



DECKBLATT

	Projekt	PSP-Element	Obj. Kenn.	Aufgabe	UA	Lfg. 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 010.2	9K	333623	---	EBG	RB	0002	00

Titel der Unterlage: Systemanalyse Konrad, Teil 3:
Bestimmung störfallbedingter Aktivitätsfreisetzung,
Stand 11.87 GRS-A-1389

Seite:
I.
Stand:
November 87
Textnummer:

Ersteller:
GRS

Stempelfeld:

PSP-Element TP. 9K/2127212

zu Plan-Kapitel: 3.5.2.1.2

PL
18.12.87

PL
18.12.87

Freigabe für Behörden

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 der PTB.



Gesellschaft für Reaktorsicherheit (GRS) mbH

SYSTEMANALYSE KONRAD, TEIL 3

BESTIMMUNG STÖRFALLBEDINGTER
AKTIVITÄTSFREISETZUNG

GRS-A-1389 (November 1987)

Auftrags-Nr. 41372



Anmerkung:

Dieser Bericht ist von der GRS im Auftrag der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (PTB) 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

	<u>Seite</u>
1. EINLEITUNG	1
2. RANDBEDINGUNGEN	2
2.1 Lastannahmen	2
2.2 Abfallklassen	3
2.3 Abfallproduktgruppen	4
3. VORGEHENSWEISE	7
3.1 Abschätzung der Freisetzungsteile bei thermischer Beaufschlagung	7
3.1.1 Abfallklasse I	7
3.1.2 Abfallklasse II	
3.2 Abschätzung der Freisetzungsteile bei mechanischer Beaufschlagung	9
3.2.1 Abfallklasse I	9
3.2.2 Abfallklasse II	11
4. ERGEBNISSE	13
5. LITERATUR	14

ANHANG I: Quelltermbestimmung mechanischer Lastfall

ANHANG II: Quelltermbestimmung thermischer Lastfall

1. EINLEITUNG

Im Rahmen des Planfeststellungsverfahrens für die Schachanlage KONRAD ist eine Störfallanalyse nach kerntechnischen Gesichtspunkten durchzuführen. Ein wesentlicher Teil dieser Analyse ist die Bestimmung der im Störfall freigesetzten Aktivität, die als Grundlage für die Ermittlung der Strahlenexposition in der Umgebung der Schachanlage dient.

In der vorliegenden Arbeit wird dokumentiert, wie die im Störfall freigesetzten Aktivitätsanteile aus den Abfallgebinden - nachfolgend mit Quelltermbestimmung bezeichnet - bestimmt werden.

Grundlage der Arbeit sind die Planungsunterlagen /DBE 86/ und die Störfallanalyse /GRS 86/.

Gemäß /PTB 86/ sind die in KONRAD zur Einlagerung vorgesehenen Abfallgebinde in eine von zwei Abfallklassen (Abfallklasse I und Abfallklasse II) einzustufen, und im Falle der Abfallklasse I ist das Abfallprodukt einer von 6 Abfallproduktgruppen (APG 01 ... APG 06) zuzuordnen.

Eine Definition der Abfallklassen und Abfallproduktgruppen wird in /PTB 86/ gegeben, die Anforderungen an die Abfallklassen und Abfallproduktgruppen sind in /PTB 87/ aufgeführt, und eine Spezifikation dieser Anforderungen bzw. Definitionen erfolgt in /GRU 86/. Die Definitionen, Anforderungen und Spezifikationen fließen als Randbedingungen mit in die Quelltermbestimmung ein.

Im Hauptteil des vorliegenden Berichtes erfolgt nur eine knappe Schilderung der Vorgehensweise bei der Quelltermbestimmung. Eine detaillierte Dokumentation wird in den Anhängen gegeben. Der Schwerpunkt des Hauptteils liegt in der Darstellung der Ergebnisse der Quelltermbestimmung und einer übersichtlichen Zuordnung zu den Abfallklassen und Abfallproduktgruppen. Die Ergebnisdarstellung erfolgt in der Form, in der sie in den weiteren radiologischen Rechnungen Verwendung findet.

2. RANDBEDINGUNGEN

2.1 Lastannahmen

Die der Quelltermbestimmung zugrunde liegenden Lastannahmen sind in /GRS 86/ definiert. Dabei handelt es sich für obertägige Anlagenbereiche um eine rein mechanische Beaufschlagung der Abfallgebinde, während in den untertägigen Bereichen neben der rein mechanischen Beaufschlagung auch eine kombinierte mechanisch/thermische Belastung zu berücksichtigen ist.

Die Lastannahmen sind im einzelnen:

- obertägiger Anlagenbereich

- Absturz einer Transporteinheit (maximal drei Abfallgebinde) aus < 3 m Höhe in der Umladehalle oder Pufferhalle.
- Absturz eines Abfallgebundes aus < 1,20 m Höhe im Sonderbereich, (obwohl dieser Lastfall durch den obengenannten 3 m-Fall bezüglich des Quellterms abgedeckt ist, wird er betrachtet, da für dieses Ereignis andere Ausbreitungsbedingungen herrschen).

- untertägiger Anlagenbereich

~~Absturz einer Transporteinheit (maximal drei Abfallgebinde) aus < 1,75 m Höhe im untertägigen Entladebereich (dieser Lastfall ist bezüglich des Quellterms durch den nachfolgenden abgedeckt, wird jedoch aufgrund anderer Ausbreitungsbedingungen mitberücksichtigt).~~

~~Absturz eines Abfallgebundes aus \leq 5 m Höhe auf den Kammergrund.~~

- Prall eines Transportfahrzeugs gegen den Stoß mit einer Maximalgeschwindigkeit < 4 m/s und anschließende thermische Beaufschlagung einer Transporteinheit (maximal drei Abfallgebinde) durch ein Schadensfeuer. Für das Schadensbild wird, basierend auf experimentellen Untersuchungen, nach /GRS 85/ modellhaft folgender Brand-Zeit-Temperatur-Verlauf (Modellkurve) angenommen:

von t = 0 min bis 5 min : Anstieg der Brandraumtemperatur von
30 °C bis 800 °C

von t = 5 min bis 65 min : Konstante Brandraumtemperatur von
800 °C

nach 65 min : Konstante Brandraumtemperatur von
30 °C

2.2 Abfallklassen

Die Quelltermbestimmung erfolgt für die Abfallklassen I und II. Im weiteren sollen diese Klassen nur soweit beschrieben werden, als es für die Quelltermbestimmung notwendig ist. Die vollständige Definition ist in /PTB 86/ gegeben.

Unter die Abfallklasse I fallen solche Abfallgebinde, an deren Verpackung über die Grundanforderungen hinaus (minimale, ausschließlich betrieblich bedingte Anforderungen, vgl. /PTB 87/) nur folgende Anforderung gestellt wird:

Die Abfallbehälter sind so ausgelegt, daß bis zu einer Aufprallgeschwindigkeit von kleiner gleich 4 m/s die Integrität soweit erhalten bleibt, daß im Falle einer nachfolgenden thermischen Einwirkung der Sauerstoffzutritt an das Abfallprodukt so begrenzt wird, daß brennbare Abfallprodukte mit Schmelzpunkten über 300 °C nicht mit offener Flamme abbrennen, sondern pyrolysieren.

Abfallgebinde der Abfallklasse II sind solche, an deren Verpackungen erhöhte Anforderungen gestellt werden. Als relevante Anforderungen bezüglich der Quelltermbestimmung sind zu nennen:

- Die Verpackung hält einem Fall aus 5 m Höhe auf eine unnachgiebige Unterlage derart stand, daß die Leckrate (bezogen auf Standardbedingungen wie bei der Dichtheitsprüfung nach der Vakuummethode) nach dem Fall 10^{-4} Pa · m³ nicht überschritten wird*), und

* Diese Anforderung an die Verpackung entfällt bei in Bitumen fixierten radioaktiven Abfällen, bei denen die Aktivität - soweit technisch aufgrund der Beschaffenheit des Abfalls sinnvoll machbar - gleichmäßig und vollständig im Fixierungsmittel verteilt ist.

- die Wandung der Verpackung besitzt einen Wärmeleitwiderstand (Produkt aus Schichtdicke und reziproker Wärmeleitfähigkeit) $\geq 0,1 \text{ m}^2 \cdot \text{K/W}$ oder
- bei einem Schadensfeuer mit einer Temperatur von $800 \text{ }^\circ\text{C}$ während einer Stunde ist sichergestellt, daß die Leckrate (bezogen auf Standardbedingungen wie bei der Dichtheitsprüfung nach der Vakuummethode) vor dem Brand kleiner $10^{-5} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ ist und die integrale Leckage während des Brandes und einer Abkühlphase von 24 Stunden einen Wert von 1 Mol nicht überschreitet.

Die obengenannten Anforderungen fließen in die Quelltermbestimmung für die Abfallklasse II ein.

2.3 Abfallproduktgruppen

Abfallprodukte von Abfallgebinden der Abfallklasse I sind einer von sechs Abfallproduktgruppen zuzuordnen.

Kennziffer	Abfallproduktgruppe
01	Bitumen- und Kunststoffprodukte
02	Feststoffe
03	Metallische Feststoffe
04	Preßlinge
05	Zementierte/betonierte Abfälle
06	Konzentrate

Bei einer Zuordnung zu einer Abfallproduktgruppe müssen über die Grundanforderungen, die insbesondere der Vermeidung von Störfällen bzw. Betriebsstörungen dienen, die nachfolgend aufgeführten abfallproduktspezifischen Anforderungen erfüllt sein:

Gruppe 01: Bitumen- und Kunststoffprodukte

Bei einer Zuordnung eines Abfallproduktes zur Gruppe 01 müssen die Grundanforderungen erfüllt sein, das heißt, bei Einhaltung dieser Anforderungen können alle Abfallprodukte der Gruppe 01 zugeordnet werden.

Gruppe 02: Feststoffe

Bei einer Zuordnung eines Abfallproduktes zur Gruppe 02 muß über die Grundanforderungen hinaus gewährleistet sein, daß brennbare Abfallstoffe mit einem Schmelzpunkt kleiner 300 °C

- so fixiert sind, daß sie nicht aus dem Abfallprodukt austreten, wenn sie bei thermischer Belastung flüssig werden oder
- einen Anteil an der Aktivität im betreffenden Abfallprodukt bis zu 1 % besitzen.

Gruppe 03: Metallische Feststoffe

Bei einer Zuordnung des Abfallproduktes zur Gruppe 03 muß über die Grundanforderungen hinaus gewährleistet sein, daß es nur aus Metallteilen oder aus Werkstoffen von Einbauteilen eines Reaktorkerns mit der Ausnahme von Graphit besteht.

Gruppe 04: Preßlinge

Bei einer Zuordnung eines Abfallproduktes zur Gruppe 04 muß über die Grundanforderungen hinaus gewährleistet sein, daß der radioaktive Abfall mit einem Preßdruck größer gleich 30 MPa formstabil kompaktiert ist.

Gruppe 05: Zementierte/betonierte Abfälle

Bei einer Zuordnung eines Abfallproduktes zur Gruppe 05 muß über die Grundanforderungen hinaus gewährleistet sein, daß der radioaktive Abfall in Zementstein oder Beton fixiert ist. Die Fixierung muß so ausgeführt sein, daß

- bei eingebundenen oder verfestigten radioaktiven Abfällen (z.B. Aschen, Pulvern oder wässrigen Konzentraten) die Aktivität gleichmäßig und vollständig im Zementstein oder Beton verteilt ist,
- bei vergossenen radioaktiven Abfällen (z.B. Schrott) die Aktivität - soweit technisch und aufgrund der Beschaffenheit des Abfalls sinnvoll machbar - möglichst gleichmäßig im Abfallprodukt verteilt und entweder
 - die Druckfestigkeit des Abfallproduktes größer gleich 10 N/mm^2 beträgt oder
 - der Volumenanteil der Abfallmatrix 40 % übersteigt.

Gruppe 06: Konzentrate

Bei einer Zuordnung eines Abfallproduktes zur Gruppe 06 muß über die Grundanforderungen hinaus gewährleistet sein, daß der radioaktive Abfall selbst aus einem festen, nicht pulverförmigen Bodenkörper aus eingedampften Flüssigkeiten oder getrockneten Schlämmen besteht und nicht brennbar ist.

Eine beispielhafte Zuordnung realistischer Abfälle zu den Abfallproduktgruppen unter Berücksichtigung der angewandten Konditionierungsverfahren ist in Tabelle 1 gegeben.

3. VORGEHENSWEISE

Nachfolgend wird in knapper Form ein Überblick über Arbeitshypothesen und Modellannahmen im Zusammenhang mit der Quelltermbestimmung gegeben. Eine ausführliche Darstellung der Vorgehensweise findet sich in den Anhängen I und II.

3.1 Abschätzung der Freisetzungsanteile bei thermischer Beaufschlagung

3.1.1 Abfallklasse I

Bei der Freisetzung aus Abfallgebinden der Abfallklasse I infolge thermischer Beaufschlagung werden vier Freisetzungsmechanismen berücksichtigt:

- Freisetzung durch Pyrolyse des Abfallproduktes,
- Freisetzung durch Verbrennen des Abfallproduktes,
- Freisetzung durch Verdampfen von Wasser im Abfallprodukt,
- Freisetzung durch Sublimation bzw. Verdampfen radioaktiver Stoffe.

Mit diesen vier Grundfreisetzungsmechanismen lassen sich - entweder einzeln oder in Kombination - die Freisetzungen aus den Abfallproduktgruppen beschreiben.

Die Ermittlung der Freisetzungsanteile erfolgt für die Radionuklidgruppen

- Halogene und C 14 in leichtflüchtiger Form,
- Tritium (als HTO),
- sonstige Radionuklide.

Für die einzelnen Abfallproduktgruppen werden folgende Freisetzungsmechanismen unterstellt (falls mehrere Mechanismen möglich sind, sind nur die den Quellterm bestimmenden aufgeführt):

- Abfallproduktgruppe 01
 - Verbrennen des Abfallproduktes

- Abfallproduktgruppe 02
 - Verbrennen von 1 % des Abfalls
 - Freisetzung durch Sublimation bzw. Verdampfen radioaktiver Stoffe

- Abfallproduktgruppe 03
 - Freisetzung durch Sublimation bzw. Verdampfen radioaktiver Stoffe

- Abfallproduktgruppe 04
 - Freisetzung durch Pyrolyse des Abfallproduktes

- Abfallproduktgruppe 05
 - Freisetzung durch Pyrolyse des Abfallproduktes im Teilvolumen mit Temperaturen $> 300\text{ °C}$
 - Freisetzung durch Verdampfen von Wasser im Abfallprodukt mit Temperaturen $> 100\text{ °C}$

- Abfallproduktgruppe 06
 - Freisetzung durch Verdampfen von Wasser im Abfallprodukt

Sofern bei der Quelltermberechnung (instationäre) Temperaturfelder zu berücksichtigen sind, erfolgt die Berechnung für ein Abfallgebinde mit einem Stahlblechcontainer Typ I.

3.1.2 Abfallklasse II

Die Ermittlung der Freisetzungsanteile aus Abfallgebinden der Abfallklasse II erfolgt in zwei Schritten.

Als Voraussetzung für die folgenden Betrachtungen wird unterstellt, daß die Integrität der Behälter gewahrt bleibt. Die Aktivitätsfreisetzung erfolgt ausschließlich über beschädigte Deckeldichtungen, wobei als treibende Kraft der Überdruck infolge der thermischen Beaufschlagung berücksichtigt wird.

Zunächst wird in Abhängigkeit von der berechneten instationären Innentemperatur für einen bezüglich der Freisetzung beim thermischen Lastfall abdeckenden Behälter der Abfallklasse II (Gußbehälter Typ II 16/0) die Freisetzung aus dem Abfallprodukt in die Behälteratmosphäre bestimmt. Hierbei werden unterschiedliche Freisetzungsmechanismen der jeweiligen Abfallproduktgruppe berücksichtigt.

Im zweiten Schritt wird aus den thermodynamischen Zustandsgrößen der Leckratenverlauf berechnet und hiermit die Menge des integral ausgeströmten Gases bestimmt. Unter der konservativen Annahme, daß die Aktivitätskonzentration (Bq/Mol) des freigesetzten Gases mit der Aktivitätskonzentration in der Behälteratmosphäre übereinstimmt, ergibt sich die freigesetzte Aktivität als Produkt der Molzahl des ausgeströmten Gases mit der Aktivitätskonzentration.

3.2 Abschätzung der Freisetzungsanteile bei mechanischer Beaufschlagung

3.2.1 Abfallklasse I

Bei Abfallgebinden der Abfallklasse I werden bei Aufprallgeschwindigkeiten > 4 m/s keine freisetzungsmindernden Wirkungen der Abfallbehälter berücksichtigt. Es wird konservativ angenommen, daß die gesamte freisetzbare Aktivität freigesetzt wird, wobei unter freisetzbarer Aktivität die an Partikel mit einem aerodynamisch äquivalenten Durchmesser $< 10^{-4}$ m gebundene Aktivität verstanden wird.

Zur Abschätzung der Freisetzungsanteile sind somit zunächst die bei der mechanischen Beaufschlagung erzeugten oder offengelegten Partikelsysteme zu bestimmen. Unter der Voraussetzung einer homogenen Aktivitätsverteilung ergibt sich hieraus die freisetzbare Aktivität.

Von der freisetzbaren Aktivität wird durch die mechanische Beaufschlagung nur ein kleiner Anteil in der Atmosphäre dispergiert. Die Ermittlung dieses Anteils erfolgt auf der Basis entsprechender experimenteller Untersuchungen.

Der Quelltermmittlung für die einzelnen Abfallproduktgruppen wurden die folgenden Arbeitshypothesen zugrunde gelegt:

- Abfallproduktgruppen 01 und 02

Zur Abdeckung möglicher Abfallformen in den Abfallproduktgruppen 01 und 02 werden feinpulverige Substanzen herangezogen, deren Größenverteilungen aerodynamisch und durch Siebanalysen ermittelt wurden.

Der Quellterm ergibt sich als der Bruchteil eines abdeckenden Partikelsystems, welcher nach entsprechenden Abwurfversuchen (1 m bis 5 m) als luftgetragen gemessen wurde.

- Abfallproduktgruppe 03

Materialien der Abfallproduktgruppe 03 können durch die mechanischen Beaufschlagungen der betrachteten Störfälle nicht zerkleinert werden, jedoch können Abfallbestandteile pulverförmig vorliegen. Der pulverförmige Abfallanteil wird behandelt wie die feinpulverigen Substanzen der Abfallproduktgruppen 01 und 02.

- Abfallproduktgruppe 04

Die Abfälle der Abfallproduktgruppe 04 sind formstabil kompaktiert. Derart kompaktierte Preßlinge werden durch die mechanischen Beaufschlagungen der unterstellten Störfälle nicht zerstört. Die Spezifikationen der Preßlinge in /GRU 86/ lassen zu, daß sich bis zu 1 % der Aktivität außerhalb des Preßlings befinden darf. Um diesen Anteil abzudecken, wird unterstellt, daß es sich um feinpulverige Substanzen handelt, die bezüglich der Freisetzung wie die Abfälle der Abfallproduktgruppen 01 und 02 behandelt werden.

- Abfallproduktgruppen 05 und 06

Abfallprodukte der Abfallproduktgruppen 05 und 06 werden durch die mechanische Beaufschlagung bei den unterstellten Lastfällen zerkleinert. Der Ermittlung der aus der mechanischen Beaufschlagung resultierenden Partikelverteilung liegt ein auf experimentellen Untersuchungen basierender halbempirischer Ansatz zugrunde. Bei den Abfallproduktgruppen 05 und 06 wird nicht berücksichtigt, daß nur ein Bruchteil der freisetzbaren Partikel auch freigesetzt wird.

Die Ergebnisse der Quelltermbestimmung für die Abfallklasse I werden als Massensummenhäufigkeiten der unabhängigen Variablen "Aerodynamisch äquivalenter Durchmesser (AED)" angegeben. Diese Funktion gibt den Anteil an der Gesamtmasse der Abfallprodukte an, der kleiner als der entsprechende AED ist. Unter der Voraussetzung der schon erwähnten homogenen Aktivitätsverteilung entspricht dies auch dem Anteil an der Gesamtaktivität, der freigesetzt wird.

3.2.2 Abfallklasse II

Bei Abfallgebinden der Abfallklasse II wird unterschieden zwischen

- bitumenfixierten Abfallgebinden und
- Abfallgebinden mit spezifizierter Dichtheit nach mechanischer Beaufschlagung.

Für bitumenfixierte Abfälle wird unterstellt, daß die Verpackung bei der unterstellten mechanischen Beaufschlagung versagt und daß das bitumenfixierte Inventar offengelegt wird. Die Beaufschlagungsenergie ist jedoch nicht ausreichend, einen nennenswerten Anteil (das ist ein Anteil, der zu einer höheren Dosis führt als beim thermischen Lastfall) freisetzbarer Partikel zu bilden,

Da bei den bitumenfixierten Abfällen praktisch keine Freisetzung resultiert, wird hierauf auch im Anhang II nicht weiter eingegangen.

Bei Abfallgebinden der Abfallklasse II mit spezifizierter Dichtheit wird unterstellt, daß beim mechanischen Lastfall die Integrität der Abfallbehälter erhalten bleibt. Soweit eine Freisetzung radioaktiver Stoffe auftritt, ist sie ausschließlich durch geringe Leckagen über zum Beispiel beschädigte Deckeldichtungen bedingt. Unter Bezug auf die Anforderungen an die Leckdichtheit von Behältern mit Typ B-Qualifikation gemäß den Bestimmungen der GGVS wird nachfolgend für diese Behälter der Abfallklasse II nach einem Störfall mit mechanischer Belastung eine maximale Leckrate von $< 10^{-4} \text{ Pa m}^3\text{s}^{-1}$ (bezogen auf $\Delta p = 0,1 \text{ MPa}$, $T = 300 \text{ K}$) angenommen.

Mit dieser Leckrate läßt sich der freigesetzte Anteil abschätzen, ohne auf die Freisetzungseigenschaften des Abfallproduktes zurückgreifen zu müssen.

Hierzu wird konservativ angenommen, daß die gesamte Aktivität an Aerosole mit einem AED $< 10 \mu\text{m}$ gebunden ist. Weiterhin wird von einem Behälterinnendruck von $0,2 \text{ MPa}$ ausgegangen. Aus diesem Innendruck und der angegebenen Leckrate errechnet sich eine Ausströmrage. Bei Vernachlässigung aerosolmechanischer Effekte im Austrittsspalt ist die auf die Gasmasse bezogene Aerosolkonzentration - und damit auch die Aktivitätskonzentration - in der Behälteratmosphäre gleich der im austretenden Gasstrom.

