

**DECKBLATT**

	Projekt	PSP-Element	Obj. Kenn.	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.
	N A A N	N N N N N N N N N N	N N N N N N	X A A X X	A A	N N N N	N N
EU 260	9K	33219		LBA	RB	0007	03

**Titel der Unterlage:** Systemanalyse Konrad, Teil 3  
 Freisetzung radioaktiver Stoffe aus Abfallgebinden  
 im bestimmungsgemäßen Betrieb der Schachtanlage  
 Konrad GRS-A-1255 (Mai 1990)

Seite:

I.

Stand:

31. Mai 1990

Ersteller:



Textnummer:

Stempelfeld:

PSP-Element TP.....:

zu Plan-Kapitel: 3.4.2

PL



Freigabe für Behörden

PL



Freigabe im Projekt

Diese Unterlage unterliegt samt Inhalt dem Schutz des Urheberrechts sowie der Pflicht zur vertraulichen Behandlung auch bei Beförderung und Vernichtung und darf vom Empfänger nur auftragsbezogen genutzt, vervielfältigt und Dritten zugänglich gemacht werden. Eine andere Verwendung und Weitergabe bedarf der ausdrücklichen Zustimmung des BfS.

# Revisionsblatt

BFS

EU 260	Projekt	PSP-Element	Obj. Kenn.	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.
	N A A N	N N N N N N N N N N	N N N N N N	X A A X X	A A	N N N N	N N
	9K	33219	---	LBA	RB	0007	00

Titel der Unterlage: <b>Systemanalyse Konrad, Teil 3</b> Freisetzung radioaktiver Stoffe aus Abfallgebinden im bestimmungsgemäßen Betrieb der Schachanlage Konrad (GRS-A-1255)	Seite: II.
Stand: Sept. 1986	

Rev.	Revisionsst. Datum	verant. Stelle	Gegenzeichn. Name	rev. Seite	Kat. *)	Erläuterung der Revision
01	14.03.89	SE1.1	[REDACTED]	alle	S	Die EU 067 (GRS-A-1255, September 1986) wurde durch die EU 260 (GRS-A-1255, Januar 1989) als Revision 1 ersetzt.
02	31.01.90	ET 2.3	[REDACTED]	10 23 28	S S - 3)	H 3 un spez. detailliertere Behandlung Ergänzungen zu C 14 Aufgrund von Seitenverschiebungen Revision des gesamten Berichtes
03	31.05.90	ET 2.3	[REDACTED]	10 13 19 23 25-29 28-29 30-35 A18ff	S V S S S S R S	Ergänzung zur Tritiumfreisetzung Formulierungsänderung Textliche Ergänzung Ergänzung bzgl. Rückhaltewirkung des Versatzmaterials Wegfall von Schleuderversatz Ausführungen zur Ableitung über Fortluftkamin Aktualisierung der Literatur Wegfall von Anhang 6

\*) Kategorie R = redaktionelle Korrektur  
 Kategorie V = verdeutlichende Verbesserung  
 Kategorie S = substantielle Änderung  
 Mindestens bei der Kategorie S müssen Erläuterungen angegeben werden.



---

Gesellschaft für Reaktorsicherheit (GRS) mbH

SYSTEMANALYSE KONRAD, TEIL 3  
FREISETZUNG RADIOAKTIVER STOFFE AUS  
ABFALLGEBINDEN IM BESTIMMUNGSGEMÄS-  
SEN BETRIEB DER SCHACHTANLAGE  
KONRAD

REVISION 3

GRS-A-1255 (Mai 1990)

Auftrags-Nr. 41 373



Anmerkung:

Dieser Bericht ist von der GRS im Auftrag des Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS) erstellt worden. Der Eigentümer behält sich alle Rechte vor. Insbesondere darf dieser Bericht nur mit Zustimmung des Auftraggebers zitiert, ganz oder teilweise vervielfältigt bzw. Dritten zugänglich gemacht werden.



## INHALT

	Seite
1. EINLEITUNG	1
2. ABLEITUNG VON FREISETZUNGSRATEN	2
2.1 Einfluß des Behälters	2
2.2 Freisetzung aus dem Abfallprodukt	5
2.2.1 Freisetzung aus zementierten/betonierten Abfällen	6
2.2.2 Freisetzung aus in Bitumen oder Kunststoff fixierten Abfällen	14
2.2.3 Freisetzung aus Feststoffen, Konzentraten und Kunststoffprodukten	17
2.2.4 Freisetzung aus metallischen Feststoffen	21
2.2.5 Freisetzung aus Preßlingen	23
2.3 Zusammenfassung	23
3. AKTIVITÄTSFREISETZUNG AUS EINLAGERUNGSKAMMERN	25
4. SONSTIGE FREISETZUNGEN	28
5. LITERATUR	30
6. ANHÄNGE	

## 1. EINLEITUNG

Die Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB) hat die Gesellschaft für Reaktorsicherheit (GRS) mit der Durchführung einer Systemanalyse für das Endlager Konrad zur Festlegung von Anforderungen an radioaktive Abfälle und zur Erstellung von Planfeststellungsunterlagen beauftragt.

Im Rahmen dieses Auftrages beschreibt der vorliegende Bericht die Freisetzung radioaktiver Stoffe aus dem Abfallprodukt, die Rückhaltung durch die Verpackung sowie den Transport in die wetterführenden Strecken. Hiermit soll die Grundlage für die Ableitung von Anforderungen an die Abfallgebinde aus der Sicherheitsanalyse des bestimmungsgemäßen Betriebes gelegt werden.

## 2. ABLEITUNG VON FREISETZUNGSRATEN

Die Freisetzung von radioaktiven Stoffen aus Abfallbinden wird primär bestimmt vom Abfallprodukt (z.B. Art der Fixierung) und dem Behälter. Für eine differenzierte Vorgehensweise wäre es daher erforderlich, nuklidspezifisch eine Matrix von Freisetzungsraten zu erstellen, in der alle Variationen der beiden o.g. Haupteinflussfaktoren berücksichtigt sind. Da experimentell verifiziertes Datenmaterial in diesem Detaillierungsgrad nicht vorliegt, beschränkt sich die nachfolgende Untersuchung auf Obergrenzenabschätzungen. Hierzu werden eine Reihe von Vereinfachungen vorgenommen, die ein konservatives Gesamtergebnis sicherstellen. Dies sollte bei der Bewertung der nachfolgend herangezogenen und ermittelten Daten berücksichtigt werden. Diese konservative Vorgehensweise kann durch realitätsnähere Modelle ersetzt werden, wenn Ergebnisse entsprechender Forschungs- und Entwicklungsarbeiten vorliegen.

### 2.1 Einfluß des Behälters

Eine experimentell abgesicherte Dichtigkeitsspezifikation liegt bei den derzeit vorgesehenen Abfallbehältern nur für die Gußbehälter vor. Dies bedeutet zwar nicht, daß den übrigen Abfallbehältern keine Rückhaltefunktion zukäme. Da sie jedoch nicht im Rahmen einer Produktkontrolle quantifiziert wird, kann hiervon zahlenmäßig nicht Kredit genommen werden. Ein Freisetzungsfaktor  $< 1$  aus der Atmosphäre des Behälters in die Wetter der Einlagerungskammer wird daher nur für die Gußbehälter abgeleitet.

Die bislang genehmigten und Typ-B-geprüften Gußbehälter sind mit Doppeldichtungen ausgestattet, um die Dichtheitsanforderungen der Transportvorschriften einzuhalten. Messungen an diesen Gußbehältern weisen nach Belastungstests eine Heliumleckrate von  $\leq 10^{-7}$  Pa · m<sup>3</sup>/s für die Einzeldichtungen aus /z. B. TN 84, TN 84a/. Für die nachfolgenden Rechnungen wird hingegen nur eine Leckrate von  $10^{-5}$  Pa · m<sup>3</sup>/s unterstellt, wie sie den Anforderungen der Typ-B-Prüfung entspricht.

Aus der Heliumleckrate läßt sich der Volumenstrom  $\varepsilon$  des Mediums aus dem Behälter bestimmen zu:

$$\varepsilon = \frac{L_{\text{He}}}{P_{\text{He}}} \cdot (m_{\text{He}} \cdot T/m \cdot T_{\text{He}})^{0.5}$$

wobei:

$L_{\text{He}}$  = Heliumleckrate ( $10^{-5}$  Pa · m<sup>3</sup>/s)

$P_{\text{He}}$  = Heliumprüfdruck ( $10^5$  Pa)

$m_{\text{He}}$  = Molekulargewicht von Helium

$T_{\text{He}}$  = Temperatur bei der He-Messung (293 K)

$m$  = Molekulargewicht des Mediums

$T$  = Temperatur des Mediums

Geht man von 50 °C warmer Luft als Medium und einer Druckdifferenz von  $10^5$  Pa aus, was für die hier zu betrachtenden Abfallgebinde als abdeckend anzusehen ist, ergibt sich damit

$$\varepsilon = 1.25 \frac{1}{\text{a}}$$

Bei einem minimalen Volumen der Behälteratmosphäre von 15 l ( $\hat{=}$  50 l Nettovolumen, Porenanteil 0.3) und unter Vernachlässigung des radioaktiven Zerfalls bedeutet dies eine Freisetzungsrates bezogen auf die Gußbehälteratmosphäre von  $0.08 \text{ a}^{-1}$ . Geringere Restvolumina sind nur vorstellbar bei überstehendem Restwasser, was nach den Annahmebedingungen für die Schachanlage Konrad nicht zulässig ist.

Die Freisetzung aus Behältern mit spezifizierter Dichtigkeit wird herangezogen, um allgemeine Anforderungen an Abfallgebinde zu formulieren, die sicherstellen, daß die beantragten Abgaberraten eingehalten werden. Hierfür ist die soeben bestimmte Freisetzungsrates ungeeignet, da sie untypisch für das erwartete Abfallaufkommen für die Schachanlage Konrad ist. Für charakteristischere Verhältnisse (z. B. 300 l Nettovolumen, Porenanteil 0.4) liegt dieser Wert bei  $0.01 \text{ a}^{-1}$ .

Zieht man den ersten Wert als Obergrenze der Freisetzung aus Gußbehältern heran, so erhält man damit in mehrfacher Hinsicht eine Überschätzung:

- Das angenommene Nettovolumen entspricht dem kleinsten derzeit vorgesehenen Gußbehälternettovolumen. Da die Mehrzahl der Behälter größere Nettovolumina besitzt, wird bei der gewählten Umrechnung die Freisetzungsrates um bis zu einem Faktor  $> 10$  überschätzt.
- Die spezifizierte Leckrate basiert auf einer Druckdifferenz von  $10^5$  Pa. Ohne Druckaufbau in den Abfallgebinden durch Gasbildung wird die Druckdifferenz bestimmt durch das natürliche Luftdruckgefälle. Das mittlere Luftdruckgefälle bewegt sich zwischen 5 und 10 hPa. In der gleichen Größenordnung liegen auch die Druckschwankungen in den Wettern unter Tage. Dies bedeutet eine Überschätzung der Leckrate um einen Faktor 10 bis 100, je nachdem, ob man bei der Umrechnung vom Prüfdruck auf die tatsächliche Druckdifferenz eine laminare oder turbulente Leckströmung unterstellt.
- Die zugrundegelegte Leckrate liegt um zwei bis drei Größenordnungen über den Meßwerten an Einzeldichtungen.

Durch die Konservativitäten werden allerdings auch Einflußfaktoren kompensiert, die zu einer Erhöhung der Leckrate führen können, aber nur im Einzelfall zu quantifizieren sind. Hierunter wird in erster Linie die Drucksteigerung im Behälter durch die  $H_2$ -Bildung z.B. durch Korrosion oder Radiolyse verstanden. Da die Abfallgebinde gemäß den Anforderungen drucklos angeliefert werden und eine Dichtigkeit nur für die Zeit der Lagerung in offenen Einlagerungskammern unterstellt wird, bleiben derartige Drucksteigerungen sicher auf Werte  $< 10^5$  Pa beschränkt. Sie kommen ohnehin nur in wenigen Fällen vor. Daher wird folgender Durchlässigkeitsfaktor für Behälter mit Dichtigkeitsanforderung als repräsentativer Wert verwendet:

$$f_G = 10^{-2} \text{ a}^{-1}$$

Der Durchlässigkeitsfaktor ist hierbei zu verstehen als der Anteil der aus dem Abfallprodukt in die Behälteratmosphäre freigesetzten Aktivität, der aufgrund von Leckagen in die Umgebungsatmosphäre gelangt.

Der Durchlässigkeitsfaktor von  $f_G = 10^{-2} \text{ a}^{-1}$  gilt zunächst für Typ B-geprüfte Behälter. Bei nachgewiesener gleicher oder höherer Dichtigkeit der Behälter kann der behälterspezifisch sich ergebende Durchlässigkeitsanteil verwendet werden.

## 2.2 Freisetzung aus dem Abfallprodukt

Hinsichtlich der Freisetzung im bestimmungsgemäßen Betrieb lassen sich die folgenden Abfallproduktgruppen unterscheiden:

- a) zementierte/betonierte Abfälle (B)
- b) in Bitumen oder Kunststoff fixierte Abfälle (O)
- c) Feststoffe, Konzentrate und Kunststoffprodukte (U)
- d) Metallische Feststoffe (M)
- e) Preßlinge (P)

Die Merkmale a) und b) sind selbsterklärend. Unter c) werden hier unverfestigte, dispergierbare Abfallarten wie Harze, Aschen oder Bauschutt verstanden. Unter d) sind metallische Abfallprodukte einzuordnen, die Aktivität in festhaftender Form enthalten (z.B. durch Aktivierung des Grundmaterials oder Eindiffundieren in die Oberfläche). Ferner werden Absorberstäbe aus Leichtwasserreaktoren dieser Abfallproduktgruppe zugerechnet. Mit e) werden unter Hochdruck verpreßte Abfallarten erfaßt.

