemischter Beton), für die Herstellung der Probematerialien verwendet. Die Betone wurden mit CEM I 32,5 R mit einem Zementgehalt von 370 kg/m³ Beton und einer Korngrößenverteilung der Zuschläge entsprechend der Sieblinie AB 16 hergestellt. Die Abmaße der am Institut für Massivbau und Baustofftechnologie der Universität Karlsruhe gefertigten und damit zertifizierten Probekörper betrugen 150 x 150 x 70 mm [6].

Der Zuschlagstoff Calcit wies einen hohen Anteil an Dolomit auf. Carbonatisiert wurden die Betone drei Monate bei einer Temperatur von 20 °C unter 3 Vol-%-haltigen CO_2-Atmosphäre.

Um in ersten Voruntersuchungen den Einfluss werkstoffseitiger Inhomogenitäten zurückdrängen zu können, wurden Betone mit geringer Korngröße, d.h. einem Größtkorndurchmesser von 10 mm, bei gleicher Rohdichte von 2,3 g/cm³ verwendet.

Strahlvermessung der verwendeten Laser

Die Auswahl der Laserarten basiert auf der Grundlage des Projektantrages. Zu den dort aufgeführten Dioden- und Nd:YAG-Laser kam ergänzend der CO_2-Laser hinzu. Die charakteristischen Merkmale der verwendeten Laser sind in den nachfolgenden Tabellen 6.1 und 6.2 zusammengestellt.

Tabelle: 6.1.: Datenblatt des CO_2-Laser

Laser	Spectra Physics Modell 975
Wellenlänge	10,6 µm
max. Leistung	5 kW
Resonatorlänge	12 m
Auskoppelspiegel	∅ 44 mm
Divergenz nach Fokussieroptik	65,2 mrad
Fokussieroptik	Cu-Spiegel, f = 300 mm

Tabelle 6.2.: Datenblatt von Dioden- und Nd:YAG-Laser

	Diodenlaser	**Nd:YAG-Laser**
Laser	Rofin DF 025	Haas HL 1006 D
Wellenlänge	808 / 940 nm	1064 nm
max. Leistung	2,9 kW	1 kW
Faserdurchmesser	1,5 mm	0,4 mm
Faserlänge	ca. 10 m	ca. 10 m
Divergenz nach Fokussieroptik	106,3 mrad	106,7 mrad
Fokussieroptik	Linse, f = 200 mm	Linse, f = 150 mm

Mit Beginn der Arbeiten wurde eine Strahlvermessung der jeweiligen Laser durchgeführt, um so eventuelle Unterschiede zwischen der eingestellten und der an der Bearbeitungsstelle vorhandenen Laserleistung zu ermitteln. Ursache der Differenz sind die vorhandenen Absorptionsverluste über die jeweiligen eingesetzten Strahlführungskomponenten. Die Leistungsmessung erfolgte mit dem *COHERENT Power Meter Head (Modell 5000).*

Für den CO_2-Laser konnte ein Leistungsverlust auf dem optischen Übertragungsweg von ca. 12,4 % ermittelt werden. Hervorgerufen wird dieser durch die drei Strahlführungselemente: zwei Kupfer-Spiegel und ein molybdänbeschichteter Fokussierspiegel. Der Leistungsverlust des Diodenlasers wurde mit ca. 11,7 % bestimmt und wird durch die Lichtleitfaser, die Auskoppel- und die Fokussieroptik verursacht. Beim Vermessen des Nd:YAG-Lasers wurden keine Leistungsverluste diagnostiziert.

Neben dem Bestimmen der Leistungsverluste wurde die Intensitätsverteilung der jeweiligen verwendeten Strahlung bestimmt.

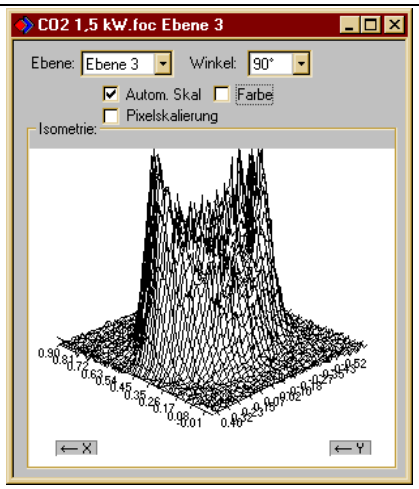


Abb. 6.1.: Intensitätsverteilung des CO_2-Laserstrahls im Fokus

So weist die Intensitätsverteilung des **CO_2-Lasers** über den Strahlquerschnitt bei 1,5 kW im Fokus ringförmige Maxima und Minima auf, die als Ringmode bezeichnet werden können (Abb. 6.1.). Die Strahlvermessung ergab bei einer Laserleistung von 1,5 kW einen starken Astigmatismus, der sich mit steigender Leistung verringerte. Deutlicher ausgeprägt ist der Ringmode bei größerer Defokussierung. Die relativ homogene Intensitätsverteilung, ähnlich einem „Top-head"-Profil wird einen gleichmäßigen Wärmeeintrag in die zu bearbeitende Fläche ermöglichen.

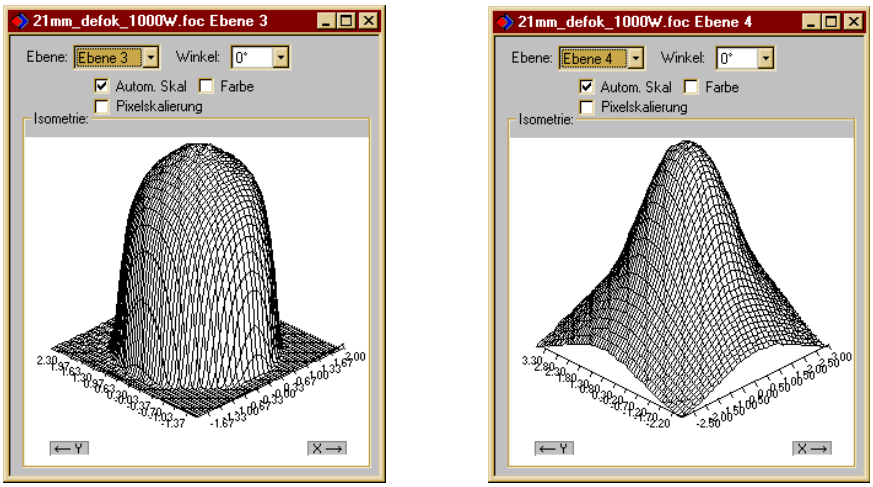


Abb. 6.2.: Intensitätsverteilung Dioden-Laserstrahl im Fokus (links) und defokussiert (rechts)

Die Intensitätsverteilung des **Diodenlasers** in der Fokusebene, in der der Laserstrahl durch steil abfallenden Flanken scharf begrenzt wird und in dessen Zentrum sich keine ausgeprägte Intensitätsspitze zeigt, ist in Abb. 6.2 links dargestellt. Der Fokusdurchmesser beträgt 2,85 mm. In der

Bearbeitungsebene, d.h. bei einer Defokussierung von 21 mm ist die gleichförmige Verteilung innerhalb des Strahldurchmessers von 5,47 mm nicht mehr gegeben. Hier ist die Intensitätsverteilung gaußförmig.

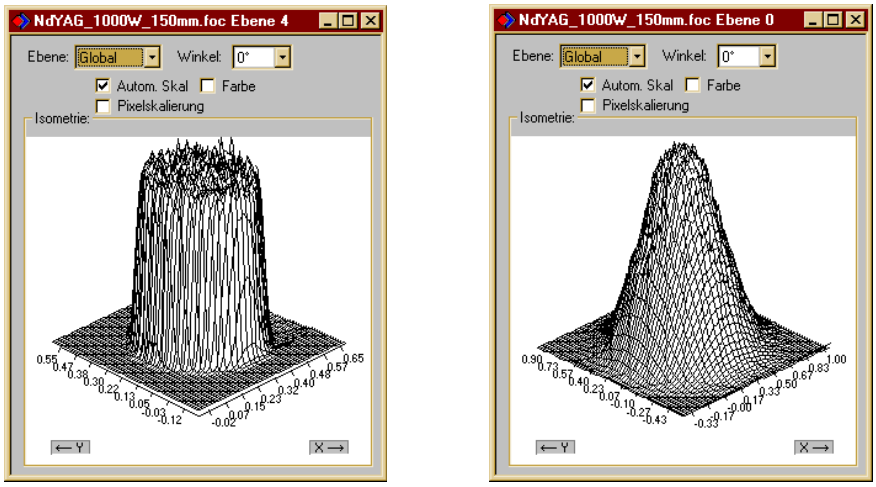


Abb. 6.3.: Intensitätsverteilung Nd:YAG-Laserstrahl im Fokus (links) und defokussiert (rechts)

Bei der Strahlvermessung des **Nd:YAG-Laser** wurde in der Fokusebene die in Abb. 6.3. (links) dargestellte „Top-head"-Intensitätsverteilung ermittelt. Steil abfallende Flanken kennzeichnen einen scharf begrenzten Laserstrahl, in dessen Zentrum keine ausgeprägte Intensitätsspitze vorhanden ist. Der Fokusdurchmesser beträgt 0,44 mm. Defokussiert zeigte sich eine hohe Intensität in der Strahlmitte mit weniger steil abfallenden Flanken (Vergleich Abb. 6.3. rechts und links). Daraus schlussfolgernd wird diese Intensitätsverteilung durch auftretendes Verdampfen des zu bearbeitenden Materials im zentralen Laserstrahlbereich einen negativen Einfluss auf die Materialbearbeitung aufweisen.

6.2 Untersuchung/Ergebnisse Schmelzverhalten

Wechselwirkung Laserstrahl – Betonoberfläche

Unter Kenntnis der verschiedenen Intensitätsverteilungen (sowohl fokussiert, als auch defokussiert) und der Absorptionslängen (siehe Kapitel 8.1.4) können definierte Aussagen über mögliche Wechselwirkungen der Laserstrahlung mit der Betonoberfläche getroffen werden. Eine gaußförmige Verteilung der Intensität wird sich durch örtlich begrenztes Verdampfen eher negativ auf den Abtrag der Betonoberfläche niederschlagen. Positiv

indessen ist das „Top-head"-Profil zu bewerten, welches einen gleichmäßigeren Temperatureintrag in die Oberfläche ermöglicht. Prinzipiell ist festzustellen, dass sich bei der Laserbearbeitung aufgrund der geringen Absorptionslängen eine Oberflächenwärmequelle ausbildet und tiefer liegende Schichten nur über Wärmeleitung erschmolzen werden. Das Absorptionsverhalten einer geschmolzenen Oberfläche verändert sich stark. Auch kann die Ausbildung einer Glasphase, vorzugsweise bei silicatischem Beton, eine eingeschränkte Transparenz für verschiedene Laserwellenlängen hervorrufen. Dioden- und Nd:YAG-Laser ermöglichen somit Energieeinkopplungen auch in tiefere Schichten.

Schmelzen von Beton

Zu Beginn der Arbeiten wurde das Aufschmelzverhalten der Betonoberfläche untersucht und mit den ermittelten Ergebnissen von C. Fischer [7] verglichen. Verwendung fand hierfür das für eine Online-Messung nutzbare Pyrometer KT 19.43 der Heitronics Infrarot Messtechnik GmbH mit einem Temperaturmessbereich von 500...2500°C. Der Messspotdurchmesser beträgt ca. 2 mm und weist somit nur für einen lateral eng begrenzten Bereich der Bearbeitungsstelle Gültigkeit auf. Dadurch dass nur eine Mittlung der Temperatur im anvisierten Messfeld erfolgt, kann die Verteilung der Temperatur über die gesamte Einflusszone nicht ausgewiesen werden. Deshalb wurde neben dem Pyrometer, zur Bestimmung der Temperatur zusätzlich eine Thermokamera eingesetzt. Abbildung 6.4. zeigt die schematische Darstellung der Temperaturmessung mittels Thermokamera und Pyrometer.

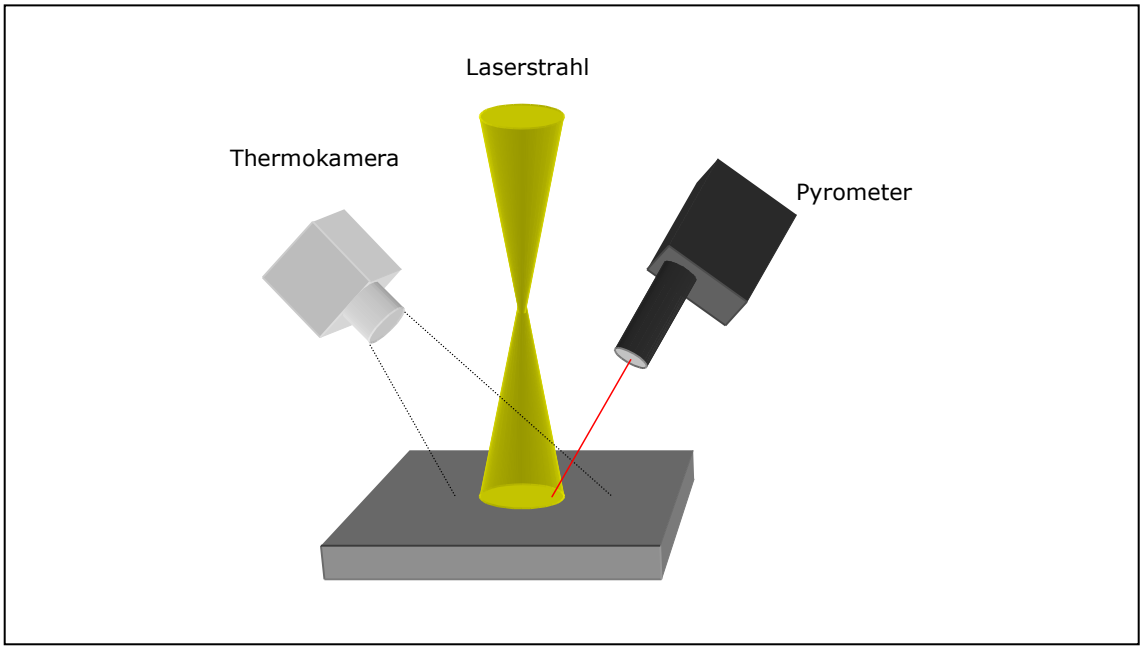


Abb. 6.4.: schematische Darstellung der Temperaturmessung mittels Thermokamera und Pyrometer

Als Thermokamera kam eine Infrarot (IR)-Kamera PYROVIEW 10.2 der DIAS Angewandte Sensorik GmbH mit einem Temperaturmessbereich von 800...2500°C zum Einsatz. Mit Hilfe des Pyrometers ist es möglich die Schmelztemperatur des Zementsteines zu ermitteln. Die Temperatur wird mit langsam steigender Laserleistung eingestellt. Eine visuelle Untersuchung der bestrahlten Oberfläche zeigt den Beginn des Übergangs zur schmelzflüssigen Phase an. Bedingt durch die inhomogene Intensitätsverteilung ergab sich unter Laserstrahleinwirkung ein differenziertes Temperaturprofil mit unterschiedlich starken Anschmelzungen der Oberfläche (Abb. 6.5.).

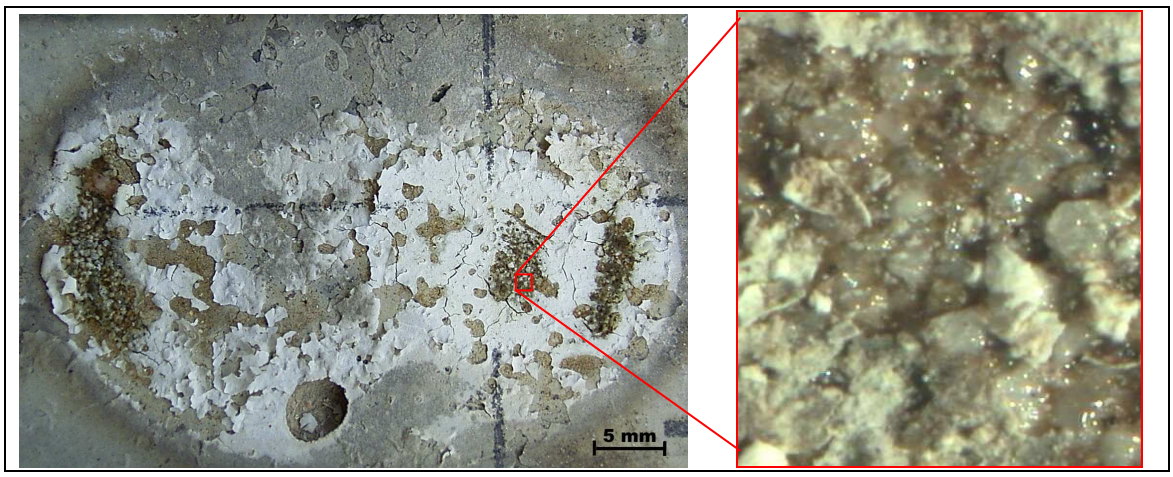


Abb. 6.5.: Betonoberfläche nach Laserbestrahlung *Abb. 6.6.: Detailaufnahme*

Für die Reproduzierbarkeit der Ergebnisse ist es notwendig, die optische Begutachtung der Anschmelzung genau an der Stelle vorzunehmen, die vom Messfeld des Pyrometers erfasst wurde. In Abb. 6.5. ist diese Stelle mit einem roten Viereck gekennzeichnet. Bei einer Temperatur von 1200...1250 °C beginnt nicht nur das Aufschmelzen der Zuschläge, sondern auch das des zwischen den Zuschlägen befindlichen Zementsteines (siehe Abb. 6.6.). Die Ergebnisse von C. Fischer [7] konnten damit bestätigt werden.

Erste Untersuchungen zum Schmelzverhalten von Beton wurden an Normalbetonproben, unbekannter Zusammensetzung und Lagerungsbedingungen, aus Karlsruhe durchgeführt. Die Probenbearbeitung erfolgte mit unterschiedlichen Parametereinstellungen.

Abbildung 6.7. a) zeigt die Bearbeitung mit dem CO_2-Laser unter nachstehenden Rahmenbedingungen: Leistung 1kW, Vorschubgeschwindigkeit 100 mm/min, Defokussierung 60, 70, 80, 90 und 100 mm (von unten nach oben).

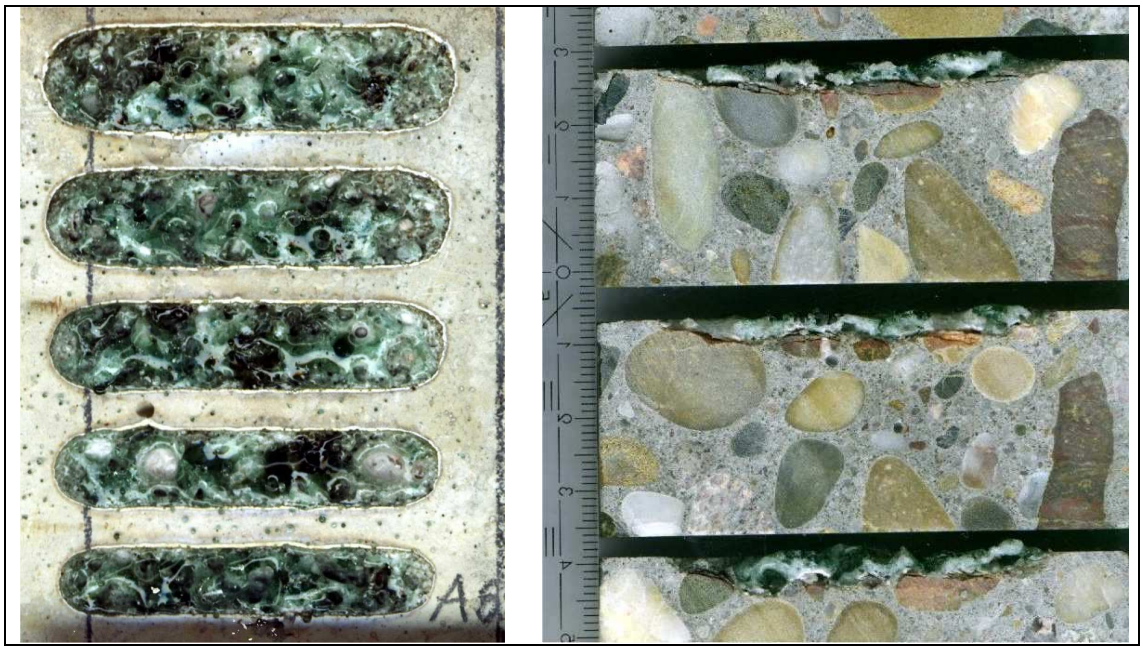


Abb. 6.7.: Untersuchungen zum Schmelzverhalten an Normalbeton (links) und Bestimmung der Einschmelztiefe (rechts)

Beim Vergleich der erschmolzenen Spuren unterschiedlicher Leistungen und Defokussierungen erwies sich die starke Heterogenität der Probenmaterialien als negativ. Die nachfolgenden Untersuchungen zum Schmelzverhalten führte man deshalb an „Betonpflastersteinen" (200 x 100 x 75 mm) mit einem Größtkorndurchmesser von 10 mm unter Verwendung des CO_2- und

Diodenlasers durch. Das Zurückdrängen des Einflusses der groben Zuschlagkörner ermöglichte einen relativ guten Vergleich der Ergebnisse. Ferner konnte beobachtet werden, dass projektrelevante Schmelzstiefen (min. 3 mm) erst ab einer Laserleistung von 1,5 kW erreichbar sind. Bedingt durch den in seiner Leistung begrenzten Nd:YAG-Laser konnten mit diesem keine Versuche oberhalb 1 kW Laserleistung durchgeführt werden. Vergleiche mit höheren Leistungen wurden nur zwischen dem CO_2- und Diodenlaser bei einer Laserleistung von 1,3 kW bis 2,6 kW realisiert. Die Vorschubgeschwindigkeit wurde zwischen 100 und 400 mm/min variiert und die Defokussierung des CO_2-Lasers willkürlich auf 90 mm, 70 mm und 50 mm festgelegt. Um vergleichbare Bedingungen für die Bearbeitung mit dem Diodenlaser zu schaffen (gleiche Intensitäten), berechnete man über die ermittelte Strahlkaustik die adäquate Defokussierung. Es ergaben sich für die Bearbeitung mit dem Diodenlaser die Defokussierungen von 38 mm, 30 mm und 21 mm.

Für die Berechnung des erschmolzenen Volumens wird die Schmelzbad-breite, die -länge sowie die Schmelztiefe benötigt, wobei die Breite direkt ausgemessen wurde und sich die Länge aus dem Verfahrweg des Laserstrahls bzw. Probekörpers ergab. Zur Ermittlung der Einschmelztiefe wurden die erzeugten Bahnen mit einer Nasstrenneinrichtung längs aufgeschnitten und anschließend vermessen (siehe Abb. 6.7. b).

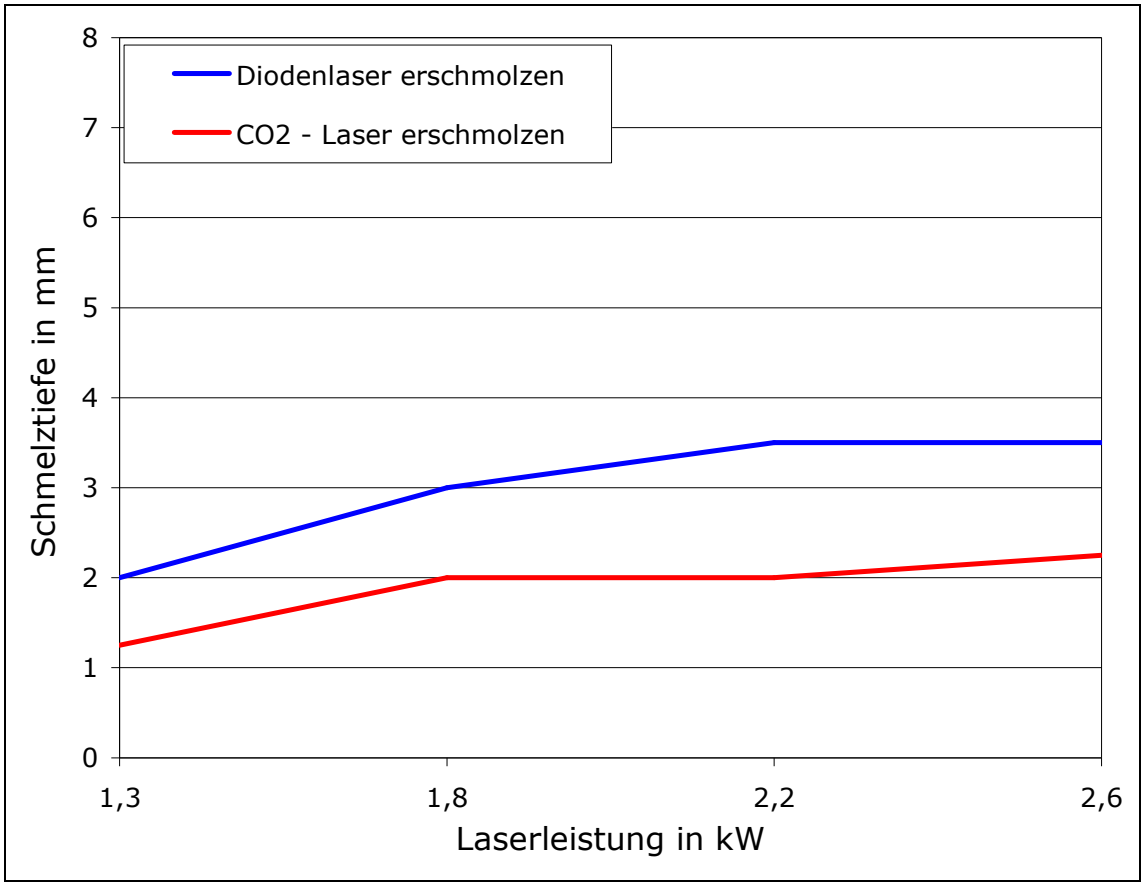


Abb. 6.8.: Vergleich der Schmelztiefen für Dioden- und CO_2-Laser bei 200 mm/min Vorschubgeschwindigkeit und 38/90 mm Defokussierung

Im Vergleich der Schmelztiefen schneidet der Diodenlaser über das ganze Parameterfeld besser ab (Abbildung 6.8.). Hier kommt entweder eine allgemein bessere Absorption der eingestrahlten Energie zum Tragen oder die in Kapitel 8.1.4 erwähnte mögliche Transparenz der Schmelze erlaubt der Laserstrahlung in tiefer liegende Schichten vorzudringen um dort effizientere Absorptionsbedingungen vorzufinden.

Durch den kausalen Zusammenhang des Schmelzvolumens mit der Schmelztiefe, ergibt sich für die Schmelzrate (Schmelzvolumen pro Zeiteinheit) ein adäquates Bild (siehe Abbildung 6.9.). Über das ganze Parameterfeld ist der Diodenlaser dem CO_2-Laser überlegen. Die Schmelzrate des Diodenlasers beträgt, im Vergleich zu der des CO_2-Lasers, das 1,3- bis 3,6- fache.

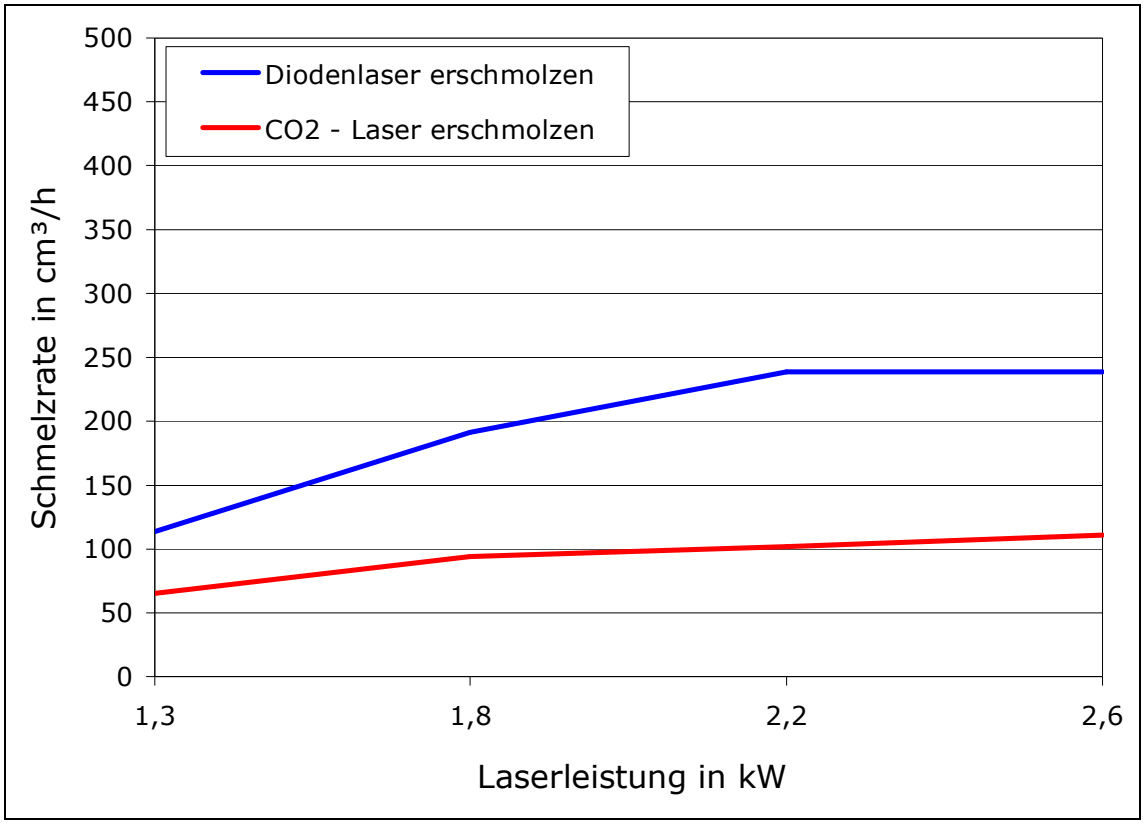


Abb. 6.9.: Vergleich der Schmelzraten für Dioden- und CO_2-Laser bei 200 mm/min Vorschubgeschwindigkeit und 38/90 mm Defokussierung

6.3 Entwicklung einer Abtragstechnologie

Die Entwicklung eines effizienten und sicheren Verfahrens zum schmelzflüssigen Abtrag der radioaktiv kontaminierten Oberflächenschichten (ca. 3…5 mm Tiefe) bei gleichzeitiger Konditionierung der Abprodukte innerhalb einer Glasmatrix stellt das Hauptziel des Projektes dar.

Für die Auswahl einer geeigneten Abtragstechnologie wurden der Faserziehprozess, der mechanische Abtrag und der Austrag der Schmelze mit Blasgasstrom unter den nachfolgend genannten Gesichtspunkten miteinander diskutiert:

- der Abtrag von 3…5 mm
- das Konditionieren der Abprodukte
- das Minimieren des Oberflächen/Volumen-Verhältnisses und
- das Verringern des Sekundärmülls.

Faserziehprozess

Das Verfahren ähnlich der Glasfaser-Ziehtechnologie wurde als ungeeignet eingestuft. Die dabei auftretenden Probleme sind:

- die Heterogenität des Werkstoffes und die dadurch bedingte inhomogene Schmelze üben negativen Einfluss auf einen kontinuierlichen Faserziehprozess aus
- die komplizierte technologische Aufnahme des Faseranfangs
- die notwendigen hohen Ziehgeschwindigkeiten
- das unvollständige Abziehen der Schmelze, d.h. Schmelzrückstände verbleiben an der Oberfläche
- das Schaffen eines hohen Oberflächen/Volumen-Verhältnisses.

Hauptkritikpunkte, die diesem Verfahren entgegenstehen sind einerseits, dass die dabei geschaffenen Abprodukte in Form von Fasern ein enorm hohes Oberflächen/Volumen-Verhältnis aufweisen und dadurch negative Auswirkungen auf die Eluatbeständigkeit haben werden. Andererseits wird sich die Heterogenität der Schmelze nachteilig auf den Faserziehprozess auswirken.

Mechanischer Abtrag

Der mechanische Abtrag soll durch Herausschleudern oder -kratzen erfolgen. Negativ auf den Abtragsprozess werden sich nachfolgend genannte Punkte auswirken:

- die mechanische Rakel muss hochtemperatur- und abriebfest sein
- ungleichmäßige Schmelztiefen gestatten nur ein unvollständiges Auskratzen des erschmolzenen Materials und
- beim Auskratzen befindet sich die Rakel direkt im Laserstrahl, wodurch es zum Erhitzen der Rakel sowie dem Abschatten des darunter liegenden Bereiches kommt

Durch diese negativen Begleiterscheinungen kommt es zu einem unvollständigen Abtrag der erzeugten Glasphase. Schon erschmolzene Volumina verbleiben teilweise an ihrem Ort und behindern somit eine ausreichende Dekontamination.