Aus der Aerosolkonzentration und der Ausströmrage läßt sich für eine vorgegebene Freisetzungzeit der freigesetzte Anteil berechnen. Als Freisetzungzeit werden 10 Stunden angesetzt, da dieser Zeitraum für eventuelle Gegenmaßnahmen, zum Beispiel Abdichtungsmaßnahmen, ausreichend ist.

4. ERGEBNISSE

Ergebnis der Quelltermbestimmung sind die Freisetzungsteile der einzelnen Abfallklassen und Abfallproduktgruppen, wobei sich die Darstellung nach den für die radiologischen Rechnungen notwendigen Angaben richtet.

Sind die freigesetzten Aktivitäten lungengängig, so wird auf die Angabe der Größenverteilung verzichtet. Ferner wird bei einer nuklidabhängigen Betrachtungsweise nur ein Freisetzungsteil für alle Nuklide angegeben.

Das bedeutet, daß bei den Abfallgebunden der Abfallklasse I die Quellterme bei den mechanischen Lastfällen größenabhängig angegeben werden. Sie sind in Tabelle 2 für alle Abfallproduktgruppen als Massensummenhäufigkeiten der Partikeldurchmesser (AED) dargestellt. Bei den Abfallproduktgruppen 05 und 06 erfolgt die Umrechnung von geometrischen Durchmessern auf die aerodynamischen über die Stoke'sche Beziehung mit einer Partikeldichte von 2 g/cm^3 .

Für alle Abfallgebunde der Abfallklasse II ergibt sich bei den mechanischen Lastfällen nur ein einziger Wert. Der Freisetzungsteil ist $< 3 \text{ E-8}$.

In der Tabelle 3 sind die Freisetzungsteile für den thermischen Lastfall für die Abfallproduktgruppen der Abfallklasse I und für die Abfallklasse II aufgelistet. Die Angaben erfolgen für vier Radionuklidgruppen.

5. LITERATUR

- /DBE 86/ Deutsche Gesellschaft zum Bau und Betrieb von Endlagern für Abfallstoffe mbH (DBE)
Einlagerung Abfallgebinde, Leistungskatalog Konrad,
Teilaufgabe Nr. K 45710, Band 1, 1. Revision
Stand 10/86
- /GRS 85/ Gesellschaft für Reaktorsicherheit (GRS) mbH
Systemanalyse Konrad, Teil 2
Signifikanz einer Modellkurve 800 °C/1 h für den Temperatur-Zeitverlauf hinsichtlich der Auswirkungen eines Transportfahrzeugbrandes untertage
GRS-A-1094, Köln, Mai 1985
- /GRS 86/ Gesellschaft für Reaktorsicherheit (GRS) mbH
Systemanalyse Konrad, Teil 3
Ermittlung und Klassifizierung von Störfällen
GRS-A-1216, Köln, April 1986
- /GRU 86/ D. Gründler, et al.
Systemanalyse KONRAD, Teil 3
Beschreibung und Quantifizierung von Kenngrößen und Ableitung zweckmäßiger Maßnahmen zur Produktkontrolle
GRS-A-1313, Dezember 1986
- /PTB 84/ Physikalisch-Technische Bundesanstalt
Abmessungen standardisierter Behältertypen (Stand 4/84)
Braunschweig, 25.04.1984
- /PTB 86/ Physikalisch-Technische Bundesanstalt
Plan - Endlager für radioaktive Stoffe -
Schachtanlage KONRAD - Salzgitter (Stand 3/1986)

/PTB 87/ Physikalisch-Technische Bundesanstalt
Anforderungen an endzulagernde radioaktive Abfälle
(Vorläufige Endlagerungsbedingungen, Stand November
1986)
- Schachtanlage Konrad -
PTB-SE-16, Braunschweig, Januar 1987

Tabelle 1:

Zuordnung von Abfällen und Konditionierungsverfahren zu Abfallproduktgruppen

Abfall- produktgruppe	Abfall	Konditionierungs- verfahren
01 Bitumen- und Kunststoff- produkte	Dekontaminations- und Pro- zeßabwässer	Abfall durch homogenes Vermischen mit Bitumen oder Kunststoffen im Behälter fixiert
	Konzentrate	
	Filterharze	
	Kunststoffe, Thermoplaste	Abfall unfixiert bei Umgebungsdruck im Be- hälter entwässert
02 Feststoffe	Feste Komponenten, Schrott, Schutt und Erdreich	Ohne Fixierung direkt in Behälter einge- bracht. Gegebenenfalls durch leichten Druck oder Rütteln verdich- tet
	Filter (evtl. geshreddert)	
	Aktivierte, kontaminierte Feststoffe	
	Rückstände aus Verbren- nung und Pyrolyse	Abfall in Polyäthylen- beutel im Behälter mit Zementleim umgossen
	Pulverförmige Stoffe, die durch Fixierungsmittel nicht gebunden werden	Abfall ohne Vermischen mit Zement/Beton ver- gossen

Tabelle 1: (Fortsetzung)

Zuordnung von Abfällen und Konditionierungsverfahren zu Abfallproduktgruppen

Abfall- produktgruppe	Abfall	Konditionierungs- verfahren
03 Metallische Feststoffe	Steuerelemente	Abfälle werden direkt, gegebenenfalls unter Wasser, in Behälter geladen und entwäs- sert
	Meßblanzen	
	BE-Kästen	
	Aktivierte, kontaminierte Metallteile	
04 Preßlinge	Betriebsabfälle wie Tex- tilien und Papier	Abfälle in 180 l Kar- tuschen mit $p \geq 30$ MPa kompaktiert
	Sperrige Rückstände aus der Verbrennung	
	Filter, sperrige Abfälle	

Tabelle 1: (Fortsetzung)

Zuordnung von Abfällen und Konditionierungsverfahren zu Abfallproduktgruppen

Abfall- produktgruppe	Abfall	Konditionierungs- verfahren
05 Zementierte/ betonierte Abfälle	Abwasser, Konzentrate, Schlämme, pastöse, U/Th- haltige Abfälle	Abfall durch homoge- nes Vermischen mit Zement/Beton im Be- hälter fixiert
	Rückstände aus Verbren- nung und Pyrolyse	
	Bauschutt, Strahlsand	
	Filterharze, Kieselgel	
	Prüfstrahler und Strahlen- quellen mit Abschirmung	Abfall mit Zement/ Beton im Behälter fixiert
	Aktivierte, kontaminierte nicht formbeständige Feststoffe	
	Aktivierte, kontaminierte formbeständige Feststoffe	
	Metallteile	
06 Konzentrate	Filter- und Verdampfer- konzentrate, Prozeßab- wasser	Abfälle im Behälter zu festem Produkt ge- trocknet

Tabelle 2: Freisetzungsteile für mechanische Lastfälle
Abfallproduktgruppen 01 und 02

GROESSE AED μm	MASSENSUMMENHAEUFIGKEITEN			
	5m m.Vent	2m m.Vent	3m o.Vent	1m o.Vent
5.00E000	5.87E-004	2.70E-004	1.40E-004	4.50E-005
1.00E001	1.77E-003	6.29E-004	3.90E-004	1.10E-004
2.00E001	3.85E-003	1.03E-003	9.55E-004	2.20E-004
3.00E001	4.36E-003	1.16E-003	1.24E-003	3.50E-004
4.00E001	4.76E-003	1.27E-003	1.50E-003	5.00E-004
5.00E001	5.09E-003	1.36E-003	1.70E-003	6.20E-004
6.00E001	5.37E-003	1.43E-003	1.90E-003	7.80E-004
7.00E001	5.63E-003	1.50E-003	2.10E-003	9.20E-004
8.00E001	N.R.	1.57E-003	N.R.	N.R.
9.00E001	N.R.	1.64E-003	N.R.	N.R.
1.00E002	N.R.	1.71E-003	N.R.	N.R.

N.R.: NICHT RELEVANT

Abfallproduktgruppen 03 und 04

GROESSE AED μm	MASSENSUMMENHAEUFIGKEITEN			
	5m m.Vent	2m m.Vent	3m o.Vent	1m o.Vent
5.00E000	5.87E-006	2.70E-006	1.40E-006	4.50E-007
1.00E001	1.77E-005	6.29E-006	3.90E-006	1.10E-006
2.00E001	3.85E-005	1.03E-005	9.55E-006	2.20E-006
3.00E001	4.36E-005	1.16E-005	1.24E-005	3.50E-006
4.00E001	4.76E-005	1.27E-005	1.50E-005	5.00E-006
5.00E001	5.09E-005	1.36E-005	1.70E-005	6.20E-006
6.00E001	5.37E-005	1.43E-005	1.90E-005	7.80E-006
7.00E001	5.63E-005	1.50E-005	2.10E-005	9.20E-006
8.00E001	N.R.	1.57E-005	N.R.	N.R.
9.00E001	N.R.	1.64E-005	N.R.	N.R.
1.00E002	N.R.	1.71E-005	N.R.	N.R.

N.R.: NICHT RELEVANT

Abfallproduktgruppen 05 und 06

GROESSE AED μm	MASSENSUMMENHAEUFIGKEITEN			
	5M	3M	2M	1.25M
5.00E000	1.65E-006	5.76E-007	2.42E-007	8.53E-008
1.00E001	6.45E-006	2.38E-006	1.05E-006	3.91E-007
2.00E001	2.32E-005	9.11E-006	4.20E-006	1.65E-006
3.00E001	4.74E-005	1.92E-005	9.11E-006	3.70E-006
4.00E001	7.73E-005	3.21E-005	1.55E-005	6.45E-006
5.00E001	1.12E-004	4.74E-005	2.32E-005	9.83E-006
6.00E001	1.50E-004	6.47E-005	3.21E-005	1.38E-005
7.00E001	1.92E-004	8.38E-005	4.20E-005	1.83E-005
8.00E001	N.R.	N.R.	5.29E-005	N.R.
9.00E001	N.R.	N.R.	6.47E-005	N.R.
1.00E002	N.R.	N.R.	7.73E-005	N.R.

N.R.: NICHT RELEVANT

ANHANG I

Quelltermbestimmung thermischer
Lastfall

Tabelle 3: Freisetzungsanteile für den thermischen
----- Lastfall

		HALOGENE	TRITIUM	C14	SONST. RADIONUKL.
AKL I	APG 01	1	1	1	0.5
	APG 02	1	1	1	0.01
	APG 03	1	1	1	0.004
	APG 04	1	1	1	0.0016
	APG 05	1	0.5	5.0E-4	5.0E-4
	APG 06	1	1	5.0E-4	5.0E-4
AKL II	- -	0.04	0.004	6.0E-3	2.0E-5

INHALT

1. EINLEITUNG
2. FREISETZUNGSMECHANISMEN
 - 2.1 Freisetzung durch Pyrolyse des Abfallproduktes
 - 2.2 Freisetzung durch Verbrennen des Abfallproduktes
 - 2.3 Freisetzung durch Verdampfen von Wasser im Abfallprodukt
 - 2.4 Freisetzung durch Sublimation bzw. Verdampfen radioaktiver Stoffe
3. ZUORDNUNG VON FREISETZUNGSMECHANISMEN ZU ABFALL-PRODUKTGRUPPEN
 - 3.1 APG 01 (Bitumen- und Kunststoffprodukte)
 - 3.2 APG 02 (Feststoffe)
 - 3.3 APG 03 (Metallische Feststoffe)
 - 3.4 APG 04 (Preßlinge)
 - 3.5 APG 05 (Zementierte/betonierte Abfälle)
 - 3.6 APG 06 (Konzentrate)
4. FREISETZUNG AUS ABFALLGEBINDEN DER ABFALLKLASSE I
5. FREISETZUNGSMODELL FÜR ABFALLKLASSE II
 - 5.1 Freisetzung in die Behältnisatmosphäre
 - 5.2 Ausströmvorgänge aus dem Behältnis
 - 5.3 Wertung
 - 5.4 Einfluß des Wärmeleitwiderstandes
6. ZUSAMMENFASSUNG
7. LITERATUR

1. EINLEITUNG

Der vorliegende Anhang zur Quelltermbestimmung bei thermischer Beaufschlagung umfaßt die folgenden Arbeitspunkte:

- Beschreibung theoretischer und experimenteller Grundlagen für unterschiedliche Freisetzungsmechanismen,
- Zuordnung der relevanten Freisetzungsmechanismen zu Abfallproduktgruppen,
- Quelltermbestimmung für Abfallgebinde der Abfallklasse I,
- Quelltermbestimmung für Abfallgebinde der Abfallklasse II.

2. FREISETZUNGSMECHANISMEN

Im folgenden werden die Mechanismen beschrieben, die für die im Hauptteil angegebenen Abfallprodukte beim thermischen Lastfall relevant sind. Es sind im einzelnen:

- Freisetzung durch Pyrolyse des Abfallproduktes,
- Freisetzung durch Verbrennen des Abfallproduktes,
- Freisetzung durch Verdampfen von Wasser im Abfallprodukt,
- Freisetzung durch Sublimation bzw. Verdampfen radioaktiver Stoffe.

Für diese vier Freisetzungsmechanismen werden die theoretischen und experimentellen Grundlagen dargelegt, die bei der Quelltermbestimmung zur Anwendung kommen.

2.1 Freisetzung durch Pyrolyse des Abfallproduktes

Unter Pyrolyse versteht man die thermische Zersetzung eines Stoffes. Dieser Vorgang findet dann in Abfallgebinden statt, wenn die Produkttemperatur unter eingeschränktem Luftzutritt gewisse Schwellenwerte überschreitet und das Abfallprodukt thermisch instabile Bestandteile enthält. Die gasförmigen Zersetzungsprodukte - sogenanntes Pyrolysegas - strömen aus dem Abfallgebinde und brennen außerhalb des Abfallgebundes ab, sofern sie entzündet werden. Mit den Pyrolysegasen wird ein bestimmter Anteil der Aktivität freigesetzt.

Thermogravimetrieanalysen an Harzprodukten /ICT 75/ ergeben, daß erst oberhalb 573 K Pyrolysevorgänge in nennenswertem Umfang einsetzen. Indirekt kommen auch experimentelle Untersuchungen in /NUK 84/ und /RÄM 79a/ zur thermischen Belastung von Abfallprodukten zu diesem Ergebnis: Durch die Verfärbung des Produktes sind die Volumenelemente kenntlich, in denen Pyrolyse stattgefunden hat. Diese Volumenelemente liegen in einer etwa 10 mm starken Randschicht der Abfallgebinde /NUK 84/, für die Temperaturfeldrechnungen Temperaturen über 573 K ausweisen.

Von der NUKEM ist die Freisetzung durch Pyrolyse in einem maßstäblichen Experiment untersucht worden. Hierzu wurden 5 Preßlinge mit brennbarem Abfallsimulat hergestellt und in ein 200 l-Faß eingebracht. Jeder Preßling war mit 60 g CsNO_3 dotiert. Der ca. 1 cm dicke Spalt war mit Zementleim vergossen. Dieses Faß wurde einem Feuerstest unterworfen, welcher bezüglich Brand-Zeit-Temperaturverlauf erheblich über dem unterstellten Lastfall im Endlager Konrad liegt. Bei diesem Feuerstest wurden die Preßlinge so aufgeheizt, daß der Inhalt teilweise pyrolysierte.

Der geschilderte Versuch deckt nicht nur mit Zementleim vergossene Preßlinge ab, sondern gleichfalls unfixierte Preßlinge in einem Container, da durch den unvermeidlichen Luftspalt zwischen Preßling und Containerwand eine Isolationswirkung resultiert, die größer ist als die Isolationswirkung der Zementleimschicht, vergleiche Kapitel 4 dieses Anhangs.

Von der Pyrolyse betroffen waren ca. 30 % des Volumens im äußeren Randbereich (eine ca. 3 cm dicke Schicht war verfärbt). Ermittelt wurde ein Freisetzungsanteil für Cs von $1,6 \cdot 10^{-3}$ und von Sr von $1,2 \cdot 10^{-4}$. Bei vollständiger Pyrolyse sind daher maximale Freisetzungsanteile von $5 \cdot 10^{-3}$ für Cs und $4 \cdot 10^{-4}$ für Sr zu erwarten.

Für alle Radionuklide außer den Halogenen, C 14 in leichtflüchtiger Verbindung und Tritium wird bei der Quelltermbestimmung der für Cs ermittelte Wert von $5 \cdot 10^{-3}$ für von Pyrolyse betroffene Anteile herangezogen. Für die Halogene, C 14 in leichtflüchtiger Verbindung und Tritium werden die in Kapitel 2.4 abgeleiteten Freisetzungsanteile übernommen.

2.2 Freisetzung durch Verbrennen des Abfallproduktes

Brennbare Abfallprodukte werden beim angenommenen thermischen Lastfall abbrennen, sofern ein ausreichend großer Luftzutritt zum Abfallprodukt gegeben ist.

Für C 14, Tritium und Halogene wird eine 100 %ige Freisetzung durch Verbrennen des Abfallproduktes unterstellt.

Zur Ermittlung von Freisetzungsteilen sonstiger Radionuklide durch Verbrennen existiert eine Reihe experimenteller Untersuchungen /RÄM 79b/, /MIS 70/, /MIS 73/, /SUT 74/, /SEE 82/, /VEJ 82/. Die Freisetzungsteile bei diesen Experimenten liegen zwischen 10^{-2} bis 0,4, wobei sich die starken Schwankungen aus unterschiedlichen experimentellen Randbedingungen ergeben.

Diese Werte beinhalten noch nicht die Freisetzung nach dem Brand durch Dispersion der Verbrennungsrückstände in die Atmosphäre (Resuspension).

Der Umfang der Freisetzung durch Resuspension hängt von den aerodynamischen Eigenschaften der Verbrennungsrückstände, von der Art der Oberfläche, auf der sie sich befinden, der Windgeschwindigkeit, dem Grad der Umschließung und sonstigen Parametern ab. Diese Vielzahl von Einflußgrößen, die nur unzureichend bekannt sind, steht einer theoretischen Quantifizierung von Freisetzungsteilen entgegen, so daß die Abschätzung von Freisetzungsteilen auf experimentellen Daten basieren muß. Über hierzu geeignete experimentelle Untersuchungen wird zum Beispiel in /MIS 73a/ und /MIS 74/ berichtet.

In diesen Studien ist einmal ein Freisetzungsteil von 24,4 % gemessen worden, im allgemeinen schwanken die Meßwerte um 1 %. Der einmalig gemessene hohe Wert ist für das hier zu untersuchende Freisetzungsszenarium nicht relevant. Er wurde bei Windgeschwindigkeiten von ca. 10 m/s ermittelt, die erheblich über den hier zu unterstellenden Windgeschwindigkeiten liegen. Weiterhin wurden die Auswirkungen des vorangegangenen Brandes nicht berücksichtigt, von denen nach /MIS 73b/ eine freisetzungsmindernde Wirkung zu erwarten ist.

Für ein realistisches Szenarium wird aufgrund der zitierten Untersuchungen ein Freisetzungsfaktor durch Resuspension von 1 % als abdeckend angesehen. Zur Berücksichtigung bestehender Unsicherheiten, zum Beispiel bezüglich des aerodynamischen Verhaltens der Verbrennungsrückstände, wird der Freisetzungsanteil durch Resuspension konservativ zu 10 % abgeschätzt.

Mit dem maximalen Freisetzungsanteil durch Verbrennen von 40 % ergibt sich ein Gesamtfreisetzungsanteil von 50 %.

2.3 Freisetzung durch Verdampfung von Wasser im Abfallprodukt

Dieser Freisetzungsmechanismus ist besonders relevant für zementierte/betonierte Abfälle und Konzentrate. Diese Abfallproduktgruppen enthalten große Mengen an verdampfbarem Wasser, zum Beispiel als Flüssigkeit im Porenvolumen, als Kristallwasser oder als Hydratationswasser. Bei der Erwärmung des Produktes wird das Wasser dampfförmig durch Verdampfung und Dehydratation freigesetzt. Mit dem Phasenübergang des Wassers erfolgt auch ein Übergang von radioaktiven Stoffen in die Gasphase.

Der Umfang der Freisetzung hängt von der Ausdampf- bzw. Dehydratationskinetik, der chemischen Form des gelösten radioaktiven Stoffes, dem Wasser/Zementwert der Matrix bzw. dem Wassergehalt von Konzentraten und ähnlichen Parametern ab. Alle diese Größen sind im Hinblick auf eine abdeckende theoretische Vorgehensweise schwer zu quantifizieren. Darüber hinaus fehlen derzeit geeignete Modelle, um den Einfluß dieser Größen auf die Freisetzung zu beschreiben, so daß auch bei diesem Freisetzungsmechanismus eine Quantifizierung nur mittels experimenteller Untersuchungen möglich ist.

Derartige Experimente sind an maßstäblichen Abfallgebinden (1:1 - Versuche) mit Zementmatrix /NUK 84/, /VEJ 83/ und im Labormaßstab /MIS 68a/, /MIS 68b/ durchgeführt worden.

Bei den maßstäblichen Untersuchungen wurde zum Beispiel in /VEJ 83/ während einer 70-minütigen Flammenaussetzung eines 200 l-Fasses zusammen mit ca. 10 % des gesamten Wassers ein Anteil von 10^{-5} des Cs-In-

ventars freigesetzt. Diese beiden Werte bildeten während der gesamten Freisetzungsdauer ein nahezu konstantes Verhältnis, so daß bei hypothetischer 100 %iger Wasserfreisetzung - realistisch ist dies nicht möglich - ein maximaler Freisetzungsanteil von 10^{-4} zu erwarten ist.

Bei den Untersuchungen im Labormaßstab /MIS 68a/, /MIS 68b/ wurden beim Eindampfen von Pu-Nitratlösung mit 90 % Volumenreduktion Freisetzunganteile von 10^{-5} bis 10^{-3} ermittelt. Der maximal ermittelte Wert bei diesen Untersuchungen von $1,8 \cdot 10^{-3}$ wurde beim Eindampfen durch heftiges Kochen gemessen, ein Vorgang, der zum Beispiel beim Ausdampfen von Wasser aus einer Zementmatrix bzw. aus Konzentraten ausgeschlossen werden kann. Der höchste Wert beim langsamen Eindampfen, dies entspricht in etwa den Vorgängen beim Wasseraustrag aus Zementmatrizen bzw. Konzentraten, beträgt $8 \cdot 10^{-5}$. Dies stellt eine gute Übereinstimmung mit dem im maßstäblichen Experiment gewonnenen Wert dar.