Am intensivsten sind bislang zementierte/betonierte Abfälle untersucht worden. Daher werden im folgenden zunächst Freisetzungsraten für diese Abfallproduktgruppe abgeleitet und anschließend - soweit sinnvoll möglich - auf die übrigen Abfallproduktgruppen übertragen.

Die nuklidspezifischen relativen Freisetzungsraten  $F_i^p$  ( $i$  = Index des Radionuklids oder der Radionuklidgruppe,  $p$  = Index der Abfallproduktgruppe) sind dabei zu verstehen als Anteile der nuklidspezifischen Abfallgebindeaktivität, die pro Jahr in die Wetter der Einlagerungs-

kammer gelangen, sofern keine Dichtigkeitsanforderungen an die Behälter gestellt werden (vgl. Abschnitt 2.1). Diese Vorgehensweise liefert insbesondere bei den nicht gasförmig auftretenden Radionukliden sehr konservative Werte. Damit werden jedoch andererseits Unsicherheiten bei der Bestimmung von Freisetzungsraten zur sicheren Seite hin abgedeckt.

### 2.2.1 Freisetzung aus zementierten/betonierten Abfällen

Die Diskussion der Freisetzungsraten wird nachfolgend getrennt für einzelne Radionuklide bzw. Radionuklidgruppen durchgeführt, die jeweils ein bestimmtes charakteristisches Freisetzungsverhalten aufweisen:

- Edelgase

Bei betonierten/zementierten Abfällen treten Edelgase mit verschiedenen Bildungs- und Freisetzungsmechanismen auf. Zum einen können Edelgase bei der Spontanspaltung von Aktiniden entstehen (z.B. Kr 85, Xe 133). Eine Abschätzung der daraus resultierenden Edelgasableitung zeigt jedoch, daß pro Jahr theoretisch ein Maximalwert von ca.  $6.1 \cdot 10^{11}$  Bq/a (16.5 Ci/a) erreicht werden kann (siehe Anhang 1). Selbst bei diesem theoretischen Höchstwert ergibt sich eine maximale Edelgaskonzentration in der Umgebungsatmosphäre, die mehr als vier Größenordnungen unter den nach § 46 StrlSchV festgelegten Grenzwerten für die Umgebung liegt. Ermittelt man die Edelgasableitung auf der Basis des derzeit spezifizierten tatsächlichen Abfallaufkommens, ergibt sich zusätzlich eine Reduktion um etwa drei Größenordnungen. Das bedeutet, daß eine Edelgasableitung von etwa  $6 \cdot 10^8$  Bq/a (0.02 Ci/a) aufgrund der Spontanspaltung zu erwarten ist. Dieser Beitrag zur Strahlenexposition der Umgebung kann vernachlässigt werden. Es wird daher keine Freisetzung von Edelgasen aus den Abfällen aufgrund der Spontanspaltung unterstellt.

Als zweites kommen Edelgase in Form der Radionuklide Rn 220 und Rn 222 als Zerfallsprodukte der natürlichen Zerfallsreihen vor.

Da die Halbwertszeit beider Radionuklide klein ist im Vergleich zu dem für die Ableitung von Freisetzungsraten betrachteten Zeitintervall (1 a), muß zwischen der momentan im Abfall vorhandenen und der pro Jahr

gebildeten Aktivität unterschieden werden. Die hier angegebenen jährlichen Freisetzungsraten beziehen sich immer auf die zum jeweiligen Zeitpunkt im Abfall vorhandene Aktivität. Daher nehmen sie insbesondere für Verpackungen ohne Dichtigkeitsanforderung auch Werte  $> 1$  an.

Für die Ableitung der Freisetzungsraten wird unterschieden zwischen der Freisetzung von Radon aus dem Abfallprodukt in das unverfüllte Leervolumen des Behälters und der Freisetzung aus dem Behälter in die Wetter. Die daraus resultierenden Freisetzungsraten gelten zunächst nur für zementierte/betonierte Abfälle, deren charakteristischer Porenanteil und Wassergehalt die Diffusion von Radon entscheidend bestimmt. Eine Übertragung auf sonstige Abfälle erfolgt in den nachfolgenden Abschnitten anhand der im jeweiligen Fall zu unterstellenden Werte dieser Einflußparameter.

Für Radon-220 genügt wegen seiner extrem kurzen Halbwertszeit ( $T_{1/2}$  (Rn 220) = 55.6 s) bereits eine wenige Zentimeter dicke inaktive, umhüllende Materialbarriere, um eine Freisetzung in die Wetter zu unterbinden. Andernfalls ergibt sich eine geringfügige, aber endliche Freisetzung aus den oberflächennahen Bereichen des Abfallproduktes. Aus diesem Grund wird an Rn 220-bildende Abfälle die Forderung gestellt, daß bei Abfallgebinden ohne Dichtigkeitsspezifikation das Abfallprodukt von mindestens 4 cm inaktivem Beton umgeben ist. Damit kann eine Betrachtung der Rn 220-Freisetzung entfallen.

Aus der detaillierten Analyse des Freisetzungsverhaltens von Rn 222 (vgl. Anhang 2) ergeben sich unter diesen Randbedingungen folgende Freisetzungsraten für betonierte/zementierte Abfälle:

$$\begin{aligned} F_{\text{Rn 222}}^{\text{B}} &= 3.3 \text{ a}^{-1} && \text{für Abfallgebinde ohne Dichtigkeits-} \\ &&& \text{spezifikation bzw.} \\ F_{\text{Rn 222}}^{\text{B}} &= D \text{ a}^{-1} && \text{für Abfallgebinde, deren Verpackung einen} \\ &&& \text{Durchlässigkeitsfaktor D aufweist.} \end{aligned}$$

Schließlich tritt als weiteres Edelgas Ar 39 auf, das als Aktivierungsprodukt von K 39 im Borosilikatglas von Absorberstäben gebildet wird. Borosilikatglas wird als Absorbermaterial in Erstkernen von Druckwasserreaktoren eingesetzt, um die zu diesem Zeitpunkt maximale

Überschußreaktivität zu kompensieren und jederzeit einen positiven Moderator-temperatur-Koeffizienten auszuschließen. Berechnet man ausgehend von den experimentell ermittelten Freisetzungsraten /KRO 85/ die Ar 39-Freisetzung aus den Absorberelementen der Erstkerne von 17 Druckwasserreaktoren (Erwartungswert für das Jahr 2000), so ergibt sich eine jährliche Ableitung mit den Abwettern in der Größenordnung von  $3.7 \cdot 10^7$  Bq/a (1 mCi/a). Dabei wurden Rückhalteeffekte durch Behälterdichtigkeit und Kammerabschlußbauwerke nicht berücksichtigt. Daraus folgt, daß die Ableitung von Ar 39 vernachlässigbar ist und eine Freisetzung nicht betrachtet zu werden braucht.

- Tritium

Soweit Tritium in Form von tritiiertem Wasser (HTO) vorliegt, kann sein Freisetzungsverhalten auf verschiedenen Wegen abgeschätzt werden. Aus Messungen während des Einlagerungsbetriebes im Versuchsendlager Asse wird in /STI 83/ eine Freisetzungsrate von 5 % HTO pro Jahr abgeschätzt.

Bei Untersuchungen im KfK /RUD 79/ ist der Gewichtsverlust an Zementproben bei einjähriger geschlossener bzw. offener Lagerung bestimmt worden. Dabei haben sich bei Raumtemperatur Werte zwischen 0.1 % und 7.55 % ergeben. Berücksichtigt man das für die Verdunstung entscheidende Oberflächen/Volumen-Verhältnis und die Lagertemperatur von ca. 50 °C im Endlager Konrad, läßt sich daraus ein Wertebereich von 0.07 % bis 5 % abschätzen (siehe Anhang 3).

Legt man für die Freisetzung von HTO einen Wert von  $0.05 \text{ a}^{-1}$  ( $\hat{=}$  5 %/a) zugrunde, ergibt dies aus verschiedenen Gründen eine Überschätzung der Freisetzung:

- Der für die Asse ermittelte Wert ist in dieser Höhe nur während der Einlagerungsphase gemessen worden.
- Die in der Asse zuletzt praktizierte Form der Einlagerung (Versturztechnik) verursacht eine mechanische Belastung der Abfallgebinde, die die Wahrscheinlichkeit für erhöhte Leckraten vergrößert. Für Konrad ist statt dessen die Stapeltechnik vorgesehen, die mit geringeren mechanischen Belastungen für die Abfallgebinde verbunden ist.

- In Asse sind Fässer eingelagert worden. Hingegen werden in Konrad Fässer nur noch in Containern angeliefert. Das bedeutet, es existiert u. U. eine weitere Umhüllung.
- Schließlich stammt der o. g. experimentelle Höchstwert von 5 % aus Labormessungen an Proben ohne Behälter, was zu erheblich höheren Freisetzungsraten führt, wie die geringeren Vergleichswerte bei geschlossener Lagerung zeigen.

Ergebnisse bei entsprechenden Messungen deuten darauf hin, daß die hierdurch bewirkte Überschätzung bei intaktem Behälter mindestens zwei Größenordnungen ausmacht /GRA 87/.

Zur Abdeckung der Schwankungsbreite des Freisetzungsverhaltens von Abfallprodukt und Verpackung wird eine Freisetzungsrate von

$$F_{\text{HTO}}^{\text{B}} = 0.05 \text{ a}^{-1}$$

unterstellt.

Die Freisetzung von Tritium kann auch als tritierter Wasserstoff (HT) erfolgen. Dieser tritt zum einen mit einem wesentlichen Anteil auf, wenn Tritium in Metallen eindiffundiert vorliegt. Dieser Fall wird unter Abschnitt 2.2.4 behandelt.

Zum anderen erfolgt die Produktion von HT durch Radiolyse von HTO. Legt man hierfür die in /MÖC 82/ ermittelte Bildungsrate von maximal  $8 \text{ ml H}_2/\text{kg} \cdot 10^4 \text{ Gy}$  für zementierte/betonierte Abfälle zugrunde, läßt sich die HT-Freisetzung in Abhängigkeit von der Gesamtaktivität im Abfallprodukt (ohne Tritiumaktivität) beschreiben (siehe Anhang 4).

Für die Freisetzungsrates von HT werden daher gestaffelt nach den Gesamtaktivitäten außer Tritium folgende Werte angenommen:

Gesamtaktivität im Abfallgebinde ohne Tritiumaktivität	HT-Freisetzungsrates $F_{HT}^B$
$< 10^{10}$ Bq	$10^{-5} \text{ a}^{-1}$
$10^{10}$ Bq - $10^{12}$ Bq	$10^{-3} \text{ a}^{-1}$
$> 10^{12}$ Bq	$5 \cdot 10^{-2} \text{ a}^{-1}$

Zementierte/betonierte Abfälle mit einer Aktivität  $> 10^{12}$  Bq, die gleichzeitig HTO enthalten, treten nach den derzeit vorliegenden Angaben nur in einem Fall auf (F6208BKFK0).

Für unspezifiziertes Tritium oder solches, das nicht als HTO oder HT vorliegt, wird die ungünstigste Freisetzungsrates für Tritium aus den zuvor diskutierten Prozessen abdeckend in den Rechnungen unterstellt:

$$F_T^B (\text{unspez.}) = 10^{-1} \text{ a}^{-1}$$

Diesem Wert liegen zum einen die Kenntnisse über das derzeit vorhandene Abfallspektrum zugrunde, wonach die verwendete Freisetzungsrates als konservativ anzusehen ist. Zum anderen wird hiermit berücksichtigt, daß Tritiumverbindungen höherer Flüchtigkeit aufgrund der Konditionierungsverfahren und der Austauschrate mit wasserstoffhaltigen Verbindungen in den Abfällen ausgeschlossen werden können. Es wird angenommen, daß die Freisetzung analog zum HTO je zur Hälfte in Form von HT aus der Radiolyse und in Form von HTO erfolgt. Sofern der Beitrag der Radiolyse zur Freisetzung wie bei Tritium in Form von HTO quantifiziert wird (siehe obige Tabelle), kann hiervon analog Kredit genommen werden.

- Kohlenstoff-14 (C 14)

Kohlenstoff-14-haltige Abfälle entstehen in verschiedenen Bereichen in chemisch sehr unterschiedlicher Form. Zur Vereinfachung wird für die Ableitung von Freisetzungsraten unterschieden zwischen Abfällen, die C 14 als Feststoff enthalten und solchen, in denen C 14 in flüchtiger Form oder un spezifiziert vorliegt.

Sofern C 14 in nicht näher spezifizierter Form in den Abfällen vorkommt, wird es als in flüchtiger Form vorliegend unterstellt. Als Obergrenze der C 14-Freisetzung wird in diesem Fall die Flüchtigkeit von HTO zugrunde gelegt. Dies folgt aus analogen Überlegungen zur Tritiumfreisetzung. C 14 als Feststoff wird entsprechend den leicht löslichen Feststoffen (s.u.) behandelt. Kommt C 14 gleichzeitig als Feststoff und in flüchtiger Form in den Abfällen vor, so werden beide Bestandteile bezüglich der Freisetzung getrennt behandelt.

Als Freisetzungsraten für C 14 werden daher verwendet:

$$F_{C\ 14, fl}^B = 5 \cdot 10^{-2} a^{-1}$$

$$F_{C\ 14, f}^B = 5 \cdot 10^{-10} a^{-1}$$

Die Freisetzung von C 14 aus metallischen Feststoffen wird in Abschnitt 3.2.4 behandelt.