Abtrag mit Blasgasstrom

Der Abtrag der erzeugten Schmelze mit Blasgasstrom wurde als Erfolg versprechend angesehen. Die durch den Laserprozess entstehende Schmelze wird durch einen gerichteten Gasstrom erfasst und von der Oberfläche entfernt. Eine Absaugung erzeugt einen zweiten Strom, der die abgetragene Partikel mitreißt und die Grobanteile in einem Zyklon ausfällt. Eventuell entstehende Feinstäube werden über eine zusätzliche Filteranlage extrahiert.

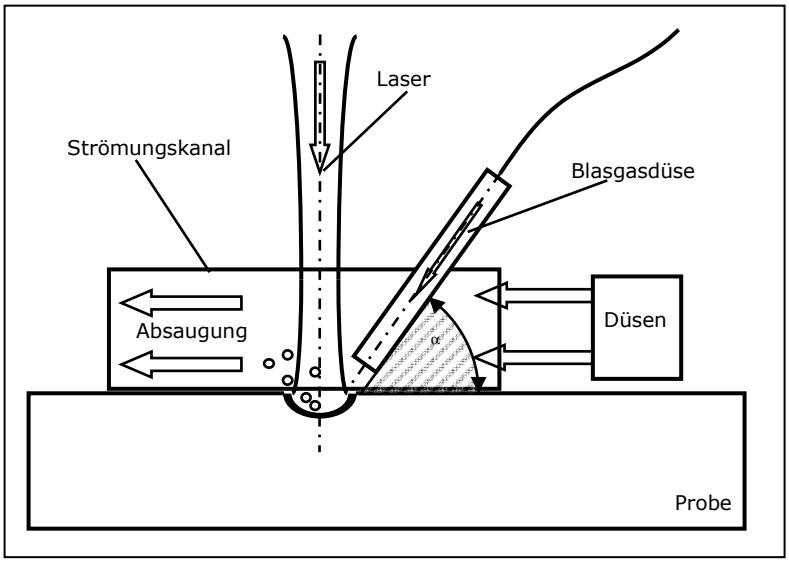


Abb. 6.10.: Versuchsaufbau

Im Wesentlichen besteht der Versuchsaufbau aus drei Komponenten (siehe Abb. 6.10.). Die zum Aufschmelzen notwendige Energie wird vom Laser bereitgestellt. Die Blasdüse zum Austragen der Abprodukte wird seitlich, unter einem Winkel α zwischen 30…45 ° zur Oberfläche angeordnet. Die Gratbildung an der dem Blasgasstrahl zugewandten Seite kann somit minimiert werden. Die optimale Positionierung des Auftreffpunktes des Gasstroms ist dezentral und wurde experimentell ermittelt. Die Absaugung erzeugt in einem direkt über der Oberfläche positionierten viereckigen Kanal eine starke, parallel zur Bearbeitungsfläche verlaufende Strömung, die die abgetragenen Schmelzpartikel erfasst und der Konditionierung zuführt. Zwei Öffnungen im Kanal erlauben den notwendigen freien Zugang der Laserstrahlung zur Bearbeitungsstelle.

Die bei diesem Verfahren auftretenden Probleme sind zum einen der starke Energieverlust durch die Kühlwirkung des Blasgases, das damit verbundene

Abplatzen von Material durch thermisch induzierten Stress sowie das Entstehen fasriger Abprodukte durch den Austrag aus der Schmelze.

Die entwickelte Technologie konnte 2005 zum Patent angemeldet werden [8].

6.3.1 Düsenform

Es wurden praktische Test verschiedenster Düsenformen durchgeführt. Zum Einsatz kamen rechteckige, kreisförmig gebogene und ringförmige Düsen. Am geeignetsten erwiesen sich die kreisförmig gebogenen Düsen. Ihr Profil passt am besten zu dem runden Bearbeitungsfleck. Rechteckige Düsen räumen das Schmelzbad zwar zentral sehr gut aus, zeigen jedoch einen schlechten Austrag in den Randbereichen. Ringdüsen erzeugen beim Auftreffen auf die Oberfläche starke Verwirbelungen, wodurch die Schmelze in alle Richtungen ausgetragen wird. Dadurch geht zum einen der gewünschte Austrag in eine Vorzugsrichtung verloren, zum anderen kommt es zu verstärkter Gratbildung in den Randbereichen des Bearbeitungsfleckes.

Die Breite und der Radius der Biegung muss an den jeweiligen Durchmesser des Schmelzbades angepasst werden. Bis zum Auftreffen auf die Betonoberfläche sollte eine laminare Strömung erhalten bleiben, sodass der austretende, laminare Gasstrom wie eine Schaufel auf die Schmelze wirkt. Der Gasstrahl der eingesetzten gebogenen Düse wurde mit dem Laserlichtschnitt vermessen. Noch in 2 cm Abstand zeigte sich ein scharf begrenzter, laminarer Gasstrom, der zum Austrag der Schmelze gut geeignet ist.

6.3.2 Positionierung der Düsen

Wesentlich für den kompletten Abtrag der erzeugten Schmelze in eine Vorzugsrichtung sind die örtliche Positionierung und der Anstellwinkel der Blasdüse. Dazu wurden an Betonpflastersteinen verschiedene Versuche durchgeführt. Der ideale Anstellwinkel der Blasdüse für einen maximalen Schmelzaustrag lag zwischen 45° und 60°. Hinsichtlich der Positionierung der Blasdüse zur Bearbeitungsstelle erwies sich ein seitlicher Versatz zwischen beiden als vorteilhaft. Beim Einblasen zentral in das Schmelzbad (kein seitlicher Versatz) wurden zwar Abtragsmaxima erzielt, jedoch erfolgte der Austrag nicht in eine Richtung und es kam zu einer starken Anlagerung (Gratbildung) erschmolzenen und wiedererstarrten Materials an

der der Blasdüse zugewandten Seite. Wurde der seitliche Versatz so gewählt, dass der Auftreffpunkt des Blasgasstromes den Rand der Bearbeitungszone trifft, konnte unter guten Abtragsergebnissen die Gratbildung verhindert werden.

6.3.3 Gepulstes Regime

Voruntersuchungen haben gezeigt, dass ein gepulstes Ausblasen der erzeugten Schmelze für den Abtragsprozess von Vorteil sein kann. Deshalb wurde der flächige Abtrag unter Verwendung variierender Blasregime durchgeführt. Ein asymmetrischer Taktgeber (KOP170 SAIA-Burgess) erlaubte unabhängig voneinander die Einstellung der „Pausen-" und der „Blaszeit" im Bereich 0,05 s ... 60 h. Als Blaszeit wird das Zeitintervall bezeichnet, in der das Pneumatikventil der Blasluft geöffnet ist. Dem entsprechend bezeichnet die Pausenzeit die Zeitspanne des geschlossenen Ventils.

Ursache für den teilweise erhöhten Abtrag ist die verringerte Kühlwirkung. Ein kontinuierlicher Blasstrom trägt zwar einmal erschmolzenes Material sofort ab und legt dadurch tiefere Schichten frei, doch verliert der Prozess durch die Konvektion sehr viel Energie, die dann nicht mehr zum Aufschmelzen weiteren Materials zur Verfügung steht. Beim gepulsten Ausblasen wird in kurzer Zeit ein Schmelzbad erzeugt, das mittels eines noch kürzeren Blasimpulses von der Bearbeitungsstelle entfernt wird. Dies führt vermutlich auch zu einem besseren Einschluss des abgetragenen Materials in der Glasmatrix. Entsprechende Untersuchungen stehen noch aus.

Um den starken Einfluss der Konvektion des Blasgases auf das Bearbeitungsergebnis zu verdeutlichen, sind ergänzende Temperaturmessungen mittels Pyrometer und Thermokamera durchgeführt worden.

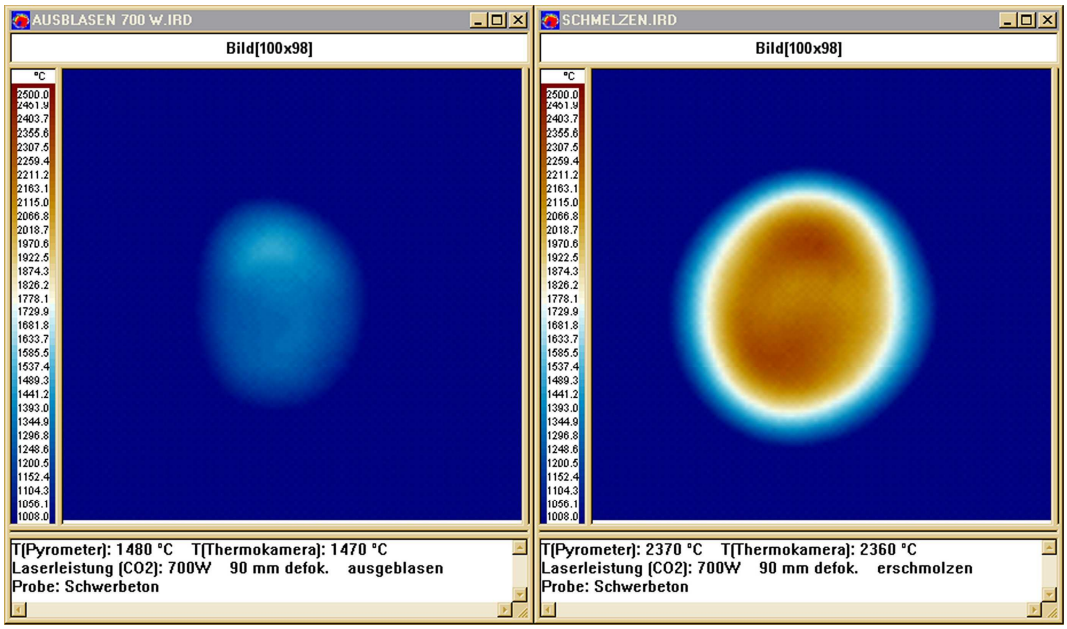


Abb. 6.11.: Aufnahmen mit der Thermokamera beim Ausblasen (links) und Schmelzen (rechts)

Zuerst wurde das sich unter der Laserstrahlung ausbildende Schmelzbad vermessen, wobei mit einer Laserleistung von 700 W und einer Defokussierung von 90 mm sich eine maximale Temperatur von 2370 °C (Pyrometer) bzw. 2360 °C (Thermokamera) ergab (Abb. 6.11., rechts). Unter gleichen Bearbeitungsparametern, jedoch mit zugeschaltetem Ausblasstrom, ist eine deutliche Temperaturabnahme zu erkennen (Abb. 6.11, links). Ursache dafür ist die starke Kühlwirkung durch den Gasstrom, sowie der Abtransport bereits erschmolzenen Materials aus der Bearbeitungszone, wodurch eine weitere Aufheizung der Schmelze verhindert wird.

6.4 Ergebnisse Ausblastechnologie

6.4.1 Proben geringer Korngröße

Bis zu einer Leistung von 1 kW konnten alle drei zur Auswahl stehenden Laser in den Vergleich einbezogen werden. Für einen auswertbaren Abtrag ist eine ausreichende Intensität erforderlich. Diese ist bei so einer kleineren Laserleistung nur mit einem kleinen Spotdurchmesser, also geringerer Defokussierung zu erreichen. Für eine adäquate Intensitätsverteilung wurden die einzustellenden Defokussierungen anhand der gemessenen Strahlkaustik berechnet. Für den CO_2-Laser ergab sich eine Defokussierung von 50 mm, für den Diodenlaser 21 mm und für den Nd:YAG-Laser 26 mm.

Die Versuche wurden mit 0,8 und 1,0 kW, sowie mit Vorschubgeschwindigkeiten zwischen 100 und 400 mm/min durchgeführt.

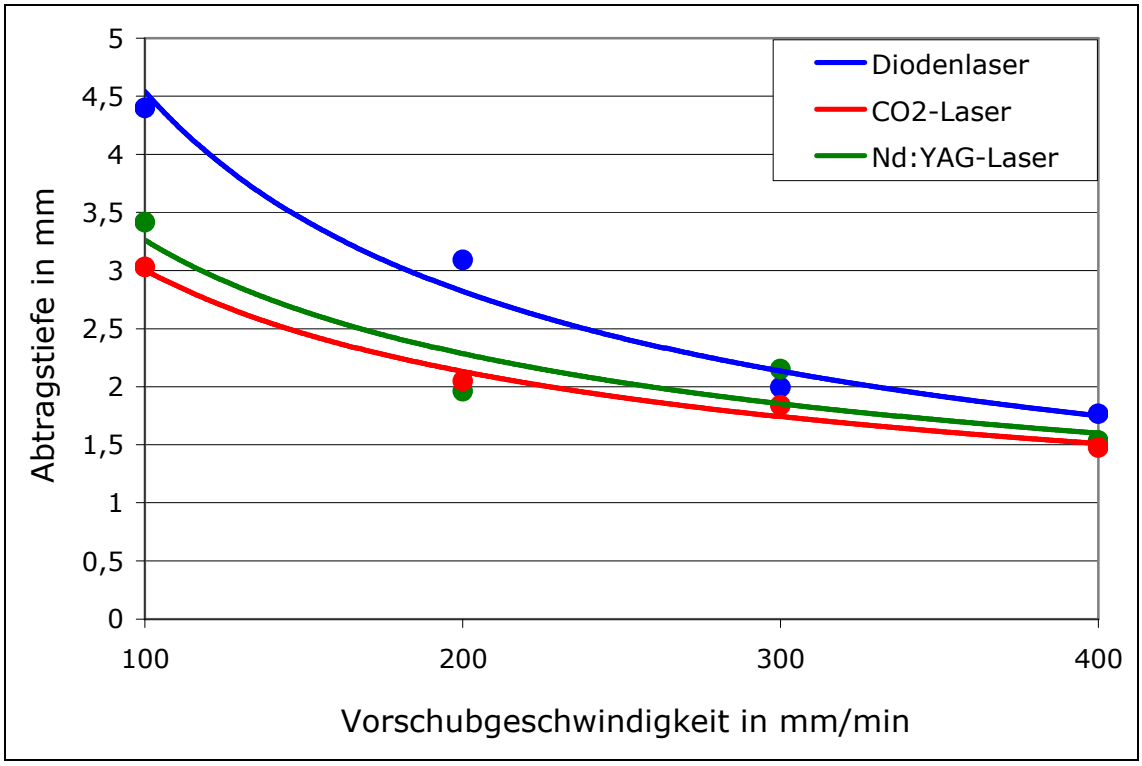


Abb. 6.12.: Vergleich der Abtragstiefen für Dioden-, Nd:YAG- und CO_2-Laser bei 1 kW Laserleistung und einer Defokussierung von 21 mm, 26 mm bzw. 50 mm

Die Abtragstiefen des Diodenlasers liegen nur bei niedrigen Geschwindigkeiten über denen der beiden anderen Laser (Abb. 6.12.).

Als Ursache der dennoch höheren Abtragsrate auch bei größeren Geschwindigkeiten (Abb. 6.13.) ist eine breitere Abtragsspur zu nennen. Diese Aussagen gelten für die Bearbeitung bei 0,8 und 1 kW.

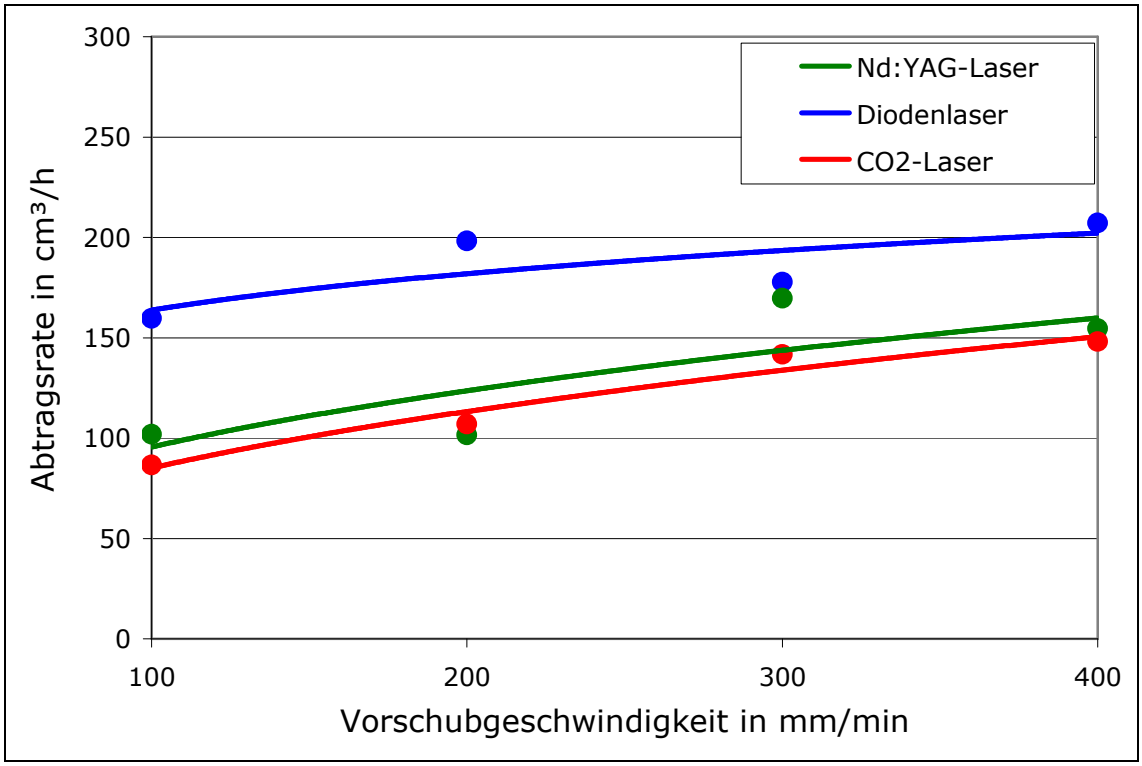


Abb. 6.13.: Vergleich der Abtragsraten für Dioden-, Nd:YAG- und CO_2-Laser bei 1 kW Laserleistung und einer Defokussierung von 21 mm, 26 mm bzw. 50 mm

Der Abtrag unter höheren Laserleistungen konnte nur mit dem CO_2-Laser und dem Diodenlaser vorgenommen werden. Es wurde ein Parameterfeld festgelegt, innerhalb dessen die Laserleistung P zwischen 1,3 und 2,6 kW, die Vorschubgeschwindigkeit v zwischen 100 und 400 mm/min und die Defokussierung z in drei verschiedenen Stufen variiert wurden.

Im Vergleich der Abtragstiefen schneidet der Diodenlaser über das ganze Parameterfeld besser ab (Bsp. Abb. 6.14.). Die höchsten Abtragstiefen liegen bei 12,5 mm (Diodenlaser, P = 2,6 kW, z = 21 mm, v = 100 mm/min) und 10 mm (CO_2-Laser, P = 2,6 kW, z = 50 mm, v = 100 mm/min). Analog zu den erzielten Ergebnissen beim Schmelzen kommt auch hier wieder eine allgemein bessere Absorption der eingestrahlten Energie zum Tragen.

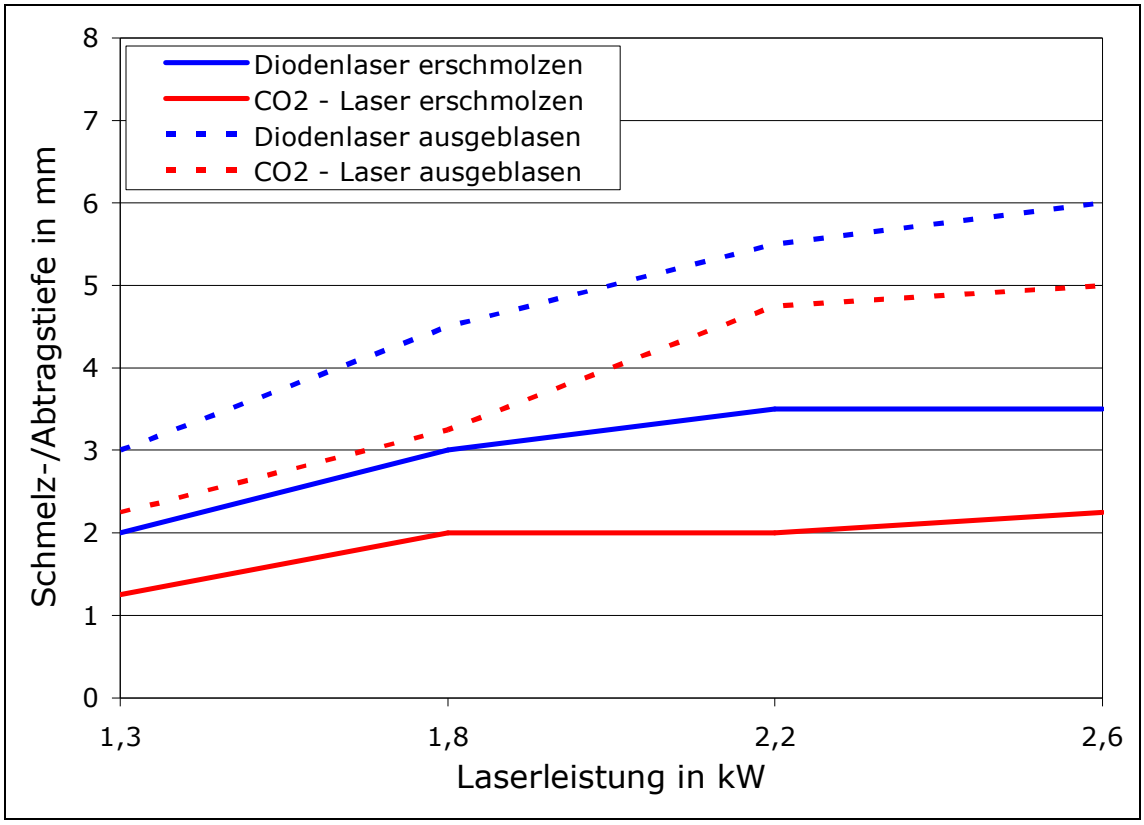


Abb. 6.14: Vergleich der Schmelz- und Abtragstiefen für Dioden- und CO_2-Laser bei 200 mm/min Vorschubgeschwindigkeit und 38/90 mm Defokussierung

Im Vergleich zur Schmelzrate ergibt sich eine deutlich höhere Abtragsrate. Zum einen wird durch den kontinuierlichen Abtrag erschmolzenen Materials die Abschattung tieferer Schichten verhindert. Zum anderen werden durch die kühlende Wirkung des Blasstrahls, vor allem in den quarzitischen Zuschlägen, thermische Spannungen induziert, die ein schichtweises Abplatzen derselbigen mit sich bringen.

Auch hier besteht der direkte Zusammenhang zwischen Abtragstiefe und Abtragsvolumen. Es ergibt sich über das ganze Parameterfeld für den Diodenlaser eine höhere Abtragsrate (Bsp. Abb. 6.15). Die Abtragsrate des Diodenlasers beträgt, im Vergleich zu der des CO_2-Lasers, das 1,2- bis 2,6-fache. Die maximale Abtragsrate für den Diodenlaser beträgt 484 cm³/h (P = 2,6 kW, z = 21 mm, v = 300 mm/min) und für den CO_2-Laser 299 cm³/h (P = 2,6 kW, z = 50 mm, v = 300 mm/min).

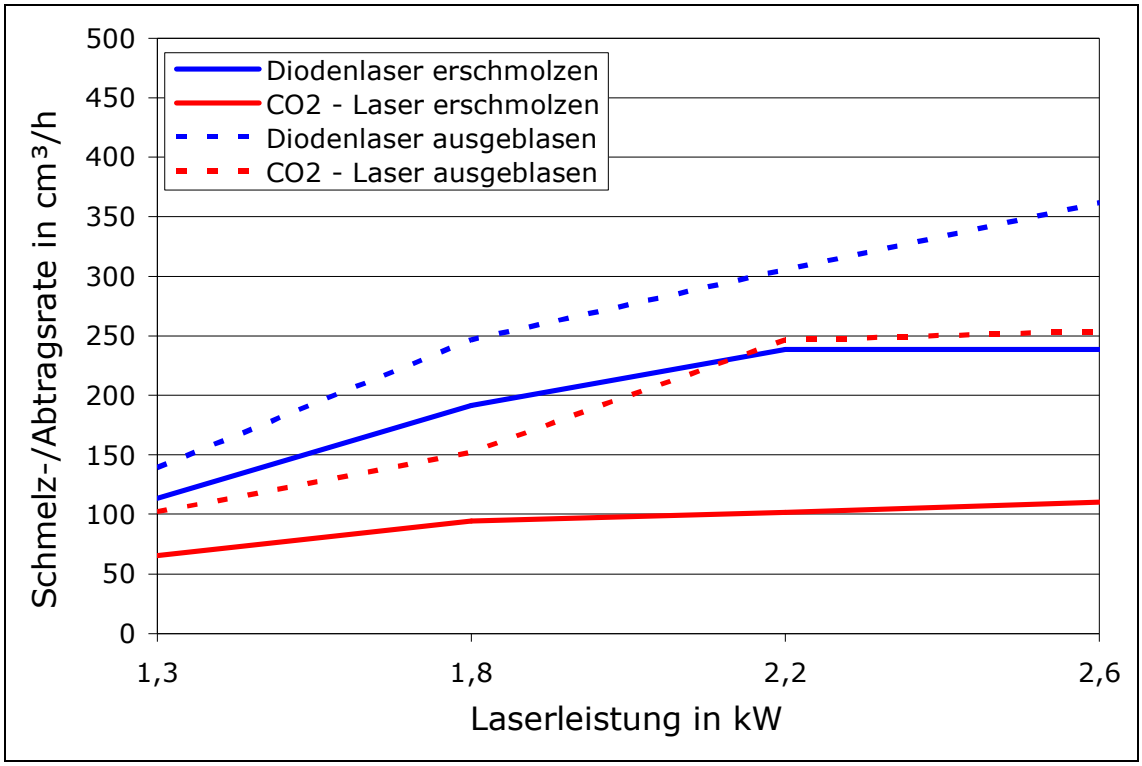


Abb. 6.15.: Vergleich der Schmelz- und Abtragsraten für Dioden- und CO_2-Laser bei 200 mm/min Vorschubgeschwindigkeit und 38/90 mm Defokussierung

6.4.2 Übertrag auf Referenzproben

Die mit der Bearbeitung von Proben geringer Korngröße gewonnenen Erkenntnisse wurden anschließend auf zertifizierte Normalbetonproben übertragen. Mit allen drei Lasern wurden mit Laserleistungen von 0,8 kW und 1,0 kW einzelne Abtragsspuren in quarzitischen, calcitischen und gemischten Betonsteinen erzeugt.

Auch hier bestätigte sich die bessere Eignung der Diodenlaserwellenlänge für den Abtragsprozess. Die unter 1 kW Laserleistung und bei zwei verschiedenen Betonen erreichten Abtragstiefen sind in Abbildung 6.16. und 6.17. dargestellt.

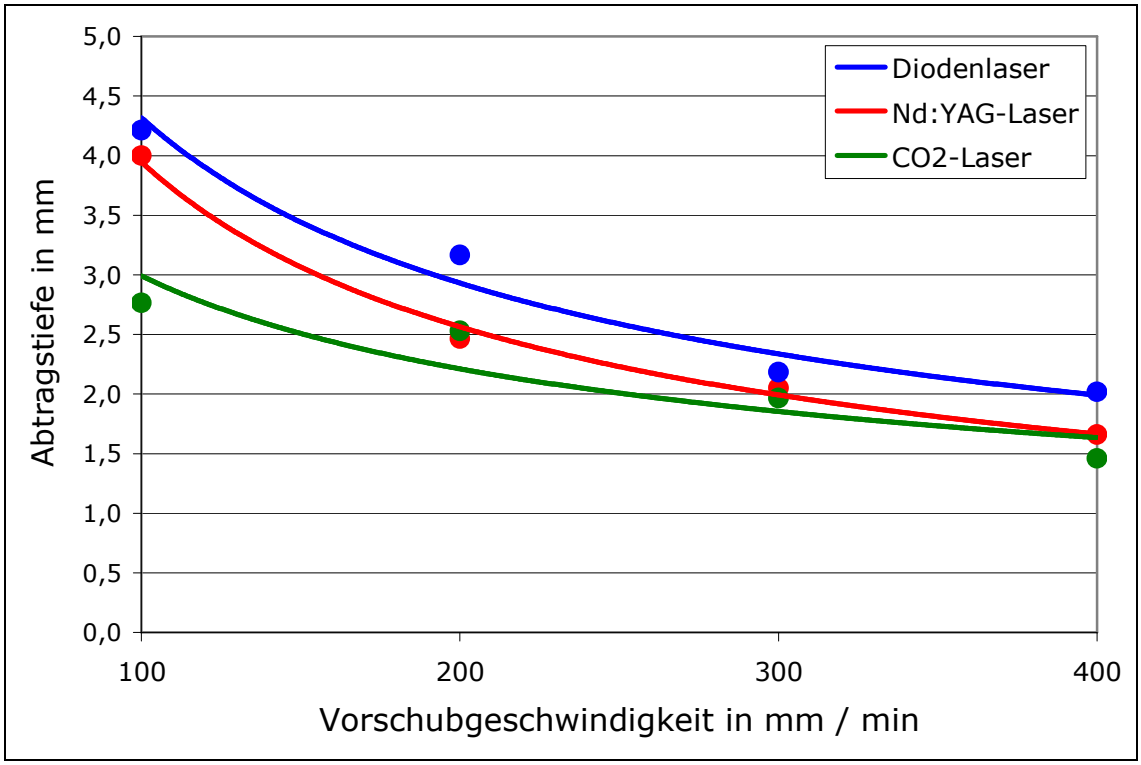


Abb. 6.16.: Vergleich der Abtragstiefen an Beton mit gemischten Zuschlägen bei einer Laserleistung von 1 kW

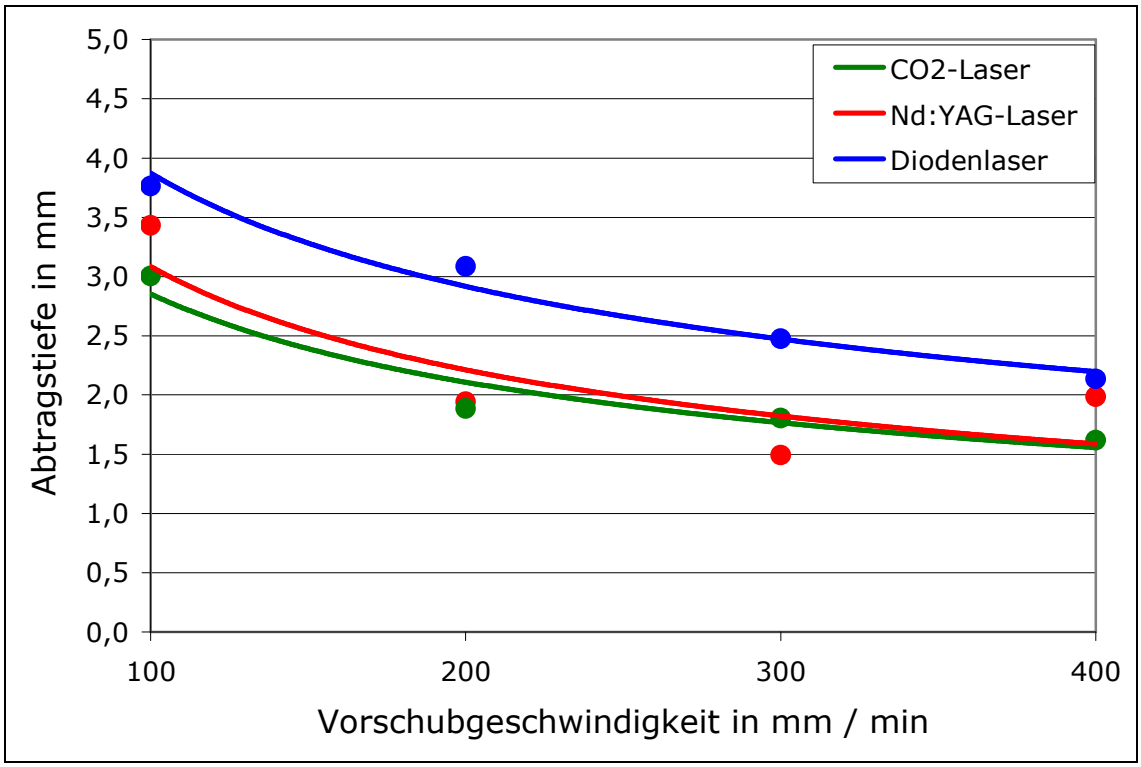


Abb. 6.17.: Vergleich der Abtragstiefen an Beton mit quarzitischen Zuschlägen bei einer Laserleistung von 1 kW

6.4.3 Flächige Bearbeitung durch getaktetes Ausblasen

Die zunächst theoretischen Ansätze zum Einsatz eines getakteten Austragsregimes zeigten in Praxi sehr gute Erfolge. In Vorversuchen wurde ein hohes Steigerungspotential durch den gepulsten Blasgasstrom festgestellt. Der Übergang zum flächigen Abtrag wurde mit verschiedenen Blasregimen kombiniert. Dafür wurde unter konstanter Laserleistung und Defokussierung ein weiteres Parameterfeld abgesteckt. Variiert wurden die Vorschubgeschwindigkeit zwischen 100 und 400 mm/min und das Blasregime. In Tabelle 6.3. sind die gewählten Taktungen aufgelistet.