Der geschilderte Freisetzungsmechanismus läuft erst bei Temperaturen > 373 K ab. Im Sinne einer konservativen Abschätzung wird bei der Quelltermbestimmung für das Teilvolumen mit Temperaturen > 373 K ein Freisetzungsanteil von $5 \cdot 10^{-4}$ für alle Radionuklide außer Tritium, C 14 in leichtflüchtiger Form und den Halogenen angesetzt. Für Tritium und die Halogene wird der nachfolgend beschriebene Freisetzungsmechanismus angesetzt.

2.4 Freisetzung durch Sublimation bzw. Verdampfen radioaktiver Stoffe

Neben dem in Kapitel 2.3 beschriebenen Phasenübergang radioaktiver Stoffe bei der Verdampfung des Abfallproduktes können radioaktive Stoffe auch direkt durch Sublimation bzw. Verdampfen freigesetzt werden. Dieser Prozeß ist dominant für die Freisetzung leichtflüchtiger Radionuklide wie Halogene, C 14 in leichtflüchtiger Form und Tritium; er kann jedoch auch für die Freisetzung sonstiger Radionuklide bei Oberflächenkontaminationen an metallischen Feststoffen von Bedeutung sein. Dies ist dann der Fall, wenn die sonstigen Radionuklide in einer chemischen Verbindung vorkommen, die bei ca. 400 °C einen nennenswerten Dampfdruck - etwa in der Größenordnung von 1 Pa - über ihrer festen bzw. flüssigen Phase aufweist (mittelflüchtige Verbindungen).

Demgegenüber ist die Freisetzung durch Sublimation bzw. Verdampfen radioaktiver Stoffe zu vernachlässigen, wenn die radioaktiven Stoffe in schwerflüchtiger Verbindung vorliegen, das heißt, bei denen bei ca. 400 °C der Dampfdruck in etwa unter 10^{-4} Pa liegt. (Um dies zu zeigen, wird für beide Fälle der Freisetzungsanteil abgeschätzt.)

Ferner wird der Freisetzungsmechanismus "Sublimation bzw. Verdampfen radioaktiver Stoffe" bei solchen Verbindungen vernachlässigt, die unter Temperatureinwirkung in eine gasförmige und schwerflüchtige feste Komponente dissoziieren, z.B. Metallcarbonate, Hydroxide usw.. Die Freisetzung über die gasförmige Komponente wird dadurch berücksichtigt, daß die in den gasförmigen Komponenten vorkommenden relevanten Radionuklide allgemein als leichtflüchtig eingestuft werden (H 3, C 14), wohingegen die in der schwerflüchtigen, festen Komponente verbleibenden Radionuklide ebenso wie die in schwerflüchtigen Verbindungen vernachlässigt werden.

Im folgenden wird die Relevanz der

- leichtflüchtigen Verbindungen,
- mittelflüchtigen Verbindungen und
- schwerflüchtigen Verbindungen

für einzelne Radionuklide diskutiert, und es wird die Vorgehensweise zur Abschätzung der Freisetzungsanteile im einzelnen beschrieben.

Eine Zuordnung einzelner Radionuklide zu diesen Verbindungsgruppen wird nur bei leichtflüchtigen Verbindungen gegeben. Zu diesen werden gezählt:

- o Halogene,
- o Tritium,
- o Radiokohlenstoff.

Diese Zuordnung wird auch beibehalten, wenn die jeweiligen Radionuklide in anderen Verbindungen vorliegen.

Unter der konservativen Annahme, daß die Halogene in organischer Form, z.B. als Methyljodid (CH_3J), und Tritium wässrig als HTO vorliegen, ergeben sich für diese Radionuklide Siedepunkte von 315 K bzw. 373 K.

C 14 in leichtflüchtiger Form wird behandelt wie Methyljodid. Ohne weiter auf die Kinetik der Verdampfung einzugehen, wird für diese Radionuklide eine 100 %ige Freisetzung aus den Teilvolumina unterstellt, in denen die Temperatur die entsprechenden Siedetemperaturen übersteigt. Freisetzungsanteile ergeben sich also direkt aus den Temperaturfeldrechnungen.

Bei den meisten der sonstigen Radionuklide existieren sowohl mittelflüchtige Verbindungen als auch schwerflüchtige Verbindungen, jedoch keine leichtflüchtigen Verbindungen. Eine 100 % Zuordnung aller sonstigen Radionuklide zu den mittelflüchtigen Verbindungen würde eine unrealistische Überschätzung des störfallbedingten Freisetzungsanteils bedeuten. Für einen realistischeren Ansatz wird der Anteil des Radionuklids in mittelflüchtiger Form abgeschätzt, welches im Hinblick auf das Vorkommen mittelflüchtiger Verbindungen in KONRAD-Abfällen abdeckend ist. Dieser Anteil wird dann allen sonstigen Radionukliden zugrunde gelegt, so daß im Hinblick auf das Gesamtergebnis ein konservativer Freisetzungsanteil gewährleistet ist.

Die Abschätzung des Anteils sonstiger Radionuklide in mittelflüchtiger Verbindung erfolgt für das Element Cs aus dem Bereich KKW-Abfälle: Hierfür ist bekannt, daß das Spaltprodukt Cs mit dem Spaltprodukt J reagiert /CUB 78/ und die stabile Verbindung CsJ als mittelflüchtig im Sinne der in diesem Bericht verwendeten Definition gilt. Abbrandrechnungen, z.B. /GAS 79/, weisen aus, daß das Molenverhältnis Jod zu Cäsium in einem Leichtwasserreaktor etwa 0,1 beträgt. Hierbei beträgt das Aktivitätsverhältnis der Radionuklide J 129 zu Cs 137 etwa $3,7 \cdot 10^{-7}$. Unter der Annahme, daß die Isotopenverhältnisse der Elemente Cs und J in etwa den Isotopenverhältnissen im Brennstoff entsprechen, kann aus dem J 129- zu Cs 137-Verhältnis im Abfall auf das Molenverhältnis Jod zu Cäsium gefolgert werden.

Konzentratuntersuchungen in /KWU 83/ zeigen, daß in Konzentraten ein mittleres Aktivitätsverhältnis J 129 zu Cs 137 von ca. $6 \cdot 10^{-7}$ vorliegt. Andere Messungen am Primärkühlmittel weisen im Mittel ein Aktivitätsverhältnis von ca. 10^{-6} aus /KWU 84a/, /KWU 84b/. Dies bedeutet, daß J 129 um etwa einen Faktor 2,7 gegenüber Cäsium angereichert ist. Unterstellt man konservativ, daß das gesamte Jod als

CsJ vorliegt, so erhält man als Anteil an mittelflüchtigen Verbindungen für Cs 27 %.

Unabhängig von der Zuordnung zu einer mittel- oder schwerflüchtigen Verbindung wird bei den sonstigen Radionukliden von der konservativen Arbeitshypothese ausgegangen, daß die gesamte Aktivität als Oberflächenkontamination des Abfallproduktes der Behälteratmosphäre ausgesetzt ist.

Die Sublimationskinetik für die sonstigen Radionuklide einer bestimmten Verbindung ergibt sich dann aus der Grundgleichung für den Stoffübergang:

$$\dot{m}_D = \sigma_C \cdot \Delta C$$

mit

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

Die Stoffübergangszahl wird im allgemeinen experimentell bestimmt. Sie kann jedoch auch aus der Analogie zwischen Wärme- und Stoffübergang gemäß dem Lewis'schen Gesetz abgeschätzt werden:

$$\sigma_C = \frac{\alpha}{\rho_T \cdot c_{p_t}}$$

mit

- α : Wärmeübergangskoeffizient
- ρ_T : Dichte des Trägergases
- c_{p_t} : Gesamtwärmekapazität des Trägergases und der Dampfkomponenten

Die Lewis'sche Gleichung hat nur Gültigkeit bei stationären bzw. quasistationären Vorgängen für

$$a = D$$

mit

a : Temperaturleitfähigkeit

D : Diffusionskoeffizient

Diese Werte sind im allgemeinen nur für bestimmte thermodynamische Zustände (Druck, Temperatur) gleich. Bei unterschiedlichen Größen von a und D ist das Lewis'sche Gesetz nach /GRÖ 63/ im Bereich der Pr- und Sc-Zahl von 0,5 - 2,5 wie folgt zu korrigieren:

$$\sigma_c = \frac{\alpha}{\rho_T \cdot c_{p_t}} \cdot \left(\frac{D}{a}\right)^{0,5}$$

Der Diffusionskoeffizient ist eine stoffspezifische Größe, abhängig von Druck und Temperatur. Bekannte Diffusionskoeffizienten für Gase in Gasen, etwa aus /DAN 67/, sind für die thermodynamischen Zustände und die bezüglich Verdampfung und Sublimation relevanten Stoffe, wie zum Beispiel CsJ, nicht übertragbar. Zur Überprüfung, ob der Korrekturterm des Lewis'schen Gesetzes eine Erhöhung oder Erniedrigung der Stoffübergangszahl bewirkt, wird der Diffusionskoeffizient gemäß /VDI 84/ exemplarisch für CsJ mit

$$D = \frac{10^{-3} T^{1,75} \left(\frac{M_1 + M_2}{M_1 M_2}\right)^{1/2} 1,013}{p[(\sum v_1)^{1/3} + (\sum v_2)^{1/3}]^2}$$

abgeschätzt. Hierbei sind

D : Diffusionskoeffizient in $\text{cm}^2 \text{s}^{-1}$

T : Gastemperatur in K

M_1, M_2 : molare Massen

$(\sum v_i)$: Diffusionsvolumina

p : Druck in bar

Das Diffusionsvolumen für CsJ ist unbekannt. Um hohe Werte für den Diffusionskoeffizienten zu erhalten, wird das Diffusionsvolumen von CsJ bei der Überprüfung zu 0 gesetzt. In der Tabelle 1 sind die so ermittelten Diffusionskoeffizienten für den Temperaturbereich von 0 °C - 700 °C dargestellt. Ebenfalls aufgeführt ist die Temperaturleitfähigkeit a und der Korrekturterm

$$c = \left(\frac{D}{a}\right)^{0,5}$$

Tabelle 1:

Parameter zur Überprüfung des Lewis'schen Gesetzes

T	D	a	c
°C	cm ² s ⁻¹	cm ² s ⁻¹	-
0	7.33 E-3	1.91 E-1	1.96 E-1
100	1.00 E-2	3.37 E-1	1.72 E-1
200	1.27 E-2	5.16 E-1	1.57 E-1
300	1.54 E-2	7.24 E-1	1.46 E-1
400	1.81 E-2	9.51 E-1	1.38 E-1
500	2.08 E-2	1.19 E-0	1.32 E-1
600	2.34 E-2	1.43 E-0	1.28 E-1
700	2.61 E-2	1.66 E-0	1.25 E-1

Der Korrekturterm ist über dem gesamten Temperaturbereich < 1 . Damit stellt die Ermittlung der Stoffübergangszahl mittels des Lewis'schen Gesetzes eine konservative Abschätzung dar.

Bezüglich der Beschränkung auf stationäre bzw. quasistationäre Zustandsänderungen wird zur Abschätzung des Freisetzunganteils der Temperaturverlauf durch eine zeitliche Treppenfunktion angenähert, wobei für jedes Zeitintervall die obengenannte Beschränkung erfüllt ist.

Eine Abschätzung für die Stoffübergangszahl, die sich an Stoffdaten für Luft bei 513 K orientiert mit $\rho_T \cong 0,678 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ und $c_p \cong 1,034 \text{ kJ}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ und der beispielhaft ein Wärmeübergangskoeffizient $\alpha \cong 10 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$ für Konvektion in einem abgeschlossenen Volumen zugrunde liegt, ergibt ohne Berücksichtigung der Korrektur des Lewis'schen Gesetzes den folgenden Wert:

$$\sigma_c \cong 1,43 \cdot 10^{-2} \text{ m/s}$$

Mit den Korrekturfaktoren entsprechend Tabelle 1 liegt der Wert unter $1 \cdot 10^{-2}$ m/s. Dies ist eine gute Übereinstimmung mit Daten in /WIC 85/, die für den Stoffübergang an Strukturoberflächen Werte von 10^{-3} ... 10^{-2} ausweisen.

Die maximale Konzentrationsänderung ΔC ist dann gegeben, wenn sich das dampffreie Trägergas mit der Dampfkomponente bis zu der Konzentration anreichert, die dem Sättigungsdruck der ausdampfenden Komponente entspricht:

$$\Delta C = \frac{p_D^{\circ} \cdot M_D}{R T}$$

mit

p_D° = Sättigungsdampfdruck [Pa]

M_D = molare Masse der ausdampfenden Komponente [$\text{g} \cdot \text{mol}^{-1}$]

R = Allgemeine Gaskonstante [$\text{J} \cdot \text{mol}^{-1} \text{K}^{-1}$]

T = Absolute Temperatur [K]

Im weiteren sollen die Konzentrationsänderungen für die Verbindung CsJ, die bereits der Abschätzung des Anteils mittelflüchtiger Verbindungen zugrunde gelegt wurde, und für die Verbindung SrO als exemplarisch für schwerflüchtige Verbindungen untersucht werden. (In der einschlägigen Fachliteratur sind keine Dampfdrücke schwerflüchtiger Cs-Verbindungen angegeben, die bei $400 \text{ }^{\circ}\text{C}$ einen Dampfdruck von etwa 10^{-5} - 10^{-4} Pa aufweisen, so daß zur Abschätzung des Verdampfungs- bzw. Sublimationsverhaltens die obengenannte Sr-Verbindung mit einem Dampfdruck von $3 \cdot 10^{-5}$ Pa ausgewählt wurde.)

Die Temperaturabhängigkeit des Dampfdrucks läßt sich nach /LAN 60/ allgemein wie folgt beschreiben:

$$\ln p_D^{\circ} = - \frac{A}{T} + B + C \cdot \ln(T)$$

Die Koeffizienten für beide Verbindungen sind nachfolgend aufgeführt:

	A	B	C
CsJ	11193	19,226	-2,5
SrO	25950	4,32	1,908

Die Dampfdrücke beider Verbindungen als Funktion der Temperatur sind in Bild 1 dargestellt. Für CsJ beträgt der Dampfdruck bei 400 °C 0,114 Pa. Für SrO ist der entsprechende Wert $3,36 \cdot 10^{-5}$ Pa.

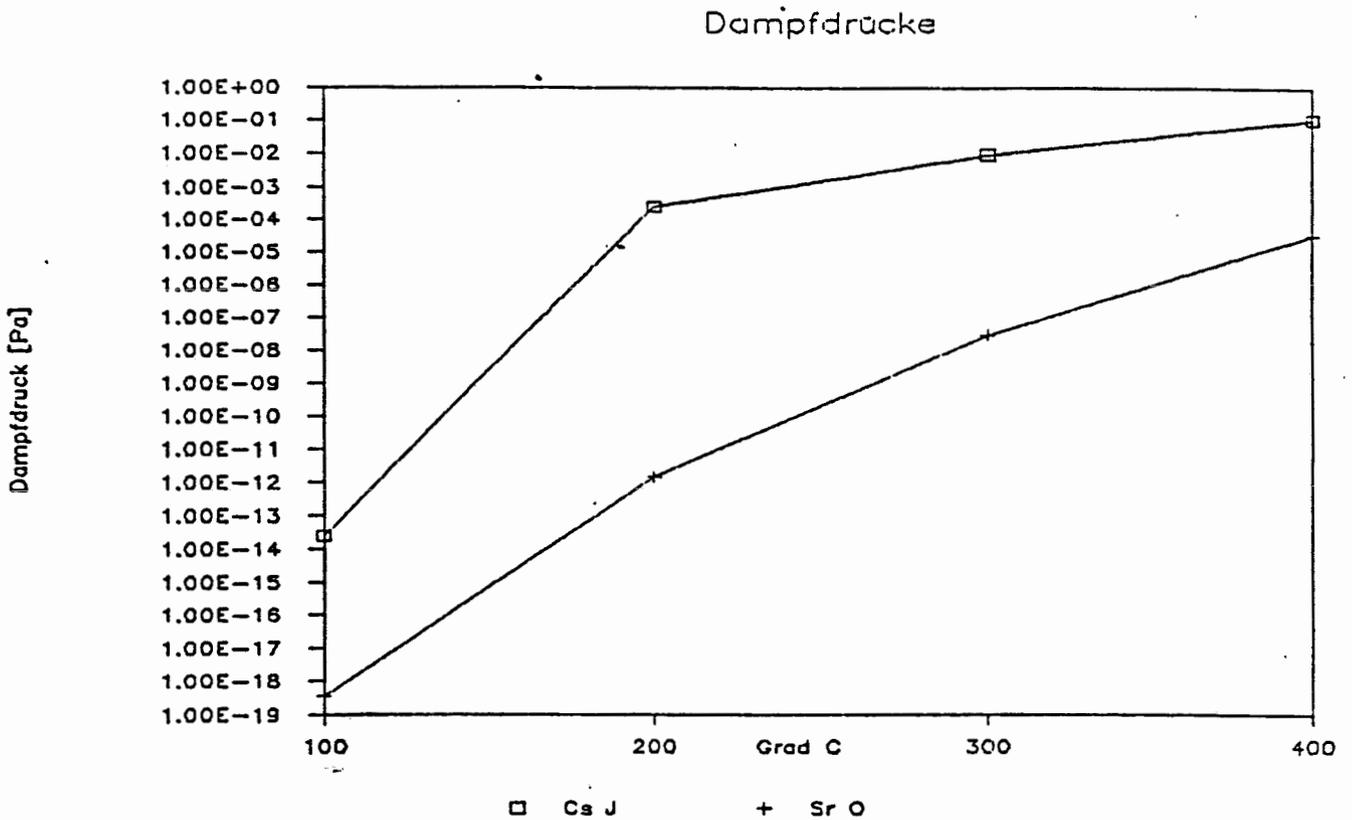


Bild 1: Dampfdruckkurven für CsJ und SrO nach /LAN 60/

Mit molaren Massen von

$$M_D = 260 \text{ g/Mol für CsJ und}$$

$$M_D = 104 \text{ g/Mol für SrO}$$

ergeben sich als maximale Konzentrationsänderungen Werte von

$$\Delta C = 5,29 \cdot 10^{-3} \text{ g} \cdot \text{m}^{-3} \text{ für CsJ und}$$

$$\Delta C = 6,24 \cdot 10^{-7} \text{ g} \cdot \text{m}^{-3} \text{ für SrO.}$$

Mit der abgeleiteten Stoffübergangszahl von $10^{-2} \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ berechnen sich die Stoffübergänge zu

$$m_D \leq 5,29 \cdot 10^{-8} \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1} \text{ für CsJ und}$$

$$m_D \leq 6,24 \cdot 10^{-12} \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1} \text{ für SrO.}$$

Die Zahlen zeigen, daß die Freisetzung von Radionukliden in schwerflüchtigen Verbindungen gegenüber der Freisetzung von Radionukliden in mittelflüchtigen Verbindungen vernachlässigbar ist. Den weiteren Ableitungen wird daher nur noch die Freisetzung von Radionukliden in mittelflüchtiger Form zugrunde gelegt.

Der Freisetzungsanteil ergibt sich als zeitliches Integral des Stoffübergangs:

$$f = \int_0^t \frac{\dot{m}_D(t) \cdot F}{m_{\text{Akt}}} dt$$

mit

f = Freisetzungsanteil in $g_{\text{freig.}}/g_{\text{vorhanden}}$

F = Fläche, die die ausdampfende Komponente bedeckt in m^2

m_{Akt} = Gesamtmasse des radioaktiven Stoffes

Das Verhältnis F/m läßt sich umformen:

$$\frac{F}{m} = \frac{1}{\rho \delta}$$

mit

ρ = Dichte der Kontamination [kg/m^3]

δ = Schichtdicke der Kontamination [m]

Für die weiteren Abschätzungen wird mit

$$\rho = 2\,000 \text{ kg}/\text{m}^3 \text{ und } \delta = 10^{-6} \text{ m}$$

gerechnet. Die Abschätzung der Schichtdicke ist konservativ, da gemessene Schichtdicken von Oberflächenkontaminationen erheblich größer sind /NEE 72/, /SCU 72/.

Mit dieser Beziehung erhält man für einen stationären Stoffübergang im Zeitraum Δt nachfolgende Zeitfunktion des Freisetzunganteils.

$$\Delta f = \dot{m}_D(t) \cdot \frac{1}{\rho \cdot \delta} \cdot \Delta t$$

Der gesamte Freisetzunganteil ergibt sich durch Summation der Einzelanteile über die gesamte Freisetzungszeit.

$$f = \sum \dot{m}_D(t) \frac{1}{\rho \delta} \cdot \Delta t$$

Freisetzungsrechnungen auf der Basis instationärer Temperaturverteilungen im Abfallgebände ergeben für den gesamten Freisetzunganteil einen Wert von $4 \cdot 10^{-3}$, vergl. Kap. 4 dieses Anhangs.

3. ZUORDNUNG DER FREISETZUNGSMECHANISMEN ZU ABFALLPRODUKTGRUPPEN

Die für die Einlagerung in Konrad relevanten Abfallproduktgruppen sind im Hauptteil in Kap. 2.3 ausführlich beschrieben. Es handelt sich um:

- APG 01: Bitumen- und Kunststoffprodukte
- APG 02: Feststoffe
- APG 03: Metallische Feststoffe
- APG 04: Preßlinge
- APG 05: Zementierte/Betonierte Abfälle
- APG 06: Konzentrate

Zunächst wird beschrieben, welche der in Kapitel 2 erläuterten Freisetzungsmechanismen bei den einzelnen Abfallproduktgruppen zum Tragen kommen.