- Jod-129

Jod-129 taucht als Spaltprodukt nur in den Abfällen der Kernkraftwerke und der Wiederaufarbeitung auf. Dabei handelt es sich zum einen um Harze und Konzentrate, die unverfestigt in Gußbehältern gelagert werden. Bei Untersuchungen an Ionentauscherharzen wurde bei integrierten Dosen bis  $10^4$  Gy keine Abnahme der Beladepazität festgestellt /KÜH 77/. Aufgrund dieser Untersuchung wird der Anteil im Restwasser auch nach längerer Zeit mit maximal einigen Prozent abgeschätzt. Geht man nur von dem Anteil des Jods im Restwassergehalt der Harze und Kon-

zentrate aus, so läßt sich auf der Basis eines konservativen Verteilungskoeffizienten von  $10^{-4} \text{ t}\cdot\text{m}^{-3}$  ein zur Freisetzung verfügbarer Anteil von  $< 10^{-4}$  ermitteln (siehe Anhang 5).

Jodhaltige Abfälle treten zum anderen in Zementstein/Beton verfestigt auf. Freisetzungsraten für dieses Abfallprodukt sind nur bei Brandexperimenten bestimmt worden /NUK 84/. Der Freisetzungsanteil liegt danach mit  $\leq 2 \cdot 10^{-4}$  bei etwa dem  $3.5 \cdot 10^{-3}$ -fachen der Wasserfreisetzung. Dies läßt auf recht stabile Bindungsverhältnisse des Jods schließen.

Ähnliches ergibt sich aus Auslaugexperimenten an fixierten und unfixierten Jodverbindungen, die Werte zwischen 0.04 %/a und 1 %/a geliefert haben /BAR 82, CLA 77, FUR 83/, wenn man sie auf ein 200-l-Faß als den ungünstigsten Fall bezieht. Berücksichtigt man hierbei wiederum einen Verteilungskoeffizienten von  $10^{-4} \text{ t}\cdot\text{m}^{-3}$ , so läßt sich eine Freisetzungsrates von  $10^{-5} \text{ a}^{-1}$  bis  $10^{-6} \text{ a}^{-1}$  abschätzen.

Einen weiteren Bildungsmechanismus für eine potentielle Jodfreisetzung stellt die Radiolyse dar. Bei den hier vorliegenden Konzentrationen, Strahlungsdosen und chemischen Bedingungen wird jedoch nur eine geringfügige Umwandlung in die nicht flüchtige Jodatform beobachtet. /LIN 79/. Es wird daher zusammenfassend für Jod generell eine Freisetzungsrates von

$$F_{\text{I}}^{\text{B}} (\text{unspez.}) = 10^{-4} \text{ a}^{-1}$$

unterstellt.

Einen Sonderfall jodhaltiger Abfälle stellen silberhaltige Filtermaterialien der Abgasreinigung einer Wiederaufarbeitungsanlage dar. Das hierbei als Silberjodid (AgI) vorliegende Jod ist als Feststoff anzusehen und weist demzufolge entsprechend geringe Freisetzungsrates auf. Zur Abdeckung möglicher radiolytischer Prozesse wird jedoch eine gegenüber den Feststoffen erhöhte Freisetzungsrates von

$$F_{\text{I}}^{\text{B}} (\text{WAA}) = 10^{-6} \text{ a}^{-1}$$

zugrunde gelegt.

• Feststoffe

Ein Transport radioaktiver Feststoffe aus den Abfallgebinden in die Wetter der Schachanlage Konrad setzt voraus, daß ein Übergang in eine luftgetragene Form stattfindet. Für zementierte/betonierte Abfälle ist hierzu zunächst erforderlich, die Feststoffe aus der Abfallmatrix zu lösen. Dies geschieht vorrangig durch Auslaugung ins Restwasser. Andere Übergangsformen sind demgegenüber unbedeutend (Festkörperdiffusion, Feststoffverdampfung).

Der zweite Schritt, der zur Freisetzung aus den Abfallgebinden erforderlich ist, liegt im Übergang der gelösten in die luftgetragene Form. Geht man von einem dichten Abfallgebilde aus, ist hierfür der Verteilungskoeffizient maßgebend. Im Extremfall der Verdunstung an einer offenen Grenzfläche Wasser-Luft müßte statt dessen ein Mitverdampfungsfaktor betrachtet werden. Bei einer angenommenen Wasser- bzw. HTO-Freisetzungsrate von 5 % pro Jahr erscheint zwar die erste Übergangsform der Realität am nächsten. Da jedoch Daten über Verteilungskoeffizienten bei den gegebenen Umgebungsbedingungen nur für einige wenige Radionuklide vorliegen, wird hier die zweite Art des Überganges zugrunde gelegt.

Hierbei ist zu berücksichtigen, daß bei dieser Betrachtungsweise eine freie Grenzschicht Wasser/Luft unterstellt wird. In der Realität liegt nur ein Bruchteil des Wassers in ungebundener Form als Porenwasser vor. Eine freie Grenzschicht kann dabei näherungsweise nur in oberflächennahen Bereichen des Abfallproduktes angenommen werden. Für alle übrigen Bereiche stellt der Zementstein/Beton eine zusätzliche Barriere für die Freisetzung dar. Beides wird bei der hier gewählten Vorgehensweise jedoch vernachlässigt.

Für die Ableitung von Freisetzungsraten wird vereinfachend zum einen die Gruppe der leichter löslichen Elemente (F) mit maximalen Auslaugraten zwischen 0.01 und 1 %/a (z.B. Cs, Co, Sr) betrachtet. Dies sind im wesentlichen die Elemente bis zur Ordnungszahl 56 und Radium, sofern sie nicht zu den oben diskutierten Sondernukliden gehören. Zum anderen werden die restlichen Elemente mit geringer Löslichkeit ( $\hat{=}$  Auslaugraten  $10^{-5}$  -  $10^{-3}$  %/a) als Gruppe (SF) zusammengefaßt.

Der Übergang in die luftgetragene Form wird durch Aerosolaustrag beim Verdampfen angenommen. Dies ergibt konservative Ergebnisse für die Freisetzung, da bei entsprechenden Experimenten wesentlich höhere Luftwechselzahlen als im Abfallgebäude vorliegen und keine Sättigungseffekte eintreten, wie sie unter Endlagerbedingungen zu erwarten sind. Messungen unter verschiedenen Randbedingungen /MIS 68/ sowie thermodynamische Modellbetrachtungen /DOR 82/ liefern hierfür einen Mitverdampfungsfaktor von  $\leq 10^{-6}$  bei einer Temperatur von 50 °C.

Vergleicht man dies mit gemessenen Verteilungskoeffizienten von  $> 10^{-10} \text{ t} \cdot \text{m}^{-3}$  für einzelne Radionuklide, wird deutlich, daß der angegebene Reduktionsfaktor erhebliche Sicherheitsreserven beinhaltet.

Berücksichtigt man nun noch, daß nur 5 % des Wasserinventars eines Abfallgebüdes pro Jahr freigesetzt werden, erhält man damit als Obergrenzenabschätzung für die beiden betrachteten Radionuklidgruppen:

$$F_F^B = 5 \cdot 10^{-10} \text{ a}^{-1}$$

$$F_{SF}^B = 5 \cdot 10^{-12} \text{ a}^{-1}$$

Dabei wurde der ermittelte Wert für die letzte Gruppe um einen Faktor 10 erhöht, um denkbare Sekundäreffekte (Oberflächeneffekte) abzudecken, die bei der ermittelten Freisetzungsrates u.U. noch vergleichbare Beiträge liefern könnten.

Um eine Zuordnung zu den Antragswerten für die Ableitung radioaktiver Stoffe mit den Abwettern zu erhalten, werden die leichter löslichen Feststoffe mit Ausnahme von Ra 226 im folgenden vereinfachend mit  $\beta/\gamma$ -Strahlern gleichgesetzt. Analog werden die schwer löslichen Feststoffe mit den  $\alpha$ -Strahlern gleichgesetzt, wobei auch für den  $\beta/\gamma$ -Strahler Pu 241 die Freisetzungsrates für  $\alpha$ -Strahler gelten.

### 2.2.2 Freisetzung aus in Bitumen oder Kunststoff fixierten Abfällen

Geht man in gleicher Weise wie bei den zementierten/betonierten Abfällen vor, ergibt sich folgendes Bild:

- Edelgase

Die für zementierte/betonierte Abfälle durchgeführten Obergrenzenabschätzungen für die Freisetzung von Ar 39 und Kr 85 decken alle anderen Abfallproduktgruppen mit ab. Für Radon werden die gleichen Freisetzungsraten wie bei zementierten/betonierten Abfällen unterstellt, wenn auch die organischen Materialien, wie z. B. Bitumen, i.a. eine geringere Durchlässigkeit aufweisen:

$$F_{\text{Rn } 222}^0 = 3.3 \text{ a}^{-1} \quad \text{für Abfallgebilde ohne Dichtigkeitsspezifikation,}$$

$$F_{\text{Rn } 222}^0 = D \text{ a}^{-1} \quad \text{für Abfallgebilde, deren Verpackung einen Durchlässigkeitsfaktor D aufweist.}$$

- Tritium

Eine Freisetzung von Tritium als HTO ist in vergleichbarer Höhe wie bei zementierten/betonierten Abfällen nicht möglich, da die organische Matrix weitgehend wasserfrei ist. Da bei in Bitumen oder Kunststoff fixierten Abfällen ohnehin nur geringe Tritiumaktivitäten vorkommen, können hierfür abdeckend die für zementierte/betonierte Abfälle hergeleiteten Freisetzungsraten verwendet werden, ohne das Ergebnis allzu sehr zu verfälschen:

$$F_{\text{HTO}}^0 = 5 \cdot 10^{-2} \text{ a}^{-1}$$

$$F_{\text{T(unspez.)}}^0 = 10^{-1} \text{ a}^{-1}$$

Die Freisetzung von Tritium als HT aus in Bitumen oder Kunststoff fixierten Abfällen erfolgt vorwiegend durch Radiolyse. Die Verhältnisse für diesen Freisetzungsmechanismus sind ähnlich wie bei den zementierten/betonierten Abfällen, da vergleichbare Wasserstoffbildungsraten in Bitumen gemessen worden sind /BAT 83/. Daher wird hier für organisch fixierte Abfälle die Freisetzung von Tritium als HT beschrieben durch folgende Freisetzungsraten:

Gesamtaktivität im Abfallgebinde ohne Tritiumaktivität	HT-Freisetzungsrates $F_{HT}^0$
$< 10^{10}$ Bq	$10^{-5} \text{ a}^{-1}$
$10^{10}$ Bq - $10^{12}$ Bq	$10^{-3} \text{ a}^{-1}$
$> 10^{12}$ Bq	$5 \cdot 10^{-2} \text{ a}^{-1}$

• Kohlenstoff-14

In Bitumen oder Kunststoff fixierte Abfälle enthalten nach den derzeitigen Spezifikationen mit einer Ausnahme kein C 14. Für dieses Abfallprodukt (verfestigte Ionenaustauscherharze aus Kernkraftwerken) wird die für unverfestigte Ionenaustauscherharze abgeleitete Freisetzungsrates von  $5 \cdot 10^{-3} \text{ a}^{-1}$  (vgl. Abschnitt 2.2.3) als abdeckend angesehen:

$$F_{C(KKW)}^0 = 5 \cdot 10^{-3} \text{ a}^{-1}$$

• Jod-129

Ähnlich wie C 14 taucht I 129 nur in einem einzigen in Bitumen oder Kunststoff fixierten Abfall auf. Meßwerte für in organischer Matrix verfestigte jodhaltige Abfälle liegen nicht vor. Wie jedoch Vergleichsmessungen der Auslaugraten für andere Radionuklide zeigen /BAT 83, NOM 83/, ergibt sich für dieses Abfallprodukt i.a. eine geringere oder ähnlich hohe Auslaugbarkeit im Vergleich zu Beton als Fixierungsmittel. Da Wasser als Auslaugmedium bei organischer Fixierung jedoch praktisch nicht zur Verfügung steht (Massenanteil der Restfeuchte  $< 1 \%$ ), liegt die Freisetzungsrates hier sicher günstiger als bei Betonfixierung. Daher wird die dort abgeleitete Freisetzungsrates als Obergrenzenabschätzung übernommen:

$$F_I^0 = 10^{-4} \text{ a}^{-1}$$

• Feststoffe

Wie bereits beim Jod dargestellt, ergeben sich für in Bitumen oder Kunststoff fixierte Abfälle i.a. geringere oder vergleichbar hohe Auslaugraten. Da Wasser als Auslaug- und Transportmedium jedoch praktisch nicht vorliegt, sind die Freisetzungsraten gering. Eine Unterscheidung nach der Löslichkeit ist daher nicht sinnvoll. Deshalb werden die Freisetzungsraten schwer löslicher Radionuklide für zementierte/betonierte Abfälle für alle Feststoffe übernommen, sofern der Massenanteil der Restfeuchte weniger als 1 % beträgt:

$$F_F^0 = 5 \cdot 10^{-12} \text{ a}^{-1}$$

$$F_{SF}^0 = 5 \cdot 10^{-12} \text{ a}^{-1}$$

2.2.3 Freisetzung aus Feststoffen, Konzentraten und Kunststoffprodukten

Entsprechend der Untergliederung der Radionuklidgruppen in den vorangegangenen Abschnitten ergibt sich:

• Edelgase

Die für fixierte Abfälle abgeleiteten Freisetzungsraten für Rn 222 berücksichtigen die geringe Durchlässigkeit derartiger Abfallprodukte aufgrund des niedrigen Porenanteils bzw. des hohen Restwassergehaltes. Beide Voraussetzungen können für die hier zusammengefaßten, unfixierten Abfälle nicht in Anspruch genommen werden. Modellrechnungen sowie Vergleiche mit gemessenen Radon-Diffusionsgeschwindigkeiten in vergleichbaren Materialien (siehe Anhang 2) liefern statt dessen eine nur geringfügig verzögerte und dadurch reduzierte Freisetzung. Daher werden für die hier diskutierten Abfälle folgende Freisetzungsraten angewendet:

$$F_{Rn\ 222}^U = 53 \text{ a}^{-1} \text{ für Abfallgebinde ohne Dichtigkeitsspezifikation,}$$

$$F_{Rn\ 222}^U = D \text{ a}^{-1} \text{ für Abfallgebinde, deren Verpackung einen Durchlässigkeitsfaktor } D \text{ aufweist.}$$

Für alle übrigen Edelgasnuklide gilt das für betonierte/zementierte Abfälle Gesagte.