Tabelle 6.3.: Variation der Blas-/Pausenzeiten bei gepulstem Ausblasen

Blasgasstrom	**aus**	**an**
a	-	kontinuierlich
b	0,5 s	0,5 s
c	0,3 s	0,3 s
d	0,2 s	0,2 s
e	0,5 s	0,3 s
f	1,0 s	0,5 s

Mit der Modifikation des Abtragsregimes hin zum getakteten Ausblasen konnte eine weitere Erhöhung der Abtragstiefen erreicht und somit der Austrag größerer Abproduktmengen ermöglicht werden.

Die nachfolgende Abbildung zeigt die erhaltenen Abtragstiefen für quarzitischen und gemischten Beton in Abhängigkeit vom Blasgasregime bei gleichzeitiger Konstanz der übrigen Prozessparameter, Abb. 6.18.

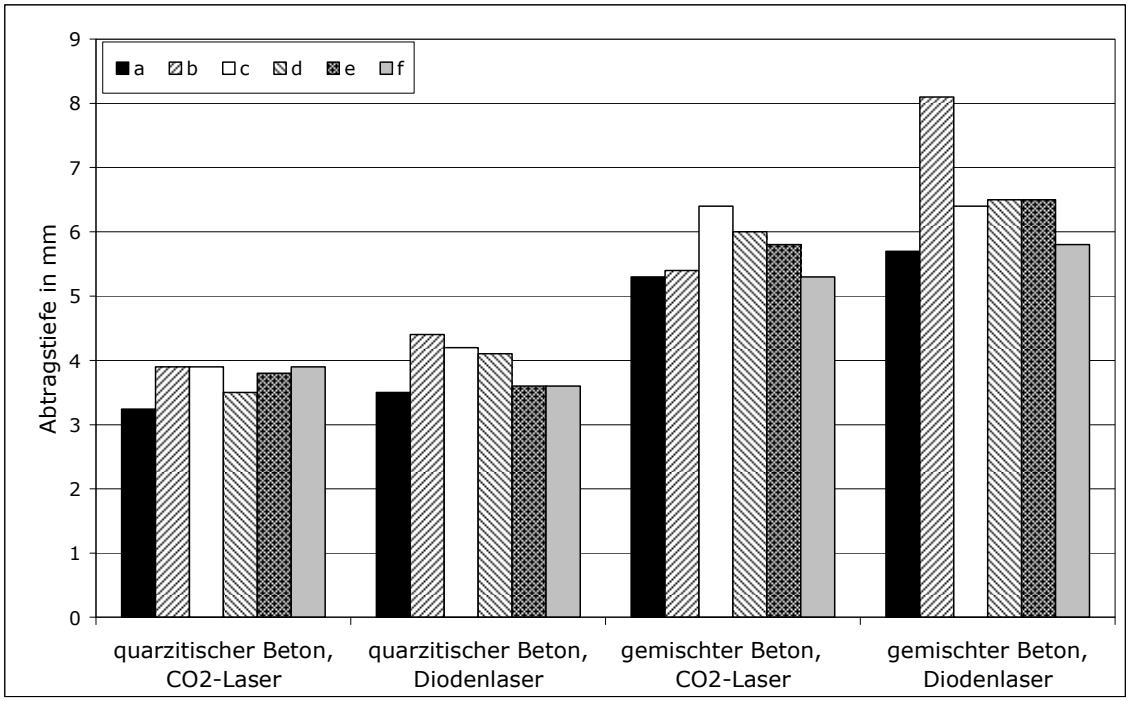


Abb. 6.18.: Abtragstiefen von Beton mit quarzitischen und gemischten Zuschlägen; a - kontinuierliches Ausblasen, b…f - gepulstes Ausblasen (vgl. Tabelle 6.3.)

Zunächst ist anzumerken, dass sich gemischter Beton generell besser abtragen lässt als quarzitischer Beton. Ursachen dafür sind wahrscheinlich sowohl in der durch die carbonatischen Zuschläge begründeten Schmelzpunkterniedrigung des Betons, als auch in der Viskositätserniedrigung der entstehenden Glasschmelze zu sehen.

Vergleicht man die unterschiedlichen Ausblasregime miteinander, ergibt sich, dass unabhängig vom Lasertyp sowohl an quarzitischem, als auch an gemischtem Beton höhere Abtragstiefen mit dem gepulsten Ausblasen (b-f) im Vergleich zum kontinuierlichen Ausblasen (a) erreicht werden. Des Weiteren ist im Diagramm zu erkennen, dass mit der Taktzeit b des Blasgases an gemischtem Beton unter Verwendung des Diodenlasers die höchste Abtragstiefe erreicht wird. Das heißt, dass sich lange Schmelzzeiten und kurze Blaszeiten effektiv auf den Abtragsprozess auswirken. Nachdem die Schmelze, die das darunter liegende Material quasi vom Laserstrahl abschirmt, aus der Wechselwirkungszone des Lasers ausgeblasen worden ist, kann der Laserstrahl wieder neue Gebiete erfassen und erschmelzen. Die Effektivität des Prozesses wird erhöht.

6.5 Ergänzende Untersuchungen

6.5.1 Senkrechte Wand

In Vorbereitung eines Realeinsatzes wurde das Verfahren auch an einer senkrechten Wand appliziert. Die Funktionalität war genauso gegeben wie in waagerechter Position, es sind jedoch einige Besonderheiten zu beachten. Zum einen ist ein waagerechter Vorschub wegen des Einflusses der Schwerkraft dem senkrechten Vorschub vorzuziehen, zum anderen sollte das Ausblasen der erzeugten Schmelze stets nach unten erfolgen. Damit ergibt sich für den praktischen Einsatz eine Bearbeitung der Wand von oben nach unten.

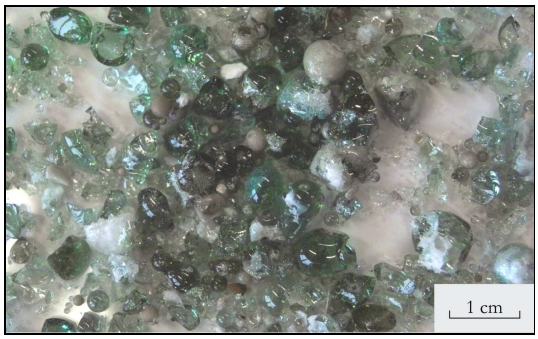


Abb. 6.19.: Granulate durch Auslaufen der Schmelze

Die durch den Einfluss der Schwerkraft hergestellten Abprodukte sind nahezu von kugeliger Idealform. Sie sind weitestgehend verglast und enthalten lediglich Einschlüsse in Form von Gasbläschen.

6.5.2 Acetylen

Zur Unterdrückung der Kühlwirkung des Blasgases wurden Tests mit einem energiereichen Gasstrom durchgeführt. Zum Einsatz kam ein Acetylen-Schweißbrenner. Der zusätzliche Energieeintrag erhöhte die Abtragsleistung enorm, jedoch kam es zu sehr großer Wärmeentwicklung im Umfeld der Bearbeitungsstelle. Periphere Anlagenteile begannen zu schmelzen und der Absaugstrang erfuhr eine sehr starke thermische Belastung. Durch eine Temperatur der Schmelze deutlich über 2500 °C erhöhte sich die Verdampfungsgefahr extrem.

In den entstandenen Abprodukten zeigten sich Granulate mit einem hohen Verglasungsgrad, jedoch auch viele Fasern und viel Feinstaub in Form von rekristallisiertem SiO_2.

6.5.3 Sauerstoff

Aus der Literatur ist bekannt, dass das Verglasungsverhalten der erzeugten Schmelze durch Verwendung von Sauerstoffatmosphäre verbessert werden kann [9].

Der Einsatz von Sauerstoff als Blasgas führte bei unserem Verfahren zu keinem Verbessern der Abtragsergebnisse. Es war eine deutlich höhere Neigung zur Faserbildung und rein visuell eine niedrigviskosere Schmelze zu erkennen. Diese Reaktion der Schmelze mit dem Sauerstoff kann zum einen durch die Bildung von Trennstellensauerstoffen, die das Netzwerk aufweiten [10] oder die Änderung des Oxidationszustandes der Schmelze selbst zurückzuführen sein. Durch Verringern des Polymerisationsgrades erhält man eine niedrigviskosere Schmelze [11].

6.6 Analysen der Abprodukte

Die durch den Abtragprozess entstandenen Abprodukte wurden mittels röntgendiffraktometrischer, licht- und elektronenmikroskopischer Methoden untersucht.

Je nach Ausgangszusammensetzung des abgetragenen Betons und nach Abtragsregime zeigten sich unterschiedliche Erscheinungsformen des abgetragenen Materials. So wurde beobachtet, dass Betone mit quarzitischen Zuschlägen (Abb. 6.20., links) sich besser verglasen lassen als Betone mit gemischten Zuschlägen (Abb. 6.20., rechts).

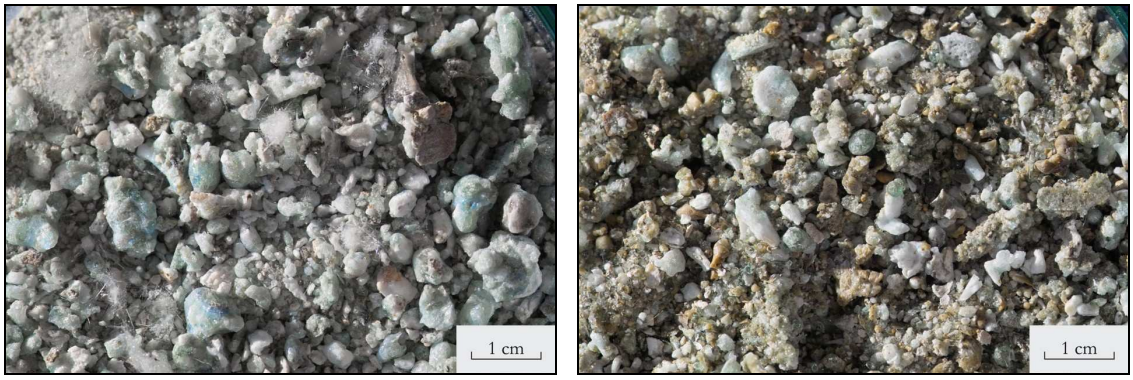


Abb. 6.20.: verglaste Abprodukte von quarzitischem Beton (links) und von gemischtem Beton (rechts)

Ursachen dafür sind sehr wahrscheinlich sowohl in der durch die carbonatischen Zuschläge begründeten Schmelzpunkterniedrigung des

Betons, als auch in der Viskositätserniedrigung der entstehenden Glasschmelze zu sehen.

Rein calcitische Betone konnten durch ihren Mangel an Glasbildnern nicht in einen glasartigen Zustand überführt werden, Abb. 6.21.

Abb. 6.21.: Abprodukte von calcitischem Beton

Bei diesen Materialien ist eher ein Ablatieren der oberflächennahen Schicht, hervorgerufen durch die ablaufenden Decarbonatisierungsreaktionen zu beobachten. Auf die Prozesskinetik des Verglasungsprozesses können die Zersetzungsreaktionen der Carbonate dahingehend Einfluss nehmen, dass es zu einem besseren Vermischen des Glases oder dem Ausbilden anderer Schmelzpunkte kommt. So ist bekannt, dass sich ab 540 °C $MgCO_3$ in MgO und CO_2 zersetzt. Ab 910 °C erfolgt dann die Dissoziation von $CaCO_3$ in CaO + CO_2, sowie ab 960 °C von $Na_2Ca(CO_3)_2$ in CaO + Na_2O + $2CO_2$.

Berechnung der Viskositäten

Abbildung 6.22. zeigt die an der TU Bergakademie Freiberg durchgeführte Berechnung der verschiedenen Viskositäten und Verarbeitungstemperaturen für quarzitischen und gemischten Beton mit der Software „GlassCal" der Firma Lambda Nu. Die hierfür verwendete chemische Zusammensetzung basiert auf den Mittelwerten der Untersuchungsergebnisse.

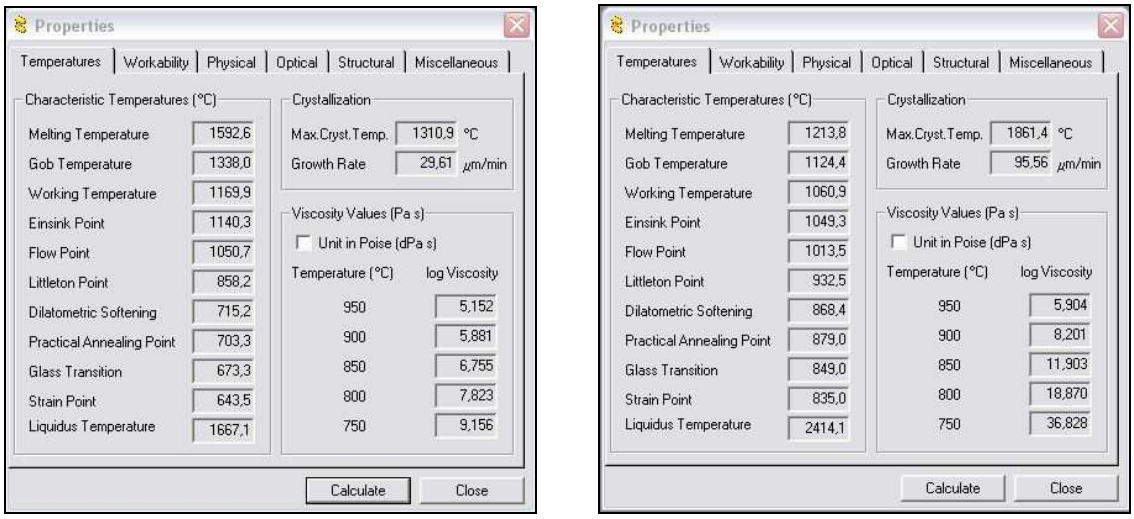


Abb. 6.22.: Berechnung der Glasfixpunkte von quarzitischem Beton (links) und gemischtem Beton (rechts)

Wie in Abb. 6.22. zu erkennen ist, sind für den quarzitischen Beton höhere Schmelztemperaturen (ca. 1600°C) als für den gemischten Beton notwendig (ca. 1200°C).

Illustration 6.23 zeigt die Viskositätsverläufe der beiden Beton in Abhängigkeit der Temperatur.

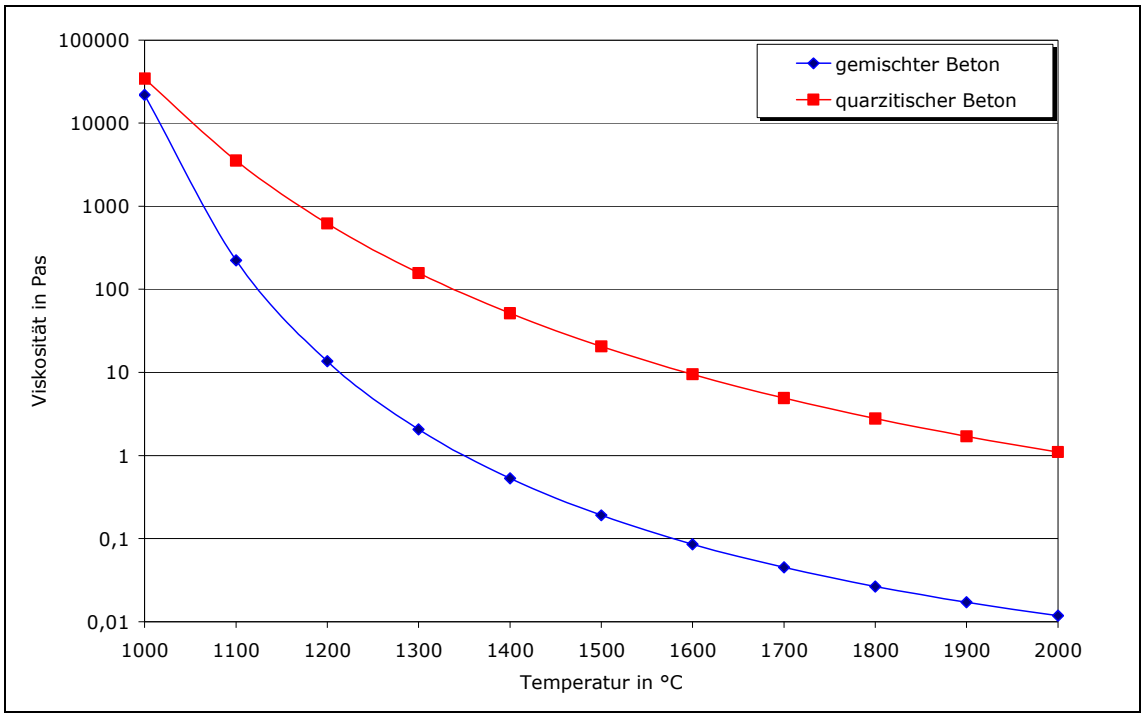


Abb. 6.23.: mit GlassCal berechnete Viskositätsverläufe von quarzitischem und gemischtem Beton

Im Diagramm 6.23. ist zu erkennen, dass hervorgerufen durch den hohen Kalkanteil im gemischten Beton, dessen Viskosität erheblich herabgesetzt wird. Im Temperaturbereich zwischen 1300 und 1400 °C liegt die Viskosität der Schmelze des quarzitischen Betons zwei Größenordnungen höher als die Viskosität der Schmelze des gemischten Betons.

Somit kann das Vorhandensein einer visuell sichtbaren niedrigviskoseren und somit dünnflüssigeren Schmelze beim Bearbeiten des gemischten Betons bestätigt werden.

Röntgendiffraktometrische und nasschemische Analysen

Wie die röntgendiffraktometrischen Analysen der erhaltenen Abprodukte belegen, sind die Abprodukte des quarzitischen Betons größtenteils amorph (Abb. 6.24. a).

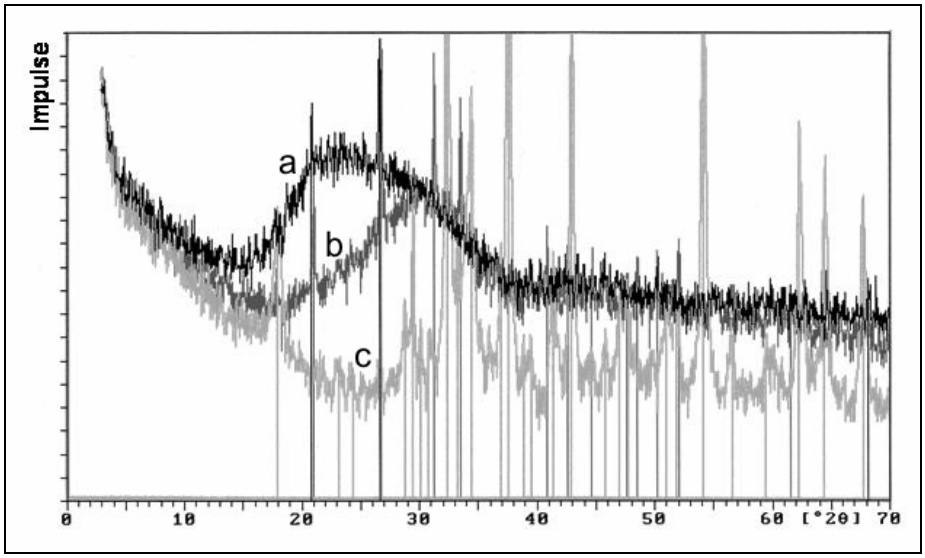


Abb. 6.24.: röntgendiffraktometrische (RD) Analysen der Abprodukte

Gemischte Betone weisen ebenfalls amorphen Charakter auf und enthalten in Spuren Akermanit und Dolomit, Abb. 6.24. b. Die Abprodukte der calcitischen Betone sind kristallin und können durch ihren hohen Anteil an CaO und MgO ohne den Zusatz von Glasbildnern keine Glasphase ausbilden (Abb. 6.24. c.).

Die quantitativen röntgendiffraktometrischen Untersuchungen werden von den chemischen Analysen bestätigt (Tabelle 6.4.).

Tabelle 6.4.: chemische Zusammensetzung der Abprodukte der verschiedenen Betone

	quarzitisch	**gemischt**	**calcitisch**
SiO_2	73,14	51,85	8,46
Al_2O_3	4,74	3,14	2,88
CaO	18,46	35,47	67,97
Fe_2O_3	1,16	0,95	1,12
K_2O	0,74	0,61	n.n.
Na_2O	0,33	0,20	1,62
MgO	0,87	7,51	17,48
TiO_2	0,16	0,13	0,10
MnO	0,03	0,03	0,04
SO_3	0,02	0,02	0,04
Rest		0,01	0,01
Summe	99,65	99,92	99,72

Wie Tabelle 6.4. belegt, besteht der quarzitische Beton zu 70 % aus SiO_2, 20 % CaO, 0,3 % Na_2O und 5 % Al_2O_3. Der calcitische Beton hingegen setzt sich aus 68 % CaO, 17,5 % MgO und lediglich 8 % SiO_2 zusammen. In der Übereinstimmung mit der röntgenographischen Analyse kann man erkennen, dass dieser Beton vornehmlich aus Calcit und Dolomit besteht. Problematische werden könnte die Verarbeitung des Betons zu Glas durch den geringen Anteil an SiO_2 (Mindestgehalt an SiO_2 sind 50 % [12]). Des Weiteren ist bedingt durch den hohen CaO- und MgO-Gehalt eher mit kristallinen Ausscheidungen zu rechnen. Der gemischte Beton zeigt sowohl in der röntgenographischen (Hauptbestandteile sind Quarz, Calcit und Dolomit) als auch chemischen Analyse (ca. 52 % SiO_2, 35 % CaO, 0,2 % Na_2O, 3 % Al_2O_3), dass dieser ein „Mischprodukt" der beiden reinen Betone ist. Den Mindest-SiO_2-Gehalt von 50 % aufweist und ein Verglasen möglich sein wird.

Dichte der Abprodukte

Die Dichte der erhaltenen Abprodukte wurde an der Technischen Universität Bergakademie Freiberg mit einem Pulverpyknometer bestimmt.

Die Abprodukte des quarzitischen Betons weisen eine Dichte von 2,56 g/cm³ auf. Die Dichte der Abprodukte des gemischten Betons liegt bei 2,88 g/cm³ und die der des calcitischen Betons beträgt 3,25 g/cm³.

Dreistoffsystem CaO-SiO_2-MgO

Beim Einordnen der ausgeblasenen Abprodukte in das Dreistoffsystem CaO-SiO_2-MgO werden die Ergebnisse der Röntgendiffraktometrie bestätigt (Abb. 6.25.). Das Ausblasprodukt des quarzitischen Betons weist durch seinen hohen SiO_2-Gehalt amorphes Verhalten auf. Die Ausblasprodukte des Betons mit carbonatischen Zuschlägen liegen im Ausscheidungsfeld des CaO und deuten auf den kristallinen Charakter der Abprodukte hin. Die Abprodukte des gemischten Betons weisen den laut Hülsenberg [12] für ein Verglasen geforderten Mindest-SiO_2-Gehalt von 50 % auf. Sie zeigen wie die RD-Analyse (Abb. 6.24.) belegt fast vollständig amorphes Verhalten.

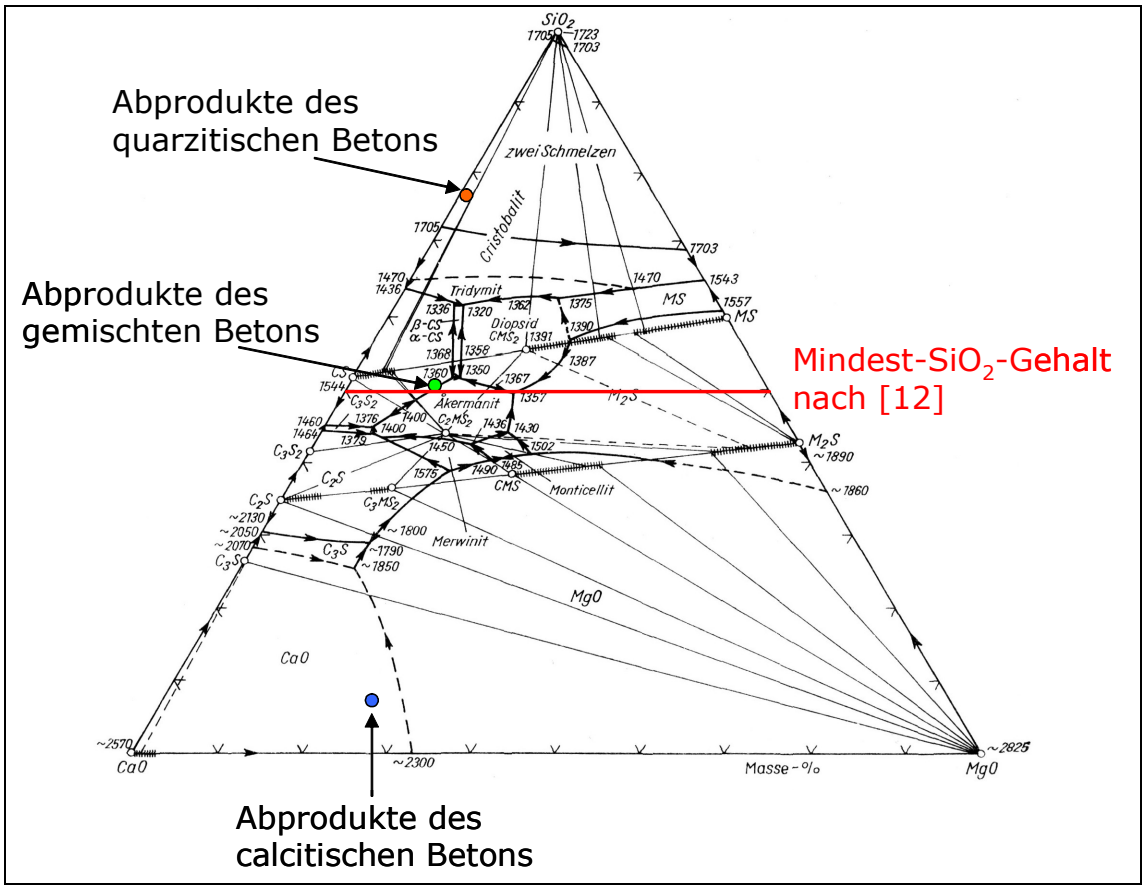


Abb. 6.25.: Einordnung der Abprodukte in das Dreistoffsystem CaO-MgO-SiO_2

Korngrößenverteilung

Die Korngrößenverteilung der in der Sammelbox aufgefangenen Abprodukte wurde durch Nasssiebung bestimmt (Feinfilterrückstände sind in dieser Verteilung nicht berücksichtigt!).

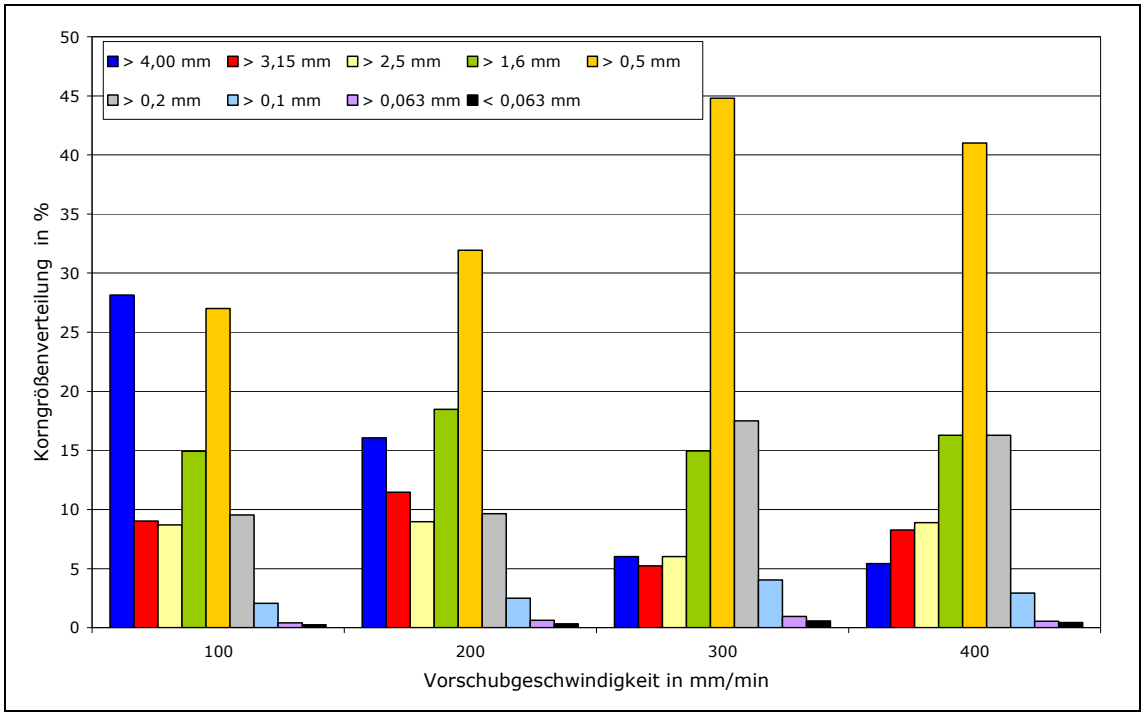


Abb. 6.26.: Korngrößenverteilung von Abprodukten des quarzitischen Betons bei unterschiedlichen Vorschubgeschwindigkeiten

Abbildung 6.26. und 6.27. zeigen die Korngrößenverteilung für quarzitischen und gemischten Beton mit **kontinuierlichem Blasgasstrom**.

Es ist zu erkennen, dass mit dem Erhöhen der Vorschubgeschwindigkeit eine Abnahme der groben Partikel (> 4 mm) einhergeht. Diese groben Partikel sind in den meisten Fällen Agglomerate kleinerer einzelner Partikel, die sich aufgrund der geringen Vorschubgeschwindigkeiten beim Abkühlen zu gröberen Partikeln verkleben. Mit steigender Vorschubgeschwindigkeit nimmt diese Fraktion um das 5fache ab (von ca. 28 % auf 5 %). Des Weiteren kommt es mit dem Erhöhen der Vorschubgeschwindigkeit zu einem Anreichern der Abprodukte in den Fraktionen > 0,5 mm.

Beim Vergleich der Korngrößenverteilung der Abprodukte von quarzitischem (Abb. 6.26.) und gemischtem Beton (Abb. 6.27.) ist zu erkennen, dass die Fraktion > 4 mm bei den Abprodukten des quarzitischen Betons wesentlich stärker ausgeprägt ist, als die des gemischten Betons. Zudem sind

tendenziell mehr feinere Fraktionen in den Abprodukten des gemischten Betons vorhanden. Ursache hierfür kann in den Decarbonatisierungsreaktionen und den damit verbundenen Ablationsprozessen liegen.

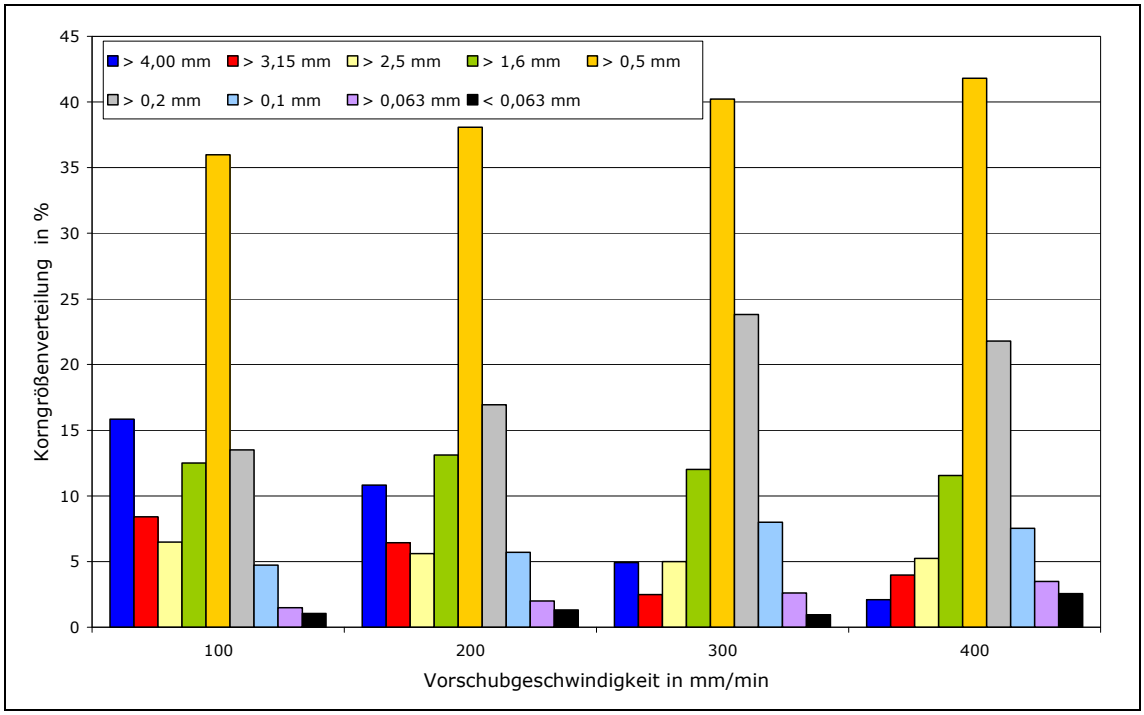


Abb. 6.27.: Korngrößenverteilung von Abprodukten des gemischten Betons bei unterschiedlichen Vorschubgeschwindigkeiten

Mit der Variation des Blasgasstromes hin zum **getakteten Ausblasen** sollte eine Vergröberung der Partikel einhergehen.