3.1 APG 01: Bitumen- und Kunststoffprodukte

Bei der Freisetzung aus Abfallprodukten der APG 01 sind in Abhängigkeit von der Produkttemperatur und der Abfallklasse die folgenden drei Freisetzungsmodelle relevant:

- (1) Unterschreitet die Produkttemperatur die Schmelztemperatur der Bitumen- oder Kunststoffprodukte und handelt es sich bei dem Abfall nicht um ein Schüttgut, zum Beispiel Harzschüttung, so wird keine Freisetzung unterstellt.
- (2) Überschreitet das Abfallprodukt die Schmelztemperatur und handelt es sich um ein Abfallgebinde der Abfallklasse I (vergl. Hauptteil), so wird konservativ unterstellt, daß das geschmolzene Produkt aus dem Behälter austritt und abbrennt. In diesem Fall ist die Freisetzung durch Verbrennen des Abfallproduktes relevant.
- (3) Überschreitet das Abfallprodukt die Schmelztemperatur bzw. werden Temperaturen $> 373 \text{ K}$ überschritten und handelt es sich um ein Abfallgebinde der Abfallklasse II, so ist für Tritium, C 14 in leichtflüchtiger Verbindung und Halogene Sublimation bzw. Verdampfen zu unterstellen, während für sonstige Radionuklide eine Freisetzung durch Verdampfen von Wasser im Abfallprodukt angesetzt wird. Dieses Freisetzungsmodell wird im Zusammenhang mit der Vorgehensweise bei Abfallgebinden der Abfallklasse II noch ausführlich diskutiert.

3.2 APG 02: Feststoffe

Prinzipiell kommen bei der APG 02 alle in Kapitel 2 geschilderten Freisetzungsmechanismen zum Tragen. Der Mechanismus Verbrennen ist jedoch nur bei den Komponenten zu berücksichtigen, die einen Schmelzpunkt $< 300 \text{ °C}$ haben und brennbar sind.

Ansonsten wird Verbrennen ausgeschlossen, da durch das Behältnis der Sauerstoffzutritt so begrenzt ist, daß die brennbaren Abfälle pyrolyisieren. Diese Annahme trifft auch für den Fall der mechanischen Vorbelastung des Abfallgebindes zu:

Als maximale Belastung wird der Prall mit 4 m/s gegen den Stoß angenommen. Dies entspricht einem freien Fall aus einer Höhe von weniger als 0.8 m . Nach /SAN 83/ kommt es bei diesen Lastfällen allenfalls zu leichter Deformation des Behältnisses. Hierdurch evtl. verursachte Lecks sind so klein, daß ein Sauerstoffzutritt allenfalls in geringem Maße möglich ist. Voraussichtlich ist jedoch durch den Überdruck infolge der Erwärmung des Inventars eine Strömungsrichtung von innen nach außen gegeben, die den Sauerstoffzutritt unterbindet.

Das Ausfließen von geschmolzenen Abfallproduktkomponenten, für die die Freisetzung durch Verbrennen relevant sein könnte, wird durch die Beschränkung dieser Komponente auf 1 % begrenzt. Es wird unterstellt, daß diese 1 % des Produktes tatsächlich aus dem Abfallgebilde ausfließen und außerhalb des Abfallgebildes abbrennen.

Alle anderen Freisetzungsmechanismen sind temperaturabhängig. Bezüglich des Temperaturfeldes im Abfallprodukt wird von einer Wärmeübertragung durch freie Konvektion in geschlossenem Volumen, Wärmeleitung und Strahlung ausgegangen. Auf Einzelheiten wird in den Kapiteln 4 und 5 dieses Anhangs eingegangen.

Systematisiert man mögliche Abfallproduktformen der APG 02 im Hinblick auf eine abdeckende Freisetzung in die Gruppen

- mit Zementleim vergossene Abfälle,
- nicht formbeständige Feststoffe (etwa Textilien),
- formbeständige Feststoffe,

so ergeben sich bei den formbeständigen Feststoffen die höchsten Freisetzungsteile. Bei dieser Gruppe kommt der Freisetzungsmechanismus Sublimation bzw. Verdampfen radioaktiver Stoffe mit dem geschätzten Freisetzungsteil $< 4 \cdot 10^{-3}$ zum Tragen, während bei den beiden anderen Gruppen die Freisetzung durch teilweises Pyrolysieren des Abfallproduktes mit Freisetzungsteilen $< 1,6 \cdot 10^{-3}$ bestimmt würde.

Hohe Temperaturen auch im Zentrum des Abfallgebildes ergeben sich bei metallischen Abfallprodukten, wohingegen schlecht wärmeleitende Abfallprodukte nur in einer dünnen Randzone hohe Temperaturen aufweisen. In diesem Bereich ausdampfende radioaktive Stoffe würden in den kalten Bereichen kondensieren und im Abfallgebilde verbleiben.

Für die Temperaturfeldrechnungen bei der APG 02 wird daher ein metallisches Abfallprodukt unterstellt.

3.3 APG 03: Metallische Feststoffe

Als Freisetzungsmechanismus bei der APG 03 kommt ausschließlich die Freisetzung durch Sublimation bzw. Verdampfen radioaktiver Stoffe in Betracht.

Da der Anteil ihrer Aktivität, die als Oberflächenkontamination des Abfallproduktes vorliegt, nicht quantifizierbar ist, wird konservativ davon ausgegangen, daß die Aktivität zu 100 % als Oberflächenkontamination vorliegt.

Bezüglich der für die Sublimation bzw. Verdampfung relevanten Temperatur trifft die in Kapitel 3.2 getroffene Aussage zum Temperaturfeld zu.

3.4 APG 04: Preßlinge

Bei der APG 04 sind wie bei der APG 02 verschiedene Freisetzungsmechanismen relevant. Eine Freisetzung durch Verbrennen wird allerdings nicht unterstellt, da die gemäß der Beschreibung der Abfallproduktgruppe geforderte Struktur des verpreßten Abfallproduktes ein Ausfließen geschmolzener Abfallkomponenten nicht zuläßt.

Bei metallischen Abfällen, bedingt die Struktur des verpreßten Abfallproduktes, daß durch die Vielzahl isolierender Luftspalte im Preßling selbst und im Abfallgebinde nur ein untergeordneter Anteil der Gesamtoberfläche im Brandfall auf solche Temperaturen erwärmt wird, bei denen für Radionuklide außer H 3, C 14 in leichtflüchtiger Verbindung und Halogene nennenswerte Sublimations- bzw. Verdampfungseffekte auftreten. Angesichts dessen wird als abdeckender Freisetzungsmechanismus für Abfälle der APG 04 die Pyrolyse angesehen.

Dieser Freisetzungsmechanismus ist in repräsentativen, maßstäblichen Experimenten durch direkte Flammenexposition von Preßlingen untersucht worden /NUK 84/. Für Cs ergibt sich ein freigesetzter Anteil von $1,6 \cdot 10^{-3}$. Für die Halogene, Tritium und C 14 in leichtflüchtiger Verbindung wird wiederum Freisetzung durch Sublimation bzw. Verdampfen unterstellt.

3.5 APG 05: Zementierte/betonierte Abfälle

Bei der APG 05 ist für Halogene und Tritium als Freisetzungsmechanismus eine Freisetzung durch Ausdampfen der Aktivitäten relevant, wobei angenommen wird, daß 50 % des Wassers im Zementprodukt ausdampfbar ist. Bezüglich C 14 wird unterstellt, daß durch die Konditionierung alle leichtflüchtigen C 14-Formen in schwerflüchtige Verbindungen überführt werden, die sich verhalten wie sonstige Radionuklide. Bei sonstigen Radionukliden kommt es in Teilvolumina mit Temperaturen $> 573 \text{ K}$ unter Umständen zur Freisetzung durch Pyrolyse des Abfallproduktes und bei Teilvolumina mit Temperaturen $373 \text{ K} < T < 573 \text{ K}$ zur Freisetzung durch Verdampfen von Wasser im Abfallprodukt. Dieser konservative Ansatz berücksichtigt, daß brennbare Substanzen in der Zementmatrix eingebunden sein können, die bei Überschreiten der Schwelltemperatur für Pyrolyse von 573 K pyrolysieren.

Die für die einzelnen Freisetzungsmechanismen relevanten Isotherme ergeben sich aus dem durch Wärmeleitung entstehenden Temperaturfeld, vergleiche Kapitel 4 und Kapitel 5 dieses Anhangs.

3.6 APG 06: Konzentrate

Gewisse Produkte der APG 06 durchlaufen bei Temperaturen $< 373 \text{ K}$ Phasenumwandlungen fest-flüssig, die der Ausbildung eines Temperaturfeldes entgegenstehen. Es wird unterstellt, daß die Freisetzung im wesentlichen durch das Ausdampfen der wässrigen Komponente aus der Schmelze erfolgt. Der Freisetzunganteil orientiert sich an experimentellen Untersuchungen zur Freisetzung aus wässrigen Lösungen beim Eindampfen /MIS 68a/, /MIS 68b/. Hierbei wurden je nach Randbedingungen Anteile zwischen 10^{-5} und 10^{-3} beim Eindampfen bis 90 % Volumenreduktion ermittelt.

Für Tritium und Halogene wird von einer 100 %igen Freisetzung ausgegangen. Bezüglich C 14 wird unterstellt, daß eventuell im Rohabfall vorhandene leichtflüchtige C 14-Verbindungen bei der Trocknung des Produktes freigesetzt werden, so daß im Endabfallprodukt nur noch schwerflüchtige C 14-Verbindungen vorkommen, die wie sonstige Radionuklide behandelt werden.

Für die beim thermischen Lastfall gegebenen Randbedingungen stellt ein mittlerer Wert von $5 \cdot 10^{-4}$ eine konservative Abschätzung des Freisetzunganteils dar.

4. FREISETZUNG AUS ABFALLGEBINDEN DER ABFALLKLASSE I

Bei Abfallgebinden der Abfallklasse I wird davon ausgegangen, daß die Aktivität, die aus dem Abfallprodukt in die umgebende Atmosphäre übergeht, auch freigesetzt wird. Das Verhältnis wird nur insofern berücksichtigt, als seine Geometrie und thermodynamischen Eigenschaften das Temperaturfeld im Abfallprodukt beeinflussen. Im folgenden werden für die relevanten Abfallproduktgruppen die Temperaturfelder und die hieraus resultierenden Freisetzunganteile beschrieben.

o APG 01

Für Abfallprodukte der APG 01 muß im thermischen Lastfall von einer Freisetzung durch Verbrennen des zu 100 % geschmolzenen Produktes ausgegangen werden. Dementsprechend ergibt sich für Halogene, C 14 und Tritium eine 100 %ige Freisetzung und für die sonstigen Radionuklide gemäß Kapitel 2.2 freigesetzte Anteile von 0,5.

o APG 02

Die Berechnung der Temperaturfelder erfolgt für einen Stahlblechcontainer Typ I mit metallischen Abfallstoffen als Inhalt, vergleiche Kapitel 3.3. Bezüglich des Wärmetransportes zwischen Containerwand und dem Abfallprodukt wird Wärmestrahlung mit Emissionsverhältnissen von jeweils 0,8 für Containerwand und Abfalloberfläche sowie Wärmeleitung (Gas) und freie Konvektion im Spalt in geschlossenem Volumen berücksichtigt. Wärmeleitung direkt von der Containerwand auf das Abfallprodukt über Berührungspunkte wird wegen der zu unterstellenden geringen Gesamtberührungsfläche nicht betrachtet.

Der Wärmetransport in Spalten läßt sich durch Einführung einer scheinbaren Wärmeleitfähigkeit λ_s beschreiben. Nach /GRÖ 63/ ergibt sich hierfür:

$$\frac{\lambda_s}{\lambda} = Nu_s = 1 + \frac{0.0236 (Gr_s \cdot Pr)^{1.393}}{(Gr_s \cdot Pr) + 1.01 \cdot 10^{-4}}$$

mit

λ_s : scheinbare Wärmeleitfähigkeit des Fluids im Spalt

λ : Wärmeleitfähigkeit

Nu_s : Nußelt-Zahl für Spalt

Gr_s : Grashof-Zahl für Spalt

Pr : Prandtl-Zahl für Fluid

In den Tabellen 2, 3, 4, 5 sind Werte für die Grashof-Zahl und λ_s als Funktion der Oberflächentemperatur des Abfallproduktes dargestellt, wobei immer von einer Containerwandtemperatur von 700 °C ausgegangen wurde.

Tabelle 2:

Parameter zur Beschreibung des Wärmetransportes im Spalt.
Spaltweite: 0,001 m

θ °C	Gr	λ_s W m ⁻¹ K ⁻¹	k W m ⁻² K ⁻¹
.0000	3.6022	.0493	49.3104
100.0000	2.2066	.0526	52.5702
200.0000	1.3593	.0556	55.6401
300.0000	.8161	.0585	58.4801
400.0000	.4617	.0610	61.0000
500.0000	.2434	.0635	63.5000
600.0000	.0964	.0656	65.6000
700.0000	.0000	.0678	67.8000
.0000	.0000	.0000	.0000

Tabelle 3:

Parameter zur Beschreibung des Wärmetransportes im Spalt.
Spaltweite: 0,003 m

θ °C	Gr	λ_s $W m^{-1} K^{-1}$	k $W m^{-2} K^{-1}$
.0000	97.2594	.0493	16.4492
100.0000	59.5774	.0526	17.5301
200.0000	36.7007	.0557	18.5503
300.0000	22.0352	.0585	19.4952
400.0000	12.4655	.0610	20.3342
500.0000	6.5722	.0635	21.1671
600.0000	2.6025	.0656	21.8668
700.0000	.0000	.0678	22.6000
.0000	.0000	.0000	.0000

Tabelle 4:

Parameter zur Beschreibung des Wärmetransportes im Spalt.
Spaltweite: 0,005 m

θ °C	Gr	λ_s $W m^{-1} K^{-1}$	k $W m^{-2} K^{-1}$
.0000	450.2749	.0496	9.9244
100.0000	275.8212	.0527	10.5480
200.0000	169.9105	.0557	11.1464
300.0000	102.0147	.0585	11.7056
400.0000	57.7108	.0610	12.2045
500.0000	30.4268	.0635	12.7020
600.0000	12.0485	.0656	13.1206
700.0000	.0001	.0678	13.5600
.0000	.0000	.0000	.0000

Tabelle 5:

Parameter zur Beschreibung des Wärmetransportes im Spalt.
Spaltweite: 0,01 m

θ °C	Gr	λ_s $W\ m^{-1}\ K^{-1}$	k $W\ m^{-2}\ K^{-1}$
.0000	3602.1994	.0540	5.4016
100.0000	2206.5698	.0553	5.5307
200.0000	1359.2837	.0572	5.7190
300.0000	816.1177	.0593	5.9307
400.0000	461.6867	.0614	6.1399
500.0000	243.4144	.0637	6.3676
600.0000	96.3879	.0657	6.5652
700.0000	.0008	.0678	6.7800
.0000	.0000	.0000	.0000

Ebenfalls aufgeführt ist in den Tabellen 2 bis 5 die Wärmedurchgangszahl k , die proportional zum Wärmetransport ist. Hiernach nimmt der Wärmetransport mit zunehmender Spaltdicke ab.

Als Beginn der Konvektion, die die Isolierwirkung des Spaltgases beeinträchtigt, wird der Wert $(Gr_s \cdot Pr) \sim 1700$ als unterer Grenzwert angesehen /GRÖ 63/. Bei einer Prandtl-Zahl von etwa 0,7 ist dies entsprechend den Tabellen 2 bis 5 erst ab einer Spaltweite von 1 cm bei Abfallprodukttemperaturen $< 100\ ^\circ C$ der Fall.

Die Temperaturfeldrechnungen sind mit einer Spaltdicke von 3 mm durchgeführt worden. Dieser Wert wird unter der realistisch zu erwartenden mittleren Spaltdicke liegen und ist somit im Hinblick auf den Wärmetransport in das Abfallprodukt konservativ.

Bezüglich der Befüllung des Containers wird ein Verfüllungsgrad von 50 % unterstellt. In den Rechnungen wird dies mit einer mittleren Dichte im Abfallprodukt von $3.800\ kg/m^3$ berücksichtigt. Die Berechnung der Temperaturfelder erfolgt mit dem zweidimensionalen instationären

Wärmeübergangsprogramm TAC 2D /GGA 69/. Die Ergebnisse sind in /GRÜ 87/ dokumentiert. Hiernach liegt bei Brandende die Oberflächentemperatur im Kantenbereich bei 439 °C, ab 3,5 cm von der Kante unterhalb von 402 °C, ab einer Entfernung von 15 cm von der Kante unterhalb von 375 °C, und ab 30 cm unterhalb von 325 °C.

Bezüglich der Freisetzung radioaktiver Stoffe wird für Tritium, C 14 und Halogene 100 % Freisetzung unterstellt. Die Freisetzungsteile sonstiger radioaktiver Stoffe werden auf der Basis der Herleitungen in Kapitel 2.4 und der Temperaturfelder in /GRÜ 87/ berechnet. Die Rechnungen werden nur noch für den in Kapitel 2.4 abgeleiteten leichtflüchtigen Anteil von 27 % durchgeführt, wobei das thermodynamische Verhalten der leichtflüchtigen Komponente durch CsJ repräsentiert wird.

Als Stoffübergangszahl wird ein Wert von $10^{-2} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ verwendet, der zum einen die Bandbreite der in der Literatur zitierten Werte abdeckt und der zum anderen durch die theoretische Vorgehensweise für einen Wärmeübergangskoeffizienten von $\alpha = 10 \text{ Wm}^{-2} \text{ K}^{-1}$ abgedeckt ist.

Interpretiert man die Wärmedurchgangszahl k in Tabelle 5 als rein konvektiv, so wird deutlich, daß der beispielhaft gewählte Wärmeübergangskoeffizient von $10 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{K}^{-1}$ zur Berechnung der Stoffübergangszahl gemäß Kapitel 2.4 konservativ ist. Die größeren Wärmedurchgangszahlen der Tabellen 2 bis 4 sind nicht relevant, da $(Gr_s \cdot Pr) < 1.700$ ist und somit die für die Stoffübergangszahl relevante Konvektion ausgeschlossen ist.

Die Temperaturverteilung an der Abfalloberfläche wird in Bild 2 verdeutlicht. Dargestellt ist ein Viertel der Abfalloberfläche an der Innenseite der kleinsten Containerwand eines Stahlblechcontainers Typ 1. Dieser Container liefert von den Stahlblechbehältern die höchsten Produkttemperaturen, da er das ungünstigste Oberflächen/Volumenverhältnis aufweist. Andere Behälter werden nicht betrachtet, da bei diesen Behältern im thermischen Lastfall geringere Produkttemperaturen resultieren /PIE 84/, /GRU 87/.

Die Abfalloberfläche ist in vier Teilflächen aufgegliedert, die als Isotherm interpretiert werden, vergl. Bild 2. Das Temperaturverhalten

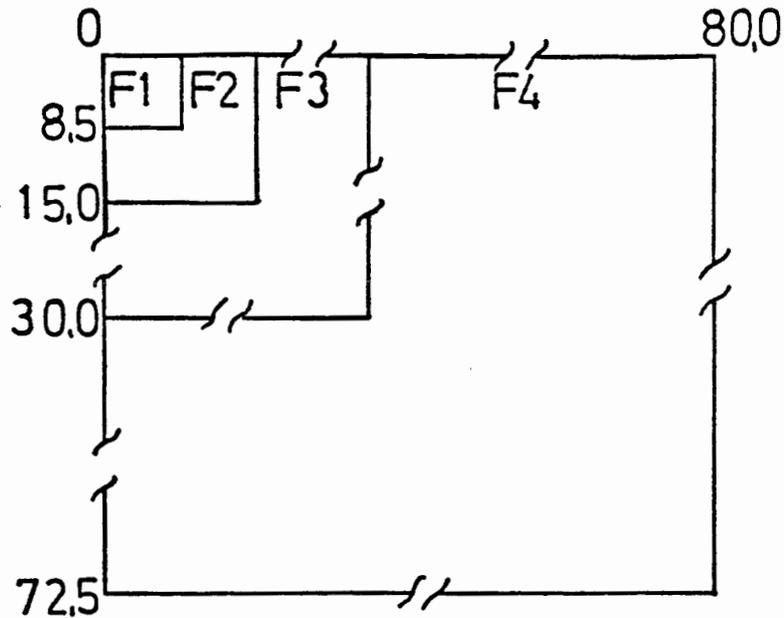


Bild 2: Temperaturverteilung an der Abfalloberfläche

jeder dieser Flächen wird durch die maximal innerhalb einer Fläche auftretende Temperatur bestimmt. In Tabelle 6 ist in der ersten Zeile die Lage dieser Punkte als Abstand von der linken oberen Kante (Bild 2) aufgeführt. In den Spalten TEMP 1, TEMP 2, TEMP 3, TEMP 4 (Hauptteil der Tabelle 6) ist der Temperaturverlauf für diese Temperaturreferenzpunkte gemäß den Rechnungen in /GRÜ 87/ dargestellt.

Die Größen der Teilflächen und ihre jeweiligen Anteile an der Gesamtfläche sind im zweiten Teil der Tabelle 6 aufgeführt. Für jede der Teilflächen wird nachfolgend der Freisetzunganteil radioaktiver Stoffe berechnet.