- Tritium

In unfixierten, nicht formbeständigen Abfällen kommt Tritium als HTO zum einen in Ionentauscher-Harzen in Gußbehältern vor. Entsprechend einem Restfeuchteanteil von 15-30 %, der Tritiumaktivität und der Sättigungsfuchte bei Lagertemperatur ergibt sich ein Anteil in der Behälteratmosphäre von  $< 2 \cdot 10^{-4}$ .

In geringer Konzentration tritt Tritium zum anderen in unfixierten Abfällen aus Forschung und Kernkraftwerken auf. Sofern es sich hierbei nicht um chemisch gebundenes Tritium handelt, liegen ähnliche Verhältnisse wie bei zementierten/betonierten Abfällen vor, wo Tritium zum überwiegenden Teil nur physikalisch schwach gebunden ist. Demzufolge ist hier eine analoge Freisetzungsrate ( $0.05 \text{ a}^{-1}$ ) angemessen.

Zusammenfassend wird für Tritium als HTO abdeckend eine Freisetzungsrate von

$$F_{\text{HTO}}^{\text{U}} = 5 \cdot 10^{-2} \text{ a}^{-1}$$

zugrunde gelegt. Dies überschätzt zwar die Freisetzung aus dem Abfallprodukt in dichten Behältern. Für das Gesamtergebnis ist das jedoch von untergeordneter Bedeutung.

Für die Freisetzung von Tritium als HT durch Radiolyse kann wieder auf die Betrachtungen bei zementierten/betonierten Abfällen zurückgegriffen werden. Dabei wird implizit unterstellt, daß sich das Tritium komplett als HTO in der Restfeuchte befindet. Eventuelle stabilere Bindungsformen werden nicht berücksichtigt. Folglich gilt:

Gesamtaktivität im Abfallgebinde ohne Tritiumaktivität	HT-Freisetzungsrate $F_{HT}^U$
$< 10^{10}$ Bq	$10^{-5} \text{ a}^{-1}$
$10^{10}$ Bq - $10^{12}$ Bq	$10^{-3} \text{ a}^{-1}$
$> 10^{12}$ Bq	$5 \cdot 10^{-2} \text{ a}^{-1}$

Messungen an unfixierten Kernkraftwerksabfällen mit hohen  $\beta/\gamma$ -Aktivitäten ( $> 3.7 \cdot 10^{13}$  Bq pro Abfallgebinde) /KRO 85/ zeigen, daß die hier verwendeten Bildungs- bzw. Freisetzungsraten von HT durch Radiolyse abdeckend sind, selbst wenn das Tritium als HTO ungebunden in überstehendem Restwasser vorliegt.

Für sonstiges, insbesondere unspezifiziertes Tritium wird wiederum konservativ die maximale Freisetzungsrates der beiden zuvor diskutierten Mechanismen verwendet, sofern nicht vom Verursacher ein geringerer Beitrag der Radiolyse nachgewiesen wird (vgl. S. 10):

$$F_{T(\text{unspez.})}^U = 10^{-1} \text{ a}^{-1}$$

- Kohlenstoff-14

Prinzipiell gelten die bereits bei den zementierten/betonierten Abfällen dargestellten Überlegungen, so daß auch hier von

$$F_{C\ 14,fl}^U = 5 \cdot 10^{-2} \text{ a}^{-1} \text{ bzw.}$$

$$F_{C\ 14,f}^U = 5 \cdot 10^{-10} \text{ a}^{-1}$$

ausgegangen wird.

Für den in dieser Abfallproduktgruppe am häufigsten vertretenen C 14-haltigen Abfall, die Ionentauscher-Harze aus Kernkraftwerken, wird hier beispielhaft die Freisetzungsrates für C 14 abgeleitet. Aus Messungen an Gußbehältern läßt sich /KRO 85/ ein in der Behälteratmosphäre befindlicher Aktivitätsanteil von  $\leq 10^{-4}$  für C 14 bestimmen. Aufgrund der möglichen Schwankungsbreite der Meßwerte wird hier eine Freisetzungsrates von  $5 \cdot 10^{-3} \text{ a}^{-1}$  als abdeckend angesehen, sofern kein weiterer Nachweis erfolgt. Legt man die zuvor dargestellten allgemein anzuwendenden Freisetzungsrates zugrunde, bedeutet dies, daß ein Anteil von  $\leq 10 \%$  der C 14-Aktivität in flüchtiger Form vorliegt und damit dominierend zur Freisetzung beiträgt. Soweit repräsentative Messungen des Abfallverursachers an einer ausreichenden Zahl von Abfallgebunden vorliegen, kann die hier konservativ berücksichtigte Schwankungsbreite entsprechend reduziert werden.

- Jod-129

Unfixierte jodhaltige Abfälle treten mit einer Ausnahme nur als Ionentauscher-Harze in Gußbehältern auf. Hierfür wurde bereits bei zementierten/betonierten Abfällen ein für die Freisetzung verfügbarer Anteil in der Behälteratmosphäre von  $< 10^{-4}$  abgeschätzt.

In einem weiteren Abfall (K54130SNRO) tritt I 129 mit geringem Inventar unfixiert auf. Da Jod hier als Feststoff vorliegt und kein Lösungsmedium vorhanden ist, wäre eine Behandlung analog den Feststoffen denkbar. Um Unsicherheiten abzudecken, wird dennoch durchgehend eine Freisetzungsrates von

$$\frac{U}{F_I} = 10^{-4} \text{ a}^{-1}$$

angesetzt.

- Feststoffe

Da ein Mechanismus zur Überführung von nennenswerten Anteilen der Feststoffe in luftgetragene Form i. a. nicht zur Verfügung steht, wird durchgehend mit der kleinsten Freisetzungsrates der zementierten/

betonierten Abfälle gerechnet, sofern der Massenanteil der Restfeuchte im Abfallprodukt  $< 1 \%$  beträgt:

$$F_F^U = 5 \cdot 10^{-12} \text{ a}^{-1}$$

$$F_{SF}^U = 5 \cdot 10^{-12} \text{ a}^{-1}$$

Für Ionentauscher-Harze wird wegen der höheren Restfeuchte

$$F_{IT,F}^U = 5 \cdot 10^{-10} \text{ a}^{-1}$$

verwendet.

#### 2.2.4 Freisetzung aus metallischen Feststoffen

Die Freisetzung aus metallischen Feststoffen setzt eine Diffusion des radioaktiven Stoffes durch einen Festkörper voraus. Da solche Effekte nur für gasförmige Stoffe (z. B. Wasserstoff, Argon) in nennenswertem Umfang beobachtet werden, wird für alle übrigen Radionuklide keine Freisetzung unterstellt.

Die Freisetzung gasförmiger Stoffe durch Festkörperdiffusion wird im folgenden zunächst für Wasserstoff als dem ungünstigsten Fall abgeschätzt. Aus der Permeationsrate von Wasserstoff /LOR 79/ in Stahl läßt sich bei  $50 \text{ }^\circ\text{C}$  und einem ungünstigen Oberfläche/Volumen-Verhältnis von  $30 \text{ cm}^{-1}$  eine Freisetzungsrates  $< 3 \cdot 10^{-7} \text{ a}^{-1}$  ableiten. In anderen Metallen (Wasserstoff-Getter) kann sie wesentlich niedriger liegen.

Einen Sonderfall stellen Tritium-Targets dar wegen ihrer extrem hohen Tritium-Konzentration ( $3.7 \cdot 10^{13} \text{ Bq H-3 pro g TiT}_x$ ). Meßwerte liegen hierfür allerdings nur beschränkt vor. In /MCK 79/ wird für die Freisetzungsrates ein Wert  $\leq 2 \cdot 10^{-4} \text{ a}^{-1}$  genannt. Entsprechend dem Verwendungszweck der Targets ist das Tritium hierbei allerdings in einem starken Wasserstoffgetter (Titan) gebunden.

Meßergebnisse, die für beide o. g. Fälle als Abschätzung herangezogen werden können, resultieren ferner aus Freisetzungsexperimenten an zementierten Brennelementhülsen. In /KÖS 84/ wird die gasförmige Freisetzung von Tritium für dieses Abfallprodukt durch Spülen eines Probekörpers mit einem ständig erneuerten Trägergas bestimmt. Als Ergebnis wird eine Freisetzungsrate von  $< 2 \cdot 10^{-6} \text{ a}^{-1}$  angegeben.

Die Auslaugrate ist von den gleichen Experimentatoren /KÖS 84/ zu  $\leq 10^{-3} \text{ \%/a}$  bestimmt worden. Berücksichtigt man, daß für die Freisetzung noch der Übergang von HTO in Luft erforderlich ist, läßt sich eine Freisetzungsrate von  $< 10^{-6} \text{ a}^{-1}$  abschätzen. Um Unsicherheiten aus der höheren Tritiumkonzentration in Targets abzudecken, wird eine Freisetzungsrate für Tritium als HT aus metallischen Feststoffen von

$$F_{\text{HT}}^{\text{M}} = 5 \cdot 10^{-4} \text{ a}^{-1}$$

unterstellt.

Für Ar 39 ist bereits in Abschnitt 2.2.1 aus Meßergebnissen an zerlegten Absorberstäben /KRO 85/ abgeschätzt worden, daß kein signifikanter Beitrag zur Strahlenexposition der Umgebung oder des Personals zu erwarten ist.

Als weiteres Radionuklid, das möglicherweise gasförmig aus metallischen Feststoffen freigesetzt werden kann, wird hier C 14 betrachtet. Es wird über die Reaktion N 14 (n,p) C 14 aus den Stickstoffverunreinigungen metallischer Werkstoffe gebildet. Meßwerte für die C 14-Freisetzung aus metallischen Feststoffen liegen nur für Zircaloy als Trägermaterial vor /KOP 88/. Sie weisen aus, daß der gebildete Kohlenstoff-14 als  $^{14}\text{CO}_2$  freigesetzt wird. Die Freisetzungsrate läßt sich bei vorsichtiger Extrapolation auf Endlagerverhältnisse zu  $< 10^{-6} \text{ a}^{-1}$  abschätzen. Daher wird hier eine Freisetzungsrate von

$$F_{\text{C14}}^{\text{M}} = 10^{-6} \text{ a}^{-1}$$

unterstellt. Sie entspricht den oben diskutierten Meßwerten für die Wasserstoffdiffusion in Metallen und ist daher sicher abdeckend für

CO<sub>2</sub>, dessen größerer Moleküldurchmesser die Diffusionsgeschwindigkeit gegenüber Wasserstoff deutlich verringert.

Eine Freisetzung von Feststoffen aus möglichen Oberflächenkontaminationen metallischer Feststoffe wird hier nicht berücksichtigt. Für den Übergang derartiger Aktivitäten in luftgetragene Form sind bei trockener Lagerung mechanische Einwirkungen erforderlich, die unter Lagerungsbedingungen in offenen Einlagerungskammern nicht zu erwarten sind. In abgeworfenen Kammern ist eine Feststofffreisetzung aus den Abfallgebinden wegen der Rückhaltewirkung des Versatzmaterials und ggf. des Kammerabschlusses ohne Bedeutung (vgl. Kap. 3).

#### 2.2.5 Freisetzung aus Preßlingen

Aufgrund ihrer Verdichtung ergeben sich für dieses Abfallprodukt eher günstigere Rückhalteeigenschaften als bei den Feststoffen, Konzentraten und Kunststoffprodukten. Da eine Quantifizierung hier nicht möglich ist, werden für beide Abfallproduktgruppen die gleichen Freisetzungsraten verwendet.

### 2.3 Zusammenfassung

Zusammenfassend ergeben sich damit die in Tabelle 2-1 wiedergegebenen Freisetzungsraten, die im Falle der Abfallgebinde mit spezifizierter Dichtigkeit noch mit den entsprechenden Durchlässigkeitsfaktoren zu multiplizieren sind.

Bei gleichzeitigem Vorliegen eines Radionuklides in mehreren Spezifikationen in einem Abfallgebinde, z.B. C 14 in flüchtiger Form und als Feststoff, ist entweder die ungünstigste Freisetzungsratenrate zugrunde zu legen, oder die verschiedenen Freisetzungsraten sind auf die entsprechenden Aktivitätsanteile im Abfallgebinde getrennt anzuwenden. Im letzten Fall ergibt sich damit beispielsweise bei einem Anteil von C 14 in flüchtiger Form von  $\leq 10\%$  eine Freisetzungsratenrate bezogen auf die gesamte C 14-Aktivität von  $5 \cdot 10^{-3} \text{ a}^{-1}$ . Analog können andere Verteilungen zu einer pauschalen Freisetzungsratenrate zusammengefaßt werden.

Tab. 2-1:

Relative Freisetzungsraten radioaktiver Stoffe aus Abfallprodukten; Gesamtaktivität im Abfallprodukt ohne Tritiumaktivität: a)  $< 10^{10}$  Bq, b)  $\geq 10^{10}$  Bq bis  $10^{12}$  Bq, c)  $\geq 10^{12}$  Bq; Massenanteil des Wassers bzw. der Restfeuchte im Abfallprodukt: d)  $< 1$  %, e)  $\geq 1$  %.