Abbildungen 6.28. und 6.29. zeigen die Ergebnisse der Korngrößenverteilung für quarzitischen und gemischten Beton bei gleich gewählten Taktzeiten (siehe Tabelle 6.3.).

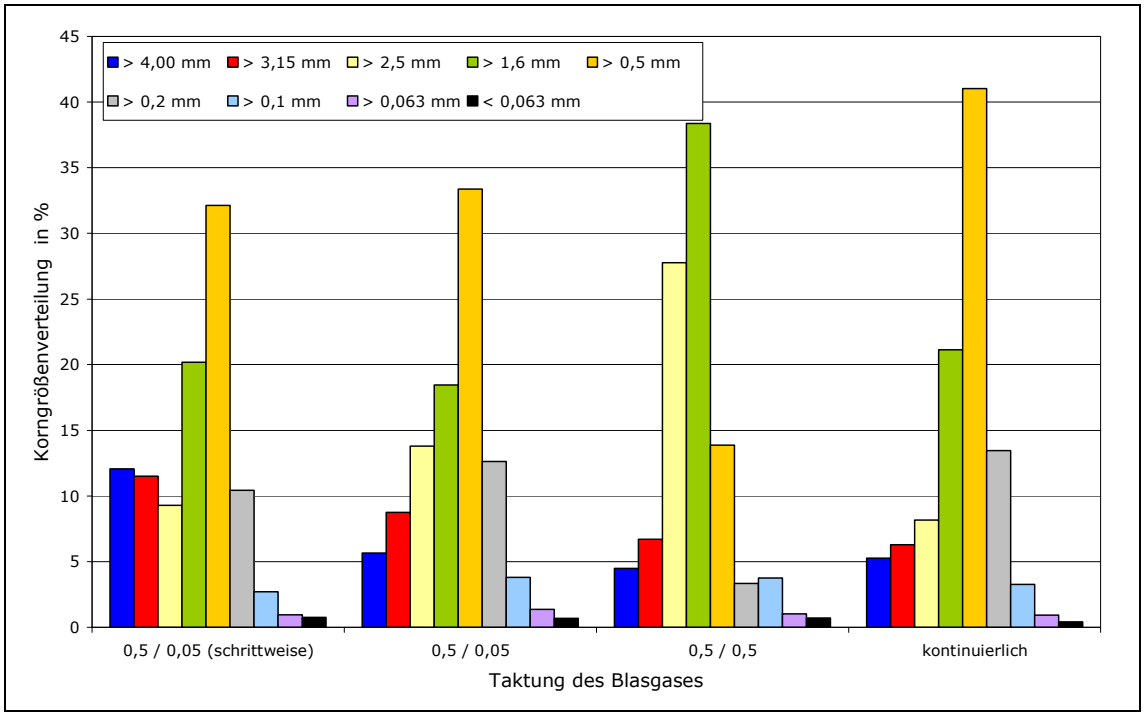


Abb. 6.28.: Korngrößenverteilung von Abprodukten des quarzitischen Betons bei unterschiedlichen Taktungen des Blasgases

Die gewünschte Vergröberung der Partikel konnte an quarzitischem Beton bei der schrittweisen Taktzeit 0,5 / 0,05 im Vergleich zum kontinuierlichen Ausblasen, bis zu einer Korngröße > 2,5 mm beobachtet werden. Ferner konnte die direkte Abhängigkeit von der Taktung des Blasgases mit der Korngrößenverteilung der Abprodukte nachgewiesen werden.

So sind bei der schrittweisen Taktung von 0,5 / 0,05 im Vergleich zu der Taktung 0,5 / 0,05 gröbere Abprodukte (bis > 3,15 mm) zu klassifizieren. Die Anteile in den Fraktionen > 1,6 mm und > 0,5 mm schwanken lediglich um 2…3 %. Im Vergleich dieser Taktungen mit der Variante 0,5 / 0,5 kann beobachtet werden, dass eine signifikante Erhöhung des Anteils in den Fraktionen > 2,5 mm und > 1,6 mm mit einer enorme Verminderung in der Fraktion > 0,5 mm einhergeht.

An den Abprodukten des gemischten Betons konnten dies nicht bestätigt werden. Die Fraktion > 0,5 mm ist bei allen gewählten Taktungen des Blasgases mit ca. 40 % gleich ausgebildet. Eine Tendenz für weitere Untersuchungen zur Variation der Taktzeiten ist anhand der Abbildung 6.29. nicht zu erkennen.

Beim Vergleich der Abbildungen 6.28. und 6.29. wird die Notwendigkeit des Anpassens der Ausblasregime an die jeweilige Betonsorte extrem sichtbar.

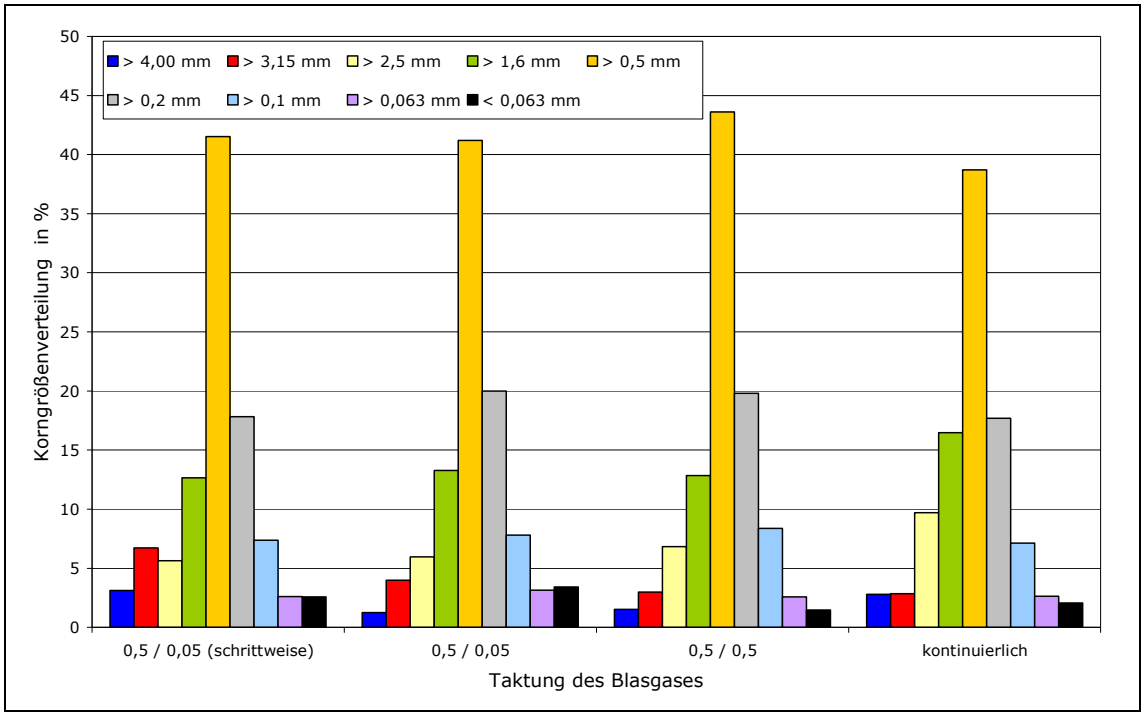
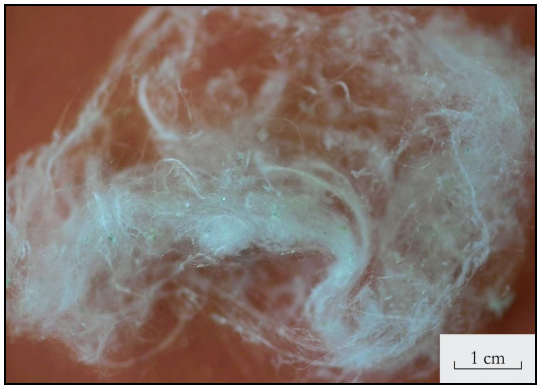


Abb. 6.29.: Korngrößenverteilung von Abprodukten des gemischten Betons bei unterschiedlichen Taktungen des Blasgases

Fasern und Feinstäube

Neben den glasartigen Granulaten können in geringem Maße noch weitere Abprodukte in Form von Fasern und Feinstäuben entstehen.



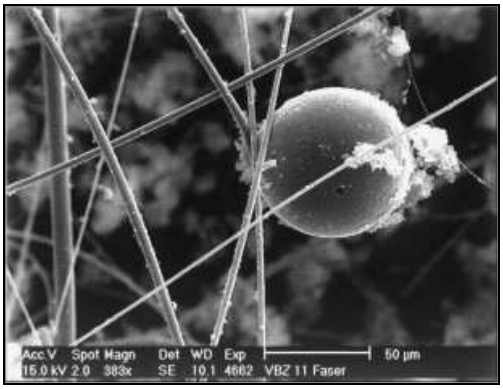


Abb. 6.30.: Faserartige Abprodukte (links) und REM-Aufnahme von Faser und Feinstaub (rechts)

Faserartige Abprodukte findet man vor allem beim Bearbeiten quarzitischer Betone, Abb. 6.30. Diese Fasern entstehen sehr wahrscheinlich dadurch, dass schmelzflüssige Partikel vom Blasgasstrom erfasst werden, ober-

flächlich abkühlen und durch die Bewegung im Blasgasstrom eine Art Faser aus dem noch existenten Schmelzbad ausziehen. Dieser Effekt wurde beim Verwenden von Sauerstoff als Blasgas noch verstärkt.

Rasterelektronenmikroskopische Analysen ergaben, dass die wie in Abbildung 6.31. dargestellten Fasern über ihre Länge gesehen zu einer Seite hin schmaler werden (siehe Abb. 6.31. rechts).

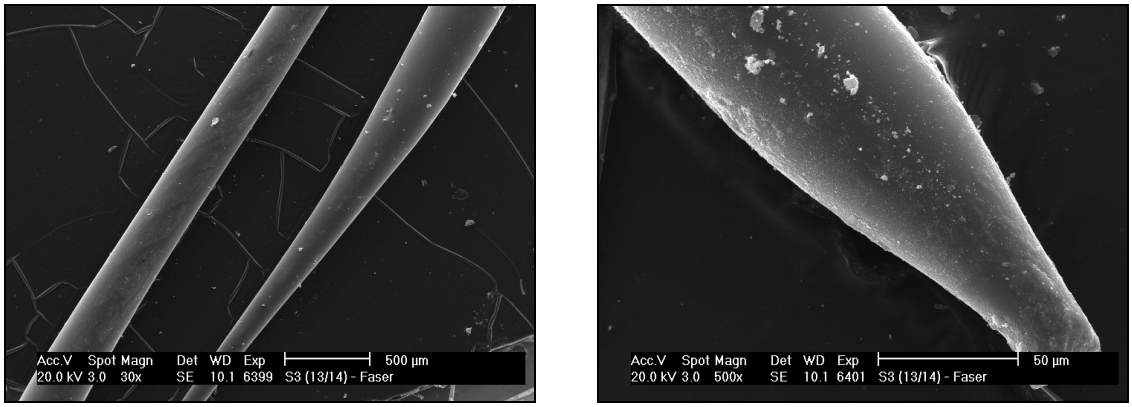


Abb. 6.31.: Fasern im Gesamtüberblick (links) und Teilaufnahme (rechts)

Aufgrund ihres hohen Oberflächen-Volumen-Verhältnisses sind Fasern für das dauerhafte Einbinden von Radionukliden eher ungeeignet. Bei lokal auftretenden Anreicherungen von Isotopen kann es zu einer erhöhten Wärmeentwicklung und dem damit verbundenen Erweichen der Glasmatrix kommen. Eine Eluatbeständigkeit wird dann nicht mehr gegeben sein.

Des Weiteren behindern die Fasern durch das beschleunigte Verstopfen des Filters den reibungslosen Abtransport der Abprodukte.

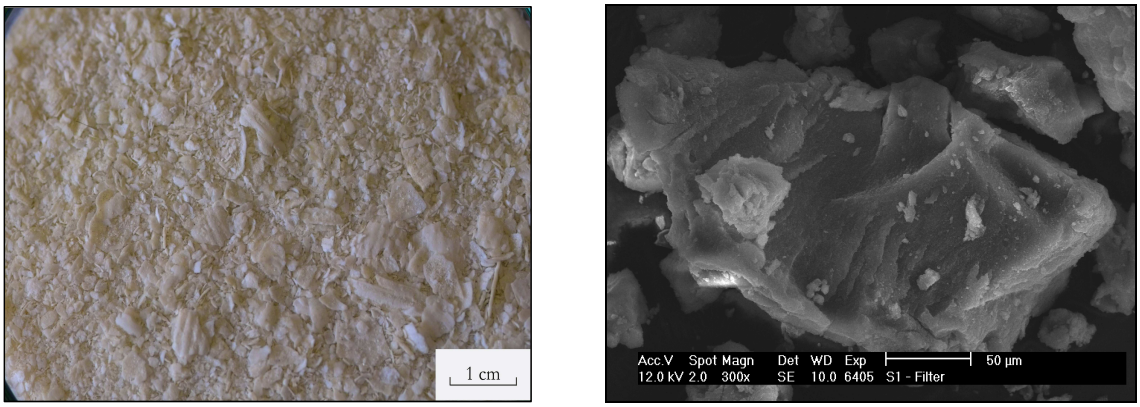


Abb. 6.32.: Filterstaub (links) und REM-Aufnahme (rechts)

Die beim Bearbeiten der Betonoberflächen auftretenden Feinstäube (Abb. 6.32.) enthalten Partikel unterschiedlicher Form und Größe mit einer mittleren Korngröße von 92,08 µm.

Der mit ca. 75…85 % hohe Anteil an SiO_2 ist auf die Rekristallisation des beim Bearbeiten verdampfenden SiO zurückzuführen.

6.7 Entwicklung Geräte und Messtechnik

6.7.1 Abproduktsammler, Filtertechnik

Der Abtransport der von der Betonoberfläche abgetragenen Fraktionen wird durch einen über der Bearbeitungsfläche befindlichen Strömungskanal realisiert. Die eine Seite des Kanals mündet in eine speziell entwickelte Box zum Auffangen und zur Separation der Abprodukte. Innerhalb der Box werden die groben Granulate durch eine Zwangsführung der Absaugströmung ausgeschieden. Im weiteren Verlauf passiert die Absaugung ein Stufenfiltersystem und endet im Feinstfilter der Absauganlage. Die andere Seite des Kanals ist für den Zugang der notwendigen Strömung offen gestaltet. Diese offene Gestaltung erlaubt eine variable Positionierung der Blasdüse. Um dem Ablagern von Schmelzpartikeln an den Kanalwandungen vorzubeugen, werden diese mittels Flachdüsen mit einer Art Luftvorhang versehen. Die freie Zugänglichkeit der Laserstrahlung zur Bearbeitungsstelle ermöglichen zwei ober- und unterseitig im Kanal eingebrachte Öffnungen.

6.7.2 Messtechnik

Diskutiert und getestet wurden verschiedene Methoden abgetragene Volumina quantitativ zu bestimmen.

Das **Verfüllen mit Sand** oder **aushärtenden Materialien** bekannter Dichte erlaubt eine relativ einfache Volumenbestimmung. Die Nachteile liegen jedoch in der mechanischen Belastung der bearbeiteten Flächen, deren unsteten Randbereichen sowie in der nicht möglichen digitalen Erstellung eines Abtragsprofils.

Eine Möglichkeit zur Gewinnung 3-dimensionaler Abtragsprofile ist der Einsatz eines **taktilen Systems** (Abb. 6.33.).

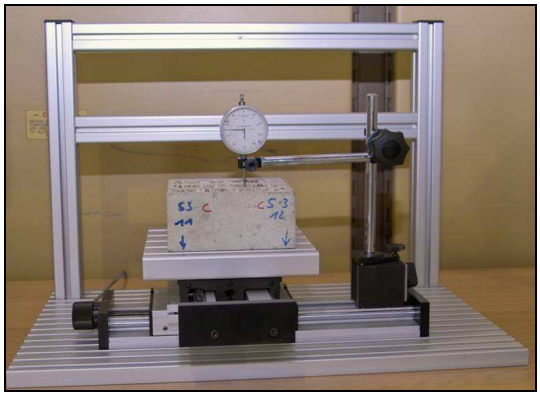


Abb. 6.33.: taktiles System

Nachteile des Verfahrens sind der hohe Zeitaufwand und die mechanische Belastung der Oberfläche. Mit dem Abarbeiten des über die Abtragsfläche gelegten Rastermaßes können die jeweiligen Tiefen ermittelt und für eine grafische Auswertung zur Verfügung gestellt werden.

Sehr viel eleganter ist die Implementierung der **Lasertriangulation**. Durch ihr berührungsfreies Regime wird eine mechanische Belastung der Bearbeitungsfläche vermieden. Sie ist prädestiniert für eine zukünftige In-Situ-Detektion der Abtragstiefe (Abb.6.34.).

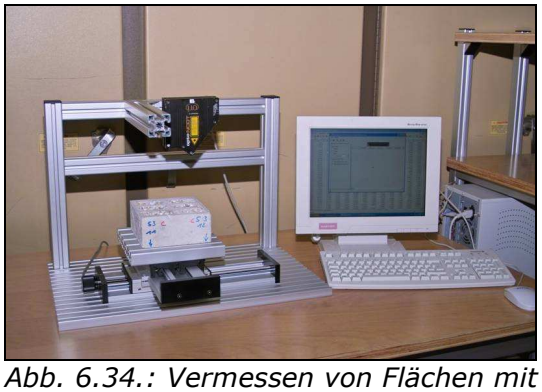


Abb. 6.34.: Vermessen von Flächen mit der Lasertriangulation

Die Vermessung der zahlreichen Flächen erforderte den Aufbau eines speziellen Messplatzes. Ein xy-Tisch bot die Möglichkeit beliebige Raster über die Betonproben zu legen und so die jeweilige laterale Position verknüpft mit dem dazugehörigen Messwert des Triangulationssensors der Datenerfassung bereit zu stellen.

Vorteile des Verfahrens sind neben dem berührungslosen Arbeiten, die elektronische Datenerfassung und das mögliche feine Raster an Messpunkten. Über die abgetragene Fläche von 60 x 30 mm² (z.B. Abb. 6.35.,

links) wurde ein Netz von 70 x 40 Messpunkten mit einem Rastermaß von je 1 mm gelegt (siehe Abb. 6.35., rechts).

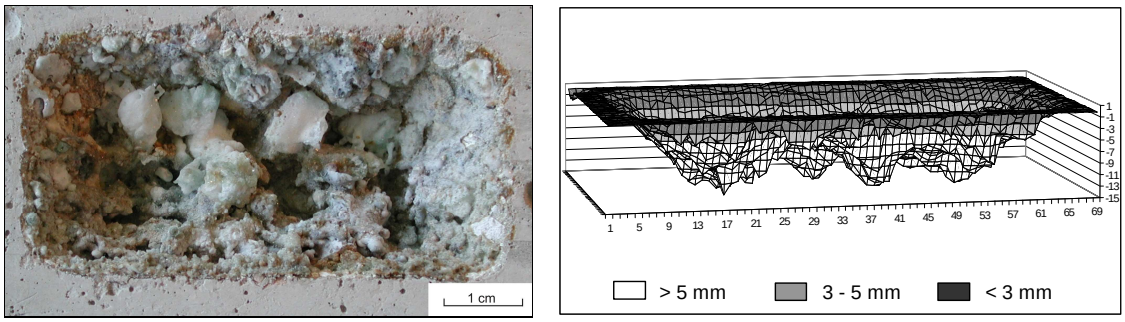


Abb. 6.35.: bearbeitete Fläche (links), Abtragsprofil (rechts)

Nachteilig wirken sich lediglich die Abschattungen an Kanten und Löchern der Oberfläche aus. Für die Ermittlung des Ergebnisses wurden hier Mittelwerte aus den umliegenden Messpunkten gebildet. Ein weiteres Manko kann die Transparenz der Oberfläche (z.B. Glasphasen) darstellen und zu einem Verfälschen der Ergebnisse führen. Um diesen Fehler bei unserer Vermessung zu bestimmen, wurde eine Fläche mit einem hohen Anteil an glasartigen Rückständen und offen liegenden quarzitischen Zuschlägen ohne und mit einem nichttransparenten Farbüberzug vermessen. Die sich ergebende Differenz zwischen beiden Werten (Tiefe *ohne Farbe* 6,05 mm; Tiefe *mit Farbe* 5,97 mm) von 0,08 mm liegt im Bereich der Schichtdicke der aufgetragenen Farbe.

6.8 Zusammenfassung

Das thermische Behandeln von Beton mit Lasertechnologie ermöglicht die Überführung einer oberflächennahen Schicht in einen schmelzflüssigen Zustand. Mit dieser Schmelze kann der Einschluss von Abprodukten wie sie z.B. auf atomar kontaminierten Oberflächen zu finden sind, durch die durchaus 10^{10}-mal höhere Löslichkeit von Stoffen in einer Schmelze, möglich werden. Durch Kombination von Aufschmelzen der Oberfläche und getaktetem Ausblasen kann unproblematisch in einem Einschrittverfahren eine Tiefe von ca. 5 mm abgetragen werden. Damit sollte eine nahezu vollständige Dekontamination der in Kernkraftwerken verwendeten Betone möglich sein, da in dieser Schicht etwa 95 % der Aktivität enthalten sind. Entscheidenden Einfluss auf den Abtrag der Oberflächen üben neben dem abzutragenden Material, die Laserart und dessen Parameter, sowie die zusätzliche Taktung des Blasgases aus. Betone mit gemischten Zuschlägen

lassen sich durch ihre niedrigere Viskosität besser abtragen als Betone mit silicatischen Zuschlägen. Calcitische Betone können durch ihren Mangel an Glasbildnern nicht in einen amorphen Zustand überführt werden. Bei diesen Materialien wird der Einsatz von Matrixbildnern notwendig. Im Verlauf der Arbeiten zeigte sich, dass unter Einsatz des Hochleistungsdiodenlasers höhere Abtragstiefen und somit auch höhere Abtragsraten als unter Verwendung des CO_2-Lasers erzielt werden können. Diese Lasergeräte sind durch ihr um mindestens Faktor 1000 geringeres Volumen und Gewicht gegenüber den CO_2-Lasern wesentlich besser zu handhaben. Sie haben einen deutlich geringeren Energieverbrauch und sind einfacher zu betreiben. Die Diodenlaserstrahlung ist durch Glasfaserkabel leicht an die Bearbeitungsstelle zu führen. Mit diesen Vorzügen kommen die Hochleistungsdiodenlaser einem Einsatz für Dekontaminierungszwecke auch mobiler Art sehr entgegen.

Die entstehenden abgesaugten Abprodukte werden in einem granulatartig Zustand gesammelt und sind sehr einfach weiterzubehandeln. Weitere entstehende Abprodukte sind Fasern und Feinstäube in unterschiedlichen Mengen. Gasförmige Abprodukte wurden bisher nicht deklariert.

Die innerhalb der letzten zwei Jahre im Laserinstitut Mittelsachsen e.V. entwickelten Laserverfahrens- und Prozessparameter wurden vollständig der Arbeitsgruppe unseres Partners an der Technischen Universität Dresden übergeben. Ende des Jahres 2004 konnten unsere Ergebnisse an einer im Institut für Energietechnik Dresden nach unseren Vorgaben angeschafften und aufgebauten eigenen Anlage verifiziert werden. Innerhalb kürzester Zeit konnten mit der angeschafften Anlagentechnik in der Arbeitsgruppe in Dresden identische Ergebnisse wie in Mittweida erzielt werden.

Einer Übertragbarkeit der Erfahrungen des Laserinstituts Mittweida zum Laserabtrag von Beton auf andere Standorte steht damit nachweislich nichts mehr im Wege.

7 voraussichtlicher Nutzen, Verwertbarkeit des Ergebnisses im Sinne des fortgeschriebenen Verwertungsplanes

Durch die Realisierung des Projektes konnte neben der Entwicklung einer Technologie zum Abtrag radioaktiv kontaminierter Oberflächen mit gleichzeitiger Abproduktkonditionierung, die Zusammenarbeit zwischen den projektbeteiligten Partnern intensiviert und weiter ausgebaut werden. Es erfolgten die laut Arbeitspaket festgeschriebene Laserempfehlung auf Grundlage von Voruntersuchungen und der Übertrag der am LIM erzielten Ergebnisse an den Projektpartner.

Die erfolgreich abgeschlossene I. Phase des Forschungsprojektes umfasste die direkte Technologieentwicklung und deren labortechnische Erprobung. Im Sinne der Weiterführung der Arbeiten und dem Nutzen bzw. der Verwertung der Ergebnisse wäre der Übertrag der Technologie auf großformatigere Probematerialien und die Konzeption und Entwicklung eines hochleistungsfähigen, robotergeführten, mobil einsetzbaren Abtragssystems zum fernhantierten, automatischen Abtragen radioaktiv kontaminierter Oberflächen durchaus sinnvoll.

Mit der entwickelten Technologie ist es einerseits möglich die entstehenden Abprodukte sofort zu konditionieren und ihrem endlagerfähigen Abfallgebinde zuzuführen. Andererseits wird durch Einsatz der Lasertechnologie und das Überführen des Betons in seinen schmelzflüssigen Zustand die Menge des endzulagernden Abfalls extrem minimiert. Neben dem Minimieren der Abproduktmengen wird die Arbeitssicherheit durch das signifikante Verringern der radioaktiven Belastung des Arbeitsraumes deutlich erhöht.

Mit dem Fixieren der radioaktiven Partikel während des Abtragsprozesses können die Maßnahmen für den Gesundheitsschutz im Arbeitsbereich stark reduziert werden, was sich wiederum positiv auf die Kostenstruktur der Stilllegungsmaßnahmen auswirken wird, da wesentlich weniger Schutzmaßnahmen und bisher notwendige umfängliche Absaugtechnik erforderlich sein wird.

Nutznießer der am LIM entwickelten und patentierten Technologie können alle in Deutschland und weltweit ansässigen Firmen sein, die mit der Dekontamination radioaktiv belasteter Flächen beauftragt sind.

8 während der Durchführung des Vorhabens dem ZE bekannt gewordenen Ergebnisse im Sinne des fortgeschriebenen Verwertungsplanes

8.1 Ergebnisse der Literaturrecherche

Von den ca. 530 in den letzten 40 Jahren weltweit in Betrieb genommenen Kernkraftwerken sind heute noch 436 mit einer Gesamtkapazität von 368.162 MW in Betrieb. Erreicht eine kerntechnische Anlage ihre geplante Betriebsdauer, erfolgen anschließend deren planmäßige Stilllegung und ihr Rückbau. In Deutschland allein befinden sich 11 stillzulegende Kernkraftwerke und Forschungsreaktoren.

Dabei muss aller sich im Rückbau befindlichen kerntechnischen Anlagen besonders großes Interesse entgegengebracht werden [13], denn die dabei auftretenden Probleme gliedern sich in

- das sichere und effektive Zerlegen radioaktiver Komponenten
- den Abtrag radioaktiv kontaminierter Komponenten mittels Dekontaminationstechniken zu gewährleisten sowie
- das Bewältigen des hohen Volumens an Sekundärmüll [14]

Bei den im Rahmen der Stilllegung anfallenden Rückbauarbeiten werden, bedingt durch die örtlich gegebenen Randbedingungen, eine Vielzahl unterschiedlicher Dekontaminations- und Zerlegetechniken, teils mit komplexen Handhabungssystemen, angewandt. Die wichtigsten Kriterien für die Auswahl des jeweilig eingesetzten Verfahrens umfassen nach Bach et al. [13, 15]:

- die Kosten (für Dekontamination gegenüber dem Endlagern, optimale Müllreduzierung)
- der Betrag und die Art der Radioaktivität (Kontamination, Aktivierung, Isotope, deren räumliche Verteilung im Werkstück)
- die Aspekte des Strahlenschutzes (Zerlegen an Atmosphäre und/oder unter Wasser)
- die Art des zu bearbeitenden Werkstoffes (Stahl, Beton, Graphit, Werkstoffverbunde)
- die Geometrie und die räumliche Zugänglichkeit.

Für die totale Beseitigung eines Kernkraftwerkes sind nach heutigem Stand ca. 10…20 % der aktuellen Neubaukosten notwendig [15]. Dadurch entsteht

eine extrem hohe Kostenrelation, die die Entwicklung neuer Recyclingtechnologien notwendig macht.

8.1.1 Radioaktive Kontamination

Radioaktive Kontamination kann in lose und in festgebundene Kontamination unterteilt werden. Wohingegen lose Kontamination mit Hausstäuben verglichen und genauso einfach durch Abwischen entfernt werden kann, ist für das Beseitigen chemisch oder elektrostatisch festgebundener Schadstoffe der Einsatz gröberer Abtragstechniken notwendig. Radioaktive Kontamination kann durch Diffusion der radioaktiven Elemente in die Oberfläche hinein oder aber durch Aktivierung des Materials selbst erfolgen. Das vorrangige Transportmedium der Radionuklide ist Wasser (außer wenn diese gasförmig vorliegen). Aufgrund dieser Diffusionsvorgänge sind die in direkter Einwirkung mit aktivitätshaltigen Medien stehenden Betone der Nuklearanlagen meist durch Anstriche, Beschichtungen und Auskleidungen geschützt. Dennoch muss davon ausgegangen werden, dass bei Langzeitexpositionen die Wirkung der Schutzschicht herabgesetzt wird bzw. deren Schädigung eintreten kann. Umfangreiche Arbeiten wurden dazu am VKTA Rossendorf im Fördervorhaben *02 S 7605 A* des BMBF mit dem Thema *„Stilllegung und Rückbau: Eindringverhalten radioaktiver Kontamination in ungeschützte Betonstrukturen*" angefertigt [16].

Tiefenverteilung der spezifischen Aktivität im Beton

So konnte im Rahmen des Projektes beobachtet werden, dass beim Eindringen von Wasser in Beton die migrierenden Substanzen Wechselwirkungen mit dessen Bestandteilen eingehen und unterschiedlich stark am selbigen gegenüber der Wasserfront zurückgehalten werden. Das Wasser nimmt lösliche Bestandteile aus dem Beton (Zementsteinmatrix) auf und verändert somit die Spezifikation der Nuklide. Diese Wechselwirkungen bedingen die typische Tiefenverteilung der Radionuklidkonzentration im Beton. Die Wissenschaftler konnten beobachten, dass sich die Tiefenverteilung der spezifischen Aktivität von Cs-137, Co-60 und Sr-85 aus einer oberflächennahen Zone (ca. 5 mm, innerhalb deren sich die mittlere spezifische Aktivität einer 1-2 mm starken Schicht um 2 bis 3 Größenordnungen vermindert) und einer tieferreichenden (mindestens 50 mm) Komponente

zusammensetzt. Weisen Betone aus kerntechnischen Anlagen Schutzanstriche wie Epoxydharzbeschichtungen oder Farbanstriche auf, so wird dort zwischen 46...99,8 % der Co-60 Aktivität zurückgehalten. Die spezifische Aktivität nimmt dann bis in eine Tiefe von 10 mm um eine bis drei Größenordnungen ab. Weitere Untersuchungen ergaben, dass Cs-137 im Vergleich zu anderen Radionukliden bevorzugt in ungeschütztem Beton oder beschädigten Beschichtungen sorbiert wird [16].