Die thermodynamischen Parameter für die Freisetzungsberechnung sind im dritten Teil der Tabelle 6 aufgeführt. Mit den Dampfdruckparametern A, B, C (nach /LAN 60/) wird die maximale Konzentrationsänderung berechnet. Die Stoffübergänge als Funktion von Temperatur und Zeit sind im Hauptteil der Tabellen in den Spalten MD1, MD2, MD3, MD4 zusammengestellt. Die folgenden Spalten - F1, F2, F3, F4 - weisen die Ergebnisse der Freisetzungsberechnung als Verhältnis der freigesetzten

TABELLE 6:

LAGE DER TEMP.- REFERENZPUNKTE					ABSTAND VON DER KANTE				8.50 [CM]	15.00 [CM]	30.00 [CM]					
ISOTHERME TEILFLAECHE					F1 72.25	F2 152.75	F3 675.00	F4 4,900.00	FLAECHE- ANTEILE				A1 0.01	A2 0.03	A3 0.12	A4 0.86
THERMODYNAMISCHE DATEN					DAMPFDROCK PARAMETER				A 11193	B 19.23	C - 2.50	STOFFUEBERGANGSZAHL 1.00E-02				
ZEIT MIN	TEMP1 GRAD C	TEMP2 GRAD C	TEMP3 GRAD C	TEMP4 GRAD C	MD1 KG/M^2/S	MD2 KG/M^2/S	MD3 KG/M^2/S	MD4 KG/M^2/S	F1	F2	F3	F4	F GENICHTET			
5.00	52.00	42.00	41.00	40.00	1.27E-14	4.74E-15	4.28E-15	3.86E-15	4.02E-09	2.06E-09	1.86E-09	5.79E-10	8.17E-10			
10.00	156.00	119.00	102.00	93.00	2.01E-11	2.35E-12	7.54E-13	3.94E-13	3.02E-06	3.55E-07	1.15E-07	5.97E-08	1.11E-07			
15.00	214.00	173.00	149.00	127.00	2.88E-10	4.74E-11	1.38E-11	3.80E-12	4.62E-05	7.47E-06	2.19E-06	6.42E-07	1.53E-06			
20.00	254.00	213.00	186.00	154.00	1.25E-09	2.77E-10	8.73E-11	1.81E-11	2.34E-04	4.90E-05	1.53E-05	3.36E-06	8.85E-06			
25.00	287.00	245.00	218.00	179.00	3.53E-09	9.18E-10	3.38E-10	6.32E-11	7.63E-04	1.87E-04	6.59E-05	1.28E-05	3.31E-05			
30.00	314.00	273.00	245.00	202.00	7.50E-09	2.31E-09	9.18E-10	1.76E-10	1.89E-03	5.33E-04	2.04E-04	3.92E-05	9.48E-05			
35.00	338.00	297.00	269.00	223.00	1.38E-08	4.71E-09	2.04E-09	4.10E-10	3.96E-03	1.24E-03	5.09E-04	1.01E-04	2.27E-04			
40.00	359.00	319.00	290.00	243.00	2.25E-08	8.56E-09	3.85E-09	8.56E-10	7.33E-03	2.52E-03	1.09E-03	2.29E-04	4.80E-04			
45.00	378.00	338.00	310.00	262.00	3.40E-08	1.38E-08	6.74E-09	1.63E-09	1.24E-02	4.59E-03	2.10E-03	4.73E-04	9.25E-04			
50.00	395.00	356.00	328.00	279.00	4.81E-08	2.10E-08	1.08E-08	2.78E-09	1.97E-02	7.75E-03	3.71E-03	8.90E-04	1.64E-03			
55.00	411.00	372.00	345.00	295.00	6.56E-08	2.99E-08	1.63E-08	4.45E-09	2.95E-02	1.22E-02	6.16E-03	1.56E-03	2.74E-03			
60.00	425.00	388.00	360.00	310.00	8.48E-08	4.18E-08	2.30E-08	6.74E-09	4.22E-02	1.85E-02	9.61E-03	2.57E-03	4.33E-03			
65.00	439.00	402.00	375.00	325.00	1.08E-07	5.52E-08	3.19E-08	9.98E-09	5.85E-02	2.68E-02	1.44E-02	4.07E-03	6.59E-03			
70.00	343.00	340.00	327.00	284.00	1.55E-08	1.45E-08	1.05E-08	3.23E-09	6.08E-02	2.90E-02	1.60E-02	4.55E-03	7.27E-03			
75.00	297.00	299.00	294.00	263.00	4.71E-09	4.98E-09	4.32E-09	1.68E-09	6.15E-02	2.97E-02	1.66E-02	4.80E-03	7.59E-03			
80.00	269.00	272.00	269.00	248.00	2.04E-09	2.24E-09	2.04E-09	1.02E-09	6.18E-02	3.00E-02	1.69E-02	4.96E-03	7.77E-03			
85.00	249.00	252.00	251.00	236.00	1.05E-09	1.17E-09	1.13E-09	6.66E-10	6.20E-02	3.02E-02	1.71E-02	5.06E-03	7.88E-03			
90.00	233.00	236.00	236.00	226.00	5.97E-10	6.66E-10	6.66E-10	4.60E-10	6.21E-02	3.03E-02	1.72E-02	5.12E-03	7.96E-03			
95.00	221.00	224.00	224.00	217.00	3.79E-10	4.26E-10	4.26E-10	3.25E-10	6.21E-02	3.04E-02	1.73E-02	5.17E-03	8.01E-03			
100.00	210.00	214.00	215.00	209.00	2.45E-10	2.88E-10	3.00E-10	2.35E-10	6.22E-02	3.04E-02	1.73E-02	5.21E-03	8.05E-03			
105.00	202.00	205.00	206.00	202.00	1.76E-10	2.00E-10	2.08E-10	1.76E-10	6.22E-02	3.05E-02	1.73E-02	5.21E-03	8.07E-03			
110.00	194.00	198.00	199.00	197.00	1.25E-10	1.48E-10	1.55E-10	1.42E-10	6.22E-02	3.05E-02	1.74E-02	5.26E-03	8.09E-03			
115.00	188.00	191.00	193.00	191.00	9.56E-11	1.09E-10	1.19E-10	1.09E-10	6.22E-02	3.05E-02	1.74E-02	5.27E-03	8.11E-03			
120.00	182.00	186.00	187.00	187.00	7.27E-11	8.73E-11	9.13E-11	9.13E-11	6.22E-02	3.05E-02	1.74E-02	5.29E-03	8.13E-03			

Aktivität einer Teilfläche, bezogen auf die Gesamtaktivität der jeweiligen Teilfläche, für eine mittelflüchtige Verbindung (CsJ) aus. In der Spalte F GEWICHTET ist die Summe der mit den Anteilen an der Gesamtfläche gewichteten Freisetzungsteile der Teilflächen aufgeführt.

Dabei zeigt sich, daß nach 2 Stunden 0,8 % der Aktivität durch Sublimation bzw. Verdampfen radioaktiver Stoffe freigesetzt ist. Dieser Wert setzt voraus, daß 100 % der Aktivität als mittelflüchtige Verbindung vorliegt. Nach der Abschätzung im Kapitel 2.4 beträgt der Anteil der mittelflüchtigen Verbindungen 27 %, so daß sich der Freisetzungsteil auf 0,2 % reduziert. Zur Abdeckung eventueller Unsicherheiten wird dieser Wert auf 0,4 % aufgerundet.

Unabhängig von dieser Aufrundung beinhaltet die gewählte Vorgehensweise diverse Konservatismen, die ein abdeckendes Gesamtergebnis gewährleisten. So wird für alle relevanten Radionuklide der für Cs abgeschätzte Anteil mittelflüchtiger Verbindungen übernommen. Dies bedeutet bei allen Leitnucliden, außer den leichtflüchtigen, eine Überschätzung des mittelflüchtigen Anteils. Weiterhin ist die Annahme, daß 100 % der Aktivität als Oberflächenkontamination vorliegt, sehr konservativ, da radioaktive Stoffe häufig in die kontaminierten Strukturen eindringen (diffundieren) bzw. chemische Verbindungen eingehen /CUB 78/ oder aber als Aktivierungsprodukte fest in Strukturen gebunden sind.

Zu dem Freisetzungsteil von $4 \cdot 10^{-3}$ durch Verdampfen bzw. Sublimation radioaktiver Stoffe muß noch der Freisetzungsteil durch das Verbrennen von ausfließenden Abfallproduktbestandteilen hinzugerechnet werden, vergl. Kap. 3.2. Der Aktivitätsanteil am Abfallprodukt, der schmelzen kann und brennbar ist, ist per Definition auf 1 % limitiert. Der Freisetzungsteil beim Verbrennen beträgt gemäß Kapitel 2.2 50 %. Somit ergibt sich ein Gesamtfreisetzungsteil von 0,9 %. Den weiteren Rechnungen wird der aufgerundete Wert von 1 % zugrunde gelegt.

o APG 03

Als möglicher Freisetzungsmechanismus für die APG 03 wird gemäß Kapitel 3.3 ausschließlich Sublimation bzw. Verdampfen radioaktiver Stoffe

fe unterstellt. Für diesen Freisetzungsmechanismus kann in der Abfallklasse I der diesbezüglich für die APG 02 ermittelte Freisetzunganteil von $4 \cdot 10^{-3}$ für sonstige Radionuklide übernommen werden, da die diesen Rechnungen zugrunde liegenden Parameter auch für die APG 03 relevant sind. Für Halogene, Tritium und C 14 wird eine 100 %ige Freisetzung unterstellt.

o APG 04

Bei Preßlingen ergibt sich für Halogene, C 14 und Tritium ein freigesetzter Anteil von 100 %, da die Produkttemperatur über 373 K liegt. Für sonstige Radionuklide wird der experimentell ermittelte Wert von $1,6 \cdot 10^{-3}$ übernommen.

o APG 05

Bei der Ermittlung der Freisetzungsteile aus zementierten/betonierten Abfällen sind für die Bestimmung der Freisetzungsteile entsprechend Kapitel 3.5 die 315 K-Isotherme, die 373 K-Isotherme und die 573 K-Isotherme relevant.

Zur experimentellen Bestimmung von Freisetzungsteilen aus Abfallprodukten der APG 05 bei thermischer Belastung wurden von der NUKEM /NUK 84/ repräsentative Abfallsimulate einem Schadensfeuer ausgesetzt, welches bezüglich des Brandzeit- und Temperaturverlaufs den unterstellten Störfall in der Schachanlage Konrad abdeckt. Die hierbei ermittelten Temperaturen im Abfallprodukt liegen erheblich unter den theoretisch bestimmten Werten in /PIE 84/. Gründe hierfür liegen zum einen in einem zu konservativ angesetzten Wärmeübergang von der Flamme auf das Abfallgebäude, wie Verifikationsrechnungen in /PIE 84/ zeigen. Zum anderen wurde auch der sich durch das unvermeidliche Schwinden beim Abbinden und Trocknen ausbildende Spalt zwischen Zementmatrix und Behälterwandung nicht berücksichtigt. Die Isolierwirkung dieses Spaltes, die bei der Beschreibung der Temperaturfeldrechnungen der APG 02 ausführlich beschrieben wurde, ist maßgeblich verantwortlich für die großen Diskrepanzen zwischen den theoretischen und experimentellen Werten.

Die Randbedingungen der experimentellen Untersuchungen sind im Vergleich zu den beim unterstellten Störfall realistisch zu erwartenden Randbedingungen als konservativ zu beurteilen, da zum Beispiel das Verhältnis Abfallgebundemasse zu Brandlast erheblich kleiner ist und kühlende Luftbewegungen durch den Versuchsstand ausgeschlossen werden. Weiterhin deckt die Auswahl der Abfallsimulate im Hinblick auf die Freisetzung das realistisch zu erwartende Abfallspektrum der APG 05 ab. So sind unter anderem Kugelharze untersucht worden, bei denen im Randbereich Pyrolysevorgänge mit den unterstellten hohen Freisetzungsteilen zu erwarten sind.

Aus diesen Gründen basiert die Bestimmung der freigesetzten Aktivität vornehmlich auf den Ergebnissen der NUKEM-Experimente: In allen Fällen lag die 573 K-Isotherme weniger als 16 mm vom Rand. Überträgt man diesen Wert - aufgerundet auf 20 mm - auf einem Stahlblechcontainer Typ I, so sind in einem Volumenanteil von maximal 8 % Temperaturen > 300 °C zu erwarten. Für die 373 K-Isotherme läßt sich aus den Rechnungen eine maximale Eindringtiefe von 5 cm extrapolieren, das heißt, ca. 20 % des Volumens liegen über 100 °C. Eine belastbare Bestimmung der 315 K-Isotherme aus den Experimenten ist nicht möglich. Daher wird hierfür konservativ unterstellt, daß 100 % des Volumens diese Temperatur überschreiten.

Aus diesen Temperaturfeldern resultieren die folgenden Freisetzungsteile:

Halogene werden zu 100 % freigesetzt. Für Tritium wird der freigesetzte Anteil unter 20 % liegen. Dieser Wert wird auf 50 % aufgerundet. Gemäß Kapitel 3.5 wird C 14 behandelt wie sonstige Radionuklide. Für diese Radionuklide ergeben sich durch den Freisetzungsmechanismus Pyrolyse ein Freisetzungsteil von $4 \cdot 10^{-4}$ und für den Freisetzungsmechanismus Verdampfen von Wasser im Abfallprodukt ein Freisetzungsteil von $1 \cdot 10^{-4}$, das heißt, für sonstige Radionuklide resultiert ein Gesamtfreisetzungsfaktor von $5 \cdot 10^{-4}$.

Dieser theoretische Wert ist etwa doppelt so hoch wie der unter konservativen Randbedingungen ermittelte maximale experimentelle Wert. Zur Sicherstellung eines konservativen Ergebnisses wird den weiteren Rechnungen der theoretische Wert zugrunde gelegt.

o APG 06

Bei Abfallprodukten der APG 06 bildet sich unter Umständen durch Schmelzen des Abfallproduktes kein Temperaturfeld aus. Da mangels geeigneter Datenbasis keine abdeckende thermodynamische Betrachtung durchgeführt werden kann, wird konservativ unterstellt, daß die Temperatur im gesamten Abfallprodukt über 373 K liegt und daß 90 % der Restfeuchte verdampft.

Damit ergeben sich für Halogene und Tritium Freisetzungsteile von 100 % und für sonstige Radionuklide gemäß Kapitel 2.3 freigesetzte Anteile von $5 \cdot 10^{-4}$, wobei C 14 wiederum behandelt wird wie sonstige Radionuklide, vgl. Kapitel 3.6.

5. FREISETZUNGSMODELL FÜR ABFALLKLASSE II

Behälter der Abfallklasse II sind störfallresistent ausgelegt, das bedeutet, sie behalten im Störfall eine definierte Barrierefunktion mit freisetzungsmindernder Wirkung. Die Erhaltung der Barrierefunktion wird durch Anforderungen, die zum Beispiel im Rahmen von Typqualifikationen oder der Produktkontrolle geprüft werden, gewährleistet.

Als Anforderungen an Behälter der Abfallklasse II werden die Dichtigkeit des unbelasteten Behälters und die Begrenzung der Gasleckage aus dem Behälter während des Störfalls spezifiziert. Die Korrelation mit dem Aktivitätsfreisetzungsteil erfolgt mittels des nachfolgend beschriebenen Freisetzungsmodells.

Das Freisetzungsmodell der Abfallklasse II ist in zwei Schritte gegliedert:

(1) Bestimmung der Freisetzung aus dem Abfallprodukt in die Behälteratmosphäre. Ergebnis dieser Betrachtung ist eine Aktivitätskonzentration in der Behälteratmosphäre.

Dieser Schritt orientiert sich in etwa an der Vorgehensweise in Kapitel 3.

(2) Abschätzung des ausströmenden Anteils der Behälteratmosphäre. Ausgehend von einer Anfangsleckrate L_0 vor dem Brand, die, wie bereits erwähnt, durch Anforderungen an den Behälter gewährleistet wird, wird der zeitliche Verlauf der Leckrate während des Brandes auf der Basis berechneter Temperatur- und Druckwerte im Behälter ermittelt und über den Brandverlauf und einer anschließenden Abkühlphase integriert. Aus dem hieraus resultierenden ausgetretenen Molenstrom (Volumenstrom) und der Aktivitätskonzentration im ausströmenden Gas ergibt sich der Freisetzungsanteil. Der berechnete ausgetretene Molenstrom wird ebenfalls als Anforderung an Behälter der Abfallklasse II festgeschrieben. Wird also der im ersten Schritt behandelte Übergang in die Behälteratmosphäre ausreichend konservativ abgeschätzt, so wird durch die Anforderungen an den Behälter sichergestellt, daß die im zweiten Schritt ermittelten Freisetzungsteile nicht überschritten werden.

Im folgenden wird zunächst beschrieben, wie bei den beiden Schritten vorgegangen wird. Anschließend wird das Vorgehen durch Vergleich mit Ergebnissen neuerer, maßstäblicher Experimente bewertet.

5.1 Freisetzung in die Behälteratmosphäre

Die Ermittlung der Freisetzung aus dem Abfallprodukt in die Behälteratmosphäre erfolgt in Anlehnung an die in Kapitel 3 angegebenen Freisetzungsmechanismen. Unabhängig von Abfallproduktgruppen wird für Halogene und C 14 in leichtflüchtiger Form von einem 100 % Übergang in die Behälteratmosphäre ausgegangen. Wie bei der Abfallklasse I wird bezüglich C 14 unterstellt, daß es in den Abfallproduktgruppen 01, 02, 03 und 04 in leichtflüchtiger Form und in den Abfallproduktgruppen 05 und 06 in schwerflüchtiger Form vorliegt, vgl. Kapitel 3. C 14 in schwerflüchtiger Form wird behandelt wie sonstige Radionuklide.

Bezüglich Tritium wird unterstellt, daß es sich in wässriger Form im Behälter befindet und entsprechend dem Temperatur- und Druckaufbau verdampft. Der Tritiumanteil in der Behälteratmosphäre entspricht dem Dampfanteil an der Gesamtwassermasse.

Die Wassermasse im Behälter wird im Zusammenhang mit den Parametern der Eingabeparameter der Ausströmrechnungen diskutiert.

Von den für sonstige Radionuklide möglichen Freisetzungsmechanismen ist Freisetzung durch Verbrennen des Abfallproduktes nicht relevant, da durch die Anforderungen an das Behältnis der Sauerstoffzutritt zum Abfallprodukt ausgeschlossen wird.

Ein alle anderen Freisetzungsmechanismen abdeckender Freisetzungsteil wird für sonstige Radionuklide zu $4 \cdot 10^{-3}$ abgeschätzt. Hierdurch ist eine Pyrolyse von 80 % des Inventars abgedeckt. Maßstäbliche Brandversuche an verschiedenen Abfallgebinden /GNS 85/, /TN 85/ ergeben, daß von Pyrolyse betroffene Volumenanteile erheblich geringer sind. Weiterhin wird durch diesen Freisetzungsteil die Freisetzung durch Verdampfen bzw. Sublimation radioaktiver Stoffe abgedeckt (vgl. für realistische Temperaturfelder in Gußbehältern /GRU 87/).

Bei den Abfallproduktgruppen, für die die Freisetzung durch Verdampfen von Wasser im Abfallprodukt relevant ist - APG 05 und APG 06 -, wird der obengenannte Freisetzungsteil mit dem Anteil des verdampften Wassers (X) korreliert:

$$f = 4 \cdot 10^{-3} \cdot X$$

f = Freisetzungsteil

$4 \cdot 10^{-3}$ = abdeckender Freisetzungsteil

X = Anteil der Wasserdampfmasse

Tabelle 7 gibt eine Zusammenfassung der jeweiligen Freisetzungsteile und Radionuklidgruppen.

Tabelle 7: Freisetzungsanteile zur Bestimmung der freigesetzten Aktivität bei Abfallgebinden der Abfallklasse II

	Halogene	C 14	Tritium	sonstige Radionuklide
APG 01	1	1	X	4 E-3
APG 02	1	1	X	4 E-3
APG 03	1	1	X	4 E-3
APG 04	1	1	X	4 E-3
APG 05	1	X · 4 E-3	X	X · 4 E-3
APG 06	1	X · 4 E-3	X	X · 4 E-3

X : Wasserdampfmasse bezogen auf Gesamtwassermasse

5.2 Ausströmvorgänge aus dem Behältnis

Ehe im weiteren die einzelnen Schritte zur Bestimmung der Ausströmvorgänge detailliert beschrieben werden, soll ein kurzer Gesamtüberblick über die Vorgehensweise gegeben werden.

Zunächst werden für unterschiedliche Abfallgebindetypen - charakterisiert durch typische Parameter der jeweiligen Abfallproduktgruppe - Temperaturfunktionen für die innere Energie, den Druckaufbau, den Dampfgehalt und die Leckrate bestimmt. Diese Temperaturfunktionen geben an, welche Werte die jeweiligen Größen annehmen, wenn die Temperatur unter der Voraussetzung eines homogenen Temperaturfeldes einen bestimmten Wert erreicht.

Im nächsten Schritt wird zeitabhängig die Behälterinnentemperatur ermittelt. Durch Korrelation der temperaturabhängigen Leckrate mit der zeitabhängigen Temperatur erhält man den zeitabhängigen Verlauf der Leckrate. Dieser wird integriert, so daß sich die gesamte Leckage ergibt.

Als wesentlicher Parameter gehen in die Rechnungen die folgenden Größen ein:

- Abfallproduktmasse
- verdampfbare Wassermasse
- Wärmeübertragungsfläche (Innenfläche des Behälters)
- Leervolumen des Behälters (Volumen der Behälteratmosphäre im befüllten Behälter)

Tabelle 8:

Eingangsgrößen für die Berechnung von Druck- und Temperaturentwurf

Abfallprodukt- gruppe	Produkt- masse [kg]	Wasser- masse [kg]	Fläche [m ²]	Leer- volumen [m ³]
APG 01	260	100	3,58	0,2
APG 02	1.800	10	3,58	0,2
APG 03	1.800	10	3,58	0,2
APG 04	1.800	10	3,58	0,15
APG 05	250	250	3,58	0,25
APG 06	*)	500	3,58	0,25

*) Konzentrate können bei Temperaturen $T > 373 \text{ K}$ schmelzen. Sie werden demzufolge behandelt wie Wasser.

In Tabelle 8 sind diese Größen für die sechs Abfallproduktgruppen wiedergegeben. Als Behälter wird ein Gußbehälter Typ II 16/0 den weiteren Betrachtungen zugrunde gelegt.

Für diesen Behälter ergibt sich eine innere Wärmeübergangsfläche von 3,58 m² und ein Behälterleervolumen von ca. 500 l /PTB 84/. Bezüglich des Inventars wird zwischen der Masse des verdampften Wassers und der sonstigen Produktmasse unterschieden. Während die sonstige Produktmasse eine wenig sensitive Größe darstellt, da aufgrund konservativer Annahmen bei der Wärmeübertragung die Produkttemperatur nahezu massenunabhängig ist, ist die verdampfbare Wassermasse im Hinblick auf den Druckaufbau von erheblicher Bedeutung: Mit steigender Temperatur verdampft ein Teil des Wassers und bewirkt so einen Behälterinnendruck, der in etwa dem Sättigungsdampfdruck entspricht. Wird die Masse des verdampfbaren Wassers zu klein gewählt, so daß während des Aufheizvorgangs die gesamte Wassermasse verdampft, fällt die Drucksteigerung im Behälter und damit der freigesetzte Aktivitätsanteil erheblich kleiner aus. Andererseits bewirkt eine zu große Wassermasse - abhängig von maximaler Behälterinnenwandtemperatur und Behälterleervolumen - keine weitere Drucksteigerung; sie führt jedoch zu einem kleineren Tritiumanteil in der Behälteratmosphäre.

Für die APG 02, APG 03 und APG 04 (Feststoffe, metallische Feststoffe und Preßlinge) ist als "verdampfbares Wasser" Wasser in Form "freier Flüssigkeiten" relevant. Der Anteil "freier Flüssigkeiten" ist nach /GRÜ 86/ auf 1 % begrenzt, das bedeutet für die betrachteten Behälter 5 l freies Wasser. Obwohl dieser Wert im allgemeinen nicht erreicht wird, wird zur Abdeckung extremer Verhältnisse - die zum Beispiel durch Massentransport aus einem feuchten Abfallprodukt resultieren können - den weiteren Betrachtungen eine Wassermasse von 10 kg zugrunde gelegt. Diese 10 kg bewirken auch in Verbindung mit den jeweiligen Behälterleervolumina bei dem verwendeten Modell einen nahezu extremen Druckaufbau.