Radionuklid/ Radionuklidgruppe	Metallische Feststoffe $a^{-1}$	Sonstige Abfallproduktgruppen $a^{-1}$
<u>Tritium:</u>		
- unspezifiziert		$\leq 0.1$
- als HTO		a) $5 \cdot 10^{-2}$ (HTO) + $10^{-5}$ (HT) b) $5 \cdot 10^{-2}$ (HTO) + $10^{-3}$ (HT) c) $5 \cdot 10^{-2}$ (HTO) + $5 \cdot 10^{-2}$ (HT)
- als HT	$5 \cdot 10^{-4}$	
<u>C 14:</u>		
- unspezifiziert oder in flüchtiger Form	$1 \cdot 10^{-6}$	$5 \cdot 10^{-2}$
- als Feststoff		$5 \cdot 10^{-10}$
<u>I 129:</u>		
- unspezifiziert		$10^{-4}$
- auf silberhaltigen Filtern der Abgasreinigung von Wiederaufarbeitungsanlagen		$10^{-6}$
<u>Rn 222: *)</u>		
- Behälter ohne Dichtigkeits- spezifikation		
• unfixierte Abfälle		53
• zementfixierte Abfälle		3.3
- Behälter mit Dichtigkeits- spezifikation		1.0
Leicht lösliche Feststoffe (Ra 226 und $\beta/\gamma$ -Aerosole außer Pu 241)	d) e)	$5 \cdot 10^{-12}$ $5 \cdot 10^{-10}$
Schwer lösliche Feststoffe ( $\alpha$ -Aerosole und Pu 241 außer Ra 226)		$5 \cdot 10^{-12}$

\*) Die für Rn hier angegebenen Freisetzungsteile sind auf die entsprechende Ra 226-Aktivität in den Abfällen bezogen.

### 3. AKTIVITÄTSFREISETZUNG AUS EINLAGERUNGSKAMMERN

Solange die Abfälle in den Einlagerungskammern unversetzt sind, wird für die aus den Abfallgebinden freigesetzten radioaktiven Stoffe bei ihrem Transport mit den Abwettern zum Diffusor keine Rückhaltung, Verzögerung oder Ablagerung unterstellt. Die aus den Abfallgebinden freigesetzten radioaktiven Stoffe werden folglich als luftgetragen und spontan in die Abwetter transportiert angenommen.

Bei den im Pumpversatz versetzten Abfällen wird die Freisetzung luftgetragener Aktivität bewirkt durch:

- Austreiben der Restluft in die wetterführenden Strecken infolge Gasbildung in den Einlagerungskammern
- Druckschwankungen in den untertägigen Wettern und Temperaturerhöhungen in den Einlagerungskammern
- Diffusion durch das Versatzmaterial und den Kammerabschluß.

Die Austreibung der Restluft durch Gasbildung erfolgt mit der in /GRS 90a/ abgeleiteten Rate, falls keine weiteren Maßnahmen ergriffen werden. Sofern durch Begrenzung der Gasbildung in einer Einlagerungskammer geringere Werte erzielt werden, z.B. bei Errichtung eines Kammerabschlußbauwerkes, werden sie entsprechend für die Ableitung von Anforderungen an die Abfallbinde in einer solchen Kammer unterstellt.

Für die Analyse der Freisetzung durch Druckschwankungen werden diese so gewählt, daß reale Luftdruckschwankungen und Temperaturerhöhungen hinsichtlich Aktivitätstransport davon abgedeckt werden. Die Analyse zeigt, daß Druckschwankungen wegen der geringen Permeabilität des Versatzes keinen wesentlichen Beitrag liefern (siehe hierzu /GRS 88/).

Die Freisetzung infolge Diffusion durch den Kammerversatz und den Kammerabschluß wird entsprechend den Diffusionsgesetzen beschrieben. Sie trägt ebenfalls nur vernachlässigbar zur Freisetzung bei.

Da bei Einwirkung des Gebirges auch Behälter mit quantifizierbarer Dichtigkeit deformiert werden können, ist nach einigen Jahren mit einer Verschlechterung der Dichtigkeit dieser Behälter zu rechnen.

Deshalb wird konservativ die spezifizierte Dichtigkeit für diese Verpackungen nur für die Zeit unterstellt, während der die Abfallgebinde unversetzt in offenen Einlagerungskammern stehen.

Eine Freisetzung radioaktiver Stoffe aus versetzten Bereichen, wird nur für die Radionuklide Tritium in Form von HT und C 14, soweit es nicht als Feststoff oder in Form von Kohlenstoffdioxid vorliegt, unterstellt.

Die Freisetzung von Tritium als HTO aus versetzten Bereichen wird analog zu den unversetzten Abfällen betrachtet. Für unversetzte Abfälle wurde eine Freisetzungsrates von  $0.05 \text{ a}^{-1}$  auf der Basis eines Abfallgebundes von der Größe eines 200 l-Fasses abgeleitet. Bei einer vollständigen Einbettung der Abfälle im Beton des Pumpversatzes muß diese Rate auf das entsprechend kleinere Oberflächen/Volumen - Verhältnis des gesamten Betonkörpers einer Einlagerungskammer übertragen werden.

Wendet man die ermittelte Freisetzungsrates für Tritium als HTO in versetzten Bereichen auf die maximal zulässige Aktivität einer Einlagerungskammer mittlerer Größe an, ergibt sich ein Anteil von rund 2 % zur beantragten Ableitung von Tritium über den Diffusor. Berücksichtigt man ferner, daß für HTO ein Retardationsfaktor von 7 000 beim Transport durch feuchte Medien experimentell bestimmt wurde /BEY 87/, wird der Beitrag von Tritium als HTO aus versetzten Bereichen zur beantragten wie auch zur tatsächlichen Ableitung von Tritium über den Diffusor vernachlässigbar klein.

Die Freisetzung von Rn 222 ist aufgrund der kurzen Halbwertszeit, verglichen mit seiner Wanderungszeit durch den Versatz vernachlässigbar. Wegen der erheblichen Rückhaltewirkung des Versatzes für Feststoffe ist ihre Freisetzung aus versetzten Bereichen vernachlässigbar. Gleiches gilt für I 129, das als Feststoff zurückgehalten wird oder chemisch bzw. adsorptiv am Versatzmaterial gebunden wird.

Erfahrungswerte der Asse weisen aus, daß gasförmige C 14-Verbindungen zu ca. 90 % in der chemischen Form Kohlenstoffdioxid vorliegen. Kohlenstoffdioxid besitzt gegenüber vielen anderen flüchtigen Kohlenstoffverbindungen die Eigenschaft einer starken Wasserlöslichkeit in neutralen und alkalischen Wässern.

Da das Porenwasser des Versatzes stark alkalisch ist, kann davon ausgegangen werden, daß C 14 in der chemischen Form Kohlenstoffdioxid sich praktisch vollständig im Porenwasser auflöst und nicht zur Freisetzung aus versetzten Einlagerungsbereichen beiträgt.

Aufgrund des vorgenannten Sachverhaltes ist es für eine konservative Analyse ausreichend, wenn die Ermittlung der luftgetragenen C 14-Aktivität in versetzten Bereichen der Einlagerungskammern mit um den Faktor 10 reduzierten Freisetzungsfaktoren für C 14 durchgeführt wird.

#### 4. SONSTIGE FREISETZUNGEN

Neben der zuvor beschriebenen Freisetzung radioaktiver Stoffe aus den Einlagerungskammern kann eine Freisetzung auch bei der Handhabung oder der übertägigen Lagerung in der Pufferhalle erfolgen. Ferner ist generell eine Freisetzung durch Ablösung von nicht festhaftender Oberflächenkontamination der Abfallbehälter möglich. Sie tritt allerdings überwiegend nur bei der Handhabung der Abfallgebinde auf.

Die Freisetzung radioaktiver Stoffe, die während der Handhabung und vorübergehenden Lagerung der Abfallgebinde über Tage auftreten, liegt erheblich unter den Freisetzungen radioaktiver Stoffe aus eingelagerten Abfallgebinden.

Zum einen betragen die Transportzeiten der Abfallgebinde über Tage weniger als ein Promille ihrer Lagerzeit in unversetzten Einlagerungsbereichen. Folglich ist der Beitrag zur Aktivitätsfreisetzung während der Transportvorgänge gering. Zum anderen werden in der Pufferhalle im Mittel deutlich weniger als ein Prozent der Anzahl der als in unversetzten Einlagerungsbereichen befindlich unterstellten Anzahl von Abfallgebinden gelagert. Sofern die in der Pufferhalle lagernden Abfallgebinde Aktivitätswerte unterhalb der Garantiewerte aufweisen, ist somit gewährleistet, daß die Aktivitätsableitung aus der Pufferhalle weniger als 1 % der Antragswerte beträgt. Bei Abfallgebinden mit Aktivitätsinhalten oberhalb der Garantiewerte wird durch eine entsprechende Begrenzung der Pufferzeit gewährleistet, daß die o.g. Bedingung eingehalten wird.

Die atmosphärischen Ausbreitungsbedingungen für Ableitungen aus der Umladehalle und der Pufferhalle über den Kamin sind vergleichbar mit den entsprechenden Bedingungen für die Ableitungen aus den Einlagerungskammern über den Diffusor. Daher kann der Beitrag der Aktivitätsfreisetzung aus Abfallgebinden während der Handhabung und Lagerung über Tage zur Strahlenexposition der Umgebung vernachlässigt werden.

Die Freisetzung von nicht festhaftender Oberflächenkontamination von Abfallgebinden wird anhand von Grenzwerten ihrer Oberflächenkontamination abgeschätzt. Der Anteil dieser Freisetzung beträgt jeweils we-

niger als ein Promille der Grenzwerte für die Ableitung von  $\beta/\gamma$ - und  $\alpha$ -Strahlern mit den Abwettern. Die hieraus resultierende potentielle Strahlenexposition in der Umgebung der Anlage ist vernachlässigbar, wie folgende Abschätzung zeigt:

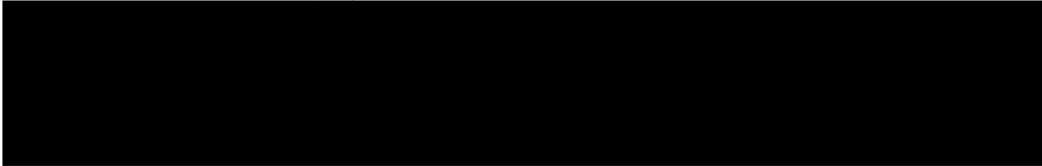
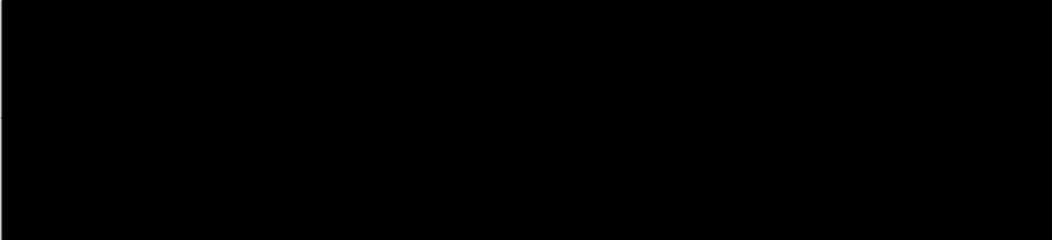
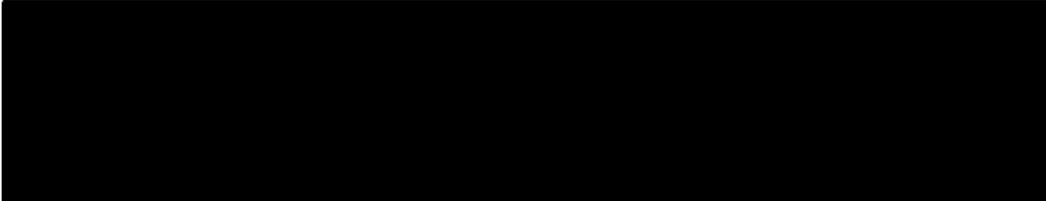
Die Oberfläche eines Containers beträgt maximal  $30.5 \text{ m}^2$ . Bei maximal 3400 Containern pro Jahr bei einschichtigem Betrieb und einem Grenzwert der Oberflächenkontamination von  $3700 \text{ Bq/m}^2$  für  $\alpha$ -Strahler bzw.  $37\,000 \text{ Bq/m}^2$  für  $\beta/\gamma$ -Strahler ergibt dies eine maximal mögliche Aktivität von  $3.8 \cdot 10^8 \text{ Bq/a}$  ( $\alpha$ -Strahler) bzw.  $3.8 \cdot 10^9 \text{ Bq/a}$  ( $\beta/\gamma$ -Strahler). Legt man einen konservativen Resuspensionsfaktor von  $10^{-6}$  für Stahloberflächen zugrunde /WOO 84/, ergibt dies eine Freisetzung von  $380 \text{ Bq/a}$  ( $\alpha$ -Strahler) bzw.  $3800 \text{ Bq/a}$  ( $\beta/\gamma$ -Strahler).

Zu berücksichtigen ist ferner, daß die Grenzwerte der Oberflächenkontamination nicht durchgängig ausgeschöpft werden. Zusammenfassend beträgt somit die Freisetzung infolge der Oberflächenkontamination  $< 26 \%$  ( $\alpha$ -Strahler) bzw.  $< 0,2 \%$  ( $\beta/\gamma$ -Strahler) im Vergleich zum Erwartungswert der Freisetzung /BFS 90/. Da die Strahlenexposition in der Umgebung jedoch bestimmt wird durch die flüchtigen Radionuklide C 14 und Tritium, die  $\alpha$ -Strahler hingegen nur unwesentlich dazu beitragen, kann die Freisetzung von nicht festhaftender Oberflächenkontamination bei der Ermittlung dieser Strahlenexpositionen vernachlässigt werden. Hinzu kommt, daß nicht alle Abfälle in Containern des Typs V angeliefert werden. Die Freisetzung durch andere Behältertypen wird aber in jedem Fall geringer, da die Oberfläche eines zylindrischen Behälters mindestens um den Faktor 2.6 kleiner ist, während die maximale Anzahl von zylindrischen Abfallgebinden auf einer Tauschpalette 2 beträgt.