8.1.2 Dekontamination im allgemeinen Sinn

Allgemein wird Dekontamination als Abtrag unerwünschten Materials von der Oberfläche verstanden und lässt sich in das Reinigen von Oberflächen und das Abtragen von Oberflächenschichten unterscheiden. Im Sinne der Stilllegung und Entsorgung kerntechnischer Anlagen ist unter Dekontamination ein Abtrag radioaktiv kontaminierten Materials mit geeigneten Dekontaminationsverfahren zu verstehen. Die Auswahl der dafür verwendeten Technik wird in Abhängigkeit von dem zu bearbeitenden Werkstoffen bzw. Werkstücken, dem Grad der Kontamination und der Schutzatmosphäre getroffen. Hauptziele der Dekontamination sind neben dem Abtrag anhaftender radioaktiver Oxide, sowohl von Metallen als auch von mineralischen Bauteilen, das Reduzieren der Strahlendosis mit dem Ziel „Handzerlegetechniken" anwenden zu können, das Minimieren des Potentials zur Ausbreitung der Kontamination während des Zerlegens sowie die Möglichkeit Kontamination soweit zu verringern, dass die gereinigten Komponenten wiederverwertet werden können und somit eine erhebliche Reduktion der endzulagernden Abfallmenge zu erreichen [17].

Illustration 8.36. zeigt einige auf chemischen oder physikalischen Mechanismen beruhenden Verfahren.

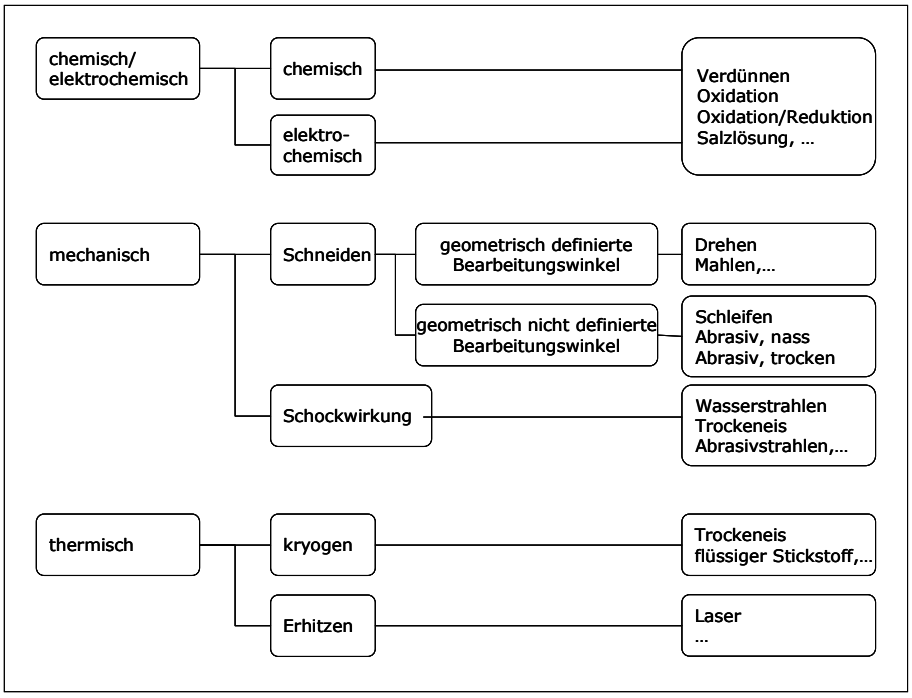


Abb. 8.36: chemisch und physikalisch wirkende Abtragstechniken [18]

Liegt beispielsweise bei metallischen und/oder keramischen Oberflächen der Großteil der Kontamination als Oxidschicht gebunden an der Oberfläche vor, erfolgt das Reinigen (wenn keine Diffusionsvorgänge radioaktiver Isotope in unterliegende Schichten auftreten) meist unter Einsatz von Lösungsmittel durch Abwischen oder Abspritzen, teils auch mit mechanischer Unterstützung (Ultraschallbad). Ist ein Eindringen der Kontamination, wie bei organischen, mineralischen, aber auch metallischen Werkstoffen in unterliegende Schichten möglich, so können Chemikalien nicht sinnvoll eingesetzt werden [15].

Die Effektivität der eingesetzten Dekontaminationstechnik wird mit dem Dekontaminationsfaktor (DF) überprüft. Dieser setzt sich aus der Differenz der Strahlenbelastung vor und nach der Dekontamination zusammen und gibt den prozentualen Anteil der entfernten Gesamtaktivität an (Gleichung 1 und 2) [19]. Die Freigabegrenzwerte sind gesetzlich festgelegt und variieren innerhalb der Staaten [20, 21].

$$DF = \frac{\text{Strahlenbelastung vor der Dekontamination}}{\text{Strahlenbelastung nach der Dekontamination}} \qquad \text{(Gleichung: 1)}$$

$$\textit{entfernte Aktivität in } \% = \left(1 - 1/DF\right) \cdot 100\ \% \qquad \text{(Gleichung: 2)}$$

Dekontamination von Beton

Der Abtrag der Oberflächenschichten von Beton erfolgt im Allgemeinen mit mechanischen Dekontaminationsverfahren wie beispielsweise. Fräsen, Klopfen, Abrasivstrahlen, Wasser- oder Wasserabrasivstrahlen. Nachteile dieser „trockenen" Verfahren sind, dass einerseits unterschiedliche Abtragstiefen erreicht werden und andererseits die abgetragene Schicht als Staub anfällt und damit einen höheren Aufwand in der Absaug- und Filtertechnik bedingt. Die Problematik der Staubentwicklung ist zwar durch den Einsatz von Wasserstrahlverfahren beherrschbar, jedoch entstehen dabei schwer handelbare Dispersionen. Wird hingegen mit Abrasivstoffen gearbeitet, ist mit einer zusätzlichen Abfallmenge an Sekundärmüll zu rechnen. Ein weiteres Manko mechanischer Verfahren ist deren hohe Rückdekontaminationsrate, d.h. schon gelöste Partikel können sich durch mechanische Kräfte erneut an die Werkstückoberfläche anlagern. Unter Einsatz von Mikrowellen- oder Trockeneis-Laserstrahl-Verfahren kann diese Rekontamination vermieden werden.

Tabelle 8.5.: Dekontaminationsverfahren für Beton [nach 17]

	Abtrag	
Verfahren	**oberflächennah**	**zerstörend**
Klopfen	x	
Sandstrahlen	x	
Nassabrasivstrahlen	x	
Fräsen	x	
Sprengen		x
Mikrowellen	x	
Bohren / Abplatzen		x
Bohren / Kalktreiben		x
Presslufthammer		x

Tabelle 8.5. zeigt die unterschiedliche Wirkung derzeit verwendeter Dekontaminationsverfahren auf Beton. Methoden wie das Klopfen („Scabbeln"), Sandstrahlen, Abrasivstrahlen, Fräsen oder der Einsatz von Mikrowellen führen zu einem Ablatieren der Oberflächen. Ein völliges Zerstören des Betons ist beim Sprengen, Bohren, oder dem Einsatz von Presslufthämmern zu beobachten. Neben den verwendeten Verfahren und dem abzutragenden Material übt die Dimension des abzutragenden Werkstoffes eine wesentliche

Rolle auf den Abtragsprozess aus. So wird beispielsweise das Klopfen hauptsächlich zum Entfernen oberflächennaher Verschmutzung an Wänden und Decken eingesetzt. Die dabei verwendeten Werkzeugköpfe bestehen aus Wolframcarbid und können elektrisch oder pneumatisch betrieben werden. Die erreichten Abtragsraten variieren je nach Betonzusammensetzung. Mit Fußboden-Scabblern (5-7 Kopf-Scabbler) konnten Flächenleistung von 4…6 m²/h erzielt werden. Im Vergleich dazu wurden mit einem handgeführten Wand-Scabbler (1-3 Kopf-Scabbler) lediglich Flächenleistungen von 0,25…0,5 m²/h bei einer Abtragstiefe von bis zu 3 mm erzielt. Beim Shaven, einem Alternativprozess zum „Scabbeln" (Klopfen), wird mit einem rotierenden Diamantschneidkopf gearbeitet und eine sehr feine Oberfläche erzeugt. Verwendung findet dieses Verfahren meist bei flachen, geringfügig unebenen Flächen. Die erzielten Flächenleistungen liegen im Bereich von 15…25 m²/h bei einer Abtragstiefe von 3 mm. Wandshaver können jedoch nicht in kleinen oder unregelmäßig geformten Räumen genutzt werden. An großen und ebenen Flächen bietet sich ebenso der Abtrag mit Fräsen zum Erreichen einer hohen Flächenleistung an. Strahltechniken (z.B. Abrasiv-, Wasser-, Trockeneis-Laser-Strahlen) hingegen eignen sich trotz ihrer Flexibilität meist nur für den Einsatz an kleinen, geometrisch komplexen Bauteilen [13, 15].

Zerstörende Dekontaminationsverfahren werden erst bei Kontaminationen von Schichten größer 10 mm Tiefe verwendet. Dabei besteht der größte Nachteil darin, dass ein hoher Anteil an Stäuben produziert wird und die verwendeten Absaugsysteme oft Zyklone (zur Abscheidung grober Partikel) oder selbstreinigende Vorfilter mit sich anschließenden Filtersystemen [17] enthalten müssen.

8.1.3 Laser in der Stilllegungstechnik

Der Einsatz des Lasers im Rückbau und bei der Stilllegung kerntechnischer Anlagen beschränkt sich derzeit auf das Trennen von Materialien [1] oder die Ablation radioaktiv kontaminierter Schichten. Die gegenwärtig eingesetzten Laserarten sind meist CO_2-Gaslaser oder Nd:YAG-Laser. Mit fortschreitender technischer Entwicklung werden auch die Diodenlaser für den Einsatz in der Stilllegungstechnik immer interessanter. In der nachfolgenden Tabelle 8.6. sind die unterschiedlichen Eigenschaften der Lasersysteme in Anlehnung an Kistmacher [1] zusammengestellt.

Tabelle 8.6.: Lasersysteme im Vergleich in Anlehnung an Kistmacher [1]

	CO2-Laser	**Nd:YAG-Laser**	**Diodenlaser**
höchste verfügbare mittlere Laserleistung	25 kW	6 kW	6 kW
Betriebsweise	cw, pw	cw, pw	pw
Wirkungsgrad (elektr./opt.)	10%	1…3 %	30…40 %
Strahlqualität	hoch	mittel	gering
Strahlführung	Spiegel,	Spiegel, Lichtleitfaser	Spiegel, Lichtleitfaser
Aufwand: Justage, Bauart	hoch, ortsfest	flexibel,	flexibel,
	große Baugröße	mittlere Baugröße	geringe Baugröße

Vorteile der Materialbearbeitung mit Laser sind dessen Flexibilität, Fernbedienbarkeit, der Verschleißfreiheit, dessen breitem Spektrum an Bearbeitungsaufgaben, die angemessene Kombination aus Wellenlänge, Pulsdauer, Leistung, Leistungsdichte, Pulswiederholungs- und Scanrate.

Die Vorzüge fasergekoppelter Laser gegenüber Gaslasern sind, dass der Laserresonator und die Versorgungsaggregate außerhalb des aktivierten Bereiches aufgestellt werden können und somit lediglich nur Teile des Bearbeitungskopfes in den kontaminierten Bereich gelangen.

8.1.4 bisherige Arbeiten zum Verglasen von Beton mit Laser

An dieser Stelle muss darauf hingewiesen werden, dass das Verglasen von Beton in vielen bisherigen Forschungsarbeiten eher eine untergeordnete Rolle spielt bzw. gespielt hat. „Entdeckt" wurde diese Verfahrensmöglichkeit beim „Ablationsprozess" von Beton, bei dem vereinzelte Schmelzrückstände am zuvor behandelten Material haften blieben.

Mit dem Verglasen von Beton für den architektonischen Einsatz beschäftigen sich japanische Forscher [22]. Einzig Wissenschaftler um Li und Lawrence [23-29] untersuchten das Verglasen von Beton in Verbindung mit dem sicheren Einbinden der darin vorhandenen Radioaktivität. Deutsche Forschungsarbeiten, in der Gruppe um Bach, befassen sich mit der Methode des Trockeneis-Laserstrahl-Entschichten von Beton [15, 30-33].

In Arbeiten von Lawrence und Li: *„A comparative study of the surface glaze characteristics of concrete treated with CO_2 and high power diode laser, part I and II"* [26, 27] wird ein Vergleich zum Verglasen von Beton mittels CO_2- und Diodenlaser hinsichtlich dem Verglasen und den daraus resultierenden Eigenschaften des Glases [27] angestellt. Zu beachten ist, dass die gewonnenen Ergebnisse unter Einsatz eines 1 kW CO_2-Lasers und eines 60 W

Diodenlaser miteinander verglichen worden. Auch scheinen die unterschiedlichen Laserparameter nicht auf einander abgestimmt zu sein. Beispielsweise ermittelte man bei der Verwendung des CO_2-Lasers bei gleicher Intensität von 2,25 kW/cm² eine wesentlich größere wärmebeeinflusste Zone als beim Einsatz des Diodenlasers. Die Wissenschaftler konnten beobachten, dass das sich ausbildende Glas auf der Betonoberfläche beim Bearbeiten mit dem Diodenlaser weniger porig und zu Rissen zu neigend scheint, als das mittels CO_2-Laser entstehende [26, 27]. In weiterführenden Arbeiten wird meist auf die durch den Prozess des Verglasens erhöhte Lebensdauer der Schichten, im Gegensatz zur unbehandelten Betonoberfläche, eingegangen. Als korrosive Medien wurden Reinigungsmittel, Natriumhydroxid und Salpetersäure in verschiedenen Konzentrationen verwendet. Es konnte beobachtet werden, dass sich die Lebensdauer der verglasten Oberfläche gegenüber unbehandeltem Beton je nach verwendeter Chemikalie um das 1,3 ... 14,8 fache [23, 28] erhöht.

Die bei der Laserbearbeitung entstehende Schicht ist eine äußerlich homogen verglaste, teils texturbehaftete, neuartige Oberfläche, die in direkter Abhängigkeit vom Ausgangsmaterial hinsichtlich ihrer Phasenänderung, Zusammensetzung und Absorptionscharakteristik steht. Die am häufigsten auftretenden Probleme beim Verglasen sind Spallation, übermäßiges „Cracken" und das Ausbilden von Poren.

Steen und Li [4, 25, 29] unterteilten die Einsatzmöglichkeiten des Lasers in der Stilllegungstechnik in den *Laserabtrag eingebetteter Kontamination* und das *Einbinden radioaktiver Kontamination*. Der Laserabtrag eingeschlossener Kontamination gliedert sich in das Laserverdampfen von kontaminiertem Beton, die „Rissbildung" durch laserinduzierten thermischen Stress bei kontaminiertem Beton und das Spalten von kontaminiertem Beton durch das Ausbilden einer wärmebeeinflussten Zone. Das Einbinden radioaktiver Kontamination wird von Steen und Li in das *Direkt-Verglasen* (von Beton), das *Einzelschicht-Fusions-Beschichten* (von Beton und Stahl), das *Mehrschicht-Fusions-Beschichten* (von Beton) und in die *Kombination von chemischen Abtrag mit dem Schmelzabtrag* unterteilt. [4, 25]

Laserabtrag eingeschlossener Kontamination

Durch das Erzeugen einer relativen wechselseitigen Bewegung zwischen der abzutragenden Oberfläche und der Laserquelle, wird bedingt durch das Dehydratisieren des hydraulisch gebundenen Werkstoffes ein Ablösen der oberflächennahen Schicht erreicht. Auslösende Faktoren für dieses Abblättern sind die erzeugte thermische Spannung und die damit verbundene Expansion der Feuchtigkeit.

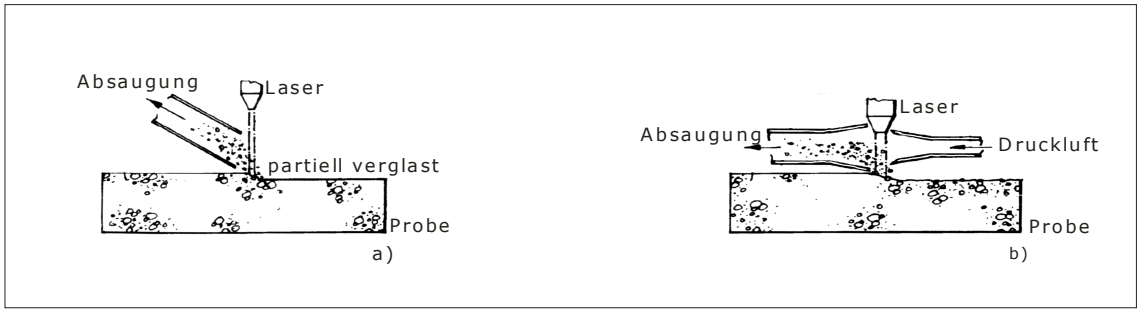


Abb. 8.37 a) und b): Laserverdampfen von kontaminiertem Beton [nach 4]

In Abbildung 8.37. a) ist das Verdampfen von Materialien geringer Wärmeleitfähigkeit dargestellt. Gute Abtragsergebnisse wurden damit beim Abtrag von Farb- und Epoxydharzschichten erzielt. Die Abtragsrate wird maßgeblich von der Laserleistung und der Absorption der Laserstrahlung im Material beeinflusst. Es ist sowohl gepulster als auch kontinuierlicher Betrieb des Lasers möglich. Die Methode beruht darauf, dass das beim Bestrahlen mit Laser verdampfende Material abgesaugt wird und eine teils verglaste Oberflächenschicht zurückbleibt. Eingesetzt wurde ein cw-betriebener CO_2-Laser mit Vorschubgeschwindigkeiten von 30...200 mm/s bei einer Intensität von 5 kW/cm² und einem Fokusdurchmesser von 3...6 mm. Das für den Verdampfungsprozess erforderliche Intensitätsminimum lag bei 2,5 kW/cm².

In Illustration 8.37 b) ist ein zweites Verfahren, auch als Laserscabbling bezeichnet, zum Ablatieren von Beton mittels Laserstrahlung dargestellt. Wichtigste Voraussetzung ist, das Erzeugen eines hohen thermischen Gradienten beim Aufheizprozess mit Laser und wird durch vorheriges Tränken des Betons mit Wasser erreicht. Die entstehenden thermischen Spannungen wirken zerstörend auf die Oberfläche und es kommt zum Auswurf von Materialfragmenten. Die für dieses Verfahren notwendigen Vorschubgeschwindigkeiten stehen in direkter Abhängigkeit zur chemischen Zusammensetzung und dem physikalischen Aufbau des Betons. Es konnten

Abtragsraten zwischen 500...800 cm³/kWh, bei Abtragstiefen von 1...4 mm, Vorschubgeschwindigkeiten von 30...300 mm/min und Leistungen von 100...800 W/cm² erreicht werden. Auch multipler Oberflächenabtrag ist möglich. Die entstehende Oberseite ist rau, frei von migrierenden Stoffen und weist keine Zeichen der Laserbearbeitung auf.

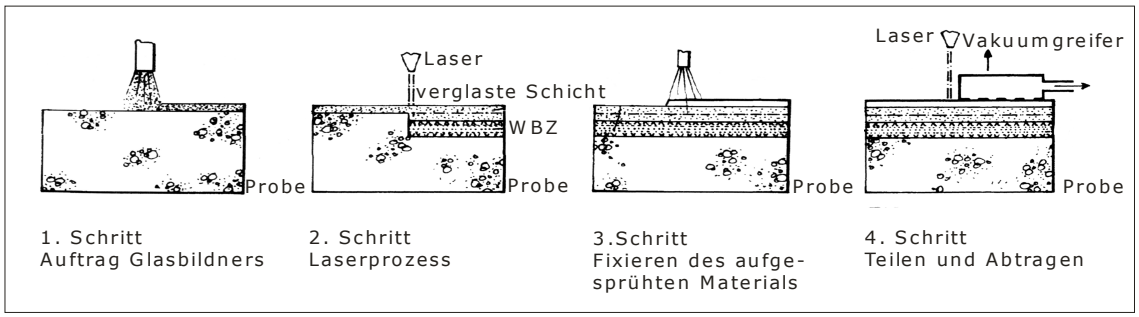


Abb. 8.38.: Spalten von Beton durch Ausbilden einer laserinduzierten wärmebeeinflussten Zone [nach 4]

Eine weitere Modifikation des Abtragsverfahrens ist in Abbildung 8.38. schematisch dargestellt. Die notwendigen Arbeitsschritte gliedern sich in das Aufbringen eines Glasbildners, dem anschließenden Verglasungsprozess, einem weiteren Schichtauftrag und dem Abtrag mit Vakuumgreifer.

Die Dicke des als Sprühbelag aufzutragenden Materials, einem Gemisch aus Schamotte, Puzzolanerde, Wasserglas und Zement, ist vorzugsweise kleiner 1 mm. Im zweiten Schritt wird der aufgetragene Belag durch die beim Laserprozess induzierte Wärme in Schmelze überführt und schließt dabei beim Abkühlen oberflächennahe Kontaminationsstoffe ein. Durch nachfolgende Rehydratationsvorgänge in der unterhalb der Oberfläche entstandenen wärmebeeinflussten Zone (WBZ) kann die Schicht nach 5 bis 6 Tagen mittels Vakuumgreifersystem abgetragen werden. Zum Steigern der mechanischen Festigkeit kann noch eine zweite Schicht auf die zuvor mit Laser bestrahlte Schicht aufgebracht werden. Die für diesen Prozess minimal notwendige Intensität liegt bei 150 W/cm² und wird nach oben hin durch signifikantes Verdampfen des Materials begrenzt. Der mit diesem Verfahren mögliche Tiefenabtrag liegt zwischen 3...5 mm, bei verwendeten Vorschubgeschwindigkeiten von 0,5...5 mm/s und Abtragsraten von 200...400 cm³/kWh.

Einbinden radioaktiver Kontamination

Illustration 8.39. a) zeigt das in der Arbeit von Spencer et. al. [4] vorgestellte **Direkt-Verglasen** von Beton. Mit dieser Methode kann eine Oberflächenschicht von Beton bis in eine Tiefe von 0,1...1 mm, mit einer Intensität von 50...100 W/cm² verglast werden. Die zusätzlich verwendeten geringen Vorschubgeschwindigkeiten von 0,4...1,5 mm/s fördern das Schmelzverhalten des Betons.

Abb. 8.39. a) und b): Direkt-Verglasen von Beton [nach 4]

Durch die Wärmeeinwirkung beim Bearbeiten mit Laser wird an der zementhaltigen Oberseite eine glasartige Schicht, mit teils ungeschmolzenen, in Fragmenten vorliegenden Komponenten (vorwiegend Kalkstein) ausbildet. Unterhalb der verglasten Schicht bildet sich eine wärmebeeinflusste Zone aus, die für die geringe Bindefestigkeit des Glases an der Matrix verantwortlich ist.

Eine Modifikation des Verfahrens ist durch den Auftrag einer zusätzlichen aus Schamotte, Puzzolan, Wasserglas und Zement bestehenden Schicht, ähnlich dem Metall-Cladding, einen Verbund von unterliegender Betonschicht mit der Deckschicht zu schaffen (siehe Abb. 8.39. b)) und somit die Bindung des Glases an die Matrix zu erhöhen. Die beim Laserprozess entstehende Glasschicht ist gleichmäßiger und weniger porig. Dennoch ist die wärmebeeinflusste Zone noch immer vorhanden und kann bei Rehydratation des CaO zum Versagen der Bindefestigkeit führen.

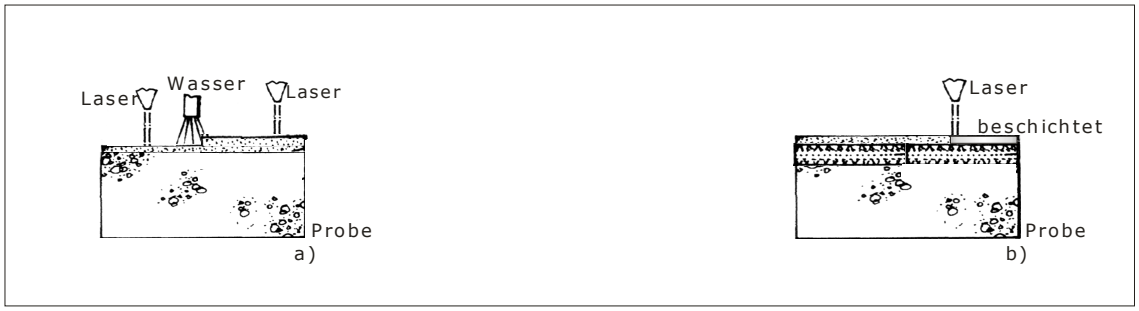


Abb. 8.40. a) und b): Mehrschicht-Fusions-Beschichten [nach 4]

Mit dem **Mehrschicht-Fusions-Beschichten** wie in Abbildung 8.40. a) dargestellt kann das Ausbleiben der Verbindungsschicht zwischen dem Substrat und der wärmebeeinflussten Zone durch den Auftrag zweier Schichten und dem damit verbundenen „Teilreparieren" der wärmebeeinflussten Schicht, verhindert werden. Der erste Teilschritt bei diesem Verfahren ist der Auftrag und das Verglasen einer 1 mm dicken Schicht, die für das Verbinden von Substrat und wärmebeeinflusster Zone zuständig ist. Anschließend erfolgt der Auftrag von Wasser, das einen Festigkeitsanstieg der „Glasur" hervorruft, und das Aufbringen einer puzzolanreichen Schicht, die die Porosität des Glases vermindern soll. Der große Vorteil des Verfahrens ist, dass die durch den Schmelzprozess an die Oberfläche transportierte Kontamination vollständig versiegelt wird. Einzigen Nachteil stellt der enorme Zeitaufwand für die multiple Prozessabfolge dar. Die dauerhafteste gebundene Schicht verspricht die Kombination des Chemisch/Fusions-Beschichten (Abb. 8.40. b)). Diese Methode kann sowohl bei hydraulischen Werkstoffen als auch feuerfesten Betonen Verwendung finden. Die ca. 5 mm dicke Grundschicht besteht aus einem Gemisch von Schamotte, Wasserglas und Sand, und wird chemisch an den unterliegenden Beton gebunden. In ihrer Tiefe füllt sie die wärmebeeinflusste Zone aus. Um nun die Eigenschaften der Oberfläche betreffs Porosität und dem sicheren Einschluss der radioaktiven Elemente zu optimieren, wird mit einem Gemisch (Schamotte, Puzzolan und Borosilicatglas) glasbildender Materialien gearbeitet. Wesentliche Vorteile sind zum einen, dass das erzeugte Glas laugenresistent ist und andererseits beim Bearbeiten mit Laserstrahlung keinerlei radioaktiven Elemente verdampft werden. Negativ jedoch wirkt sich die multiple Prozessabfolge auf dessen Einsetzbarkeit aus [4, 29].

Wechselwirkung der Laserstrahlung mit der Betonoberfläche

Aufgrund der geringen Absorptionslänge (l_a) der Laserstrahlung auf Betonoberflächen bei Raumtemperatur (für den CO_2-Laser mit l_a = 470 ± 22 µm und für den HLDL mit l_a = 177 ± 15 µm [34]) im Vergleich zum Laserstrahldurchmesser von einigen mm, bildet sich unter deren Einwirken eine Oberflächenwärmequelle (a) aus (Abb. 8.41), falls die Literaturwerte verlässlich sind.

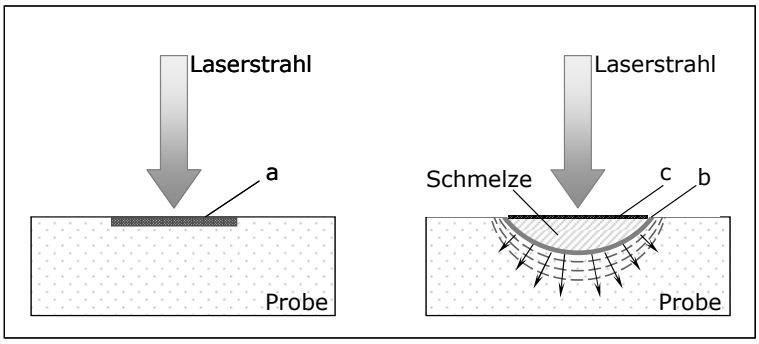


Abb. 8.41.: Wechselwirkung der Laserstrahlung mit dem Material

Mit dem Übergang in eine schmelzflüssige Phase ändern sich die Absorptionsbedingungen gravierend. So ist beim Einsatz von Dioden- und Nd:YAG-Laserstrahlung durch die Transparenz der entstehenden glasartigen Phasen ein Einkoppeln der Energie in tiefere Schichten zu erwarten (b). Das damit verbundene Ausbilden einer Volumenwärmequelle steigert die Effektivität des Schmelzprozesses. Für den CO_2-Laser ist die Schmelze weniger transparent (c). Die geringe Wärmeleitung des Materials führt zu einem oberflächennahen Energiestau. Der Wärmetransport in tiefer liegende Schichten wird jetzt nur noch durch die Schmelzbaddynamik (Konvektion) ermöglicht. Diese ist jedoch innerhalb geringer Schmelzbadtiefen weniger stark ausgebildet. Bei weiterem Energieeintrag in die oben aufliegende Schmelze beginnt das Material örtlich sehr schnell zu verdampfen.

Gleiches geschieht lokal begrenzt bei inhomogener Intensitätsverteilung der Laserstrahlung. So wird sich beispielsweise eine gaußförmige Verteilung durch zentral konzentriertes Verdampfen negativ auf ein gleichmäßiges Schmelzen der gesamten bestrahlten Betonoberfläche auswirken. Eine anzustrebende homogene Leistungsverteilung („Tophead-Profil") gewährleistet hingegen einen gleichmäßigeren Energieeintrag über die gesamte Bestrahlungsfläche. Das Risiko einer lokalen Verdampfung wird minimiert.

Schutzgase

Untersuchungen zum Einsatz von Schutzgas bei der Lasermaterialbearbeitung konzentrierten sich bisher nur auf das Laserschweißen und -schneiden von Stählen. Diese Studien zeitigten den großen Einfluss des Schutzgases auf den Prozess und dessen Endergebnis. Sauerstoff, Argon und Helium fanden den häufigsten Einsatz als Schutzgas. Lawrence beschreibt in seiner Arbeit "The effect of process gas type on the surface condition of high-power diode laser-treated ordinary Portland cement" [9] die Wirkung der Schutzgasart auf die zu verglasende Betonoberfläche. Neben dem Minimieren bzw. Eliminieren von Oberflächenporosität und kann durch den Einsatz von Schutzgas auch deren Neigung zum Bilden von Mikrorissen verringert werden. Er konnte beobachten, dass sich die Verwendung von Sauerstoff sehr günstig auf den Verglasungsprozess auswirkt. Es wurden deutlich weniger Mikrorisse und eine geringere Porosität als beim Einsatz von Argon oder Helium erfasst. Dank der geringen Molekülgröße und hohen Reaktivität mit der Netzwerkstruktur des Glases kann sowohl Sauerstoff als auch Wasserstoff gut eingebunden werden [34].

8.1.5 Glastechnologien für die Immobilisierung

Bezüglich der Immobilisierung von Schadstoffen sei zunächst darauf verwiesen, dass die Elemente Silicium und Sauerstoff etwa drei Viertel der Masse der Erdkruste ausmachen. Auf alle anderen Elemente entfallen nur ein Viertel der Erdmasse. Dabei betragen die Anteile der als problematisch eingeschätzten Schwermetalle deutlich weniger als einige tausendstel Prozent. Diese Schwermetalle sind somit auf der Erde seit Jahrmillionen vorhanden. …die … silicatischen Materialien, die Schwermetalloxide enthalten… haben die Jahrmillionen ohne spürbare Auslaugungen überstanden." (Zitat D. Hülsenberg [12], Glastechnologie für Recyclingaufgaben, Seite 8).

So wurde bereits vor 45 Jahren durch die Kernkraftindustrie erkannt, dass das Einbinden von Schwermetalloxiden in silicatische amorphe und kristalline Strukturen nachweislich die sicherste Methode darstellt, um den Schutz vor chemischen Angriffen zu gewährleisten. Das Manko bestand

jedoch darin, dass das radioaktive Material einerseits durch den fehlenden SiO_2-Gehalt keine Verglasung gestattet und andererseits die Schmelztemperatur so hoch liegt, dass die verwendeten Schmelzanlagen extrem schnell verschleißen würden.

Die entwickelte Alternative bestand darin Atommüll Einzuglasen statt zu Verglasen. Es wurde eine eigens dafür hergestellte Glasfritte verwendet, die durch ihren hohen Anteil an Netzwerkbildneroxiden die Schmelztemperatur des Gemisches (Glasfritte und Atommüll) deutlich herabsetzt. Somit versteht man unter Einglasen das Erzeugen einer gemeinsamen Schmelze des extra erzeugten Glases mit dem zu entsorgenden Material. Dieses Glas kann nun den geltenden Auslaugtests unterzogen werden. Mit dem Einglasen werden die strahlenden Stoffe immobilisiert und am Ort ihrer Deponie fixiert [12].

Das Einglasen des Atommülls wurde weltweit in verschiedenen Forschungsprogrammen untersucht und durchgeführt [35], [36], [37], [38].