Als typisches Produkt der APG 01 in der Abfallklasse II können Kugelharze (unfixiert) angesehen werden. Bezogen auf das trockene Harzprodukt sind bis zu 40 % Restfeuchte im Harz üblich. Obwohl dieses Wasser im allgemeinen fest an das Harz gebunden ist, wird bezüglich der Freisetzung unterstellt, daß es sich um verdampfbares Wasser handelt.

Bei der APG 05 wird als Abfallprodukt eine Zementsteinmatrix mit einem W/Z-Wert von 0,5 betrachtet. Obwohl auch hier das Wasser gebunden ist, wird unterstellt, daß es verdampfbar wäre.

Produkte der APG 06 können bei Temperaturen um 80 °C schmelzen (z.B. Metaborsäure). Da die Dampfdruckkurve von geschmolzenen Konzentraten nicht angebar ist, werden die entsprechenden Daten von Wasser übernommen, das heißt, bei der Berechnung der Ausströmvorgänge besteht das gesamte Produkt scheinbar aus Wasser.

Bezüglich des Druckaufbaus im Behälter ist das Leervolumen ähnlich sensitiv wie die Masse des verdampfenden Wassers. Für Kugelharze als Referenzprodukt der APG 01 ergibt sich bei einem durchschnittlichen Leervolumenanteil einer Kugelschüttung von 40 % ein Leervolumen im Behälter von 200 l. Dieses Leervolumen wird auch den APG 02 und APG 03 zugrunde gelegt. Für die APG 04 wird demgegenüber nur noch ein Leervolumen von 150 l unterstellt. Realistisch wird bei den drei letztgenannten Abfallproduktgruppen das Leervolumen über 250 l liegen. Das bedeutet, daß der Druckaufbau im Behälter und damit die freigesetzte Aktivität überschätzt wird.

Für die APG 05 und die APG 06 werden unter Berücksichtigung der Trocknungsschwunde technisch maximal erreichbare Verfüllungsgrade von 95 % angenommen, das heißt, die Leervolumina betragen 25 l.

Mit diesen Größen werden abfallproduktgruppenspezifisch entsprechend den nachfolgend angegebenen Beziehungen die o.a. Temperaturfunktionen bestimmt. Die verwendeten thermodynamischen Stoffwerte werden aus /DAN 67/ übernommen.

- Behälterinnendruck

$$p(T) = \begin{cases} p_o \cdot \frac{T}{293} + p_{H_2O}^o(T) & \text{für } x(T) < 1 \\ p_o \cdot \frac{T}{293} + n_{H_2O} \cdot R \cdot T/V & \text{für } x(T) = 1 \end{cases}$$

mit

$p(T)$ = Behälterinnendruck als Funktion der Behältertemperatur
 T in [K]

p_o = Behälterinnendruck bei $T = 293$ K

T = Behälterinnentemperatur (gemittelt in K)

$P_{H_2O}^o(T)$ = Partialdampfdruck des Wassers als Funktion der Temperatur

n_{H_2O} = Molzahl des gesamten Wassers

R = Universelle Gaskonstante

V = Leervolumen des Behälters

$x(T)$ = Wasserdampfanteil (Masse Dampf bezogen auf Gesamtmasse Wasser) bei Behältertemperatur T

- Energie des Abfallproduktes

Diese Temperaturfunktion wird unter der Voraussetzung ermittelt, daß sich im Behälter ein homogenes Temperaturfeld aufbaut.

Sie gibt die Energie an, die zur Aufheizung des gesamten Inventars auf die jeweilige Temperatur benötigt wird, wobei Phasenumwandlungen berücksichtigt werden.

$$\begin{aligned}
 Q(T) = & m_{WAS} \cdot (h_{WAS}(T) + x(T) \cdot (h_{DAM}(T) - h_{WAS}(T)) \\
 & - h_{WAS}(T_o)) \\
 & - (p(T) - p_o) \cdot V \\
 & + m_{Pro} \cdot C_p \cdot (T - T_o)
 \end{aligned}$$

mit

$Q(T)$: Energie, die zur Aufheizung des Abfallproduktes von Temperatur T_0 auf T benötigt wird

m_{WAS} : Gesamtwassermasse

$h_{\text{WAS}}(T)$: Spezifische Enthalpie des flüssigen Wassers bei Temperatur T

$x(T)$: Dampfanteil an Gesamtwassermasse bei Temperatur T

h_{DAM} : Enthalpie des Wasserdampfes bei Temperatur T

m_{Pro} : Produktmasse

C_{Pro} : Spezifische Wärmekapazität des wasserfreien Produktes

T_0 : Temperatur des Abfallproduktes vor dem Brand [293 K]

- Leckrate

Die Berechnung der Leckrate erfolgt für eine laminare Strömung aus dem Behälter gemäß /ANS 77/. Dies ist konservativ gegenüber einer realistischeren adiabatischen Betrachtung, weil bei adiabatischer Ausströmung durch die Abkühlung infolge der Expansion die maximale Ausströmgeschwindigkeit begrenzt ist.

Dieser Beziehung liegt ein idealisiertes Leck mit kreisförmigem, über die Länge konstantem Querschnitt zugrunde.

Für die Berechnung der Leckrate als Temperaturfunktion wird die Geometrie so festgelegt, daß die berechnete Leckrate bei 20 °C über der in den Anforderungen festgelegten Leckrate von $10^{-5} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3 \text{ s}^{-1}$ (bezogen auf Standardbedingungen wie bei der Dichtheitsprüfung nach der Vakuummethode) liegt. Dies ist bei einem Durchmesser von $35 \cdot 10^{-6} \text{ m}$ und einer Weglänge von $16 \cdot 10^{-2} \text{ m}$ gegeben.

Die Leckrate im Störfall beträgt für diese Geometrie für den Anfangswert von 20 °C $3,08 \text{ E-6 Pa m}^3/\text{s}$. Der entsprechende Wert für Bedingungen wie bei der Dichtheitsprüfung nach der Vakkummethode beträgt $7,5 \text{ E-5 Pa} \cdot \text{m}^3/\text{s}$.

Nach /ANS 77/ berechnet sich die Leckrate wie folgt:

$$L = 3810 \frac{d^3}{a} \left(323 \frac{d}{\eta} (p_u^2 - p_d^2) + \sqrt{\frac{T}{M}} \cdot (p_u - p_d) \right)$$

mit

L = Leckrate in [$10 \text{ Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$]

d = Durchmesser des Ausströmquerschnittes in [10^{-2} m]

a = Weglänge in [10^{-2} m]

η = Viskosität [$10^{-3} \text{ N} \cdot \text{s} / \text{m}^2$]

p_u = Druck am Spalteneintritt (u: upstream) [10^5 Pa]

p_d = Druck am Spaltenausritt (d: downstream) [10^5 Pa]

T = Fluidtemperatur [K]

M = molare Masse [g/mol]

Die berechneten Temperaturfunktionen sind in Tabelle 9 aufgelistet. In der Spalte "Aktivität normiert" ist der Aktivitätsanteil sonstiger Radionuklide in der Behälteratmosphäre angegeben, in der Spalte "Feuchte normiert" der Dampfanteil in der Gesamtwassermasse, das heißt, der Tritiumanteil in der Behälteratmosphäre. Nicht aufgeführt ist der Jodanteil und der Anteil von C 14 in leichtflüchtiger Form, da dieser 100 % beträgt.

Tabelle 9: Temperaturfunktionen zur Bestimmung der integralen Leckrate

ABFALLPRODUKTGRUPPE 01 (BIT.-U.KST.PROD.)

TEMPERATUR GRAD C	GES.DRUCK BAR	ENERGIE KJ	LECKRATE MBARL/SEC	AKTIVITAET NORMIERT	FEUCHTE NORMIERT
2.00E+01	1.02E+00	8.02E+00	3.04E-05	4.00E-03	3.32E-05
4.00E+01	1.14E+00	1.15E+04	1.89E-04	4.00E-03	9.83E-05
6.00E+01	1.34E+00	2.30E+04	4.81E-04	4.00E-03	2.50E-04
8.00E+01	1.68E+00	3.46E+04	1.15E-03	4.00E-03	5.64E-04
1.00E+02	2.29E+00	4.63E+04	2.79E-03	4.00E-03	1.15E-03
1.20E+02	3.33E+00	5.81E+04	7.00E-03	4.00E-03	2.16E-03
1.40E+02	5.02E+00	7.01E+04	1.73E-02	4.00E-03	3.79E-03
1.60E+02	7.66E+00	8.24E+04	4.13E-02	4.00E-03	6.26E-03
1.80E+02	1.16E+01	9.50E+04	9.36E-02	4.00E-03	9.91E-03
2.00E+02	1.72E+01	1.08E+05	2.01E-01	4.00E-03	1.51E-02
2.20E+02	2.49E+01	1.21E+05	4.05E-01	4.00E-03	2.24E-02
2.40E+02	3.56E+01	1.35E+05	7.98E-01	4.00E-03	3.21E-02
2.60E+02	4.88E+01	1.50E+05	1.43E+00	4.00E-03	4.58E-02
2.80E+02	6.61E+01	1.65E+05	2.47E+00	4.00E-03	6.41E-02
3.00E+02	8.79E+01	1.81E+05	4.13E+00	4.00E-03	8.74E-02
3.20E+02	1.15E+02	1.99E+05	6.60E+00	4.00E-03	1.24E-01
3.40E+02	1.48E+02	2.18E+05	1.01E+01	4.00E-03	1.75E-01
3.60E+02	1.89E+02	2.39E+05	1.42E+01	4.00E-03	2.75E-01
3.74E+02	2.23E+02	2.58E+05	1.23E+01	4.00E-03	6.01E-01

ABFALLPRODUKTGRUPPE 02/03 (FESTST./MET)

TEMPERATUR GRAD C	GES.DRUCK BAR	ENERGIE KJ	LECKRATE MBARL/SEC	AKTIVITAET NORMIERT	FEUCHTE NORMIERT
2.00E+01	1.02E+00	8.02E+00	3.04E-05	4.00E-03	3.46E-04
4.00E+01	1.14E+00	2.03E+04	1.89E-04	4.00E-03	1.02E-03
6.00E+01	1.34E+00	4.06E+04	4.81E-04	4.00E-03	2.60E-03
8.00E+01	1.68E+00	6.10E+04	1.15E-03	4.00E-03	5.87E-03
1.00E+02	2.29E+00	8.14E+04	2.79E-03	4.00E-03	1.20E-02
1.20E+02	3.33E+00	1.02E+05	7.00E-03	4.00E-03	2.24E-02
1.40E+02	5.02E+00	1.22E+05	1.73E-02	4.00E-03	3.94E-02
1.60E+02	7.66E+00	1.43E+05	4.13E-02	4.00E-03	6.51E-02
1.80E+02	1.16E+01	1.64E+05	9.36E-02	4.00E-03	1.03E-01
2.00E+02	1.72E+01	1.85E+05	2.01E-01	4.00E-03	1.57E-01
2.20E+02	2.49E+01	2.07E+05	4.05E-01	4.00E-03	2.33E-01
2.40E+02	3.56E+01	2.29E+05	7.98E-01	4.00E-03	3.33E-01
2.60E+02	4.88E+01	2.51E+05	1.43E+00	4.00E-03	4.76E-01
2.80E+02	6.61E+01	2.73E+05	2.47E+00	4.00E-03	6.67E-01
3.00E+02	8.79E+01	2.96E+05	4.13E+00	4.00E-03	9.09E-01
3.20E+02	9.09E+01	3.16E+05	4.13E+00	4.00E-03	1.00E+00
3.40E+02	9.40E+01	3.35E+05	4.05E+00	4.00E-03	1.00E+00
3.60E+02	9.71E+01	3.53E+05	3.75E+00	4.00E-03	1.00E+00
3.74E+02	9.92E+01	3.63E+05	2.42E+00	4.00E-03	1.00E+00

Tabelle 9: Fortsetzung

ABFALLPRODUKTGRUPPE 04 (PRESSLINGE)					
TEMPERATUR GRAD C	GES.DRUCK BAR	ENERGIE KJ	LECKRATE MBARL/SEC	AKTIVITAET NORMIERT	FEUCHTE NORMIERT
2.00E+01	1.02E+00	6.01E+00	3.04E-05	4.00E-03	2.59E-04
4.00E+01	1.14E+00	2.03E+04	1.89E-04	4.00E-03	7.67E-04
6.00E+01	1.34E+00	4.06E+04	4.81E-04	4.00E-03	1.95E-03
8.00E+01	1.68E+00	6.09E+04	1.15E-03	4.00E-03	4.40E-03
1.00E+02	2.29E+00	8.13E+04	2.79E-03	4.00E-03	8.97E-03
1.20E+02	3.33E+00	1.02E+05	7.00E-03	4.00E-03	1.68E-02
1.40E+02	5.02E+00	1.22E+05	1.73E-02	4.00E-03	2.95E-02
1.60E+02	7.66E+00	1.43E+05	4.13E-02	4.00E-03	4.89E-02
1.80E+02	1.16E+01	1.64E+05	9.36E-02	4.00E-03	7.73E-02
2.00E+02	1.72E+01	1.85E+05	2.01E-01	4.00E-03	1.18E-01
2.20E+02	2.49E+01	2.06E+05	4.05E-01	4.00E-03	1.74E-01
2.40E+02	3.56E+01	2.27E+05	7.98E-01	4.00E-03	2.50E-01
2.60E+02	4.88E+01	2.49E+05	1.43E+00	4.00E-03	3.57E-01
2.80E+02	6.61E+01	2.71E+05	2.47E+00	4.00E-03	5.00E-01
3.00E+02	8.79E+01	2.93E+05	4.13E+00	4.00E-03	6.82E-01
3.20E+02	1.15E+02	3.16E+05	6.60E+00	4.00E-03	9.68E-01
3.40E+02	1.19E+02	3.35E+05	6.46E+00	4.00E-03	1.00E+00
3.60E+02	1.23E+02	3.53E+05	5.99E+00	4.00E-03	1.00E+00
3.74E+02	1.25E+02	3.63E+05	3.87E+00	4.00E-03	1.00E+00

ABFALLPRODUKTGRUPPE 05 (ZEMENTPRODUKTE)					
TEMPERATUR GRAD C	GES.DRUCK BAR	ENERGIE KJ	LECKRATE MBARL/SEC	AKTIVITAET NORMIERT	FEUCHTE NORMIERT
2.00E+01	1.02E+00	1.00E+00	3.04E-05	8.64E-09	1.73E-06
4.00E+01	1.14E+00	2.36E+04	1.89E-04	2.56E-08	5.11E-06
6.00E+01	1.34E+00	4.72E+04	4.81E-04	6.51E-08	1.30E-05
8.00E+01	1.68E+00	7.08E+04	1.15E-03	1.47E-07	2.93E-05
1.00E+02	2.29E+00	9.46E+04	2.79E-03	2.99E-07	5.98E-05
1.20E+02	3.33E+00	1.18E+05	7.00E-03	5.61E-07	1.12E-04
1.40E+02	5.02E+00	1.42E+05	1.73E-02	9.84E-07	1.97E-04
1.60E+02	7.66E+00	1.67E+05	4.13E-02	1.63E-06	3.26E-04
1.80E+02	1.16E+01	1.92E+05	9.36E-02	2.58E-06	5.15E-04
2.00E+02	1.72E+01	2.17E+05	2.01E-01	3.94E-06	7.87E-04
2.20E+02	2.49E+01	2.42E+05	4.05E-01	5.81E-06	1.16E-03
2.40E+02	3.56E+01	2.69E+05	7.98E-01	8.33E-06	1.67E-03
2.60E+02	4.88E+01	2.96E+05	1.43E+00	1.19E-05	2.38E-03
2.80E+02	6.61E+01	3.24E+05	2.47E+00	1.67E-05	3.33E-03
3.00E+02	8.79E+01	3.54E+05	4.13E+00	2.27E-05	4.55E-03
3.20E+02	1.15E+02	3.87E+05	6.60E+00	3.23E-05	6.45E-03
3.40E+02	1.48E+02	4.23E+05	1.01E+01	4.55E-05	9.09E-03
3.60E+02	1.89E+02	4.68E+05	1.42E+01	7.14E-05	1.43E-02
3.74E+02	2.23E+02	5.38E+05	1.23E+01	1.56E-04	3.13E-02

Tabelle 9: Fortsetzung

ABFALLPRODUKTGRUPPE 06 (KONZENTRATE)

TEMPERATUR GRAD C	GES.DRUCK BAR	ENERGIE KJ	LECKRATE MBARL/SEC	AKTIVITAET NORMIERT	FEUCHTE NORMIERT
2.00E+01	1.02E+00	1.00E+00	3.04E-05	4.32E-09	8.64E-07
4.00E+01	1.14E+00	4.17E+04	1.89E-04	1.28E-08	2.56E-06
6.00E+01	1.34E+00	8.35E+04	4.81E-04	3.25E-08	6.51E-06
8.00E+01	1.68E+00	1.25E+05	1.15E-03	7.33E-08	1.47E-05
1.00E+02	2.29E+00	1.68E+05	2.79E-03	1.49E-07	2.99E-05
1.20E+02	3.33E+00	2.10E+05	7.00E-03	2.81E-07	5.61E-05
1.40E+02	5.02E+00	2.52E+05	1.73E-02	4.92E-07	9.84E-05
1.60E+02	7.66E+00	2.96E+05	4.13E-02	8.14E-07	1.63E-04
1.80E+02	1.16E+01	3.40E+05	9.36E-02	1.29E-06	2.58E-04
2.00E+02	1.72E+01	3.84E+05	2.01E-01	1.97E-06	3.94E-04
2.20E+02	2.49E+01	4.30E+05	4.05E-01	2.91E-06	5.81E-04
2.40E+02	3.56E+01	4.77E+05	7.98E-01	4.17E-06	8.33E-04
2.60E+02	4.88E+01	5.26E+05	1.43E+00	5.95E-06	1.19E-03
2.80E+02	6.61E+01	5.77E+05	2.47E+00	8.33E-06	1.67E-03
3.00E+02	8.79E+01	6.32E+05	4.13E+00	1.14E-05	2.27E-03
3.20E+02	1.15E+02	6.90E+05	6.60E+00	1.61E-05	3.23E-03
3.40E+02	1.48E+02	7.57E+05	1.01E+01	2.27E-05	4.55E-03
3.60E+02	1.89E+02	8.41E+05	1.42E+01	3.57E-05	7.14E-03
3.74E+02	2.23E+02	9.80E+05	1.23E+01	7.81E-05	1.56E-02

Ziel der weiteren Berechnungen ist die Bestimmung des zeitlichen Verlaufs der Leckrate. Hierzu ist zunächst die Entwicklung der Temperatur im Behältnis zu bestimmen. Da aufgrund der Komplexität der ablaufenden Vorgänge und mangels geeigneter experimenteller Untersuchungen ein geeignetes realistisches Modell fehlt, wird für die weiteren Berechnungen das nachfolgend beschriebene konservative Modell verwendet:

Es wird angenommen, daß ein genügend großer Anteil des verdampfenden Wassers im Behälter mit der Behälterinnenwand in Kontakt steht. Dieses Wasser heizt sich bis auf Siedetemperatur auf und verdampft. Der Dampf kondensiert an kalten Stellen des Abfallproduktes und heizt diese durch die freiwerdende Kondensationswärme auf. Kann aufgrund des Temperaturgleichgewichtes kein Dampf mehr kondensieren, steigt der Druck im Behältnis an, was eine Erhöhung des Siedepunktes zur Folge hat.

Durch die Phasenübergänge kommt es zu einem sehr guten Wärmetransport in das Abfallprodukt, so daß von einem homogenen Temperaturfeld im Behälter ausgegangen werden kann.

Für die Beschreibung des Wärmeüberganges zwischen der Behälterwand und dem Wasser wird das Wärmeübergangsgesetz für Gefäßverdampfung gemäß /LIN 69/ zugrunde gelegt:

$$\alpha = 1,96 \cdot \dot{q}^{0,72} \cdot p^{0,24} \text{ mit}$$

α : Wärmeübergangskoeffizient [$\text{W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{K}^{-1}$]
 \dot{q} : Wärmestromdichte [$\text{W} \cdot \text{m}^{-2}$]
 p : Druck [10^5 Pa]

Für den Wärmestrom in das Behältnis ergibt sich

$$\dot{Q} = \alpha \cdot F \cdot (T_i - T_{pr}) \text{ mit}$$

\dot{Q} : Wärmestrom in das Behältnis [W]
 F : Wärmeübergangsfläche [m^2]
 T_i : Wandinnentemperatur [K]
 T_{pr} : Abfallprodukttemperatur [K]

Bei den weiteren Berechnungen wird unterstellt, daß die Innenwand eine Heizfläche darstellt, der ein bestimmter Temperaturverlauf aufgeprägt wird. Bei genügend kleiner Wahl eines Zeitschritts gilt für die in das Abfallprodukt übergegangene Energie:

$$Q = F \cdot \frac{\alpha_1 + \alpha_2}{2} \cdot \left(\frac{T_{i,1} + T_{i,2}}{2} - \frac{T_{pr,1} + T_{pr,2}}{2} \right) \cdot \Delta t$$

mit

Indices 1,2: Kennzeichnung für Beginn (1) und Ende (2) des Zeitschritts

Δt : Zeitschritt

Die Energie Q muß der früher hergeleiteten temperaturabhängigen Energiefunktion des Abfallproduktes entsprechen:

$$Q = Q(T_{pr,2}) - Q(T_{pr,1})$$

Für vorgegebene Behälterinnenwandtemperaturen und einen Anfangswert der Abfallprodukttemperatur läßt sich somit die Abfallprodukttemperatur am Ende des Zeitschritts berechnen. Die Berechnung erfolgt numerisch durch Iteration für Zeitschritte von 24 Sekunden.

Die den Behälterwänden aufgeprägten Temperaturen ergeben sich aus den Rechnungen zur Aufheizung von Abfallgebinden /PIE 84/. Ausgewählt werden die Rechnungen für den Gußbehälter Typ II 16/0 mit Polystyrol als Abfallprodukt. Bei diesen Rechnungen wird für den Wärmeübergang auf das Abfallprodukt ausschließlich Wärmeleitung berücksichtigt. Dies führt zur Überschätzung der Wandinnentemperaturen, da rechnerisch der Wärmetransport in das Abfallprodukt und damit eine mögliche Wärmesenke erheblich unterschätzt wird.