5. LITERATUR

- /BAR 82/ M.W. Barnes et al.  
The Stability of I and Sr Radiophases in Cement  
Matrices  
The Scientific Basis for Nuclear Waste Management,  
Elsevier Science Publishing Company, 1982
- /BAT 83/ R. de Batist et al.  
Characterization of Bituminized Intermediate Level  
Eurochemic Waste  
EG-Seminar on Testing, Evaluation and Shallow Land  
Burial of Low and Medium Radioactive Waste Forms  
Geel, September 1983
- /BEA 84/ E.C. Beahm, W.E. Schockley  
Iodine Volatility  
Proc. ANS Topical Meeting on Fission Product  
Behaviour and Source Term Research,  
Snowbird, 1984
- /BEY 87/ H. Beyer et al.  
Laborversuche zur Rückhaltefähigkeit von Versatzmate-  
rialien aus der Grube Konrad gegenüber radioaktiven  
Gasen  
20. Jahrestagung Fachverband Strahlenschutz,  
Basel, 1987
- /BFS 90/ Bundesamt für Strahlenschutz  
Endlager Konrad, Ermittlung von betrieblichen Erwartungs-  
werten und bewertender Vergleich mit den Antragswerten  
für bestimmungsgemäße Ableitung radioaktiver Stoffe.  
Bewertung des Verfahrens zur Ermittlung der Werte der ein-  
lagerbaren Radioaktivität  
Braunschweig, 1990

/CLA 77/ W. E. Clark  
The Isolation of Radioiodine with Portland Cement,  
Part I: Scoping Leach Studies  
Nuclear Technology, Vol. 36 (1977), S. 215



/GRA 87/ W. Gramatte  
Dichtigkeitsbestimmung von Endlagergebänden mit zementierten tritiumhaltigen Wässern  
20. Jahrestagung Fachverband Strahlenschutz, Basel, 1987



/GRS 90a/ Gesellschaft für Reaktorsicherheit  
Gasbildung im Endlager Konrad während der Betriebsphase  
Revision 2  
GRS-A-1528, Köln, 1990

- /GRS 90b/ Gesellschaft für Reaktorsicherheit  
Grundlagen der Ableitung von Aktivitätsbegrenzungen für  
den bestimmungsgemäßen Betrieb der Schachtanlage Konrad  
Revision 2  
GRS-A-1522, Köln, 1990
- /JON 78/ N. Jonassen, J.P. Mc Laughlin  
Exhalation of Radon-222 from Building Materials  
Nat. Rad. Env. III DOE Symp. ser. 31, 1980, p.1211-1224
- /KOP 88/ D. Kopp  
Freisetzung flüchtiger Kohlenstoffverbindungen bei der  
Lagerung nuklearer Abfälle, Abgabe aus Zircaloy  
Dissertation, TH Darmstadt, 1988
- /KÖS 84/ R. Köster, H. Gräbner  
Konditionierung von Brennelementhülsen und tritiumhal-  
tigen Wässern mit hydraulischen Zementen  
KfK-3675, Karlsruhe, 1984

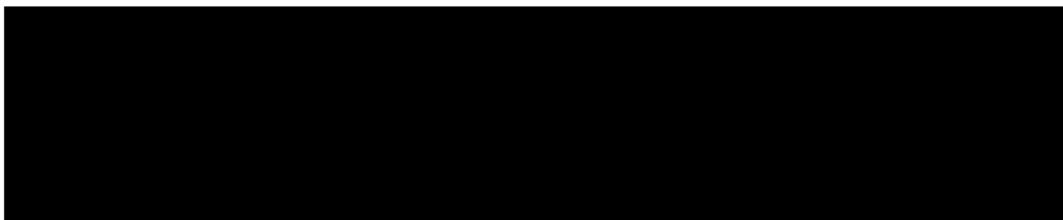
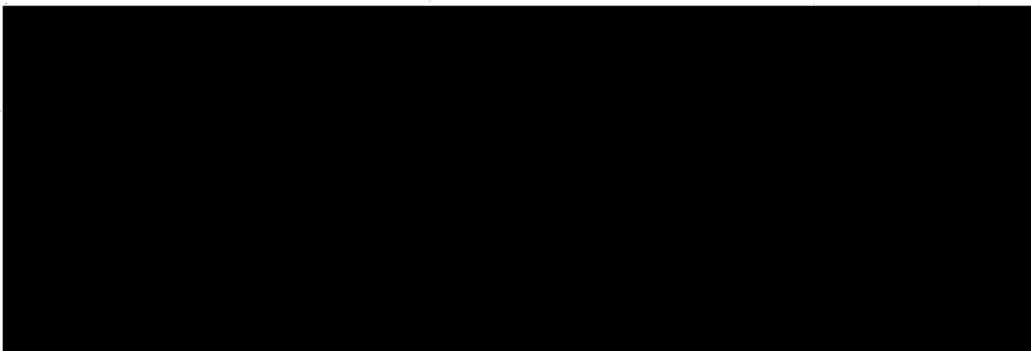
- 
- 
- /LIN 79/ C.-C. Lin  
Chemical Effects of Gamma Radiation on Iodine  
in Aqueous Solutions  
NEDO-12707, Mai 1979

/LOR 79/ R. Lorscheider  
Tritiumabfälle und ihre Problematik  
7. IRPA-Regionalkongreß, Köln, 1979

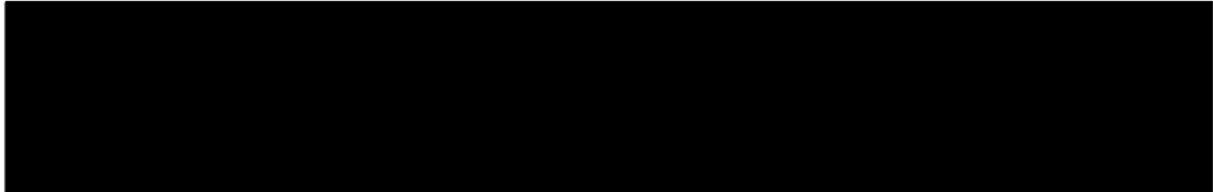
/MCK 79/ H.A.C. McKay  
Tritium Immobilization  
European Appl. Res. Rept.-Nucl. Sci. Technol.  
Vol. 1, No. 3 (1979), S. 599



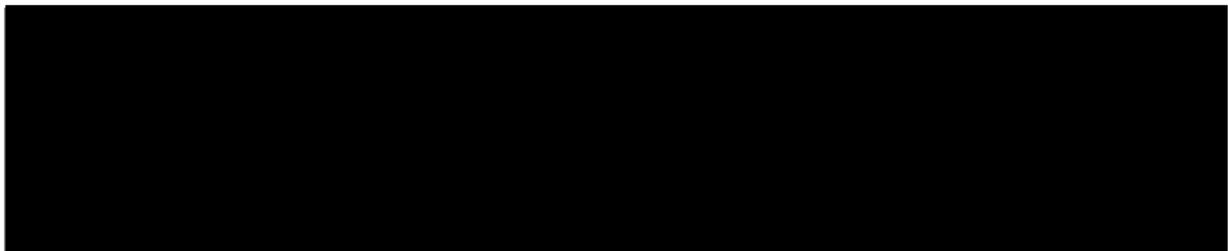
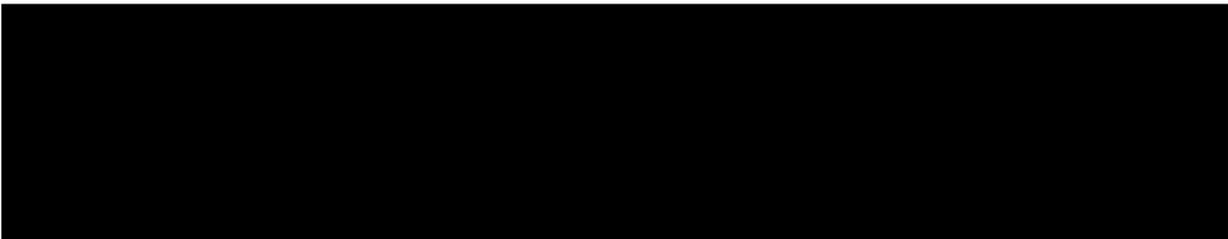
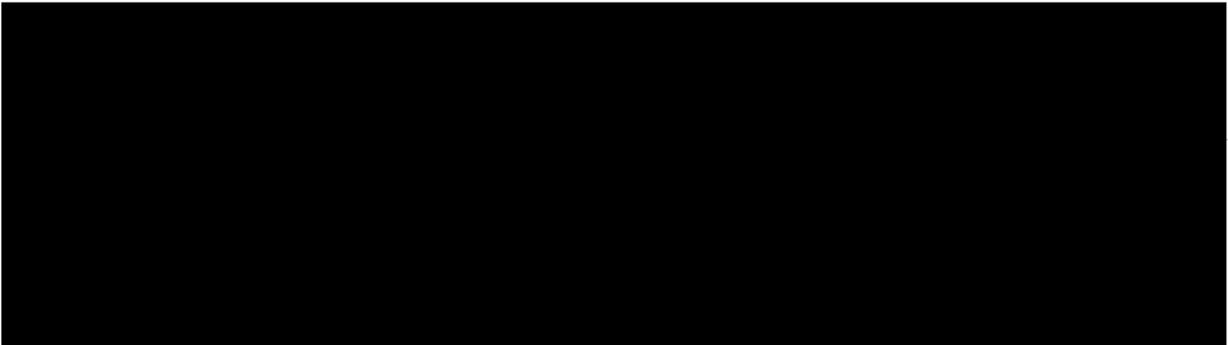
/MÖC 82/ H. J. Möckel, R. H. Köster  
Gas Formation during the Gamma Radiolysis of  
Cemented Low- and Intermediate-Level Waste  
Products  
Nuclear Technology, Vol. 59 (1982), S. 494



/PTB 84/      Physikalisch-Technische Bundesanstalt  
Daten radioaktiver Abfälle für Sicherheitsanalysen zum  
Endlager Konrad unter Berücksichtigung der Berechnungen  
der Ortsdosisleistung von Abfallgebinden  
Braunschweig, Dezember 1984



/SCH 74/      E. Schrüfer (Herausgeber)  
Strahlung und Strahlungsmeßtechnik  
Elitera Verlag, Berlin, 1974



- /UKA 86/ UKAEA  
Proc. Specialist's Workshop on Iodine Chemistry in  
Reactor Safety  
AERE-R-11974, Harwell, 1986
- /ULL 83/ K. Ullbach et al.  
Radon Exhalation from Samples of Concrete with Different Porosities and Fly Ash Additives  
Proceedings of an international Seminar on Indoor exposure to natural radiation and associated risk assessment  
Radiation protection dosimetry, Vol. 7, No. 1-4, 1983
- /WOO 84/ P. B. Woollam  
Control of airborne activity in fuel cooling pond  
Nucl. Eng. Int., Nr. 2 (1984), S. 31

## 6. ANHÄNGE

ANHANG 1:

Abschätzung der Edelgasableitung aus der Schachanlage Konrad aufgrund der Einlagerung spontan spaltender Radionuklide

Die für die Einlagerung in die Schachanlage Konrad vorgesehenen Abfälle enthalten z. T. Radionuklide aus der Gruppe der Aktiniden, die neben dem jeweils dominierenden  $\alpha$ - bzw.  $\beta$ -Zerfall auch durch Spontanspaltung zerfallen können. Die Spontanspaltung weist eine gegenüber dem dominierenden Zerfall ( $\lambda_M$ ) kleinere charakteristische Zerfallskonstante  $\lambda_{SF}$  auf ( $\lambda_{SF} < \lambda_M$ ). Die Bildungsrate  $B_{Ti}$  für ein Edelgastochternuklid aus einem solchen spontan spaltenden Mutternuklid läßt sich daher beschreiben durch

$$B_{Ti} = N_M \cdot \lambda_{SF} \cdot Y_i,$$

wobei  $N_M$  die Anzahl der Kerne des Mutternuklids und  $Y_i$  die Spaltausbeute des i-ten Tochternuklids bedeutet. Die Kernanzahl  $N_M$  ergibt sich wiederum aus der Aktivität des Mutternuklids  $A_M$  aufgrund der dominierenden Zerfallsart mit Hilfe der folgenden Beziehung:

$$A_M = \lambda_M \cdot N_M$$

Damit erhält man

$$B_{Ti} = \frac{\lambda_{SF}}{\lambda_M} \cdot A_M \cdot Y_i$$

Hierbei wird die Teilchenzahl  $N_M$  als konstant betrachtet, was in diesem Falle gerechtfertigt ist, da die Halbwertszeit des Mutternuklids sehr viel größer ist als der betrachtete Freisetzungszeitraum.

Wegen der Kurzlebigkeit der meisten Edelgastochternuklide aus der Spontanspaltung muß hingegen für die Ermittlung der Edelgasfreisetzung die Halbwertszeit dieser Radionuklide berücksichtigt werden. Dies geschieht durch folgende Differentialgleichung, die die zeitliche Ver-

änderung der Teilchenzahl  $N_i$  des  $i$ -ten Tochternuklids im Abfall beschreibt:

$$\frac{dN_i}{dt} = B_{Ti} - \lambda_i N_i - DN_i$$

Hierbei sind

- $\lambda_i$  Zerfallskonstante des  $i$ -ten Edelgastochternuklids
- D relative Durchlässigkeitsrate (Dichtigkeit) der Verpackung des zu betrachtenden Abfallgebundes

Eine Rückhaltung der Edelgase im Abfallprodukt wird nicht berücksichtigt.