Untersuchungen zum Einglasen radioaktiver Stoffe wurden unter anderem an der Technischen Universität Bergakademie Freiberg durchgeführt. Das Ziel bestand dabei darin eine weitgehende Einbindung radioaktiver Elemente zu ermöglichen und die Langzeitstabilität der erzeugten Gläser zu garantieren. Realisiert wurden diese Rahmenbedingungen durch Glaszusammensetzungen ähnlich dem Natriumborosilicatglas, das eine ausgezeichnete Beständigkeit gegenüber Wasser aufweist. Des Weiteren tragen ein kleines Oberflächen-Volumen-Verhältnis des glasigen Endproduktes, die Inertisierung der Oberfläche, sowie eine weitere Stabilisierung der Netzwerkstruktur durch geeignete Zusätze zur Erzielung der geforderten Langzeitstabilität (Eluattest) bei [39].

Untersuchungen von Greenpeace [40] ergaben, dass die für die Sicherheit beim Transport und bei der Zwischen- und Endlagerung wichtigsten physikalischen und chemischen Eigenschaften des Glases, sich in die mechanische Stabilität des Glaskörpers, die Bindung von Radionukliden, die Strahlenbeständigkeit und die Auslaugrate, sowie die Wärmeleitfähigkeit gliedern. So ist das Bruchverhalten und daraus folgend die mechanische Stabilität entscheidend für die mögliche Freisetzungsrate bei einem Unfall. Als Faustregel gilt, je feiner die Fragmente, desto größer ist die Freisetzung. Im Hinblick auf das Endlager soll eine gleichmäßige Verteilung der Radionuklide erhalten bleiben, ohne Diffusionsvorgänge, die entweder zum

Austreten von Radioaktivität oder zu Ansammlungen, mit daraus resultierender lokaler Temperaturerhöhung führen. Eine hohe Strahlenbeständigkeit wird gefordert, damit bedingt durch die hohe Strahlendosis keine Zersetzungsprozesse verursacht und somit die mechanische Festigkeit des Glaskörpers beeinträchtigt werden könnte.

Die Auslaugrate (Eluatbeständigkeit), d.h. wie schnell Radionuklide aus dem Endlager in das Grundwasser oder an die Erdoberfläche gelangen können, hängt im wesentlichen von der Zusammensetzung des Glases ab und ist für die Zwischenlagerfähigkeit und die mögliche Strahlenbelastung nach der Endlagerung von immenser Bedeutung. Demnach muss die Glaszusammensetzung den Rahmenbedingungen des Endlagers angepasst werden, damit eine ausreichend lange Stabilität und Rückhaltung der Radionuklide gewährleistet werden kann [40].

So liegen die Hauptunterschiede zwischen den Rohstoffen für die konventionelle Glasherstellung und denen für das Verglasen von Rest- bzw. Abfallstoffen in der extremen Schwankungsbreite der Zusammensetzung, dem meist geringen Anteil an Netzwerkbildnern (SiO_2, P_2O_5, B_2O_3, Al_2O_3 (je nach Koordinationszahl) und dem damit verbundenen höheren Anteil an Erdalkalioxiden. Die sich daraus ergebenden zu berücksichtigenden verfahrenstechnischen Aspekte ergeben sich aus dem Freisetzen von entgasenden Anteilen, dem Verdampfen von Chloriden und Sulfaten (Aufschäumen der Schmelze), dem fehlenden Wärmetransport durch Strahlung, den steilen Viskositäts/Temperatur-Kurven der Schmelzen sowie der hohen Kristallisationsneigung von Schmelzen mit hohen Erdalkaligehalten.

All diese Aspekte müssen bei der Entwicklung einer Schmelztechnologie von radioaktiven Komponenten berücksichtigt werden [12].

Untersuchungen zum Einfluss der Temperatur auf die Immobilisierung von schwach radioaktiven Elementen wurden von Born und Kliemczak, Freiberg [41] durchgeführt. Die Wissenschaftler konnten beobachten, dass bei einem schnellen Einschmelzen mit Cäsium dotierter Aschen in Borosilicatgläser dieses fest und nahezu vollständig in die Glasmatrix eingebunden werden kann. Eluattests nach DIN 38414 (Teil 4) ergaben, dass eine geringe Elution in saurer Phase möglich ist, aber eine Langzeitstabilität erwartet werden kann.

8.1.6 Verhalten von Beton bei Temperaturerhöhung

Im Zuge der Entwicklung von Spannbeton-Druckbehältern für Kernkraftwerke und beim Erforschen des Brandverhaltens von Stahlbetonbauteilen wurden die Materialeigenschaften des Betons bis zu einer Temperatur von 1000 °C mannigfaltig studiert.

Eine Vielzahl von Wissenschaftlern konnte beobachten, dass bei mäßiger Temperaturerhöhung eine ganze Reihe an Umwandlungen und Reaktionen der verschiedensten Art auftreten. Vornehmlich handelt sich dabei, neben den in den Zuschlägen auftretenden Kristallumwandlungen, um Abbaureaktionen, die für einen sukzessiven Abbau der Betonstruktur zuständig sind. Sie laufen vorzugsweise im Zementstein, entsprechend der vorliegenden Gesteinsart aber auch im Betonzuschlag ab. Bei niedrigen Temperaturen konnten meist Entwässerungs- und Dehydratationsreaktionen beobachtet werden. So tritt bei Temperaturerhöhung vor allem bei carbonatischen Zuschlägen bzw. Betonen die Entsäuerung des Kalksteins in den Vordergrund [42].

Abbildung 8.42. zeigt schematisch die wesentlichen, im Materialinneren des Betons ablaufenden Vorgänge beim Aufheizen und Schmelzen.

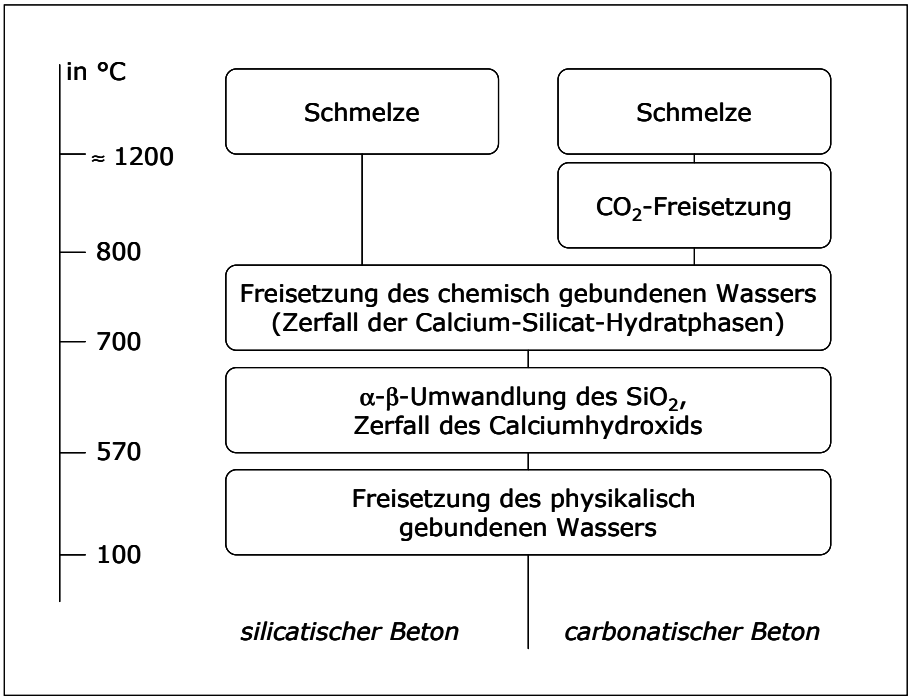


Abb. 8.42.: schematische Darstellung der Zersetzungsreaktionen beim Schmelzen von Beton [nach 43]

Die Umwandlungs- bzw. Zersetzungsreaktionen mit ihren dazu gehörigen Reaktions- bzw. Umwandlungswärmen sind in Tabelle 8.7. zusammengefasst dargestellt.

Tabelle 8.7.: Umwandlungs- und Zersetzungsreaktionen von quarzitischem und carbonatischem Beton [nach 6, 43, 44]

Temperaturbereich in °C	**Umwandlungs- oder Zersetzungsreaktion**	**Reaktions- bzw. Umwandlungswärme** in kJ/kg	**Reaktions- bzw. Umwandlungswärme** in MJ/m³ Beton	**umgesetzte Menge** in kg/m³ Beton
30…120	Verdunstung bzw. Verdampfung von physikalisch gebundenem Wasser	Verdampfungswärme von Wasser: 2258	290	130 kg Wasser
30…300	Gelabbau, 1. Dehydratationsstufe	Hydratationswärme:250	< 20	< 78 kg Zementstein
120…600	Abgabe von chemisorbiertem bzw. zeolitisch gebundenem Wasser	Verdampfungswärme von Wasser: > 2258	> 135	60 kg Wasser
450…550	Zersetzung von Portlandit Ca(OH)2 --> CaO + H2O	1000	< 40	< 40 kg CaO
570	Quarzumwandlung $\alpha \rightarrow \beta$	5,9	8,8 1,2	1500 kg Quarz 200 kg Quarz
600…700	Zersetzung der CSH-Phasen Bildung von β-C2S	Hydratationswärme: 500	< 120	< 240 kg Zementstein
600…900	nur Kalkstein, Entsäuerung von Kalkstein	Zersetzungswärme: 1637	2360	1600 kg Kalkstein CaCO3-Anteil ca. 90 %
1100…1200	Schmelzen von Beton, Bilden glasartiger Substanzen	Schmelzwärme: 500-1000	quarzitisch: 1575 calcitisch: 1125	2100 kg Beton 1500 kg Beton

Das thermische Beanspruchen zementgebundener Betone über 100 °C führt zum Entfestigen des Materials und damit zu einem nicht mehr vernachlässigbaren Verändern seiner mechanischen Eigenschaften. Diese Änderung beruht im Wesentlichen auf der Wirkung physikalischer bzw. chemischer Umwandlungen und Reaktionen. Zuerst verdampft das an der Oberfläche und in den größeren Poren befindliche Wasser. Zwischen von 100 … 300 °C schließt sich dann das Entwässern der Kapillarporen, verbunden mit stufenweisem Gelabbau (14 Å Tobermorite, C-S-H I und C-S-H II). Starke Reaktionen infolge der Zersetzung des Calciumhydroxides (Portlandit) $Ca(OH)_2$ in CaO und H_2O treten im Temperaturintervall von 450…550 °C auf. Eine weitere endotherme Reaktion tritt bei 785 °C auf. Bei dieser, mit einem starken Gewichtsverlust der Probe, verbundener Temperatur finden weitere Abbaureaktionen der hydratisierten CSH-Phasen, mit parallel einhergehender Neubildung von α-C_2S statt. Gleichzeitig sind der Abbau calcitischer Zuschlagbestandteile und das Zersetzen des im Zementstein vorhandenen Calciumcarbonates zu erwarten. Bei einigen Betonzuschlägen (beispielsweise Serpentinit) tritt die Abgabe von zeolitisch

gebundenem bzw. chemisorbiertem Wasser auf, wobei die zugehörigen Entwässerungsreaktionen je nach Bindungsstärke im Temperaturbereich von 120…600 °C von statten gehen [42 - 46]. Untersuchungen von Peehs et al. [43] mit der Differential-Scanning-Kalorimetrie (vgl. Abb. 8.43.) ergaben die eingangs beschriebenen Reaktionen des Betons bei Temperaturerhöhung.

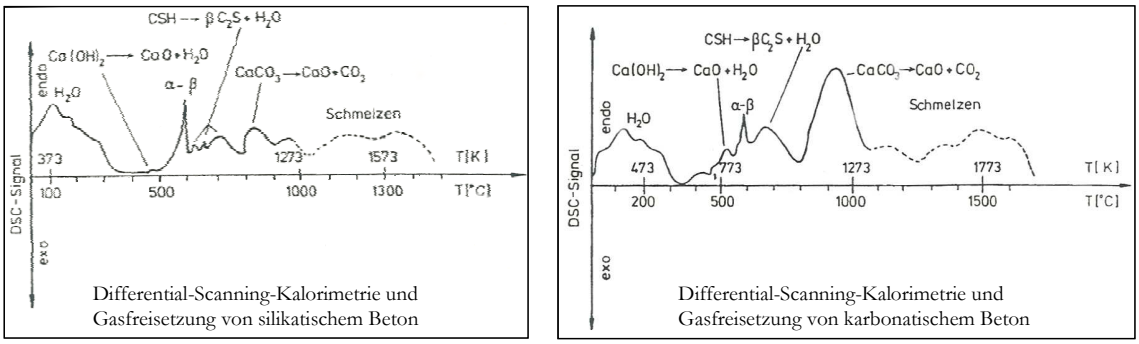


Abb. 8.43: Differential-Scanning-Kalorimetrie von silicatischen und carbonatischen Beton [nach 43]

Wie im Diagramm ersichtlich, wird im Temperaturbereich von Raumtemperatur bis 400 °C der Beton desorbiert, wobei hauptsächlich Poren-Gel-Wasser und physikalisch gebundenes Wasser abgegeben wird. Das Zersetzen des Calciumhydroxides erfolgt bei 387 °C und bei einer Temperatur von 587 °C schließt sich erwartungsgemäß die α-β-Quarzumwandlung an. Im Bereich von 227…627 °C folgen das Zersetzen des Portlandit ($Ca[OH]_2 \rightarrow CaO + H_2O$) und die Zersetzung der CSH-Phasen mit anschließender Bildung von β-C_2S. Das Schmelzintervall von silicatischem Beton liegt im Intervall von 627 und 1391 °C.

Bis zu einer Temperatur von 777 °C laufen an silicatischen und carbonatischen Betonen die gleichen endothermen Reaktionen ab. Erst oberhalb 777 °C erfolgt die Zersetzung des Calciumcarbonats. Die Liquidustemperatur liegt mit 1500 °C höher als beim silicatischen Beton. Vereinfacht zusammengefasst erfolgt zu Beginn die Freisetzung von physikalisch und chemisch gebundenem Wasser und daran anknüpfend das Zersetzen der Calcium-Silicat-Phasen des gelierten Zementgesteines. Sind wesentliche Anteile an Carbonatgestein im Beton vorhanden, schließt sich die Zersetzung des Kalks in Calciumoxid und Kohlendioxid an. Oberhalb einer Temperatur von 1200...1300 °C beginnen die Komponenten des Betons zu schmelzen. Ergussgesteine wie beispielsweise Basalt neigen während des Schmelzens zu Entgasungs- und Bläherscheinungen. Diese während der

Gesteinsbildung eingeschlossenen Gase werden dabei freigesetzt. In einem Intervall von 1300...1400 °C liegt der Beton dann als Schmelze vor.

Die Heterogenität des Werkstoffes Beton bedingt, dass dessen Gefügebestandteile mit sehr mannigfaltigen Solidus- und Liquidustemperaturen unmittelbar nebeneinander vorliegen. So können beim Aufheizen neben den Schmelzprozessen auch schmelzpunkterniedrigende Reaktionen mit Nachbarkomponenten ablaufen. Thermodynamisch betrachtet, befindet sich das System beim ersten Aufheizen im Ungleichgewicht und geht dann als Funktion von Temperatur und Zeit in einen Gleichgewichtszustand über.

Das **Schmelzen von Beton** beginnt im Allgemeinen durch das Ausbilden kleiner Schmelzinseln der dehydratisierten Zementsteinmatrix, die aufgrund der Zusammensetzung der Schmelze schon ein Abschmelzen in den Kontaktzonen der quarzitischen Zuschläge bewirken können. Der Schmelzpunkt hängt im Wesentlichen von den Gehalten an Al_2O_3 und Fe_2O_3 ab. Diese Verbindungen verursachen signifikante Schmelzpunkterniedrigungen. Liegt ein Eisenoxidgehalt > 7 M.-% vor, dann kann die Schmelztemperatur unter 1200 °C sinken. Bei Reaktionen des Kalks (CaO) mit SiO_2 und Al_2O_3 bei Al_2O_3-Gehalten zwischen 15…35 M.-% werden im Dreiphasensystem zwei eutektische Schmelzgebiete mit Schmelzpunkten von 1170 °C und 1265 °C durchlaufen. Zusätzlich können, die Elemente und Verbindungen der Klinkerminerale den Schmelzpunkt erniedrigen, so dass das erste Auftreten von Schmelzinseln bei Temperaturen um die 1000 °C zu erwarten ist.

Die reinen Zuschlagstoffe weisen stark voneinander abweichende Schmelztemperaturen auf. Die Schmelztemperatur des Basalts liegt an der unteren Grenze aller Gesteine (bei 1060 °C, im Vergleich dazu schmilzt Quarz bei 1700 °C). Mit dem Erhöhen der Temperatur erfährt der Quarz eine Reihe von Umwandlungen. Zuerst wandelt sich der Tieftemperaturquarz (α-Quarz) beim Überschreiten der Temperatur von 575 °C spontan in die β-Modifikation um und verändert sich zwischen 1100 und 1200 °C irreversibel unter völliger Strukturzerstörung in eine feinkristalline Masse der Modifikation α-Cristobalit. Zwischen 1300 °C und 1470 °C wandelt sich der Cristobalit dann in α-Tridymit um. Eine langsames Rückbilden in α-Cristobalit erfolgt bei 1470 °C. Ab 1700 °C liegt dann der Quarz als Schmelze vor.

Die für den Übergang von Beton in seinen schmelzflüssigen Zustand aufzubringende latente Wärme wird in einschlägiger Literatur [42] auch als **Schmelzwärme** bezeichnet.

Wie bereits erwähnt laufen gerade in diesem Temperaturbereich eine Vielzahl an Reaktionen ab, die selbst mit Umwandlungswärmen verbunden sind, wobei die Umwandlungswärmen unter Umständen weit höher als die eigentlichen Schmelztemperaturen sein können. Im Vergleich zur Herstellung von Geräteglas konnte von Schneider [42] ermittelt werden, dass die reine Schmelzwärme nur 56 % der Reaktionswärme des Gemenges ausmacht. Hildenbrand gibt für das Schmelzen von Beton einen Wert von 204 kJ/kg an, der dem von Quarz mit 237 kJ/kg recht nahe kommt. In Veröffentlichungen von Muir und Chu wird die „effective latent heat", die Summe aller Dehydratations- und sonstiger Umwandlungswärmen einschließlich Schmelz- und Lösungswärmen, mit 2560 – 3600 kJ/kg angegeben. Abzüglich der gesamten Dehydratationswärme beträgt dann die effektive Schmelzwärme 2000…3000 kJ/kg. Die effektive Schmelzwärme ist demnach die gesamte latente Wärme, die notwendig wird, um den dehydratisierten und (bei calcitischem Beton) decarbonatisierten Beton am Schmelzpunkt vom festen in den flüssigen Zustand zu überführen. Durch die Berechnung der Schmelzwärmen aus der Menge von abgeschmolzenem Material unter Verwendung eines Plasmabrenners sind die Angaben der effektiven Schmelzwärme allerdings sehr unsicher.

Erfahrungsgemäß hängen die **physikalischen Eigenschaften des Betons** hauptsächlich von den Herstellungs-, Verarbeitungs- und Hydratationsbedingungen bzw. der Nachbehandlungsart und den Umgebungsbedingungen (wie Temperatur, Feuchtigkeit, etc.) ab. Weitere Einflussfaktoren stellen neben den Zuschlägen, der Zement und das Wasser-Zement-Verhältnis dar.

So ändert sich die ***Dichte*** verschiedener Betone je nach Zuschlagsdichte und Feuchtigkeitsgehalt im Temperaturbereich von 20...150 °C je nach Lagerungsbedingung unterschiedlich stark. Klimatisiert gelagerter Beton ändert seine Dichte in diesem Temperaturintervall nur vergleichsweise wenig. Bei calcitischem Beton konnte beobachtet werden, dass im Temperaturbereich von 150...600 °C (bis zum Beginn der Kalksteinentsäuerung) sich die Dichte nur geringfügig ändert. Die zwischen 600 °C und 900 °C stattfindende Kalksteinentsäuerung führt zu einem hochporösen Beton (ρ = 1,4 g/cm³). Mit Beginn des Schmelzprozesses steigt dann die

Dichte wieder an. Bei silicatischen Betonen konnte beobachtet werden, dass im Temperaturintervall von Raumtemperatur bis 700 °C neben der Entwässerung vor allem die höhere thermische Dehnung der Quarzite für den starken Abfall der Dichte verantwortlich ist [42, 45].

Untersuchungen zur ***Wärmeleitfähigkeit*** von Beton ergaben im gesamten Temperaturbereich ein sehr breites Band. Hauptursache dafür ist der unterschiedliche Aufbau der Betone, wobei wichtige Einflussfaktoren der Zuschlag, der Zementstein, das Porenvolumen und die Porenverteilung sowie der Wassergehalt des Betons sind. Das Manko beim Ermitteln der Wärmeleitfähigkeit von Beton besteht darin, dass bedingt durch die physiko-chemischen Reaktionen im Beton meist gekoppelte Transportphänomene auftreten. Untersuchungen von Maréchal zeigten, dass quarzitischer Beton bei 100 °C eine Wärmeleitfähigkeit von λ = 2,3 W/mK aufweist und im erkalteten Zustand (nach dem Aufheizen auf 500 °C) nur noch ein λ = 1,4 W/mK zeigt [45].

Aus diesem Grund stellte Schneider [45] in seiner Arbeit *„Physikalische Eigenschaften von Beton von 20 °C bis zum Schmelzen, Teil 2"* folgende transportphänomenologische Überlegungen an: bei niedrigen Temperaturen und feuchtem Beton ergeben sich sehr hohe Wärmeleitfähigkeiten, da zum einen die Wärmeleitfähigkeit des Feststoffskeletts am größten und auch der Wärmeübergang zwischen den Porenwänden durch die Wasserfüllung relativ gut ist. Wird der Temperaturgradient infolge des kombinierten Wasser- und Wärmetransportes geringer, verbessert sich die „scheinbare" Wärmeleitfähigkeit zu höheren Temperaturen hin. Etwas unter 100 °C nimmt die Wärmeleitfähigkeit wieder ab, weil sich ein Teil der wassergefüllten Poren entleert und dadurch die Wärmeübergangsbedingungen zwischen den Porenwänden verschlechtert werden. Bis 300 °C oder 400 °C sinkt die Wärmeleitfähigkeit dann weiter ab, da einerseits die Wärmeleitfähigkeit des Feststoffskeletts abnimmt (die mittlere freie Weglänge der Phononen verringert sich) und zum anderen begrenzt das Austrocknen die Wärmeübergangsbedingungen, die im Porenraum noch schlechter werden. Durch Inkompatibilität von Zuschlag und Zementstein entstehen ab 300 °C verstärkt Risse. Der Wärmeübergang zwischen den Porenwänden gewinnt immer mehr an Bedeutung. Ab ungefähr 600 °C ist mit einem leichten Wiederanstieg der Wärmeleitfähigkeit zu rechnen. Der Wärmetransport zwischen den Porenwänden erfolgt überwiegend durch Strahlung ($\sim T^4$). Dieser Anstieg dürfte jedoch nur sehr gering sein und die Wärmeleit-

fähigkeit des Feststoffskeletts verringert sich weiter. Die mittlere freie Weglänge der Phononen beträgt in der Nähe des Schmelzpunktes nur einige 10 Atomlagen.

Im Vergleich zu Glas liegt die Wärmeleitfähigkeit von Beton bei niedrigen Temperaturen erwartungsgemäß oberhalb des Glases. Zu höheren Temperaturen hin wird jedoch im Glas zusätzliche Wärme durch Strahlung eingebracht, so dass die „effektive" Wärmeleitfähigkeit für Glas mit der Temperatur steigt. Im Temperaturintervall von 800 °C bis 1200 °C wird kaum ein Verändern der Wärmeleitfähigkeit erwartet (Anstieg um 0,1 W/mK).

Ferner wurden Forschungsarbeiten zum Bestimmen der ***Ablationswärme***, d.h. der Wärmemenge die pro Masseneinheit während eines stationären Erosionsprozesses dissipiert und zum Abtrag der Masseneinheit benötigt wird, durchgeführt. Es zeigte sich, dass die Ablationswärme für calcitischen Beton mit 3200 kJ/kg deutlich höher liegt als die für silicatischen Beton (2400 kJ/kg) [42].

Die ***Wärmedehnung*** von Beton wird als eine nichtlineare Funktion der Temperatur verstanden, wobei den Haupteinfluss die Zuschlagsart und insbesondere dessen Grobfraktion ausübt. So ist bekannt, dass sich die thermische Dehnung von Beton aus verschiedenen Anteilen zusammensetzt. Ein Teil ist das Resultat der thermischen, d.h. zwängungsfreien Dehnung des Betons, die sich aus den Dehnungen der Zuschläge und des Zementes ergibt. Die Feuchte des Materials hat nur bei Temperatur kleiner 200 °C Einfluss. Prinzipiell kann man davon ausgehen, dass feuchtgelagerte Proben eine deutlich höhere thermische Dehnung aufweisen als trocken gelagerte [45, 46].

In Illustration 8.44. ist das Dehnungsverhalten der einsetzbaren Zuschlagstoffe zusammengefasst.

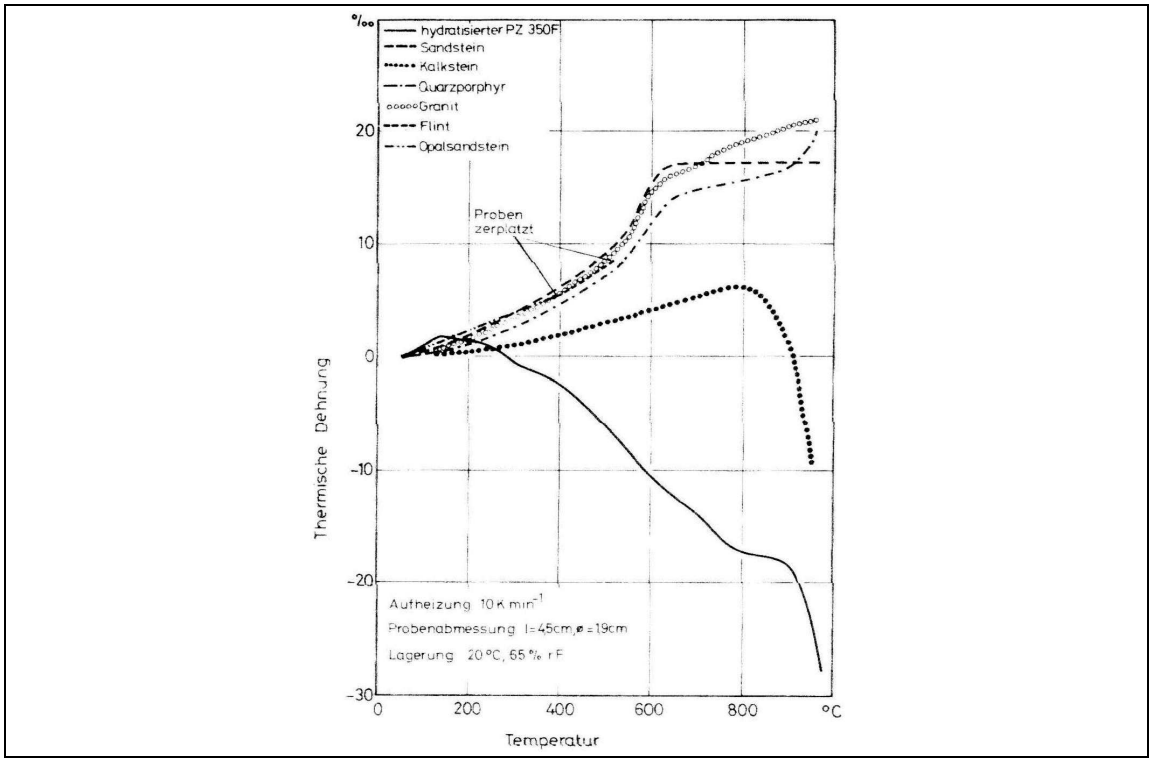


Abb. 8.44.: Thermische Dehnung verschiedener Zuschläge im Vergleich zu hydratisiertem Portlandzement [nach 46]

Während die Zuschläge, außer der Kalkstein, eine monotone Ausdehnung im gesamten Temperaturbereich zeigen, beginnt der Zementstein nach anfänglich geringfügiger Dehnung ab 300 °C deutlich zu schrumpfen. Die Diskrepanz zwischen dem Dehnen der Zementsteinphase und der Schrumpfverformung des Zementsteines wird mit steigender Temperatur immer größer. In den quarzhaltigen Zuschlägen nimmt im Temperaturintervall von 550...650 °C infolge der α-β-Umwandlung die thermische Dilatation nochmals zu. Oberhalb von 650 °C verlaufen die Kurven dann relativ flach. Beim Sandstein ist sogar bis zu einer Temperatur von 950 °C eine konstante Ausdehnung zu beobachten. Kalkstein weist, infolge der mit der Decarbonatisierung verbundenen starken Volumenabnahme die geringste Dehnung aller Zuschlagsmaterialien auf [44 - 46].

8.2 Ergebnisse der Patentrecherche

Anhand der erfolgten, umfangreichen Patentrecherche konnte das Wissen zu bisher patentierten Dekontaminationsverfahren erweitert werden.

Es wurden zahlreiche Verfahren zur Dekontamination von Stählen und Metallen sowie zum Abtrag von Schichten gefunden. Eine Vielzahl der verwendeten Methoden basiert auf der Ablation oberflächennaher Schichten oder dem chemischen bzw. mechanischen Abtrag.

Verfahren zur Dekontamination von Beton oder anderen nicht-metallischen Oberflächen mit Laser und deren gleichzeitiger Abtrag wurden nicht gefunden.

Im Patent „Method of treating a surface" [29] werden von Li Verfahren zur Oberflächenbearbeitung von Beton und anderen radioaktiv kontaminierten hydraulisch gebundenen Werkstoffen mit Laserstrahlung vorgestellt.

Es werden drei Varianten zum Abtrag von Betonoberflächen vorgestellt. Zum einen die **Ablation der Oberfläche durch Verdampfen**. Die hierbei entstehenden Dämpfe werden sofort abgesaugt, um eine Rekontamination der Umgebung zu vermeiden. Die hierfür notwendige minimale Leistungsdichte beträgt 5000 W/cm². Mit dieser Methode konnten Abtragsraten von 100…300 cm³/h bei Abtragstiefen von einigen Millimetern erreicht werden. Beim Bearbeiten der Flächen wurde bekannt, dass durch das Verglasen der oberflächennahen Schicht die radioaktiven Partikel eingeschlossen werden können. Die Verdampfungsrate hat einen erheblichen Einfluss auf die entstehende Schmelze.

Ein weiterer Aspekt ist die **Ablation größerer Bruchstücke durch die Ausbildung eines ausreichenden Dampfdruckes unterhalb der Werkstückoberfläche**. Bei dieser Methode sind die Vorschub-geschwindigkeiten und der Feuchtegehalt des Betons von immenser Bedeutung. Es konnten Abtragsraten an Beton von 500…800 cm³/h bei Abtragstiefen von 1…4 mm ermittelt werden. Ein Erhöhen der Abtragsraten wird durch das Wassertränken des Betons möglich. Die entstehende Oberfläche ist rau, frei von Verunreinigungen und ohne Zeichen von Wärmeeinwirkung durch den Laserstrahl. Manko dieses Verfahrens ist, dass die Abtragstiefe nur durch mehrere Bearbeitungsschritte zu erreichen ist.

Ein dritter Punkt ist das **Erzeugen einer wärmebeeinflussten und damit thermisch zerstörten Schicht mit anschließendem mechanischem Abtrag.** Bei dieser Verfahrensweise wird die Oberfläche in einen glasartigen Zustand überführt. Die hydraulischen Bindungen des Betons werden in der wärmebeeinflussten Zone aufgebrochen und führen somit zum „Abscheren" des glasartigen Materials von der Oberfläche. Das Aufbringen einer zusätzlichen Schicht auf das verglaste Material soll den vollkommenen Einschluss der Radioaktivität sichern und die mechanische Festigkeit des Glases erhöhen. Es konnten Abtragstiefen von 3…5 mm erzielt werden.

Die patentierten Verfahren eigen sich nicht nur für Beton, sondern auch für andere hydraulisch gebundene Materialien wie beispielsweise Mörtel, Gips oder Sandstein und für nicht-hydraulisch gebundene Materialien wie Ziegel, Lehmziegel oder Keramiken.

Unter Verwendung des Lasers ist es möglich, radioaktive Kontaminationen oder auch Oberflächenkontaminationen bestehend aus Schadstoffen und/oder Schwermetallionen zu entfernen.