Aus den Ergebnissen der Aufheizrechnung wird ein mittlerer zeitlicher Verlauf der Wandinnentemperaturen gebildet. Diese gemittelten Temperaturverläufe werden der Innenwand aufgeprägt. Der Temperaturverlauf ist in Bild 3 dargestellt.

Damit erhält man entsprechend dem benutzten Wärmeübergangsmodell den zeitlichen Verlauf der Leckrate. Der Verlauf der Abfallprodukttempera-

tur entspricht wegen des sehr guten Wärmeüberganges von der Behälterinnenwand auf das Abfallprodukt in etwa dem Verlauf der Wandtemperatur. In Bild 4 ist für Bitumen- und Kunststoffprodukte das Ergebnis der Leckratenrechnung dargestellt.

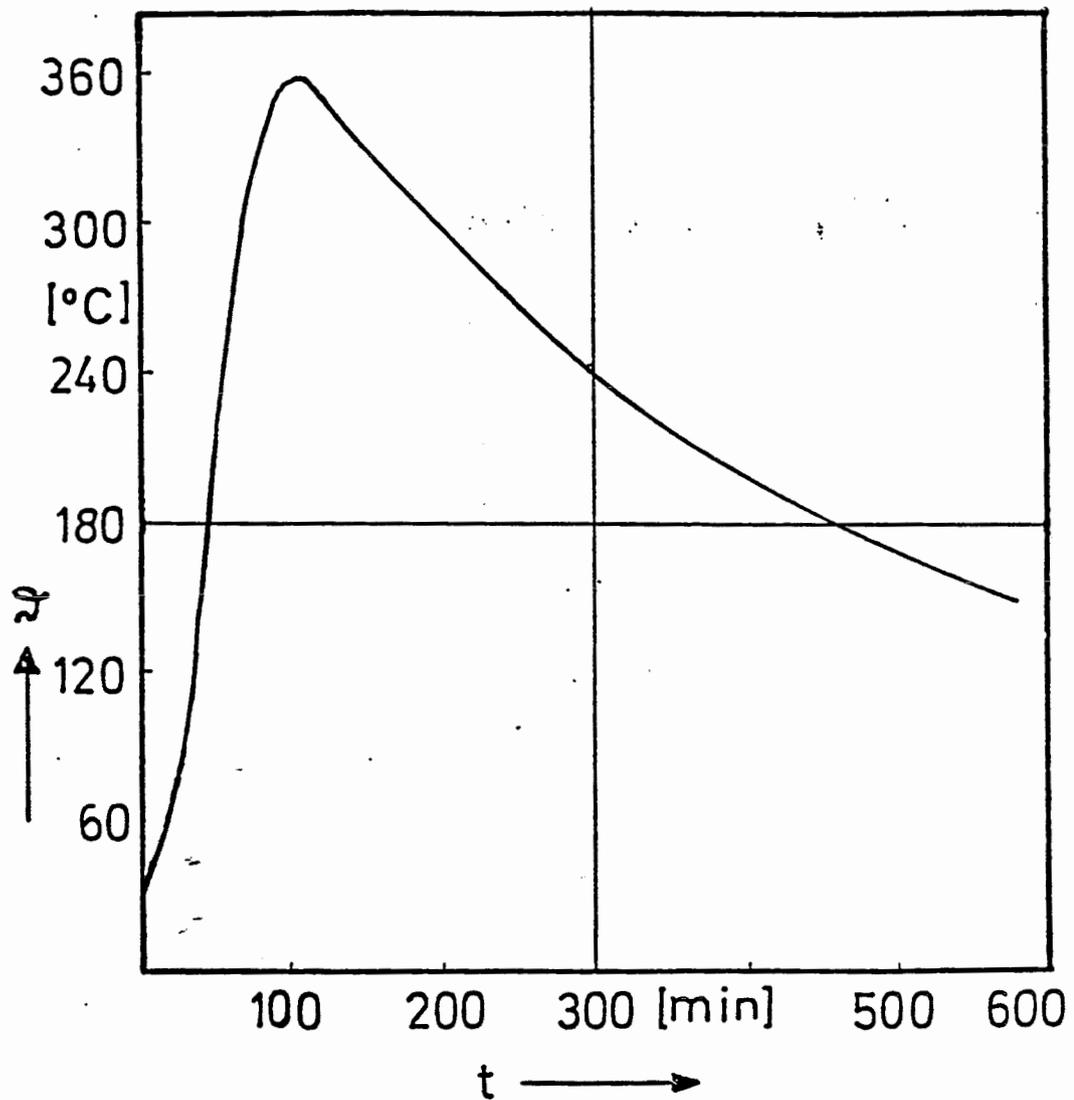


Bild 3:

Mittlerer Verlauf der Wandinnentemperatur

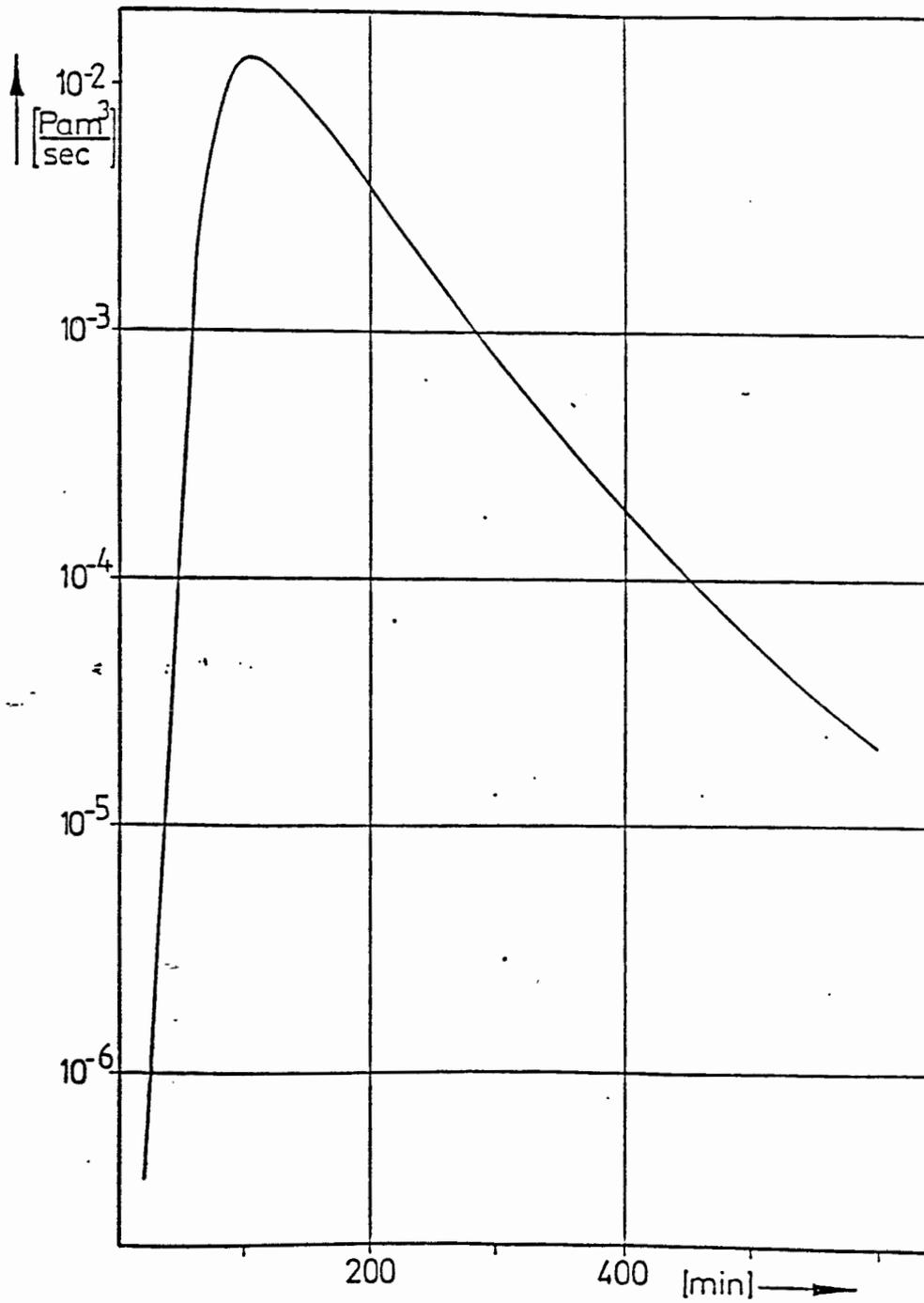


Bild 4:

Zeitlicher Verlauf der Leckraten für Bitumen- und Kunststoffprodukte

Mit einer mittleren Leckrate (\bar{L}) in einem Zeitintervall ergibt sich folgende Leckage pro Zeitintervall:

$$F = \bar{L} \cdot \Delta t$$

F : Leckage pro Zeitintervall [Pa m³]

Unter Verwendung der allgemeinen Gasgleichung

$$pV = n R T$$

mit

p: Druck [Pa]

V: Volumen [m³]

n: Molzahl [mol]

R: universelle Gaskonstante [J mol⁻¹ K⁻¹]

T: absolute Temperatur [K]

und der Beziehung

$$F = pV$$

läßt sich die Leckage in eine Molzahl umrechnen:

$$n = \frac{F}{RT}$$

Die druckabhängige Molzahl der Behälteratmosphäre im Behälter beträgt:

$$n_B = \frac{p_B V_B}{RT}$$

n_B : druckabhängige Molzahl [mol]

p_B : Behälterinnendruck

V_B : Gasvolumen im Behälter

Bezieht man die Aktivität in der Behälteratmosphäre auf die druckabhängige Molzahl der Gasphase im Behälter, so ergibt sich aus dem ausgetragenen Molenstrom der emittierte Aktivitätsanteil.

$$A^* = \frac{F}{RT} \cdot A/n_B$$

$$= \frac{F}{p_B V_B} A$$

A^* : Ausgetragener Aktivitätsanteil

A : Aktivitätsanteil in Behälteratmosphäre

Durch Integration über alle Zeitschritte erhält man die gesamten ausgeströmten Molzahlen und die freigesetzten Aktivitätsanteile. Tabelle 10 zeigt als Ergebnis der Freisetzungsrechnungen die zeitlichen Verläufe der Freisetzunganteile der einzelnen Nuklidgruppen sowie die ausgeströmten Molzahlen. C 14 wird bei der Freisetzung in Abfallklasse II behandelt wie bei der Abfallklasse I: Für die Abfallproduktgruppen 01, 02, 03 und 04 wird C 14 als leichtflüchtig angenommen, das heißt, für C 14 gilt der gleiche Freisetzungsanteil wie für Halogene, und für die Abfallproduktgruppen 05 und 06, daß C 14 schwerflüchtig ist mit einem Freisetzungsverhalten wie sonstige Radionuklide, vergleiche Kapitel 3.5.

Der kleinste Wert der für die einzelnen Abfallproduktgruppen berechneten ausgeströmten Molzahlen beträgt 1,22 Mol für die Abfallproduktgruppen 02 und 03. Durch die Anforderungen an den Behälter wird die Molzahl des ausgeströmten Gases auf 1 Mol begrenzt. Hierdurch wird sichergestellt, daß die berechneten Werte in der Tabelle 10 nicht erreicht werden können.

In der Abfallklasse II wird auf eine abfallproduktgruppenspezifische Quelltermangabe verzichtet. Im Hinblick auf die Konservativität eines einzigen Satzes von Freisetzunganteilen für die betrachteten vier Nuklidgruppen wird für jede Nuklidgruppe der jeweils größte Freisetzungsanteil aus Tabelle 10 als relevanter Freisetzungsanteil herangezogen.

Im einzelnen ergeben sich folgende Werte:

- o Halogene

Der maximale Wert für Halogene (Spalte "FREIG.IOD NORMIERT") in Tabelle 10 errechnet sich für die Abfallproduktgruppe 05. Der dort aufgeführte Wert von 0,036 wird, aufgerundet auf 0,04, als relevanter Freisetzunganteil übernommen.

- o C 14

Für C 14 entspricht der relevante Freisetzunganteil dem Maximum aus den Ergebnissen der Spalte "FREIG.IOD NORMIERT" für die Abfallproduktgruppen 01, 02, 03 und 04 und der Spalte "AKTIVIT. NORMIERT" für die Abfallproduktgruppen 05 und 06. Dies ist der Wert von 5,56 E-3, aufgerundet 6 E-3, bei der Abfallproduktgruppe 04 in Tabelle 10.

- o Tritium

Der Freisetzunganteil für Tritium ergibt sich aus der Spalte "FEUCHTE NORMIERT" in Tabelle 10. Der maximale Wert von 3,46 E-3, aufgerundet 4 E-3, ergibt sich für die Abfallproduktgruppe 04.

- o Sonstige Radionuklide

Der maximale Freisetzunganteil ergibt sich aus der Spalte "AKTIVIT. NORMIERT" für die Abfallproduktgruppe 04. Der dort aufgeführte Wert von 2,23 E-5 korrespondiert mit einer Gasleckage von 1,86 Mol. Da die Gasleckage durch die Anforderungen an die Abfallklasse 1 auf 1 Mol begrenzt ist, liegt man bei Abrundung des berechneten Wertes von 2 E-5 noch auf der sicheren Seite.

Tabelle 10: Molzahlen, die infolge thermischer Belastung ausströmen

ABFALLPRODUKTGRUPPE 01 (BIT.-U.KST.PROD.)

ZEIT MIN	PROD.TEMP CEL	AKTIVIT. NORMIERT	FEUCHTE NORMIERT	FREIG.IOD NORMIERT	LECKAGE MOL
2.00E+01	5.03E+01	6.52E-09	2.88E-10	1.63E-06	1.52E-05
4.00E+01	1.40E+02	8.28E-08	7.18E-08	2.07E-05	6.08E-04
6.00E+01	2.52E+02	7.18E-07	6.48E-06	1.79E-04	3.29E-02
8.00E+01	3.32E+02	2.24E-06	6.51E-05	5.59E-04	2.35E-01
1.00E+02	3.55E+02	3.98E-06	1.74E-04	9.96E-04	5.29E-01
1.20E+02	3.52E+02	5.73E-06	2.76E-04	1.43E-03	8.21E-01
1.40E+02	3.40E+02	7.36E-06	3.47E-04	1.84E-03	1.07E+00
1.60E+02	3.28E+02	8.85E-06	4.01E-04	2.21E-03	1.29E+00
1.80E+02	3.12E+02	1.01E-05	4.37E-04	2.53E-03	1.46E+00
2.00E+02	2.99E+02	1.13E-05	4.60E-04	2.81E-03	1.60E+00
2.20E+02	2.87E+02	1.22E-05	4.78E-04	3.06E-03	1.71E+00
2.40E+02	2.73E+02	1.31E-05	4.90E-04	3.27E-03	1.81E+00
2.60E+02	2.62E+02	1.38E-05	4.99E-04	3.45E-03	1.88E+00
2.80E+02	2.51E+02	1.45E-05	5.05E-04	3.61E-03	1.95E+00
3.00E+02	2.40E+02	1.50E-05	5.10E-04	3.74E-03	2.02E+00
3.20E+02	2.31E+02	1.55E-05	5.13E-04	3.86E-03	2.07E+00
3.40E+02	2.22E+02	1.59E-05	5.16E-04	3.97E-03	2.12E+00
3.60E+02	2.15E+02	1.63E-05	5.17E-04	4.06E-03	2.16E+00
3.80E+02	2.05E+02	1.66E-05	5.19E-04	4.14E-03	2.22E+00
4.00E+02	1.97E+02	1.68E-05	5.20E-04	4.20E-03	2.26E+00
4.20E+02	1.90E+02	1.71E-05	5.21E-04	4.27E-03	2.30E+00
4.40E+02	1.85E+02	1.73E-05	5.21E-04	4.32E-03	2.33E+00
4.60E+02	1.78E+02	1.75E-05	5.22E-04	4.37E-03	2.37E+00
4.80E+02	1.73E+02	1.77E-05	5.22E-04	4.41E-03	2.40E+00
5.00E+02	1.68E+02	1.78E-05	5.22E-04	4.45E-03	2.43E+00
5.20E+02	1.62E+02	1.80E-05	5.23E-04	4.49E-03	2.46E+00
5.40E+02	1.59E+02	1.81E-05	5.23E-04	4.52E-03	2.48E+00
5.60E+02	1.54E+02	1.82E-05	5.23E-04	4.55E-03	2.51E+00
5.80E+02	1.49E+02	1.83E-05	5.23E-04	4.58E-03	2.54E+00
6.00E+02	1.44E+02	1.84E-05	5.23E-04	4.60E-03	2.57E+00

Tabelle 10: Fortsetzung

ABFALLPRODUKTGRUPPE 02/03 (FESTST./MET)

ZEIT MIN	PROD.TEMP CEL	AKTIVIT. NORMIERT	FEUCHTE NORMIERT	FREIG.IOD NORMIERT	LECKAGE MOL
2.00E+01	4.95E+01	6.33E-09	2.81E-09	1.58E-06	1.47E-05
4.00E+01	1.39E+02	8.14E-08	7.23E-07	2.03E-05	5.95E-04
6.00E+01	2.51E+02	7.07E-07	6.57E-05	1.77E-04	3.24E-02
8.00E+01	3.32E+02	1.77E-06	3.31E-04	4.42E-04	1.26E-01
1.00E+02	3.54E+02	2.73E-06	5.71E-04	6.82E-04	2.10E-01
1.20E+02	3.49E+02	3.70E-06	8.15E-04	9.26E-04	3.02E-01
1.40E+02	3.40E+02	4.74E-06	1.07E-03	1.18E-03	4.02E-01
1.60E+02	3.28E+02	5.81E-06	1.34E-03	1.45E-03	5.08E-01
1.80E+02	3.12E+02	6.91E-06	1.61E-03	1.73E-03	6.24E-01
2.00E+02	2.98E+02	8.02E-06	1.85E-03	2.00E-03	7.39E-01
2.20E+02	2.87E+02	9.01E-06	2.04E-03	2.25E-03	8.33E-01
2.40E+02	2.73E+02	9.85E-06	2.16E-03	2.46E-03	9.10E-01
2.60E+02	2.62E+02	1.06E-05	2.25E-03	2.64E-03	9.70E-01
2.80E+02	2.51E+02	1.12E-05	2.32E-03	2.80E-03	1.02E+00
3.00E+02	2.40E+02	1.18E-05	2.37E-03	2.94E-03	1.07E+00
3.20E+02	2.31E+02	1.22E-05	2.40E-03	3.06E-03	1.10E+00
3.40E+02	2.22E+02	1.27E-05	2.43E-03	3.16E-03	1.14E+00
3.60E+02	2.15E+02	1.30E-05	2.45E-03	3.25E-03	1.16E+00
3.80E+02	2.05E+02	1.33E-05	2.46E-03	3.33E-03	1.19E+00
4.00E+02	1.97E+02	1.36E-05	2.47E-03	3.40E-03	1.22E+00
4.20E+02	1.90E+02	1.39E-05	2.48E-03	3.46E-03	1.24E+00
4.40E+02	1.85E+02	1.41E-05	2.48E-03	3.52E-03	1.26E+00
4.60E+02	1.78E+02	1.43E-05	2.49E-03	3.56E-03	1.28E+00
4.80E+02	1.73E+02	1.45E-05	2.49E-03	3.61E-03	1.30E+00
5.00E+02	1.68E+02	1.46E-05	2.50E-03	3.65E-03	1.32E+00
5.20E+02	1.62E+02	1.48E-05	2.50E-03	3.68E-03	1.34E+00
5.40E+02	1.59E+02	1.49E-05	2.50E-03	3.71E-03	1.35E+00
5.60E+02	1.54E+02	1.50E-05	2.50E-03	3.74E-03	1.36E+00
5.80E+02	1.49E+02	1.51E-05	2.50E-03	3.77E-03	1.38E+00
6.00E+02	1.44E+02	1.52E-05	2.50E-03	3.79E-03	1.40E+00

Tabelle 10: Fortsetzung

ABFALLPRODUKTGRUPPE 04 (PRESSLINGE)

ZEIT MIN	PROD.TEMP CEL	AKTIVIT. NORMIERT	FEUCHTE NORMIERT	FREIG.IOD NORMIERT	LECKAGE MOL
2.00E+01	4.95E+01	8.44E-09	2.81E-09	2.11E-06	1.47E-05
4.00E+01	1.39E+02	1.08E-07	7.23E-07	2.71E-05	5.95E-04
6.00E+01	2.51E+02	9.43E-07	6.57E-05	2.36E-04	3.24E-02
8.00E+01	3.32E+02	2.73E-06	5.07E-04	6.83E-04	1.84E-01
1.00E+02	3.54E+02	4.35E-06	9.11E-04	1.09E-03	3.18E-01
1.20E+02	3.49E+02	5.99E-06	1.32E-03	1.50E-03	4.66E-01
1.40E+02	3.40E+02	7.73E-06	1.76E-03	1.93E-03	6.25E-01
1.60E+02	3.28E+02	9.53E-06	2.20E-03	2.38E-03	7.95E-01
1.80E+02	3.12E+02	1.13E-05	2.57E-03	2.81E-03	9.55E-01
2.00E+02	2.98E+02	1.27E-05	2.81E-03	3.18E-03	1.08E+00
2.20E+02	2.87E+02	1.41E-05	3.00E-03	3.51E-03	1.18E+00
2.40E+02	2.73E+02	1.52E-05	3.12E-03	3.79E-03	1.26E+00
2.60E+02	2.62E+02	1.62E-05	3.21E-03	4.03E-03	1.33E+00
2.80E+02	2.51E+02	1.70E-05	3.28E-03	4.24E-03	1.39E+00
3.00E+02	2.40E+02	1.77E-05	3.33E-03	4.42E-03	1.44E+00
3.20E+02	2.31E+02	1.84E-05	3.36E-03	4.58E-03	1.49E+00
3.40E+02	2.22E+02	1.89E-05	3.39E-03	4.72E-03	1.53E+00
3.60E+02	2.15E+02	1.94E-05	3.41E-03	4.84E-03	1.56E+00
3.80E+02	2.05E+02	1.98E-05	3.42E-03	4.95E-03	1.60E+00
4.00E+02	1.97E+02	2.02E-05	3.43E-03	5.04E-03	1.63E+00
4.20E+02	1.90E+02	2.05E-05	3.44E-03	5.12E-03	1.66E+00
4.40E+02	1.85E+02	2.08E-05	3.44E-03	5.19E-03	1.68E+00
4.60E+02	1.78E+02	2.11E-05	3.45E-03	5.26E-03	1.71E+00
4.80E+02	1.73E+02	2.13E-05	3.45E-03	5.31E-03	1.73E+00
5.00E+02	1.68E+02	2.15E-05	3.46E-03	5.37E-03	1.76E+00
5.20E+02	1.62E+02	2.17E-05	3.46E-03	5.41E-03	1.78E+00
5.40E+02	1.59E+02	2.19E-05	3.46E-03	5.46E-03	1.79E+00
5.60E+02	1.54E+02	2.20E-05	3.46E-03	5.50E-03	1.82E+00
5.80E+02	1.49E+02	2.22E-05	3.46E-03	5.53E-03	1.84E+00
6.00E+02	1.44E+02	2.23E-05	3.46E-03	5.56E-03	1.86E+00