Die Lösung dieser Differentialgleichung mit den genannten Randbedingungen ergibt für die pro Zeiteinheit in die Wetter freigesetzte Edelgasaktivität

$$N_i \cdot \lambda_i \cdot D = \frac{\lambda_{SF} \cdot A_M \cdot Y_i \cdot \lambda_i \cdot D}{\lambda_M \cdot (\lambda_i + D)} (1 - e^{-(\lambda_i + D)t})$$

Für Freisetzungszeiträume  $t$ , die sehr viel größer sind als die Halbwertszeit des betrachteten Edelgasnuklids, wird der Klammerausdruck näherungsweise 1. Dies wird hier konservativ für alle Edelgasnuklide aus der Spontanspaltung unterstellt.

Darüber hinaus kann für Verpackungen ohne Dichtigkeitspezifikationen näherungsweise  $\lambda_i + D$  gleich  $D$  gesetzt werden, da  $D \gg \lambda_i$  ist.

Zur Abschätzung der maximal möglichen Edelgasableitung in die Umgebung ist nunmehr noch die Auswahl des kritischen Mutternuklids erforderlich, d. h. desjenigen Radionuklids, das aufgrund seiner Aktivität  $A_M$  und des Verhältnisses seiner Zerfallskonstanten  $\lambda_{SF}/\lambda_M$  maximal zur Edelgasbildung durch Spontanspaltung beiträgt. Aus den vorhandenen Abfalldaten läßt sich ableiten, daß Cm 244 das hier gesuchte Radionuklid ist. Zum einen weist es einen hohen Wert für das Verhältnis  $\lambda_{SF}/\lambda_M$  auf. Zum anderen ergibt sich aus der Betrachtung der Abfall-

daten, daß alle Radionuklide, bei denen  $\lambda_{SF}/\lambda_M$  größere Werte als bei Cm 244 annimmt (Pu 242, Pu 244), mit einer um mehrere Größenordnungen geringeren Aktivität vertreten sind. Dieses Aktivitätsverhältnis ist physikalisch bedingt durch den Aufbau der Transurane bei der Kernspaltung und kann daher nicht beliebig verschoben werden.

Aus diesem Grund wird für die Untersuchung der Edelgasfreisetzung durch Spontanspaltung Cm 244 als Mutternuclid herangezogen. Als Maximalaktivität wird zunächst theoretisch der in /GRS 90b/ abgeleitete Aktivitätswert für die pro Jahr einlagerbare  $\alpha$ -Aktivität in Verpackungen ohne spezifizierte Dichtigkeit verwendet.

Damit ergeben sich für die wesentlichen Edelgasnuclide aus der Spontanspaltung folgende Werte der theoretischen maximalen Aktivitätsableitung mit den Abwettern in die Umgebung der Schachanlage Konrad:

Kr 85	$4.7 \cdot 10^7$ Bq/a	$(1.3 \cdot 10^{-3}$ Ci/a)
Xe-131 m	$9.9 \cdot 10^8$ Bq/a	$(2.7 \cdot 10^{-2}$ Ci/a)
Xe 133	$8.7 \cdot 10^{11}$ Bq/a	(23.6 Ci/a)
Xe 133 m	$5.1 \cdot 10^{10}$ Bq/a	(1.4 Ci/a)
$\Sigma$	$9.2 \cdot 10^{11}$ Bq/a	(25 Ci/a)

Bei dieser Rechnung wurde unterstellt, daß nur Cm 244 mit der maximal zulässigen  $\alpha$ -Aktivität in allen Abfällen vorkommt. Berücksichtigt man, daß wegen des mehr oder weniger vorgegebenen Radionuklidvektors auch andere  $\alpha$ -Strahler aufgrund der Bildungsmechanismen vertreten sein müssen, reduziert sich der o. g. Maximalwert auf  $6.1 \cdot 10^{11}$  Bq/a (16.5 Ci/a).

Dieser Wert hat jedoch immer noch rein theoretischen Charakter, da das zugrundegelegte Abfallaufkommen unrealistisch ist. Auf der Basis der in /PTB 84/ beschriebenen Abfälle erhält man als Erwartungswert der Edelgasableitung durch Spontanspaltung  $6.4 \cdot 10^8$  Bq/a (0.02 Ci/a).

## ANHANG 2:

### Die Freisetzung von Radon aus Abfallgebinden

#### 1. EINLEITUNG

Radon wird in Abfallgebinden, die Mutternuklide der Th- bzw. U/Ra-Reihe enthalten, kontinuierlich als Tochternuklid gebildet. Radiologisch von Bedeutung sind dabei die Radionuklide Rn 220 (Mutter: Ra 224) und Rn 222 (Mutter: Ra 226). Beide haben eine kurze Halbwertszeit im Vergleich zum betrachteten Freisetzungszeitraum (Rn 220: 55.6 s; Rn 222: 3.8 d), so daß der radioaktive Zerfall bei der Betrachtung der Freisetzung berücksichtigt werden muß. Wegen der ständigen Nachlieferung wird andererseits die Freisetzung nicht wie bei den meisten übrigen Radionukliden bestimmt von der momentan vorhandenen Aktivität, sondern von der pro Zeiteinheit im Abfall gebildeten Radon-Aktivität.

Bleibt man bei dem in Kapitel 2 gewählten Modus der Beschreibung der Freisetzung, bedeutet dies, daß u. U. Freisetzungsraten  $> 1$  ermittelt werden. Aufgrund der kurzen Halbwertszeiten spielt schließlich die Verzögerungszeit beim Transport in die Umgebung durch die Barrierenwirkung des Abfallproduktes und der Verpackung (bei spezifizierter Dichtigkeit) eine entscheidende Rolle.

Im folgenden wird auf diese die Freisetzung bestimmenden Parameter näher eingegangen.

#### 2. FREISETZUNG VON RADON AUS DEM ABFALLPRODUKT

##### 2.1 Theoretische Beschreibung der Freisetzung von Radon aus Abfällen

In /GAN 86/ und /JON 78/ wird die Radonfreisetzung aus Ra-haltigen Abfällen mit unterschiedlichen theoretischen Ansätzen beschrieben, welche zu gut übereinstimmenden Ergebnissen kommen. Beiden Ansätzen liegt die Freisetzung von Radon via Diffusion aus der Abfallmatrix zugrunde.

Der in /GAN 86/ beschriebene Lösungsweg ist im Rahmen von Untersuchungen zum Endlager Konrad erarbeitet worden und dort gut dokumentiert. Der in /JON 78/ beschriebene Lösungsweg beruht auf dem allgemeinen Diffusionsmodell, welches z.B. auch in /SCH 74/ zur Beschreibung der Freisetzung von Spaltprodukten aus der Brennstoffmatrix ins Plenum während des Reaktorbetriebs verwendet wird.

Im vorliegenden Bericht wird das allgemeine Diffusionsmodell verwendet. Die Freisetzungsgometrie entspricht einem an einer Stirnseite vollständig offenen Abfallbinde. Die Diffusion findet dann nur in Achsenrichtung (x) statt. Es ist ein eindimensionales Problem zu lösen.

Die Diffusion von Radon durch die Abfallmatrix wird durch das 2. Ficksche Gesetz unter Berücksichtigung von Bildung und Zerfall wie folgt beschrieben:

$$\frac{\partial C(x)}{\partial t} = D \cdot \frac{\partial^2 C(x)}{\partial x^2} - \lambda \cdot C(x) + b \quad (10)$$

Diffusion      Zerfall      Bildung

Dabei sind

- C(x)      Radon-Konzentration im Abfall entlang der Abfallbindeachse
- b      Bildungsrate für Radon pro Volumeneinheit ( $s^{-1} \cdot cm^{-3}$ )
- $\lambda$       Zerfallskonstante für Radon ( $s^{-1}$ )
- D      effektive Diffusionskonstante ( $cm^2 \cdot s^{-1}$ )

Da hier nur die zeitlich stationäre Lösung betrachtet werden muß, gilt wegen

$$\frac{\partial C(x)}{\partial t} = 0$$

die Beziehung

$$D \cdot \frac{d^2C(x)}{dx^2} - \lambda \cdot C(x) + b = 0 \quad (11)$$

Der durch das Konzentrationsgefälle längs der Abfallgebindeachse  $x$  resultierende Diffusionsstrom ergibt sich nach dem 1. Fickschen Gesetz allgemein zu

$$j = - D \cdot \frac{dC(x)}{dx} \quad (12)$$

mit

$j$  = Diffusionsstrom = Anzahl der Radonotope, die pro Sekunde eine Fläche von  $1 \text{ cm}^2$  durchlaufen ( $\text{s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ )

Die Radon-Exhalationsrate  $E$  an der offenen Abfallgebindeoberfläche ( $x = L$ ) folgt aus (12) als Spezialfall für  $j$  an der Stelle  $x = L$

$$E = - D \cdot \left( \frac{dC(x)}{dx} \right)_{x=L} \quad (\text{s}^{-1} \text{ cm}^{-2}) \quad (13)$$

Unter Berücksichtigung der gegebenen Randbedingungen folgt aus der in /JON 78/ und /SCH 74/ beschriebenen Lösung der Differentialgleichungen (10) bis (13)

$$E = b \cdot (D/\lambda)^{0.5} \cdot \tanh (L/(D/\lambda)^{0.5}) \quad (14)$$

Das in den nachfolgenden Abschnitten verwendete Verhältnis  $R/B$  (gesamte Freisetzungsrates/gesamte Bildungsrate) ergibt sich aus den Größen  $E$  und  $b$  zu:

$$\frac{R}{B} = \frac{E \cdot F}{b \cdot V} = \frac{F}{V} \cdot (D/\lambda)^{0.5} \cdot \tanh (L/(D/\lambda)^{0.5}) \quad (15)$$

mit

$F$  offene Abfallgebindeoberfläche

$V$  Volumen der Abfallmatrix (Nettovolumen des Abfallgebundes)

## 2.2 Diffusion von Radon aus fixierten Abfällen

Für die in der Schachanlage Konrad zum Einsatz kommenden Fixiermaterialien gilt, daß ihre effektiven Diffusionskonstanten kleiner sind oder gleich denen von Leichtbeton.

In Anlehnung an die Untersuchungen in /GAN 86/ wird bei den vorliegenden Berechnungen für Leichtbeton von folgender Diffusionskonstante  $D_L$  ausgegangen:

$$D_L = 2 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{s}.$$

Die Zeit, welche Radon-Atome im statistischen Mittel für die Diffusion durch eine  $x$  cm dicke Betonschicht benötigen, errechnet sich nach der Formel

$$t = \frac{x^2}{2D_L} \quad (1)$$

$x$  = Länge der Diffusionsstrecke

Für eine Schichtdicke von 4 cm Beton beträgt diese Zeit  $t$  (4 cm) =  $4 \cdot 10^4$  s = 11.1 h.

Für Radon-220 genügt daher wegen seiner extrem kurzen Halbwertszeit ( $T_{1/2}(\text{Rn } 220) = 55.6$  s) bereits eine wenige Zentimeter dicke inaktive umhüllende Betonschicht, um die Rn 220-Freisetzung aus Thoriumhaltigen Abfallgebänden praktisch auszuschließen, da die entsprechende Transportzeit ein Vielfaches der Rn 220-Halbwertszeit beträgt. Aus diesem Grunde wird an Abfälle, die Rn 220 freisetzen könnten, die Anforderung gestellt, daß das Abfallprodukt von einer mindestens 4 cm dicken Betonschicht umgeben ist. Im folgenden wird daher nur die Rn 222-Freisetzung näher untersucht.

In /GAN 86/ und /JON 78/ wird die Rn 222-Freisetzung aus Ra 226-haltigen Abfällen mit unterschiedlichen theoretischen Ansätzen (s. o.) beschrieben, die jedoch unter Berücksichtigung identischer Freisetzungsgometrie (z. B. offenes 200-l-Faß, zementfixierte Abfälle) zu nahezu

identischen Ergebnissen kommen. Für ein offenes 200-l-Faß wird in /GAN 86/ nach dem dort eingesetzten Freisetzungsmodell ein theoretischer R/B-Wert (Freisetzungsrates zu Bildungsrate für Rn 222) ermittelt:

$$\frac{R}{B_{th}} = \frac{\text{Freisetzungsrates durch die offene Fläche}}{\text{Bildungsrate im Abfallgebinde}} = 1.5 \cdot 10^{-2} \quad (2)$$

mit einer effektiven Diffusionskonstante von  $D_{eff} = 3.4 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ .

Der entsprechende experimentell gefundene Wert für R/B liegt bei

$$\frac{R}{B_{exp}} (55 \text{ } ^\circ\text{C}) = 9.0 \cdot 10^{-2} \quad (3)$$

Andere Untersuchungen wie /ULL 83/ und /JON 78/ geben experimentelle und theoretische R/B-Werte an, welche für unterschiedliche geometrische Freisetzungskonfigurationen zwischen dem experimentellen und dem theoretischen Wert aus /GAN 86/ liegen. Ausgehend auch von eigenen Berechnungen wird daher im weiteren von folgendem für fixierte Abfälle repräsentativem R/B-Verhältnis ausgegangen:

$$\frac{R}{B_{fixiert}} = 5 \cdot 10^{-2} \quad (\text{Rn 222}) \quad (4)$$

Dies gilt für alle möglichen Freisetzungsgeometrien, d. h. für alle fixierten Abfälle in Abfallgebinden ohne Dichtigkeitsspezifikationen.