9 erfolgte oder geplante Veröffentlichungen der Ergebnisse der

Zu den Ergebnissen des Projektes sind bereits Veröffentlichungen in Fachzeitschriften und auf einer Tagung erfolgt:

1. Exner, H.; Treptau, S.; Geißler, S.: Laserstrahltiefenabtrag von Betonoberflächen mittels Hochleistungsdiodenlaser. Ein Beitrag zum Kooperationsprojekt *„Dekontamination silicatischer Oberflächen mittels Laserablation bei gleichzeitiger Abproduktkonditionierung*", Tagungsband KONTEC 2005, 20.-22.04. 2005, Berlin, S. 608-
2. Treptau, S.; Geißler, S.; Exner, H.: Laserstrahltiefenabtrag von Betonoberflächen. Lasermagazin Nr. 3, 2005, S. 35
3. Treptau, S.; Geißler, S.; Exner, H.: Removal of concrete surfaces. Lasermagazin No. 3, 2005, S. 37

Kopien der Veröffentlichungen sind in **Anlage 1-3** zusammengestellt.

10 Literaturverzeichnis

[1] Kistmacher, H. et al.: Einsatzmöglichkeiten des Lasers in der Stilllegungstechnik. Konferenz-Einzelbericht, V. Stilllegungskolloquium Hannover, 4. Statusbericht Stilllegung und Rückbau kerntechnischer Anlagen, 24.-25.06.1997, Hannover, S. 239-249

[2] Redeker, C.F.; Bach, Fr.-W., Versemann, R.: Enlargement of the operativ range of the dry ice blasting process. International conference on cutting technologie 2002, Konferenz-Einzelbericht, pp. 177-184

[3] Haberland, J.: Reinigen und Entschichten mit Trockeneisstrahlen. VDI-Fortschritt-Bericht, Reihe 2, Heft 502, 1999

[4] Spencer, J.T. et al. : Potential applications of lasers for decontamination and decommissioning of nuclear plant. Conference on materials and nuclear power. Euromat ´96, 21.-23.10.1996, Bournemouth/United Kingdom, pp. 235-242, ISBN 1-86125-020-7

[5] Li, L. et al.: Laser fixing and sealing of radioactive contamination on concrete surfaces. Proceedings of LAMP ´92, 06.1992, Nagaoka, pp. 843-848

[6] Herold, G.: Bericht - Dekontamination silicatischer Oberflächen in kerntechnischen Anlagen mittels Laser-Ablation bei gleichzeitiger Abproduktkonditionierung. Bericht-Nr. 02 25 60 1136, Institut für Massivbau und Baustofftechnologie, Universität Karlsruhe, 28.03.2003

[7] Fischer, C.: Untersuchungen des Aufschmelzverhaltens silicatischer Betonproben und dessen gezielte Beeinflussung durch oxidische Additive. Großer Beleg Nr. 712, Technische Universität Dresden, Fakultät Maschinenwesen, Institut für Energietechnik, April 2003

[8] Anmelder Laserinstitut Mittelsachsen e.V.: Verfahren und Einrichtung zum Abtragen von verunreinigtem Festbeton. Priorität 24.02.2005, Aktenzeichen 10 2005 008 839.2

[9] Lawrence, J.; Li, L.: The effects of process gas type on the surface condition of high-power diode laser-treated ordinary portland cement. Optics and Lasers in Engineering, Band 36, 2001, S.599-605

[10] Spauszus, S.: Werkstoffkunde Glas. VEB Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, 1. Auflage, Leipzig, 1974, Bestellnummer: 541 077 5

[11] Jebsen-Marwedel, H.; Brückner, R.: Glastechnische Fabrikationsfehler. Springer-Verlag, 3. Auflage, Berlin/Heidelberg, 1980

[12] Hülsenberg, D.: Glastechnologien für Recyclingaufgaben. Abhandlungen der sächsischen Akademie der Wissenschaften zu Leipzig. Technikwissenschaftliche Klasse, Band 1, Heft 1, Verlag der sächsischen Akademie der Wissenschaften zu Leipzig, in Kommission bei S. Hirzel, Stuttgart/Leipzig, 1998

[13] Bach, Fr.-W. et al.: Stand der Technik beim Rückbau kerntechnischer Anlagen. 8. Werkstoffwissenschaftliches Kolloquium, innovative Werkstofftechnologie, Werkstoffwissenschaftliche Schriftenreihe, Band 45, Aachen, Mainz: Lugscheider

[14] Actual Dismantling of JPDR: Decontamination and disposing of radioacitve wastes. http://inisjp.tokai.jaeri.go.jp/ACT95E/13/1301.htm, Zugriff am 20.01.2004, 13:45 Uhr

[15] Bach, Fr.-W. et al.: Abtrag- und Zerlegetechniken für den Rückbau kerntechnischer Anlagen. atw 46. Jahrgang, Heft 2 (Februar), 2001

[16] Fleischer, K. et al.: Stilllegung und Rückbau: Eindringverhalten radioaktiver Kontamination in ungeschützte Betonstrukturen. Schlussbericht zum Fördervorhaben BMBF 02S7605A, VKTA Verein für Kernverfahrenstechnik und Analytik e.V. Rossendorf, April 1999

[17] NEA Task Group on Decontamination: Decontamination Techniques used in Decommissioning Activities. http://www.nea.fr/html/rwm/reports/1999/decontec.pdf. Zugriff am 25.02.2003, 8:23 Uhr

[18] Redeker, C.; Bach, Fr.-W.: Removal of coatings and surfaces on metallic, mineral and ceramic materials. Proceedings Kontec 2001, 5th International Symposium "Conditioning of radioactive operational & decommissioning wastes", 28.-30.03.2001, Plenary session

[19] Chapter 17, Decontamination. http://www.asme.org/pro_dev/D&D/CH17.pdf, Zugriff am 16.04.2003; 10:37 Uhr

[20] Neumann, W.: Freigabe schwach radioaktiver Reststoffe. Gruppe Ökologie, Mai 2000

[21] Atomgesetz-AtG (Gesetz über die friedliche Verwendung der Kernenergie und Schutz gegen ihre Gefahren) letzte Änderung vom 22.04.2002

[22] Wignarajah, S. et al.: Effect of laser surface treatment on the physical characteristics and mechnical behaviour of cement base materials. Proceedings of Icaleo´92, Orlando/Florida, Laserinstitut America 1992, S. 383-393

[23] Lawrence, J.; Li, L.: The wear characteristics of high power diode laser glaze on the ordinary portland cement surface of concrete. Wear - an international journal on the science and technology: lubrication and wear. Band 246, 2000, S. 91-97

[24] Lawrence, J.; Li, L.: Surface glazing of concrete using a 2.5 kW high power diode laer. Proceedings of Icaleo ´99, Section B-Icaleo 1999, S. 108-117

[25] Li, L.; Modern, P.; Steen, W.M.: Laser fixing and sealing of radioactive contamination on concrete surfaces. Proceedings of LAMP´92, Nagaoka, Juni 1992, S. 843-848

[26] Lawrence, J.; Li, L.: A comparativ study of the surface glaze characteristics of concrete treated with CO2 and high power diode lasers, Part I: glaze characteristics. Materials scienes and engineering A 284, Elsevier, 2000, S. 93-102

[27] Lawrence, J.; Li, L.: A comparativ study of the surface glaze characteristics of concrete treated with CO2 and high power diode lasers, Part II: mechanical, chemical and physical properties. Materials scienes and engineering A 287, Elsevier, 2000, S. 25-29

[28] Lawrence, J.; Li, L.: High power diode laser surface glazing of concrete. Journal of laser applications, Volume 12, Number 3, June 2000, S. 116-124

[29] Li, L. et al.: Methode of treating a surface. US-Patent-Nr. 5.538.764, 23.07.1996

[30] RSG Technologies.: Dry Ice Blasting - a better cleaning. www.rsg-technologies.com, Zugriff am 25.02.2003

[31] Redeker, C.F.; Bach, Fr.-W.; Versemann, R.: Enlargement of the operative range of the dry ice blasting process. International conference on cutting technologies 2002, Tagungsband, S. 177-184

[32] Universität Dortmund: Weiterentwicklung eines Verfahrens zur Entfernung radioaktiv kontaminierter Beschichtungen von Beton- und Stahlstrukturen bei der Stilllegung von Nuklearanlagen mittels Kälteschockbehandlung. Förderkennzeichen 02 S 7216, April 1989

[33] Redeker, C.F.: Abtragen mit dem Trockeneisstrahl. VDI Fortschritt-Bericht Reihe 2, Fertigungstechnik, Nr. 639, Düsseldorf 2003, ISBN 3-18-363902-5

[34] Lawrence, J.; Johnston, E.P.; Li, L.: Determination of absorption length of CO_2 and high-power diode laser radiation for ordinary Portland cement. Journal of applied physics, Vol. 33, 2000, S.945-947

[35] International Atomic Energy Agency, IAEA.: Design and operation of high level waste vitrification and storage facilities. Technical reports series No. 339, Vienna, 1992, ISBN 92-0-103192-0

[36] Scales, C.: Vitrification of nuclear waste. Glass, 09/1998, S. 307-309

[37] Penberthy, L.: Why glass is a good host for hazardous waste. Glass industry, Mai 1992, pp. 22-24

[38] Donald, I.W.; Metcalfe, B.L.; Taylor, N.J.: The immobilization of high level radioactive wastes using ceramics and glasses. Journal of materials scienes 32, 1997, pp. 5851-5887

[39] Dusdorf, W. et al.: Verglasung von schwach radioaktivem Abfall. 73. Glastechnische Tagung, Halle/Saale, 31.05.-02.06.1999, Kurzreferate, S. 80-84

[40] Neumann, W.: Qualität: undurchsichtig, Fehlende Produktkontrollen bei hochradioaktiven Glaskokillen. Greenpeace e.V., Hamburg, 03/2001

[41] Born, M.; Kliemczak, U.: Einfluss der Temperatur auf die Immobilisierung von schwach radioaktiven Elementen bei der Abfallverbrennung. EP 3/2000, S. 21-25

[42] Schneider, U.; Diederichs, U.: Physikalische Eigenschaften von Beton von 20°C bis zum Schmelzen, Teil 1. Betonwerk+Fertigteil-Technik, Heft 3/81, S. 141-149

[43] Peehs, M. et. al.: Die integrale Schmelzenthalpie von Reaktorbeton als thermophysikalische Eingangsgröße von Unfallfolgemodellen des hypothetischen Kernschmelzunfalls. Journal of nuclear materials, No. 118, North-Holland publishing company, 1983, pp. 206-213

[44] Kordina, K.; Schneider, U.: Über das Verhalten von Beton bei hohen Temperaturen. Betonwerk+Fertigteil-Technik, Heft 12/1975, S. 575-582

[45] Schneider, U.; Diederichs, U.: Physikalische Eigenschaften von Beton von 20°C bis zum Schmelzen, Teil 2. Betonwerk+Fertigteil-Technik, Heft 4/81, S. 223-230

[46] Kordina, K.; Meyer-Ottens, C.: Beton Brandschutz Handbuch. Kapitel 6: Hochtemperaturverhalten von Beton, Beton-Verlag GmbH, Düsseldorf 1981

11 Abbildungsverzeichnis

Abbildung	6.1	Intensitätsverteilung des CO2-Laserstrahls im Fokus
Abbildung	6.2	Intensitätsverteilung des Dioden-Laserstrahl im Fokus (rechts) und defokussiert (links)
Abbildung	6.3	Intensitätsverteilung des Nd:YAG-Laserstrahl im Fokus (rechts) und defokussiert (links)
Abbildung	6.4	schematische Darstellung der Temperaturmessung mittels Thermokamera und Pyrometer
Abbildung	6.5	Betonoberfläche nach Laserbestrahlung
Abbildung	6.6	Detailaufnahme
Abbildung	6.7	Untersuchungen zum Schmelzverhalten an Normalbeton (links) und Bestimmung der Einschmelztiefe (rechts)
Abbildung	6.8	Vergleich der Schmelztiefen für Dioden- und CO_2-Laser bei 200 mm/min Vorschubgeschwindigkeit und 38/90 mm Defokussierung
Abbildung	6.9	Vergleich der Schmelzraten für Dioden- und CO_2-Laser bei 200 mm/min Vorschubgeschwindigkeit und 38/90 mm Defokussierung
Abbildung	6.10	Versuchsaufbau
Abbildung	6.11	Aufnahmen mit Thermokamera beim Ausblasen (links) und Schmelzen (rechts)
Abbildung	6.12	Vergleich der Abtragstiefen für Dioden-, Nd:YAG- und CO_2-Laser bei 1 kW Laserleistung und einer Defokussierung von 21 mm, 26 mm und 50 mm
Abbildung	6.13	Vergleich der Abtragsraten für Dioden-, Nd:YAG- und CO_2-Laser bei 1 kW Laserleistung und einer Defokussierung von 21 mm, 26 mm und 50 mm
Abbildung	6.14	Vergleich der Schmelz- und Abtragstiefen für Dioden- und CO_2-Laser bei 200 mm/min Vorschubgeschwindigkeit und 38/90 mm Defokussierung
Abbildung	6.15	Vergleich der Schmelz- und Abtragsraten für Dioden- und CO_2-Laser bei 200 mm/min Vorschubgeschwindigkeit und 38/90 mm Defokussierung
Abbildung	6.16	Vergleich der Abtragstiefen an Beton mit gemischten Zuschlägen bei einer Laserleistung von 1 kW

Abbildung	6.17	Vergleich der Abtragstiefen an Beton mit quarzitischen Zuschlägen bei einer Laserleistung von 1 kW
Abbildung	6.18	Abtragstiefen von Beton mit quarzitischen und gemischten Zuschlägen; a - kontinuierliches Ausblasen, b…f - gepulstes Ausblasen (vgl. Tabelle 6.3)
Abbildung	6.19	Granulate durch Auslaufen der Schmelze
Abbildung	6.20	verglaste Abprodukte von quarzitischem Beton (links) und gemischten Beton (rechts)
Abbildung	6.21	Abprodukte von calcitischem Beton
Abbildung	6.22	Berechnung der Glasfixpunkte von quarzitischem Beton (links) und gemischten Beton (rechts)
Abbildung	6.23	mit GlassCal berechnete Viskositätsverläufe von quarzitischem und gemischtem Beton
Abbildung	6.24	röntgendiffraktometrische Analysen der Abprodukte
Abbildung	6.25	Einordnung der Abprodukte in das Dreistoffsystem CaO-MgO-SiO_2
Abbildung	6.26	Korngrößenverteilung von Abprodukten des quarzitischem Betons bei unterschiedlichen Vorschubgeschwindigkeiten
Abbildung	6.27	Korngrößenverteilung von Abprodukten des gemischten Betons bei unterschiedlichen Vorschubgeschwindigkeiten
Abbildung	6.28	Korngrößenverteilung von Abprodukten des quarzitischen Betons bei unterschiedlichen Taktungen des Blasgases
Abbildung	6.29	Korngrößenverteilung von Abprodukten des gemischten Betons bei unterschiedlichen Taktungen des Blasgases
Abbildung	6.30	Faserartige Abprodukte (links) und REM-Aufnahme von Faser und Feinstaub (rechts)
Abbildung	6.31	Fasern im Gesamtüberblick (links) und Teilaufnahme (rechts)
Abbildung	6.32	Filterstaub (links) und REM-Aufnahme (rechts)
Abbildung	6.33	taktiles System
Abbildung	6.34	Vermessen von Flächen mit Lasertriangulation
Abbildung	6.35	bearbeitete Fläche (links), Abtragsprofil (rechts)

Abbildung 8.36 chemisch und physikalisch wirkende Abtragstechniken [18]

Abbildung 8.37 Laserverdampfen von kontaminiertem Beton [nach 4]

Abbildung 8.38 Spalten von Beton durch Ausbilden einer laserinduzierten wärmebeeinflussten Zone [nach 4]

Abbildung 8.39 Direkt-Verglasen von Beton [nach 4]

Abbildung 8.40 Mehrschicht-Fusions-Beschichten [nach 4]

Abbildung 8.41 Wechselwirkung der Laserstrahlung mit dem Material

Abbildung 8.42 schematische Darstellung der Zersetzungsreaktionen beim Schmelzen von Beton [nach 43]

Abbildung 8.43 Differential-Scanning-Kalorimetrie von silicatischen und carbonatischen Beton [nach 43]

Abbildung 8.44 Thermische Dehnung verschiedener Zuschläge im Vergleich zu hydratisiertem Portlandzement [nach 46]

12 Tabellenverzeichnis

Tabelle	6.1	Datenblatt des CO_2-Lasers
Tabelle	6.2	Datenblatt von Dioden- und Nd:YAG-Laser
Tabelle	6.3	Variation der Blas-/Pausenzeiten bei gepulstem Ausblasen
Tabelle	6.4	chemische Zusammensetzung der Abprodukte der verschiedenen Betone
Tabelle	8.5	Dekontaminationsverfahren für Beton [nach 17]
Tabelle	8.6	Lasersystem im Vergleich in Anlehnung an Kistmacher [1]
Tabelle	8.7	Umwandlungs- und Zersetzungsreaktionen von quarzitischem und carbonatischen Beton [nach 6, 43, 44]

Anlagen

© Laserinstitut Mittelsachsen e.V.

Veröffentlichung Tagungsband KONTEC 2005, 20.-22.04. 2005, Berlin, S. 608 ff

Laserstrahltiefenabtrag von Betonflächen mittels Hochleistungsdioden-laser

Ein Beitrag zum Kooperationsprojekt: „Dekontamination silicatischer Oberflächen mittels ***Laserablation*** bei gleichzeitiger Abproduktkonditionierung“

Prof. Dr.-Ing. Exner, Horst; Dipl.-Ing. Treptau, Sandra; Dipl.-Ing. (FH) Geißler, Steffen
Laserinstitut Mittelsachsen e.V., Mittweida/D

Abstract. Durch den in den kommenden Jahren geplanten sukzessiven Rückbau kerntechnischer Anlagen werden radioaktive Abfälle in beträchtlichen Mengen anfallen. Dabei muss dem Baustoff Beton aus zwei Gesichtspunkten heraus besondere Aufmerksamkeit gewidmet werden: Erstens wird er als Hauptbaustoff verwendet, kommt damit in erheblichen Mengen vor und zweitens kann es besonders in diesem porigen Werkstoff zu einer oberflächennahen Anreicherung der Radionuklide kommen. Die derzeit bestehenden, meist mechanischen Methoden zum Abtrag dieser Schichten, weisen zum Teil erhebliche Probleme durch Rekontamination der Umgebung infolge enormer Staubentwicklung, den Verschleiß der Bearbeitungswerkzeuge und die Erzeugung eines hohen Anteils an Sekundärabfall auf.
In diesem Beitrag werden Forschungsarbeiten des Laserinstitutes Mittelsachsen e.V. vorgestellt, das innerhalb des o. g. Kooperationsprojektes die dominante Aufgabe der Entwicklung von Lasertechnologien als Abtragsverfahren von kontaminierten Betonoberflächen, bei gleichzeitigem Einschluss radioaktiver Isotope in eine verglaste Matrix zu erfüllen hat. Die Glasmatrix fungiert als Träger der kontaminierten Produkte, wird durch Aufschmelzen des Betons gebildet und von dessen Oberfläche noch innerhalb ihrer schmelzflüssigen Phase abgetragen. Sie liegt danach in Granulatform vor. Die Abprodukte können infolgedessen ohne besonderen Aufwand in der Nachkonditionierung kostengünstig ihrem Endlager zugeführt werden. Gleichzeitig kann das Volumen der zu deponierenden Abprodukte minimiert und der Anteil freizumessender Abfälle erhöht werden.
Die systematischen Untersuchungen zur effektiven Erzeugung einer laserinduzierten Schmelze genügender Tiefe erfolgte zunächst an Betonen mit geringer Korngröße unter wahlweiser Verwendung eines CO_2-, Dioden- und Nd:YAG-Lasers mit geeigneter Leistung.
Neben der Erprobung des Verglasungsverhaltens der Betonoberflächen wurden Möglichkeiten zum Abtrag des aufgeschmolzenen Materials vom Basismaterial unter Berücksichtigung einer optimalen Konditionierung untersucht. Wichtigster Punkt dabei ist das Erreichen einer Abtragstiefe von 3…5 mm, in denen bei realer Anwendung ca. 95 % der radioaktiven Isotope [1] gebunden sind. Mittels eines pulsierenden Blasgasstroms ist ein Austrag der schmelzflüssigen Phase am erfolgreichsten.
Mit der entwickelten Methode können unter Verwendung eines Hochleistungsdiodenlasers mit einer Leistung von z.B. 2,6 kW derzeit auf der Materialoberfläche Flächenleistungen von 2300 cm²/h, bei einer Abtragstiefe von 2,9 mm realisiert werden.

1 Einleitung

Aktuell beschränkt sich der Einsatz der Lasertechnologie beim Rückbau und der Stilllegung kerntechnischer Anlagen auf das Trennen von Materialien (vorwiegend Schneiden von Beton) [2]. Untersucht werden außerdem Methoden zum Abtragen durch Verdampfen von meist sehr dünnen kontaminierten Schichten wie Farbanstrichen. Eine kombinierte Methode stellt das Trockeneis-Laserstrahlentschichten dar [3,4], bei dem durch einen Laserstrahl induzierte und den Trockeneiszusatz verstärkte thermische Spannungen zum mechanischen Abplatzen von Schichten größerer Dicke führen. Als Laser werden im Allgemeinen CO_2-Gaslaser und Nd:YAG-Festkörperlaser verwendet. Mit fortschreitender technischer Entwicklung und gesteigerter Leistungsfähigkeit werden jedoch zum heutigen Zeitpunkt Hochleistungsdiodenlaser (HLDL) immer interessanter.

Neben dem Erforschen geeigneter ablativer Methoden, untersuchen einige Wissenschaftler Möglichkeiten zum Einbinden der radioaktiv kontaminierten Bestandteile in eine glasartige Matrix, wobei diese erst im Nachhinein als versiegelte Oberfläche abgetragen und konditioniert wird [5,6].
Das hier vorgestellte Verfahren soll die Möglichkeiten leistungsfähiger Lasertechnik nutzbar machen und Grundlagen bilden, für ein Verglasen und Einbinden radiaktiver Substanzen bei gleichzeitigem Abtragen in definierter, z.B. granulatartiger Form.

2 Theoretische Grundlagen

2.1 Laserauswahl

Die wesentlichen Vorteile von allen auf Lasertechnologie basierenden Dekontaminationsverfahren sind deren Flexibilität, Fernbedienbarkeit, die Verschleißfreiheit der Werkzeuge, das breite Spektrum an Bearbeitungsmöglichkeiten, sowie die Vielzahl der zu variierenden Prozessparameter wie Wellenlänge, Leistung, Leistungsflussdichte, Pulsdauer, Pulsfrequenz und Vorschub.
Im Hinblick auf die später anzuwendende Technologie zur Bearbeitung oberflächennaher Schichten der Betone müssen folgende allgemeine Auswahlkriterien für die Laseranlage in Betracht gezogen werden:

- Robustheit/Standfestigkeit
- Anfälligkeit gegen Verunreinigungen
- Ausgangsleistung und Effizienz der Laserstrahlerzeugung (optisch-elektrischer Wirkungsgrad)
- Verhältnis zwischen Anlagengröße und Ausgangsleistung
- Handhabbarkeit, Bereitstellung der Laserstrahlung an der Bearbeitungsstelle
- Arbeitssicherheit/Arbeitsschutz.

HLDL- und Nd:YAG-Laser erlauben durch den Einsatz einer Lichtleitfaser die räumliche Trennung von Laserquelle und Bearbeitungskopf. Der Umfang des in der radioaktiv kontaminierten Zone benötigten Bearbeitungsequipments kann demnach minimiert werden. Im Verhältnis zur erzeugten Laserleistung weist der HLDL das kleinste Gerätevolumen auf und besitzt außerdem den besten optisch-elektrischen Wirkungsgrad. Die für den Dioden- und Nd:YAG-Laser erforderlichen Arbeitsschutzmaßnahmen (Gefährdung durch unsichtbare Laserstrahlung) sind durch den vorgesehenen automatisierten Einsatz bzw. die vollständige Abkapselung der Bearbeitungszone gewährleistet. Einen entscheidenden Einfluss auf die Wahl des geeignetsten Lasers haben auch die nachstehenden prozessrelevanten Merkmale:

- die wellenlängenabhängige Wechselwirkung von Laserstrahl und Beton
- das Aufschmelzverhalten der Betone
- das Verhältnis von Schmelzvolumen zur eingetragenen Energie, sowie
- die Intensitätsverteilung zur Vermeidung unnötiger Überhitzung der Schmelze.

2.2 Wechselwirkung der Laserstrahlung mit der Betonoberfläche

Aufgrund der geringen Absorptionslänge (l_a) der Laserstrahlung auf Betonoberflächen bei Raumtemperatur (für den CO_2-Laser mit $l_a = 470 \pm 22$ µm und für den HLDL mit $l_a = 177 \pm 15$ µm [7]) im Vergleich zum Laserstrahldurchmesser von einigen mm, bildet sich unter deren Einwirkung eine Oberflächenwärmequelle (a) aus, **Abb. 1**.

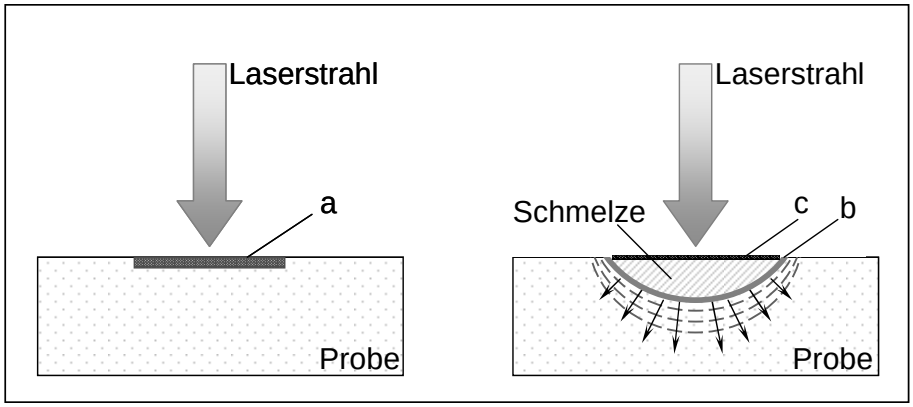


Abb. 1. Wechselwirkung der Laserstrahlung mit dem Material

Mit dem Übergang in eine schmelzflüssige Phase ändern sich die Absorptionsbedingungen gravierend. So ist beim Einsatz von Dioden- und Nd:YAG-Laserstrahlung durch die Transparenz der entstehenden glasartigen Phasen ein Einkoppeln der Energie in tiefere Schichten zu erwarten (b). Das damit verbundene Ausbilden einer Volumenwärmequelle steigert die Effektivität des Schmelzprozesses. Für den CO_2-Laser ist die Schmelze weniger transparent (c). Die geringe Wärmeleitung des Materials führt zu einem oberflächennahen Energiestau. Der Wärmetransport in tiefer liegende Schichten wird jetzt nur noch durch die Schmelzbaddynamik (Konvektion) ermöglicht. Diese ist jedoch innerhalb geringer Schmelzbadtiefen weniger stark ausgebildet. Bei weiterem Energieeintrag in die oben aufliegende Schmelze beginnt das Material örtlich sehr schnell zu verdampfen.
Gleiches geschieht lokal begrenzt bei inhomogener Intensitätsverteilung der Laserstrahlung. So wird sich beispielsweise eine gaußförmige Verteilung durch zentral konzentriertes Verdampfen negativ auf ein gleichmäßiges Schmelzen der gesamten bestrahlten Betonoberfläche auswirken. Eine anzustrebende homogene Leistungsverteilung („Tophead-Profil“) gewährleistet hingegen einen gleichmäßigeren Energieeintrag über die gesamte Bestrahlungsfläche. Das Risiko einer lokalen Verdampfung wird minimiert.

3 Experimentelles

3.1 Probenmaterial

Die enorme Vielfalt der real vorkommenden Zusammensetzungen natürlicher Zuschläge, die je nach lokaler Verfügbarkeit stark variierende silicatische und carbonatische Bestandteile aufweisen, verursacht ein immenses Spektrum von anzutreffenden Betonen im Bereich der kerntechnischen Anlagen. Um die sich daraus ergebende Mannigfaltigkeit an Untersuchungen einzugrenzen, wurden als Grenzfälle rein silicatische (quarzitischer Beton) und rein carbonatische (carbonatischer Beton) Zuschläge sowie deren Gemisch aus gleichen Teilen, d.h. 50 % silicatische + 50 % carbonatische Zuschläge (gemischter Beton) verwendet. Die Korngrößenverteilung der Zuschläge entsprach der Sieblinie AB 16 [8]. Die Abmaße der Probekörper betrugen 150 mm x 150 mm x 75 mm.

3.2 Verwendete Laser

Die Auswahl der eingesetzten Laserarten umfasste einen 4 kW CO_2-Laser (λ = 10,6 µm), einen 2,9 kW Diodenlaser (λ = 808/940 nm) und einen 1 kW Nd:YAG-Laser (λ = 1064 nm). Die drei Laser wurden kontinuierlich (cw) betrieben. Es kamen Brennweiten von 300 mm (CO_2-Laser), 120 mm (Diodenlaser) und 150 mm (Nd:YAG-Laser) zum Einsatz. Die Vorschubgeschwindigkeit wurde zwischen 100…400 mm/min variiert.

3.3 Applikation

Um den Einfluss der werkstoffseitigen Inhomogenitäten zurückzudrängen wurden erste Vorversuche an Betonen mit geringer Korngröße (Größtkorndurchmesser von 10 mm) durchgeführt. Die Verwendung des CO_2-, Dioden- und Nd:YAG-Laser sollte die Eignung der jeweiligen Laserwellenlänge zur Überführung des Betons in seine schmelzflüssige Phase nachweisen.
Bis zu einer Laserleistung von 1 kW sind sowohl Schmelz- als auch Abtragsleistungen der drei Laserarten mit adäquaten Parametereinstellungen ermittelt worden. Im weiteren Verlauf der Experimente wurde auf den Nd:YAG-Laser verzichtet und der CO_2- sowie Diodenlaser bis zu einer eingestrahlten Laserleistung von 2,6 kW betrieben. Gleichzeitig wurden Verfahren zum Abtrag des angeschmolzenen Materials vom Grundsubstrat getestet und bewertet, die das Erreichen der zielorientierten Abtragstiefe von 3…5 mm gewährleisten.

3.4 Austrag mit Blasgasstrom

Als Erfolg versprechend wurde der Austrag der erzeugten Schmelze mit einem Blasgasstrom angesehen. Dabei wird die Schmelze durch einen gerichteten Gasstrom erfasst und von der Oberfläche entfernt, **Abb. 2**. Eine Absaugung erzeugt einen zweiten Strom, der die abgetragenen Partikel mitreißt. Die Grobanteile werden in einem 2-stufigen Filter abgeschieden und entstehende Feinstäube in einem nachgeschalteten Hochvakuum-Patronenfilter extrahiert.

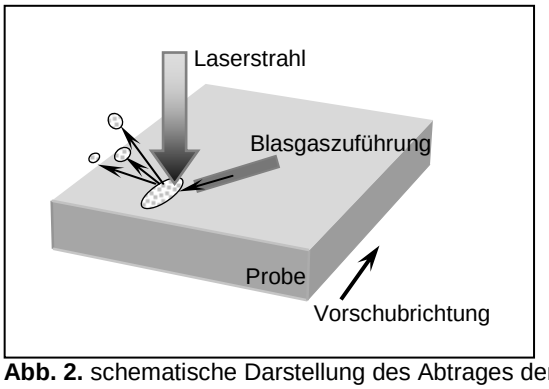


Abb. 2. schematische Darstellung des Abtrages der Schmelze mit Blasgasstrom

Für einen optimalen Schmelzabtrag muss der Abstand zwischen Blasdüse und Bearbeitungsstelle gering gehalten werden, um die laminare Strömung bis zum Auftreffpunkt beizubehalten. Der Auftreffpunkt liegt dabei günstigerweise dezentral zum Laserstrahl. Die gesamte Schmelze kann damit in eine Vorzugsrichtung ausgetragen und die Gratbildung an der dem Laserstrahl zugewandten Seite minimiert werden. Der Blasgasdruck wurde auf 5 bar festgelegt. Die Abmessung der Blasgasdüse betrug 1 mm x 12 mm.
Im Zuge der Optimierung des flächigen Abtrages der Schmelzprodukte wurde anstelle des anfangs eingesetzten kontinuierlichen ein gepulster Blasgasstrom mit verschiedenen Taktzeiten verwendet. Motivation dafür war einerseits ein Verringern der Kühlwirkung auf die laserinduzierte Schmelze durch den Blasgasstrom. Andererseits soll durch Erzeugen größerer Schmelzbadvolumina der Abtrag kompakterer Abprodukte erreicht werden. Ein asymmetrischer Taktgeber ermöglichte das voneinander unabhängige Einstellen der „Pausen-„ und „Blaszeit“ im Bereich von jeweils 0,05 s … 60 h, **Tabelle 1**.

Tabelle 1. verwendete Taktzeiten des Blasgasstromes

Blasgasstrom	aus	an
a	-	kontinuierlich
b	0,5 s	0,5 s
c	0,3 s	0,3 s
d	0,2 s	0,2 s
e	0,5 s	0,3 s
f	1,0 s	0,5 s

3.5 Bestimmen der Abtragstiefe mit Lasertriangulationsmessung

Damit der Einfluss der Versuchsbedingungen auf die erreichte Abtragstiefe und das entsprechende Abtragsvolumen quantifiziert werden konnte, wurde nach einem geeigneten Messverfahren zum Bestimmen von Abtragstiefe und -profil gesucht. In **Abb. 3.** ist ein Gebiet nach dem Laserabtrag dargestellt. Die zurückbleibende schroffe Oberfläche gibt eine Vorstellung von den möglichen Problemen beim Vermessen der Topologie der Oberfläche zur Bestimmung der Abtragstiefe und der abgetragenen Volumina.
Neben dem Verfüllen mit Sand und einem aushärtenden Polymer, sowie einer taktilen Methode, erwies sich die Lasertriangulation als beste und genaueste Variante. Gleichzeitig ermöglichte dieses berührungslos arbeitende Verfahren das Darstellen und Auswerten der Abtragskontur durch grafische Programme. Über die abgetragene Fläche von ca. 60 x 30 mm² wurde ein Netz von 70 x 40 Messpunkten mit einem Rastermaß von je 1 mm gelegt. Das Ergebnis ist in **Abb. 4.** dargestellt. Der Einfluss der Transparenz der Oberfläche für den messenden Laserstrahl auf das Ergebnis konnte ausgeschlossen werden.

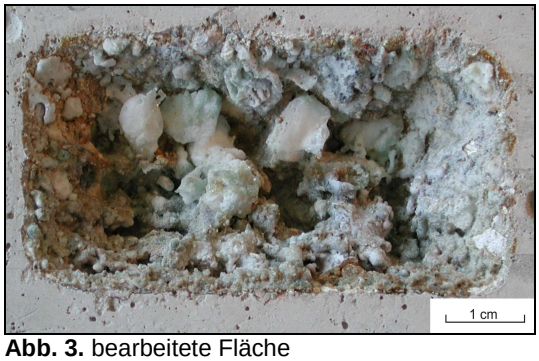


Abb. 3. bearbeitete Fläche

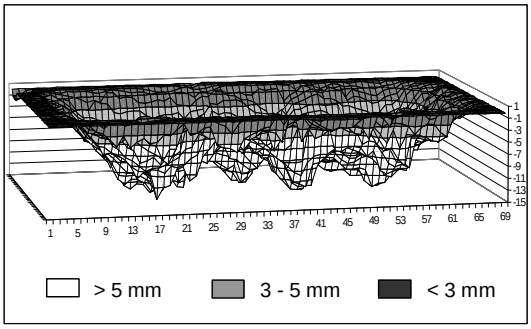


Abb. 4. Abtragsprofil von Abb. 3.

4 Ergebnisse und Diskussion

4.1 Schmelz- und Abtragstiefen im Vergleich

Für den bis 1 kW Laserleistung möglichen Vergleich aller drei vorhandenen Laser ergaben sich in ersten Vorversuchen an „homogenen“ Betonproben die größten Schmelz- und Abtragstiefen unter Einsatz des HLDL. Dabei stellte sich die Laserleistung von 1 kW als unzureichend für das Erreichen der prozessrelevanten Schmelztiefen von 3…5 mm dar. Erst mit einer Laserleistung von ≥1,3 kW konnte diese Zielgröße erreicht werden. Für weitergehende Untersuchungen musste somit wegen zu geringer Laserleistung auf den Nd:YAG-Laser verzichtet werden.
Im Ergebnis der Vielzahl der Experimente wurden folgende Erkenntnisse gewonnen:
Beim Vergleich der mit CO_2- und Diodenlaser im kontinuierlichen Betrieb erzeugten Schmelztiefen unter Sicherstellung gleicher eingestrahlter Intensitäten kann man in **Abb. 5.** erkennen, dass mit dem Diodenlaser höhere Schmelztiefen erreicht werden können als unter Einsatz des CO_2-Lasers. Da die Absorptionstiefe bei der Wellenlänge des HLDL laut Lawrence

[7] zirka Faktor 2,7 geringer ist als für den CO_2-Laser, wird dieses Erscheinungsbild mit einer während des Verglasungsprozesses des Betons erzeugten höhertransparenten Phase interpretiert, die ein Einkoppeln der Energie in tiefer liegende Schichten ermöglicht. Diese Ergebnisse wurden im Rahmen anderer Forschungsarbeiten am LIM zum Absorptionsverhalten während des Erwärmens/Schmelzens von hochfeldspathaltigen Keramiken bestätigt.

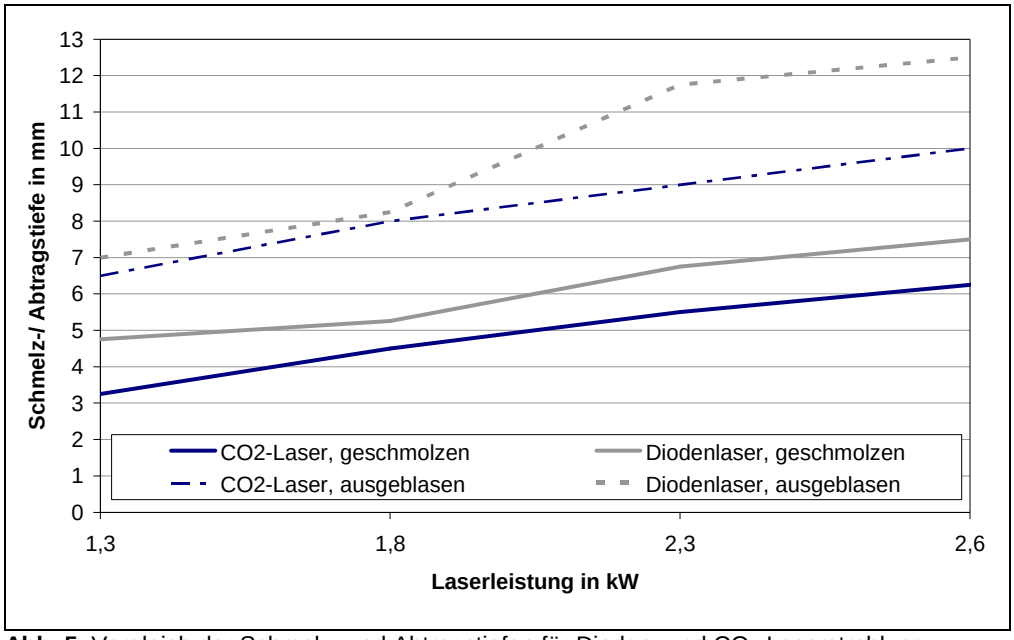


Abb. 5. Vergleich der Schmelz- und Abtragstiefen für Dioden- und CO_2-Laserstrahlung an Betonpflastersteinen nach DIN 18501 mit einer Rohdichte von 2,3 g/cm³

Beim zusätzlichen Einsatz von Blasgas wird die entstehende Schmelze von der Oberfläche gerissen. Es ergeben sich im Vergleich zur reinen Schmelztiefe 1,5…2-fach höhere Abtragstiefen. Interessant ist der noch stärkere Anstieg der Abtragstiefe für den eingesetzten HLDL ab einer Laserleistung ≥ 1,8 kW. Hier ergibt sich anscheinend ein Optimum von Blasgas- zu Schmelzvolumenstrom und eintretendem Energieverlust in der Wechselwirkungszone durch den Blas- und Abtragsprozess. Ab etwa 2,3 kW stellt sich dann wieder der gleiche Anstieg wie zuvor ein. Nicht so deutlich ist der Effekt bei dem CO_2-Laser zu bemerken, jedoch ist er auch dort vorhanden.

4.2 Variation des Blasgasstromes

Mit der Modifikation des Abtragsregimes hin zum getakteten Ausblasen konnte eine weitere Erhöhung der Abtragstiefen erreicht und somit der Austrag größerer Abproduktmengen ermöglicht werden.
Die nachfolgende Abbildung zeigt die erhaltenen Abtragstiefen für quarzitischen und gemischten Beton in Abhängigkeit vom Blasgasregime bei gleichzeitiger Konstanz der übrigen Prozessparameter, **Abb. 6**.

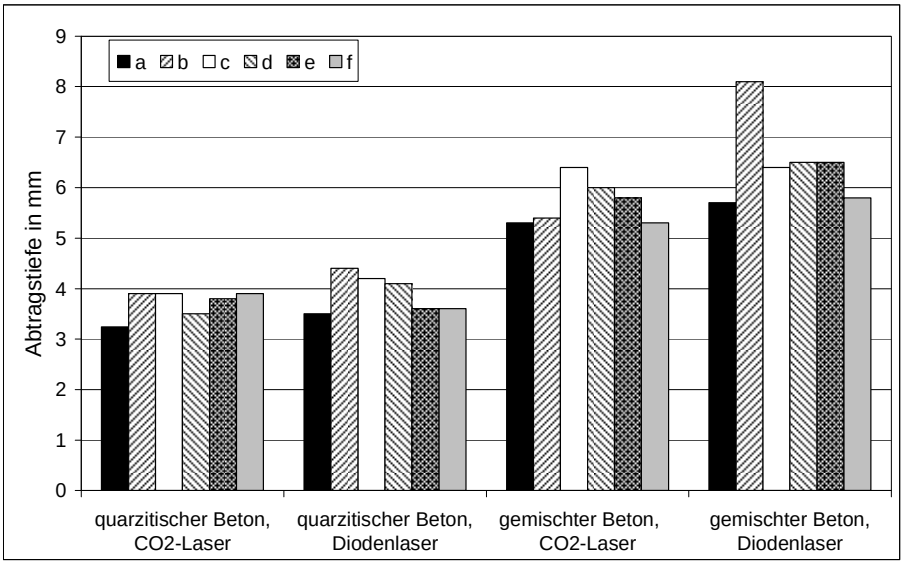


Abb. 6. Abtragsraten von Beton mit silicatischen und gemischten Zuschlägen;
a – kontinuierliches Ausblasen; b…f – gepulstes Ausblasen (vgl. Tabelle 1)

Zunächst ist anzumerken, dass sich gemischter Beton generell besser abtragen lässt als quarzitischer Beton. Ursachen dafür sind wahrscheinlich sowohl in der durch die carbonatischen Zuschläge begründeten Schmelzpunkterniedrigung des Betons, als auch in der Viskositätserniedrigung der entstehenden Glasschmelze zu sehen.
Vergleicht man die unterschiedlichen Ausblasregime miteinander, ergibt sich, dass unabhängig vom Lasertyp sowohl an quarzitischem, als auch an gemischtem Beton höhere Abtragstiefen mit dem gepulsten Ausblasen (b - f) im Vergleich zum kontinuierlichen Ausblasen (a) erreicht werden. Des Weiteren ist im Diagramm zu erkennen, dass mit der Taktzeit b des Blasgases an gemischtem Beton unter Verwendung des Diodenlasers die höchste Abtragstiefe erreicht wird. Das heißt, dass sich lange Schmelzzeiten und kurze Blaszeiten effektivierend auf den Abtragsprozess auswirken. Nachdem die Schmelze, die das darunter liegende Material quasi vom Laserstrahl abschirmt, aus der Wechselwirkungszone des Lasers ausgeblasen worden ist, kann der Laserstrahl wieder neue Gebiete erfassen und erschmelzen. Die Effektivität des Prozesses wird erhöht.

4.3 Abprodukte

Die durch den Abtragprozess entstandenen Abprodukte wurden mittels röntgendiffraktometrischer, licht- und elektronenmikroskopischer Methoden untersucht. Je nach Ausgangszusammensetzung des abgetragenen Betons zeigten sich unterschiedliche Erscheinungsformen des abgetragenen Materials. So wurde beobachtet, dass Betone mit quarzitischen Zuschlägen sich besser verglasen lassen als Betone mit gemischten Zuschlägen, **Abb. 7**. Rein calcitische Betone konnten durch ihren Mangel an Glasbildnern nicht in einen glasartigen Zustand überführt werden, **Abb. 8**. Bei diesen Materialien ist eher ein Ablatieren der oberflächennahen Schicht, hervorgerufen durch die ablaufenden Decarbonatisierungs-reaktionen zu beobachten.

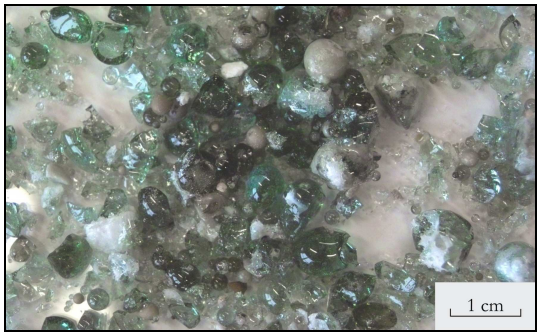


Abb. 7. verglaste Abprodukte von gemischtem Beton **Abb. 8.** Abprodukte von calcitischem Beton

Die röntgendiffraktometrischen Analysen der erhaltenen Abprodukte belegen, wie Abbildung **Abb. 9 a**. zeigt, dass die Abprodukte des quarzitischen Betons größtenteils amorph sind. Gemischte Betone weisen ebenfalls amorphen Charakter auf und enthalten in Spuren Akermanit und Dolomit, **Abb. 9 b**. Die Abprodukte der calcitischen Betone sind kristallin und können durch ihren hohen Anteil an CaO und MgO ohne den Zusatz von Glasbildnern keine Glasphase ausbilden, **Abb. 9 c**.

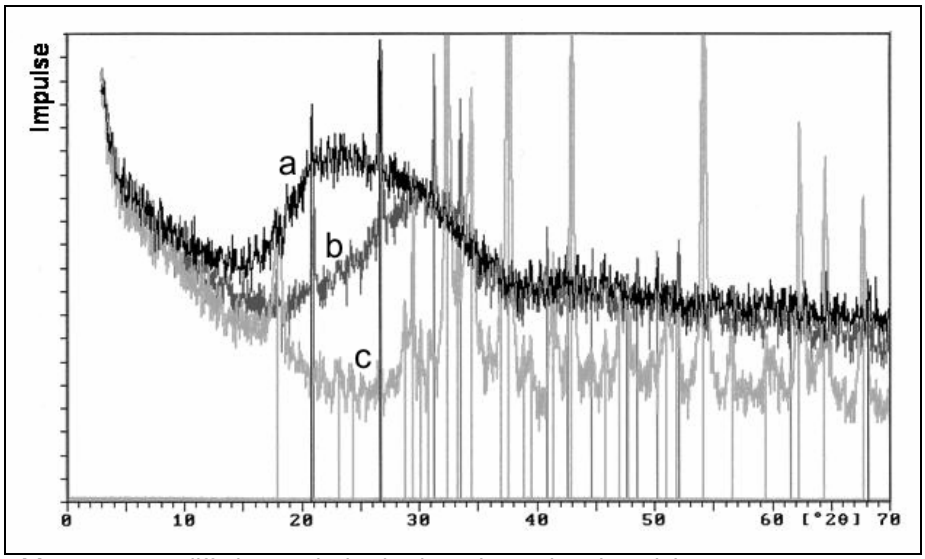


Abb. 9. Röntgendiffraktometrische (RD) Analysen der Abprodukte

Im Hinblick auf die Endlagerfähigkeit der entstandenen Abprodukte stellt das Einbinden der Radionuklide in silicatische amorphe Strukturen die sicherste Methode zum Schutz vor chemischen Angriffen dar [9]. Inwieweit die Abprodukte der laserbearbeiteten Betonoberflächen in einen glasartigen Zustand überführt werden können, hängt somit in entscheidendem Maße von der Ausgangszusammensetzung der Materialien ab. Eventuell auftretende Verdampfungen und der Grad der Einbindung in glasartige Schmelzen wird perspektivisch durch unseren Projektpartner *Institut für Energietechnik der Technischen Universität Dresden* untersucht werden, die eine entsprechende Umgangsberechtigung für radioaktive Substanzen besitzen.
Beim Einordnen der ausgeblasenen Abprodukte in das Dreistoffsystem CaO-SiO_2-MgO werden die Ergebnisse der Röntgendiffraktometrie bestätigt. Das Ausblasprodukt des quarzitischen Betons weist durch seinen hohen SiO_2-Gehalt amorphes Verhalten auf. Die Ausblasprodukte des Betons mit carbonatischen Zuschlägen liegen im Ausscheidungsfeld des CaO und deuten auf den kristallinen Charakter der Abprodukte hin. Die Abprodukte des gemischten Betons weisen den laut Hülsenberg [9] für ein Verglasen geforderten Mindest-SiO_2-Gehalt von 50 % auf. Sie zeigen wie die RD-Analyse belegt fast vollständig amorphes Verhalten.

Neben den glasartigen Granulaten können in geringem Maße noch weitere Abprodukte in Form von Fasern und Feinstäuben entstehen. Faserartige Abprodukte findet man vor allem beim

Bearbeiten quarzitischer Betone, **Abb. 10**. Diese Fasern entstehen wahrscheinlich dadurch, dass schmelzflüssige Partikel vom Blasgasstrom erfasst werden, oberflächlich abkühlen und durch die Bewegung im Blasgasstrom eine Art Faser aus dem noch existenten Schmelzbad ausziehen. Dieser Effekt wurde beim Verwenden von Sauerstoff als Blasgas noch verstärkt.

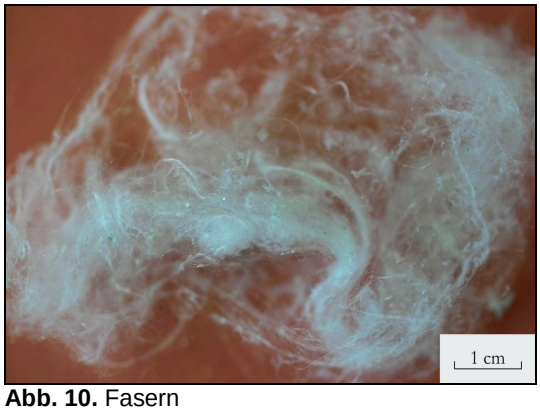


Abb. 10. Fasern

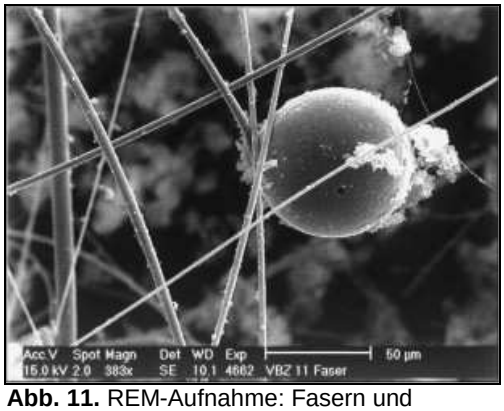


Abb. 11. REM-Aufnahme: Fasern und Feinstaub

Aufgrund ihres hohen Oberflächen-Volumen-Verhältnisses sind Fasern für das dauerhafte Einbinden von Nukliden eher ungeeignet. Des Weiteren behindern sie durch das beschleunigte Verstopfen des Filters den reibungslosen Abtransport der Abprodukte.
Die auftretenden Feinstäube weisen einen hohen Anteil an SiO_2 auf. Sie entstehen sehr wahrscheinlich beim Bearbeiten der Betonoberflächen durch das Verdampfen von SiO und dessen Rekristallisation zu Siliciumdioxid.

5 Zusammenfassung

Das thermische Behandeln von Beton mit Lasertechnologie ermöglicht die Überführung einer oberflächennahen Schicht in einen schmelzflüssigen Zustand. Mit dieser Schmelze kann der Einschluss von Abprodukten wie sie z.B. auf atomar kontaminierten Oberflächen zu finden sind, durch die durchaus 10^{10}-mal höhere Löslichkeit von Stoffen in einer Schmelze, möglich werden. Durch Kombination von Aufschmelzen der Oberfläche und getaktetem Ausblasen kann unproblematisch in einem Einschrittverfahren eine Tiefe von ca. 5 mm abgetragen werden. Damit sollte eine nahezu vollständige Dekontamination der in Kernkraftwerken verwendeten Betone möglich sein, da in dieser Schicht etwa 95 % der Aktivität enthalten sind. Entscheidenden Einfluss auf den Abtrag der Oberflächen üben neben dem abzutragenden Material, die Laserart und dessen Parameter, sowie die zusätzliche Taktung des Blasgases aus. Betone mit gemischten Zuschlägen lassen sich durch ihre niedrigere Viskosität besser abtragen als Betone mit silicatischen Zuschlägen. Calcitische Betone können durch ihren Mangel an Glasbildnern nicht in einen amorphen Zustand überführt werden. Bei diesen Materialien wird der Einsatz von Matrixbildnern notwendig. Im Verlauf der Arbeiten zeigte sich, dass unter Einsatz des Hochleistungsdiodenlasers höhere Abtragstiefen und somit auch höhere Abtragsraten als unter Verwendung des CO_2-Lasers erzielt werden können. Diese Lasergeräte sind durch ihr um mindestens Faktor 1000 geringeres Volumen und Gewicht gegenüber den CO_2-Lasern wesentlich besser zu handhaben. Sie haben einen deutlich geringeren Energieverbrauch und sind einfacher zu betreiben. Die Diodenlaserstrahlung ist durch Glasfaserkabel leicht an die Bearbeitungsstelle zu führen. Mit diesen Vorzügen kommen die HLDL einem Einsatz für Dekontaminierungszwecke auch mobiler Art sehr entgegen.
Die entstehenden abgesaugten Abprodukte werden in einem granulatartig Zustand gesammelt und sind sehr einfach weiterzubehandeln. Weitere entstehende Abprodukte sind Fasern und Feinstäube in unterschiedlichen Mengen. Gasförmige Abprodukte wurden bisher nicht deklariert.
Die innerhalb der letzten zwei Jahre im Laserinstitut Mittelsachsen e.V. entwickelten Laserverfahrens- und Prozessparameter wurden vollständig der Arbeitsgruppe unseres

Partners an der Technischen Universität Dresden übergeben. Ende des Jahres 2004 konnten unsere Ergebnisse an einer im Institut für Energietechnik Dresden nach unseren Vorgaben angeschafften und aufgebauten eigenen Anlage verifiziert werden. Einer Übertragbarkeit der Erfahrungen des Laserinstituts Mittweida zum Laserabtrag von Beton auf andere Standorte steht damit nachweislich nichts mehr im Wege.

Danksagung

Besonderer Dank gilt dem BMBF, Forschungszentrum Karlsruhe (Projektträger des Bundesministeriums für Bildung und Forschung) für die Förderung und allen Projektpartnern für die unkomplizierte Zusammenarbeit.

6 Literatur

[1] Fleischer, K. et. al: Stilllegung und Rückbau: Eindringverhalten radioaktiver Kontamination in ungeschützten Betonstrukturen. Schlussbericht zum Fördervorhaben BMBF 02S7605A, VKTA Verein für Kernverfahrenstechnik und Analytik e.V. Rossendorf, April 1999

[2] Kistmacher, H. et. al.: Einsatzmöglichkeiten des Lasers in der Stilllegungstechnik. Konferenz-Einzelbericht, V. Stilllegungskolloquium Hannover, 4. Statusbericht Stilllegung und Rückbau kerntechnischer Anlagen, 24.-25. Juni 1997, Hannover, Seite 239-249

[3] Redeker, C.F.; Bach, Fr.-W.; Versemann, R.: Enlargement of the operative range of the dry ice blasting process. International conference on cutting technologie 2002, Konferenz-Einzelbericht, pp. 177-184

[4] Haberland, J.: Reinigen und Entschichten mit Trockeneisstrahlen. VDI-Fortschritt-Bericht, Reihe 2, Heft 502, 1999,

[5] Spencer, J.T. et al. : Potential applications of lasers for decontamination and decommissioning of nuclear plant. Conference on materials and nuclear power, Euromat 96, 21.-23. october 1996, Bournemouth, United Kingdom, pp. 235-242, ISBN 1-86125-020-7

[6] Li, L. et. al.: Laser fixing and sealing of radioactive contamination on concrete surfaces. Proceedings of LAMP ´92, Nagaoka, June 1992, pp. 843-848

[7] Lawrence, J.; Johnston, E.P.; Li, L.: Determination of absorption length of CO_2 and high-power-diode-laser radiation for ordinary Portland cement. Journal of applied physics, Vol. 33 (2000), pp. 945-947

[8] DIN 1045-2: Tragwerke aus Beton, Stahlbeton und Spannbeton - Teil 2: Beton; Festlegung, Eigenschaften, Herstellung und Konformität; Anwendungsregeln zu DIN EN 206-1. Ausgabe Juli 2001, Beuth-Verlag, Berlin

[9] Hülsenberg, D.: Glastechnologien für Recyclingaufgaben. Abhandlungen der sächsischen Akademie der Wissenschaften zu Leipzig, Technikwissenschaftliche Klasse, Band 1, Heft 1, 1998

Veröffentlichung Lasermagazin Nr. 3, 2005, S. 35

S. Treptau, S. Geißler, H. Exner

Laserstrahltiefenabtrag von Betonoberflächen

Aktuelle Forschungsarbeiten des Laserinstitut Mittelsachsen e.V. beschäftigen sich mit der Entwicklung eines Laserabtragverfahrens von kontaminierten Betonoberflächen bei gleichzeitigem Einschluss radioaktiver Isotope in einer verglasten Matrix. Das Projekt kam auf Initiative unseres Kooperationspartners *Institut für Kernenergietechnik der Technischen Universität Dresden* unter Leitung von Herrn Prof. Dr. rer. nat. J. Knorr zustande.
Die durch laserinduziertes Aufschmelzen des Betons erzeugte Glasmatrix fungiert als Träger der kontaminierten Produkte und wird von dessen Oberfläche noch in ihrer schmelzflüssigen Phase entfernt. Sie liegt danach in Granulatform vor (Abb.1).

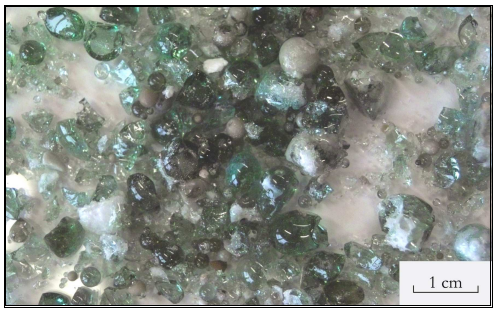


Abb.1: granulatförmige verglaste Abprodukte

Die Abprodukte können infolgedessen ohne besonderen Aufwand in der Nachkonditionierung kostengünstig ihrem Endlager zugeführt werden. Gleichzeitig wird das Volumen der zu deponierenden Abprodukte minimiert.
Die systematischen Untersuchungen zum Erzeugen einer laserinduzierten Schmelze genügender Tiefe erfolgten zunächst an Betonen mit einem Größtkorn von 10 mm sowie an quarzitischen, calcitischen und gemischten Betonen unter Verwendung von wahlweise einem Nd:YAG-, Dioden- und CO_2-Laser. Neben dem Erproben des Verglasungsverhaltens wurden verschiedene Varianten zum Abtrag des aufgeschmolzenen Materials vom Basismaterial unter Berücksichtigung der optimalen Konditionierung untersucht. Entscheidenden Einfluss auf den Abtrag der Oberflächen haben neben dem abzutragenden Material, die Laserart, die Prozessparameter sowie die Art der Ausblasung der Schmelze. Der Austrag mit pulsierendem Blasgasstrom erwies sich unter Einsatz des Hochleistungsdiodenlasers als effektivste Methode und konnte vom Laserinstitut Mittelsachsen e.V. zum Patent angemeldet werden. Mit dem Verfahren ist es beispielsweise möglich, Flächenleistungen von ca. 2300 cm²/h bei einer Abtragstiefe von ca. 3 mm und einer verwendeten Laserleistung von 2,6 kW zu realisieren. Durch die Kombination von Aufschmelzen der Oberfläche und getaktetem Ausblasen kann unproblematisch in einem Einschrittverfahren eine Tiefe von ca. 5 mm abgetragen werden, in der sich der überwiegende Anteil der radioaktiven Kontamination befindet (Abb.2).

Abb.2: Teilstück einer abgetragenen Betonfläche

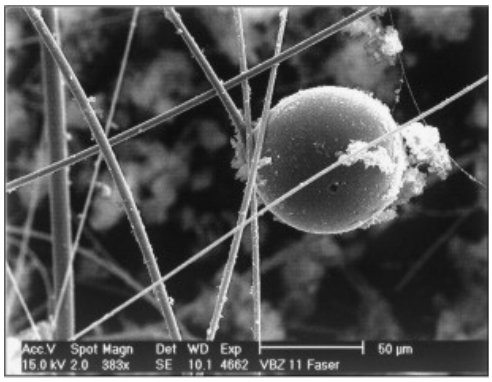


Abb.3: REM - Aufnahme: Fasern und Feinstaub

Neben den glasartigen Granulaten können noch andere Formen der Abprodukte wie Fasern und Feinstäube entstehen (Abb.3).
Ausführlichere Informationen sind im Tagungsband der Kontec 2005, Berlin enthalten.

Danksagung:
Unser Dank gilt dem BMBF für die Förderung (FKZ 02S8162) und dem Projektträger FZK (WTE), vertreten durch Herrn Dr. Papp, für die angenehme Zusammenarbeit.

Kontakt:
Frau Dipl.-Ing. Sandra Treptau
Laserinstitut Mittelsachsen e.V. an der Hochschule Mittweida (FH), Technikumplatz 17, D-09648 Mittweida
Tel.: 03727 976163 / Fax: 03727 976343
e-mail: streptau@htwm.de

Veröffentlichung Lasermagazin No. 3, 2005, S. 37

S. Treptau, S. Geißler, H. Exner

Removal of concrete surfaces

The presented work describes the development of a method of removing contaminated concrete surfaces by using laser technology. The project originated from an initiative of our cooperation partner *Institut für Kernenergietechnik der Technischen Universität Dresden* under coordination of Prof. Dr. rer. nat. J. Knorr.
Laser treatment of concrete produces a vitreous matrix in which the radioacitve isotopes are embedded and which can be separated in liquid state from the concrete surface. After separation and solidification the waste products remain as a vitreous granulate material. (Fig.1).

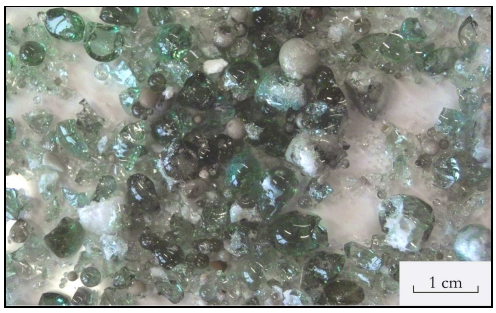


Fig.1: vitreous granulate material

In this way the contaminated material can be concentrated in a highly enriched fraction and separated from the bulk of uncontaminated material.
To produce a melt bath with a sufficient depth systematic investigations were carried out with concrete with a maximum grain size of 10 mm as well as with quartzitic, limestone and mixed concretes employing either a CO_2 laser, or a Nd:YAG laser or a high power diode laser of adequate power for comparison.
Vitrification behaviour was studied and different techniques of removing of the melt were tested.
Next to the type of material, abrasion is substantially influenced by the process parameters and by the manipulation or control of the expelling gas jet. The settlement with a pulsing jet in combination with the employment of a high power diode laser proved to be most effective and was applicated by Laserinstitut Mittelsachsen e.V. as a patent. Employing a high power diode laser of 2,6 kW, for example, it is possible with the developed method to achieve an ablation rate of 2300 cm²/h at a ablation depth of approx. 3 mm. In combination with the pulsing gas jet a molten layer of 5 mm depth can be removed in a single run. This zone normally contains about 95 % of the contaminants (Fig.2).

Fig.2: surface area of concrete after laser treatment

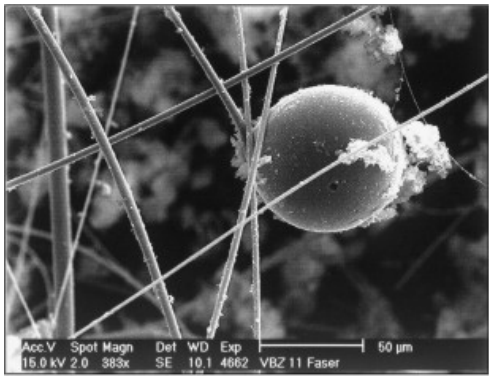


Fig.3: REM - photo: fibers and fine particulate

Besides as the vitreous granules the remnants of the process are also obtained as fibers and fine particulates (Fig.3).
Detailed information are available in the proceedings of Kontec 2005, Berlin, taking place in April.

Acknowledgement:
We would like to acknowledge the support by BMBF (FKZ 02S8162) and the constructive cooperation of Projektträger FZK (WTE) represented by Dr. Papp.

Contact:
Mrs. Dipl.-Ing. Sandra Treptau
Laserinstitut Mittelsachsen e.V. an der Hochschule Mittweida (FH), Technikumplatz 17, D-09648 Mittweida
Tel.: 03727 976163 / Fax: 03727 976343
e-mail: streptau@htwm.de