Aus dem so ermittelten R/B-Wert für Rn 222 wird die jährliche Freisetzungsrates bezogen auf die momentane Ra 226-Aktivität, wie folgt berechnet:

Die Freisetzung von Radon-222 ist gegeben durch

$$\dot{Q}_{\text{Rn 222}} = R = \frac{R}{B} \cdot B \quad (5)$$

Die Bildungsrate  $B$  für die Rn 222-Aktivität steht mit der momentanen Ra 226-Aktivität  $A$  in einem Gebinde im folgenden Zusammenhang:

$$B_{\text{Rn 222}} = A_{\text{Ra 226}} \cdot \lambda_{\text{Rn 222}} \quad (6)$$

oder in Zahlen

$$B_{\text{Rn 222}} = A_{\text{Ra 226}} \cdot 66.5, \quad (6a)$$

wobei  $B_{\text{Rn 222}}$  und  $\lambda_{\text{Rn 222}}$  in der Einheit  $a^{-1}$  gewählt wurden.

Aus (5) und (6) erhält man

$$\dot{Q}_{\text{Rn 222}}^B = \left(\frac{R}{B}\right)_{\text{Rn 222}} \cdot A_{\text{Ra 226}} \cdot \lambda_{\text{Rn 222}} \quad (7)$$

Als Zahlenwert für den jährlichen Freisetzunganteil

$$F_{\text{Rn 222}}^B = \frac{\dot{Q}_{\text{Rn 222}}^B}{A_{\text{Ra 226}}}$$

ergibt sich daraus für fixierte Abfälle

$$F_{\text{Rn 222}}^B = 3.3 a^{-1} \quad (8)$$

Er ist auf die momentane Ra 226-Aktivität bezogen.

### 2.3 Diffusion von Radon aus unfixierten Abfällen

Für die Freisetzung von Radon aus unfixierten Abfällen wird analog ein offenes 200-l-Faß (entspricht auch etwa einer offenen VBA-200) unterstellt. Mit einer konservativen Diffusionskonstante von

$D = 0.08 \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  (Diffusion von Radon in Luft) erhält man eine entsprechende Freisetzungsrate von

$$F_{\text{Rn } 222}^{\text{U}} = 53 \text{ a}^{-1} \quad (9)$$

### 3. FREISETZUNG VON RADON AUS DEM ABFALLBEHÄLTER

Die weitere Behandlung der Radonfreisetzung erfolgt mit Hilfe der nachfolgenden Differentialgleichung

$$\frac{dN}{dt} = \dot{q} - \lambda N - DN$$

wobei

$N$  Anzahl der Radonotope (Rn 222) zur Zeit  $t$  im Abfallgebindeplenum

$\dot{q}$  Freisetzungsrates der Radonotope aus dem Abfallprodukt  $\hat{=}$  Erzeugungsrates aufgrund der Mutteraktivität - Verlust durch Zerfall beim Transport ins Plenum

$\lambda$  Zerfallskonstante von Radon-222 ( $2.11 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ )

$D$  relative Durchlässigkeitsrate der Verpackung, bezogen auf die zum jeweiligen Zeitpunkt vorhandene Aktivität

Die allgemeine Lösung dieser Differentialgleichung lautet:

$$N = \frac{\dot{q}}{\lambda + D} (1 - e^{-(\lambda + D)t})$$

Daraus folgt für die in die Abwetter pro Zeiteinheit freigesetzte Radonaktivität  $\dot{Q}_{\text{Rn } 222}$  (Freisetzungsrates der Radonaktivität):

$$\dot{Q}_{\text{Rn } 222} = N \cdot \lambda D = \dot{q} \cdot \frac{\lambda \cdot D}{\lambda + D} (1 - e^{-(\lambda + D)t})$$

Bei dem hier interessierenden Rn 222 kann man nun zwei Sonderfälle unterscheiden:

Für Abfallgebinde ohne Dichtigkeitsanforderungen ist  $\lambda \ll D$ , d. h.  $\lambda + D \sim D$ . Der Exponentialterm wird, wenn man die Freisetzung auf den Zeitraum eines Jahres bezieht, praktisch null. Somit gilt näherungsweise:

$$\dot{Q}_{\text{Rn } 222} \sim \dot{q} \cdot \lambda \quad (\text{Verpackung ohne Dichtigkeitspezifikation})$$

Im zweiten Sonderfall einer Verpackung mit spezifizierter Dichtigkeit folgt analog aus  $\lambda \gg D$ :

$$\dot{Q}_{\text{Rn } 222} = \dot{q} \cdot D \quad (\text{Verpackung mit Dichtigkeitspezifikation})$$

Bezogen auf ein Jahr ergibt sich daraus zusammenfassend für die Radonfreisetzung, wenn man für  $\dot{q}$  die jährlichen Freisetzungsanteile aus den Gleichungen (8) und (9) einsetzt

$$\dot{Q}_{\text{Rn } 222} = A_{\text{Ra } 226} \cdot 53 \text{ a}^{-1} \quad (\text{unfixierte Abfälle in undichter Verpackung}) \quad (11)$$

$$\dot{Q}_{\text{Rn } 222} = A_{\text{Ra } 226} \cdot 3.3 \text{ a}^{-1} \quad (\text{fixierte Abfälle in undichter Verpackung}) \quad (12)$$

Diese Beziehungen entsprechen den Gleichungen (8) und (9). Sie beschreiben die Freisetzung als Diffusion aus den Abfällen ohne Rückhaltung durch Behälter.

Für die Freisetzung aus Abfallgebinden mit Dichtigkeitspezifikation wird konservativ nicht unterschieden zwischen fixierten und unfixierten Abfällen, d.h. die Diffusion von Radon durch die Abfallmatrix und die damit verbundene verzögerte Freisetzung wird nicht berücksichtigt. Damit ergibt sich

$$\dot{Q}_{\text{Rn } 222} = A_{\text{Ra } 226} \cdot D \quad (\text{dichte Verpackung}) \quad (13)$$

### ANHANG 3:

#### Gewichtsverlust bei offener bzw. geschlossener Lagerung von zementierten/betonierten Abfällen

In /RUD 79/ wird bei offener Lagerung einer Zementprobe bei Raumtemperatur nach einem Jahr Lagerzeit ein Gewichtsverlust von 7.55 % gemessen. Das Oberflächen/Volumen-(O/V-)Verhältnis der Probe beträgt  $1.3 \text{ cm}^{-1}$ .

Rechnet man dies um auf ein Abfallgebilde mit einem maximalen O/V-Verhältnis von  $0.1 \text{ cm}^{-1}$ , so erhält man einen um den Faktor 13 geringeren Gewichtsverlust, wenn man davon ausgeht, daß die gesamte Oberfläche zur Verdampfung des nicht chemisch gebundenen Wassers im Zement zur Verfügung steht. In Wirklichkeit gilt dies aber näherungsweise nur für die Proben. Bei Abfallgebilden ergibt sich hingegen wegen der Verpackung ein wesentlich kleinerer Wert des O/V-Verhältnisses. Daher ist die hier gewählte Art der Umrechnung konservativ.

Berücksichtigt man nun noch, daß die Erhöhung der Lagertemperatur bei offener Lagerung von Raumtemperatur auf  $80 \text{ }^\circ\text{C}$  im Experiment eine Erhöhung des Gewichtsverlustes um etwa einen Faktor 2 bewirkt, läßt sich aus den o. g. 7.55 % ein Gewichtsverlust von maximal 1 % für ein Abfallgebilde bei  $50 \text{ }^\circ\text{C}$  nach einem Jahr abschätzen.

Bei Lagerung der Proben in geschlossenen Gläsern ergibt sich ein Gewichtsverlust von 0.1 % nach einem Jahr bei Raumtemperatur. Bei analoger Umrechnung auf ein Abfallgebilde bei  $50 \text{ }^\circ\text{C}$  erhält man daraus einen Wert von 0.014 %.

Bei geschlossener Lagerung wurde jedoch bei  $80 \text{ }^\circ\text{C}$  ein vergleichbarer Gewichtsverlust wie bei offener Lagerung gemessen. Dies geht vermutlich auf Zersetzungsreaktionen im simulierten Abfallprodukt zurück. Solche Reaktionen sind jedoch bei  $50 \text{ }^\circ\text{C}$  wenig wahrscheinlich. Um diese

und andere Unsicherheiten der Abschätzung abzudecken, werden die ermittelten Gewichtsverluste um den Faktor 5 erhöht. Interpretiert man die so erhaltenen Werte als Freisetzungsraten von Wasser aus Zement, ergibt sich ein Wertebereich von 0.07 % bis 5 % pro Jahr für die Freisetzungsraten.

#### ANHANG 4:

##### Tritiumfreisetzung durch Radiolyse

Die Freisetzung von Tritium als HT durch Radiolyse bei in Beton/Zementstein fixierten Abfallprodukten wird anhand des in /MÖC 82/ ermittelten Maximalwertes für  $\beta/\gamma$ -Strahlung von 8 ml H<sub>2</sub> pro 10<sup>4</sup> Gy und pro kg Beton berechnet.

Die maximale Energiedosisleistung  $\dot{D}$  im Abfallprodukt erhält man für den Mittelpunkt eines zylinderförmigen Einzelbindes nach folgender Näherungsformel:

$$\dot{D} = K \cdot \frac{B \cdot S_v}{\mu_s} \cdot G(1/2 \mu_s \cdot h, \mu_s R)$$

wobei

K	=	Fluß-zu-Dosis-Umrechnungsfaktor
B	=	Aufbaufaktor
S <sub>v</sub>	=	Quellstärke
$\mu_s^v$	=	makroskopischer Wirkungsquerschnitt
h <sub>s</sub>	=	Höhe des Zylinders
R	=	Radius des Zylinders

Die Funktionswerte für G können der einschlägigen Literatur (z. B. /ROC 65/) zur Abschirmung entnommen werden.

Bei einer angenommenen Aktivität des Abfallbindes von 10<sup>12</sup> Bq wird nach dieser Formel die maximale Dosisleistung 1.8 · 10<sup>5</sup> Gy/a. Dieser Wert stellt die Obergrenze für die vorkommenden Abfallbindegrößen und Zerfallsenergien dar.

Mit dieser Dosisleistung und der o. g. H<sub>2</sub>-Bildungsrate erhält man bei einem für Normalbeton typischen Massenanteil des Wassers von 0.17 g/g einen maximalen H<sub>2</sub>-Bildungsanteil von 0.08 %, bezogen auf den Wasserstoffanteil im Wasser des Abfallbindes.

Für die Freisetzungsberechnungen wird daher eine Freisetzungsrate von Tritium als

$$F_{HT}^B = 10^{-3} \text{ a}^{-1}$$

verwendet, wenn die Gesamtaktivität des Abfallgebundes  $10^{12}$  Bq nicht übersteigt.

Die Freisetzungsrate von  $10^{-3} \text{ a}^{-1}$  gilt näherungsweise auch für andere als in Beton/Zementstein fixierte Abfälle, wenn man unterstellt, daß die Radiolyse von Wasser weitgehend unabhängig von der Abfallmatrix ist. Diese Annahme wird bestätigt durch Meßergebnisse an in Bitumen fixierten Abfällen /BAT 83/, die sich zu eher niedrigeren HT-Freisetzungsraten umrechnen.

Bei Aktivitäten der Abfallgebunde von  $> 10^{12}$  Bq wird eine Obergrenzenabschätzung der Tritiumfreisetzung folgendermaßen vorgenommen: Rechnet man die oben ermittelte Bildungsrate von 0.08 %/a auf eine Aktivität von  $3.7 \cdot 10^{13}$  Bq um, die für energiereiche Strahler aus Gründen der Abschirmung und der Wärmeleistung mit Sicherheit eine Obergrenze für Einzelgebunde darstellt, erhält man eine Freisetzungsrate von 3 %/a. Dies liegt in vergleichbarer Größe zur Tritiumfreisetzung als HTO (5 %/a). Daher wird für Abfallgebunde mit einer Aktivität  $> 10^{12}$  Bq eine Freisetzungsrate von  $5 \cdot 10^{-2} \text{ a}^{-1}$  als Obergrenze unterstellt.

ANHANG 5:

Abschätzung des zur Freisetzung verfügbaren Anteils von Jod im Restwasser von Harzen und Konzentraten

Harze weisen im unverfestigten Zustand einen Restfeuchtegehalt von etwa 30 % auf. Zur Abschätzung des Jodanteils in der Behälteratmosphäre wird hier konservativ unterstellt, daß diese Restfeuchte nicht als Quellwasser im Harz gebunden ist, sondern als überstehendes Wasser den Porenraum des Harzes ausfüllt. Unter dieser Voraussetzung ergibt sich bei einem typischen Füllungsgrad von 90 % und einem Porenanteil von 0.4 z.B. für einen 200-l-Gußbehälter:

Wassermasse	60 dm <sup>3</sup>
Hohlvolumen	32 dm <sup>3</sup>
(= Porenvolumen + unverfülltes Vol. - Wasservolumen)	

Die Berechnung des luftgetragenen Jodanteils erfolgt mit Hilfe des Verteilungskoeffizienten. Für neutrale bis basische Verhältnisse, wie sie für die hier diskutierten Abfälle charakteristisch sind, wird ein Gesamtjodverteilungskoeffizient von  $10^{-4} \frac{t}{m^3}$  als abdeckend zugrunde gelegt /BEA 84/. Dieser Wert wird auch durch neuere Untersuchungen, die derzeit noch an zahlreichen Stellen im Gange sind, gestützt /UKA 86/.

Daraus erhält man einen luftgetragenen Anteil der Jodaktivität von ca.  $5 \cdot 10^{-5}$ , bezogen auf die Jodaktivität im Restwasser. Bei sonst gleichen Ausgangsdaten ist dieser Wert nicht abhängig vom Behältervolumen. Die hier diskutierten Daten können in analoger Weise auf Konzentrate übertragen werden.

Entsprechende Daten für zementierte/betonierte Harze und Konzentrate sind:

Wassergehalt	30 %
Porenanteil (des Betons)	0.3

Damit errechnet sich nach dem oben beschriebenen Verfahren ebenfalls ein zur Freisetzung verfügbarer Anteil der Jodaktivität von  $< 10^{-4}$ .