Tabelle 10: Fortsetzung

ABFALLPRODUKTGRUPPE 05 (ZEMENTPRODUKTE)

ZEIT MIN	PROD.TEMP CEL	AKTIVIT. NORMIERT	FEUCHTE NORMIERT	FREIG.100 NORMIERT	LECKAGE MOL
2.00E+01	4.92E+01	5.48E-13	1.10E-10	1.25E-05	1.45E-05
4.00E+01	1.39E+02	1.44E-10	2.87E-08	1.62E-04	5.93E-04
6.00E+01	2.51E+02	1.31E-08	2.62E-06	1.41E-03	3.24E-02
8.00E+01	3.32E+02	1.34E-07	2.69E-05	4.44E-03	2.34E-01
1.00E+02	3.54E+02	3.57E-07	7.14E-05	7.92E-03	5.24E-01
1.20E+02	3.49E+02	5.41E-07	1.08E-04	1.11E-02	8.05E-01
1.40E+02	3.40E+02	6.89E-07	1.38E-04	1.43E-02	1.05E+00
1.60E+02	3.28E+02	8.01E-07	1.60E-04	1.73E-02	1.27E+00
1.80E+02	3.12E+02	8.75E-07	1.75E-04	1.98E-02	1.44E+00
2.00E+02	2.98E+02	9.24E-07	1.85E-04	2.20E-02	1.57E+00
2.20E+02	2.87E+02	9.61E-07	1.92E-04	2.39E-02	1.68E+00
2.40E+02	2.73E+02	9.87E-07	1.97E-04	2.56E-02	1.78E+00
2.60E+02	2.62E+02	1.00E-06	2.01E-04	2.70E-02	1.86E+00
2.80E+02	2.51E+02	1.02E-06	2.04E-04	2.82E-02	1.93E+00
3.00E+02	2.40E+02	1.03E-06	2.05E-04	2.93E-02	2.00E+00
3.20E+02	2.31E+02	1.03E-06	2.07E-04	3.02E-02	2.05E+00
3.40E+02	2.22E+02	1.04E-06	2.08E-04	3.10E-02	2.10E+00
3.60E+02	2.15E+02	1.04E-06	2.09E-04	3.17E-02	2.14E+00
3.80E+02	2.05E+02	1.05E-06	2.09E-04	3.24E-02	2.19E+00
4.00E+02	1.97E+02	1.05E-06	2.10E-04	3.29E-02	2.24E+00
4.20E+02	1.90E+02	1.05E-06	2.10E-04	3.34E-02	2.27E+00
4.40E+02	1.85E+02	1.05E-06	2.10E-04	3.38E-02	2.30E+00
4.60E+02	1.78E+02	1.05E-06	2.10E-04	3.42E-02	2.34E+00
4.80E+02	1.73E+02	1.05E-06	2.10E-04	3.45E-02	2.37E+00
5.00E+02	1.68E+02	1.05E-06	2.11E-04	3.48E-02	2.40E+00
5.20E+02	1.62E+02	1.05E-06	2.11E-04	3.51E-02	2.43E+00
5.40E+02	1.59E+02	1.05E-06	2.11E-04	3.53E-02	2.45E+00
5.60E+02	1.54E+02	1.05E-06	2.11E-04	3.56E-02	2.48E+00
5.80E+02	1.49E+02	1.05E-06	2.11E-04	3.58E-02	2.51E+00
6.00E+02	1.44E+02	1.05E-06	2.11E-04	3.60E-02	2.54E+00

Tabelle 10: Fortsetzung

ABFALLPRODUKTGRUPPE 06 (KONZENTRATE)

ZEIT MIN	PROD.TEMP CEL	AKTIVIT. NORMIERT	FEUCHTE NORMIERT	FREIG.IOD NORMIERT	LECKAGE MOL
2.00E+01	4.82E+01	2.51E-13	5.02E-11	1.20E-05	1.39E-05
4.00E+01	1.38E+02	6.86E-11	1.37E-08	1.58E-04	5.75E-04
6.00E+01	2.50E+02	6.30E-09	1.26E-06	1.38E-03	3.15E-02
8.00E+01	3.31E+02	6.62E-08	1.32E-05	4.40E-03	2.31E-01
1.00E+02	3.54E+02	1.76E-07	3.52E-05	7.87E-03	5.19E-01
1.20E+02	3.49E+02	2.67E-07	5.34E-05	1.10E-02	7.98E-01
1.40E+02	3.40E+02	3.41E-07	6.82E-05	1.43E-02	1.05E+00
1.60E+02	3.28E+02	3.97E-07	7.94E-05	1.72E-02	1.26E+00
1.80E+02	3.12E+02	4.34E-07	8.68E-05	1.98E-02	1.43E+00
2.00E+02	2.98E+02	4.58E-07	9.17E-05	2.19E-02	1.57E+00
2.20E+02	2.87E+02	4.77E-07	9.54E-05	2.39E-02	1.68E+00
2.40E+02	2.73E+02	4.90E-07	9.79E-05	2.55E-02	1.77E+00
2.60E+02	2.62E+02	4.99E-07	9.97E-05	2.69E-02	1.85E+00
2.80E+02	2.51E+02	5.05E-07	1.01E-04	2.82E-02	1.92E+00
3.00E+02	2.40E+02	5.10E-07	1.02E-04	2.92E-02	1.99E+00
3.20E+02	2.31E+02	5.13E-07	1.03E-04	3.02E-02	2.04E+00
3.40E+02	2.22E+02	5.16E-07	1.03E-04	3.10E-02	2.09E+00
3.60E+02	2.15E+02	5.18E-07	1.04E-04	3.17E-02	2.13E+00
3.80E+02	2.05E+02	5.19E-07	1.04E-04	3.23E-02	2.18E+00
4.00E+02	1.97E+02	5.20E-07	1.04E-04	3.28E-02	2.23E+00
4.20E+02	1.90E+02	5.21E-07	1.04E-04	3.33E-02	2.26E+00
4.40E+02	1.85E+02	5.22E-07	1.04E-04	3.37E-02	2.29E+00
4.60E+02	1.78E+02	5.22E-07	1.04E-04	3.41E-02	2.33E+00
4.80E+02	1.73E+02	5.22E-07	1.04E-04	3.44E-02	2.36E+00
5.00E+02	1.68E+02	5.23E-07	1.05E-04	3.48E-02	2.39E+00
5.20E+02	1.62E+02	5.23E-07	1.05E-04	3.50E-02	2.42E+00
5.40E+02	1.59E+02	5.23E-07	1.05E-04	3.53E-02	2.44E+00
5.60E+02	1.54E+02	5.23E-07	1.05E-04	3.55E-02	2.47E+00
5.80E+02	1.49E+02	5.24E-07	1.05E-04	3.57E-02	2.50E+00
6.00E+02	1.44E+02	5.24E-07	1.05E-04	3.59E-02	2.53E+00

5.3 Wertung

Das geschilderte Verfahren zur Quelltermbestimmung bei Behältern der Abfallklasse II dient dazu, rechnerisch mit vertretbarem Aufwand die Barrierewirkung von Behältern der Abfallklasse II zu quantifizieren, hieraus Anforderungen abzuleiten und entsprechende Freisetzungsanteile zu bestimmen.

In Ermangelung anderer geeigneter Modelle mußte hierzu ein Modell entwickelt werden, bei dem im Hinblick auf ein konservatives Ergebnis als Eingangsgröße ein abdeckender Druckverlauf benötigt wird. Dies wird durch die Wahl eines Wärmeübergangsgesetzes sichergestellt, welches alle Mechanismen des Wärmeübergangs auf die Abfallform abdeckt.

Bei dem gewählten Modell sind im Hinblick auf eingeflossene Konservatismen die in Tabelle 10 zusammengestellten Parameter zu diskutieren:

- o Der Startwert der Rechnungen, die Anfangsleckage, liegt erheblich über der durch Anforderungen festgelegten Leckrate. Entsprechend geringer fällt beim realen Störfall die Leckrate aus.
- o Von allen berechneten ausgetretenen Molenströmen der Behälteratmosphäre wird der kleinste Wert der Begrenzung der Leckage als Anforderung zugrunde gelegt.
- o Von allen berechneten Freisetzungsanteilen werden die restriktivsten Werte der jeweiligen Nuklidgruppen als Freisetzungsanteil für alle Abfallproduktgruppen herangezogen.
- o Feuertests an maßstäblichen Behältern /TN 85/, /GNS 85/ verdeutlichen das Ausmaß des Konservatismus bei dem gewählten Wärmeübertragungsmodell: der maximale Druck während der Tests lag unter 4 bar, wohingegen rechnerische Werte über 100 bar resultieren.

5.4 Einfluß des Wärmeleitwiderstandes

Abfallgebinde mit einem Wärmeleitwiderstand (Schichtdicke \cdot reziproker Wärmeleitfähigkeit) der Behälterwandung $> 0,1 \text{ m}^2 \text{ K/W}$ unterschreiten im thermischen Lastfall Innenwandtemperaturen von 353 K. Damit bleibt der Überdruck im Abfallgebinde unter 0,3 bar.

Abfallgebinde mit einem spezifizierten Wärmeleitwiderstand $> 0,1 \text{ m}^2 \text{ K/W}$ können allgemein dann als Behältnisse für Abfallgebinde der Abfallklasse II verwendet werden, wenn das Abfallprodukt mit Bitumen fixiert ist. Diese Abfallbehandlung erfolgt bei erheblich höheren Temperaturen als der Innenwandtemperatur von 353 K, so daß sichergestellt ist, daß keine bei dieser Temperatur flüchtigen Radionuklide mehr im Abfallprodukt sind.

Der geforderte Wärmeleitwiderstand stellt sicher, daß Zündpunkte und zur Pyrolyse notwendige Temperaturen im Abfallprodukt nicht erreicht werden; Freisetzung durch Verbrennen und Pyrolyse im Abfallprodukt ist also ausgeschlossen. Weiterhin kommt es durch die niedrige Produkttemperatur zu keiner Verdampfung von Wasser, so daß auch die Freisetzung durch Verdampfen von Wasser im Abfallprodukt ausgeschlossen ist. Da auch, wie oben bereits ausgeführt, aufgrund der hohen Konditionierungstemperatur die Freisetzung durch Verdampfen bzw. Sublimation radioaktiver Stoffe nicht relevant ist, wird für Abfallgebinde mit einem Wärmeleitwiderstand $> 0,1 \text{ m}^2 \cdot \text{K/W}$ und einem bitumenfixierten Abfallprodukt keine Freisetzung unterstellt.

6. ZUSAMMENFASSUNG

Im vorliegenden Anhang ist die Vorgehensweise bei der Quelltermbestimmung für thermische Lastfälle beschrieben.

Zunächst werden relevante Freisetzungsmechanismen beschrieben und es wird angegeben, wie diese quantifiziert werden. Dann werden den im Hauptband definierten 6 Abfallproduktgruppen die relevanten Freisetzungsmechanismen zugeordnet.

Für die Abfallproduktgruppen wird dann die Vorgehensweise bei der Quelltermbestimmung für die Abfallklassen I und II detailliert beschrieben, wobei auf die Ergebnisdarstellung des Hauptteils Bezug genommen wird.

7. LITERATUR

- /ANS 77/ ANSI
American National Standard for Leakage Test an Packages
for Shipment of Radioactive Materials
American National Standards Institute, N14.5, 1977
- /CUB 78/ Cubicciotti, D. und Sanecki, J.E.
Characterization of Deposits on inside Surfaces of LWR-
cladding
Journal of Nuclear Material 78 (1978), 96 ... 111
- /DAN 67/ D'ANS.LAX
Taschenbuch für Chemiker und Physiker
Band 1
Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1967
- /GAS 79/ Gasteiger, R.:
Abbrandrechnungen für LWR-Brennstoff als Datenbasis zur
Auslegung von Wiederaufarbeitungsanlagen
Bericht des Kernforschungszentrum Karlsruhe KfK 2373
(Juli 1979)
- /GGA 69/ Gulf General Atomic
TAC 2D; A General Purpose Two-Dimensional Heat Transfer
Computer Code
Gulf General Atomic Project 317.1801
- /GNS 85/ Gesellschaft für Nuklear-Service mbH
Brandversuch an verschiedenen Abfallgebinden GNS B 58/84,
Rev. O, Jan. 85
- /GRÖ 63/ Gröbner-Erk-Grigull:
Wärmeübertragung
Springer-Verlag, 3. Auflage 1963

- /GRÜ 86/ Gründler, Detlef, et al.
Systemanalyse KONRAD, Teil 3
Beschreibung und Quantifizierung von Kenngrößen und Ableitung zweckmäßiger Maßnahmen zur Produktkontrolle
GRS-A-1313, Dezember 1986
- /GRÜ 87/ Gründler, Detlef; Peiffer, Frank
Temperaturfelder in ausgewählten Konrad-Abfallbinden
TAC2D-Output, Februar 1987
- /ICT 75/ Institut für Chemie der Treib- und Explosivstoffe der
Fraunhofer Gesellschaft
Untersuchungen über die Thermische Beständigkeit von mit
Polystyrol verfestigten Ionenaustauschern (Zwischenbericht)
V-Bericht 5/75, Pferztal-Berghausen, Oktober 1975
- /KWU 83/ Kraftwerk Union
VDEW-Auftrag: Konzentratuntersuchungen, Bestimmung der
J 129-Aktivitätskonzentration
Arbeitsbericht R 451/83/139
- /KWU 84a/ Kraftwerk Union
Radiochemische Messungen zur Bestimmung von Sondernukliden
in nuklearen Kreisläufen von DWR-Anlagen
- Ergebnisse der zweiten Meßreihe -
Selbständige Datenzusammenstellung
R 451/84/167
- /KWU 84b/ Kraftwerk Union
Radiochemische Messungen zur Bestimmung von Sondernukliden
in nuklearen Kreisläufen von DWR-Anlagen
- Ergebnisse der ersten Meßreihe -
- /LAN 60/ Landolt-Börnstein
Beitrag Schäfer
6. Auflage, Band 11/2a
Springer Verlag, 1960

- /LIN 69/ Linke, W.
Grundlagen der Wärmeübertragung
Lehrstuhl für Wärmeübertragung und Klimatechnik der RWTH
Aachen, Aachen 1969
- /MIS 68a/ J. Mishima, L.C. Schwendiman, C.A. Radasch
"Plutonium release studies IV. Fractional release from
heating plutonium nitrate solutions in a flowing air
stream."
BNWL-931 (1968)
- /MIS 68b/ J. Mishima, L.C. Schwendiman, C.A. Radasch
"Airborne release of particles in overheating incidents
involving plutonium metal and compounds."
BNWL-SA-1735 (1968); CONF-680811-1
- /MIS 70/ J. Mishima, et al
The amount and characteristics of Plutonium made air-
borne under thermal stresses
BNWL-SA-3379 (1970); Proc. Symp. Health
Physics Soc. Idaho Falls, Idaho, Nov. 3-6 (1979)
- /MIS 73/ J. Mishima, L.C. Schwendiman
Interim Report: The Fractional Airborne Release of Dis-
solved Radioactive Materials During the Combustion of
30 Percent Normal Tributyl Phosphate in a Kerosine Typ
Diluent
BNWL-B-274, June 1973
- /MIS 73a/ J. Mishima, L.C. Schwendiman
Some experimental measurements of airborne uranium (re-
presenting plutonium) in transportation accidents
BNWL-1732 (1973)
- /MIS 73b/ J. Mishima, L.C. Schwendiman
Fractional airborne release of uranium (representing
plutonium) during the burning of contaminated wastes
BNWL-1730 (1973)

- /MIS 74/ J. Mishima
 Fractional airborne release of plutonium under shipping accident conditions
 Proc. Int. Symp. on Packaging and Transportation of Radioactive Materials, Sept. 22-27, Miami Beach, Florida (1974) 1148-61; [CONF-740901-P3]
- /NEE 72/ Neeb, K.H., Grämer, G., Riess, R.
 Untersuchungen von Ablagerungen auf Brennelementen der ersten Wechselmenge KWO
 Tagungsbericht der Reaktortagung des DATF, Hamburg (1972) S.225-228
- /NUK 84/ NUKEM GmbH
 Neue Ergebnisse zur Freisetzung aus radioaktiven Abfällen bei mechanischer und thermischer Belastung
 Anhang zu FuE 84010, Hanau, 1984
- /PIE 84/ XXXXXXXXXX
 Rechnungen zur Aufheizung verschiedener Abfallgebinde durch Feuereinwirkungen
 Bericht im Auftrag der PTB, Braunschweig, September 1984
- /PTB 84/ Physikalisch-Technische Bundesanstalt
 Abmessungen standardisierter Behältertypen
 Braunschweig, 25.04.1984
- /RÄM 79a/ Rämö, E.
 Effect to Fire on Solidified Reactor Waste Packaged into Steel Drums
 NKA-Report AO (79) 18, 1979
- /RÄM 79b/ Rämö, E., et al
 Damage of Reactor Waste Packages in Transport Accidents
 NKA, AO (79) 17, 1979

- /SAN 83/ SANDIA
Analysis, Scale Modeling and Full-Scale Tests
of Low-Level Nuclear Waste Drum Responseto
Accident Environments
SAND 80-2517, TTC 0315, Sandia National Laboratories,
January 1983
- /SCU 72/ Schuck, V., Henzel, N.
Korrosionsproduktablagerungen auf SWR-Brennstäben, Meß-
technik und bisherige Ergebnisse
Tagungsbericht der Reaktortagung des ADtF, Hamburg
(1972) S. 229-232
- /SEE 82/ Seehars, H. D., Hochrainer, D.
Durchführung von Experimenten zur Unterstützung der An-
nahmen zur Freisetzung von Plutonium bei einem Flugzeug-
sturz
Zusatzbericht über Experimente....zur Freisetzung...
während eines Kerosinbrandes
BMI-Auftrag SR 0205 A
FhG ITA, Grafschaft, 1982
- /SUT 74/ S. L. Sutter, J. Mishima, L. C. Schwendiman
Fractional Airborne Release of Strontium During the Com-
bustion of 30 Percent Normal Tributyl Phosphate in a
Kerosin Type Diluent
BNWL-B-358, June 1974
- /TN 85/ TRANSNUKLEAR GMBH
Brandlastversuch mit dem Transport- und Lagerbehälter
SAB/G-500 I
TN, Hanau, Feb. 1985
- /VDI 77/ VDI
VDI-Wärmeatlas
VDI-Verlag GmbH, Düsseldorf 1977

- /VDI 84/ VDI
VDI-Wärmeatlas
VDI-Verlag GmbH, Düsseldorf 1984
- /VEJ 82/ Vejmelka, P., et al
Endlagerspezifische Charakterisierung der für eine End-
lagerung in der Grube "Konrad" zu betrachtenden Abfall-
produkte
KfK-Primärbericht 05.11.0.3 P01A, Karlsruhe, Februar 1982
- /VEJ 83/ Vejmelka, P., et al
Activity Release from Waste Packages Containing ILCW-
Cemented Waste Forms Under Mechanical and Thermal Stres-
ses
CEC-Seminar: Testing, Evaluation and Shallow Land Burial
of Low and Medium Radioactive Waste Forms
Geel, Belgium, 28-29 September, 1983
- /WIC 85/ Wichner, R.P. und Spence, R.D.
A Chemical Equilibrium estimate of the Aerosols Produced
in an Overheated Light Water Reactor Core
Nuclear Technology, Vol. 70, Sep. 1985, S. 376 ff

ANHANG II

Quelltermbestimmung mechanischer
Lastfall

INHALT

1. EINLEITUNG
2. BESTIMMUNG DES FREISETZBAREN ANTEILS VON PARTIKELSYSTEMEN
 - 2.1 Grundlagen zur Bildung von Partikelsystemen
 - 2.1.1 Theoretische Grundlagen von Zerkleinerungsprozessen
 - 2.1.2 Verteilungsfunktionen von Partikelspektren
 - 2.1.3 Experimentelle Untersuchungen
 - 2.1.4 Berechnung von Zerkleinerungsvorgängen
 - 2.2 Dispergierbare Partikelsysteme
3. BESTIMMUNG DES DISPERGIERTEN ANTEILS VON PARTIKELSYSTEMEN
4. VORGEHENSWEISEN UND ARBEITSHYPOTHESEN ZUR QUELLTERMBESTIMMUNG BEI ABFALLKLASSE I
5. FREISETZUNG AUS BEHÄLTERN DER ABFALLKLASSE II
6. ZUSAMMENFASSUNG
7. LITERATUR

1. EINLEITUNG

Im vorliegenden Anhang wird beschrieben, wie bei der Quelltermbestimmung im Falle der mechanischen Beaufschlagung vorgegangen wird. Hierbei ergeben sich die folgenden vier Schwerpunkte:

- Grundlagen zur Bildung von Partikelspektren infolge mechanischer Beaufschlagung fester Körper und zur Beschreibung von Partikelsystemen.
- Bestimmung des infolge mechanischer Beaufschlagung in die Luft freigesetzten Aktivitätsanteils.
- Arbeitshypothesen zur Abschätzung der freigesetzten Aktivität aus Behältern der Abfallklasse I für die unterschiedlichen Produktgruppen.
- Modell zur Abschätzung der freigesetzten Aktivität aus Behältern der Abfallklasse II.

Entsprechend diesen inhaltlichen Schwerpunkten ist der Anhang gegliedert. Die drei ersten Themenkomplexe sind unabhängig vom vierten und beschreiben die Freisetzung bei der Abfallklasse I.

2. BESTIMMUNG DES FREISETZBAREN ANTEILS VON PARTIKELSYSTEMEN

2.1 Grundlagen zur Bildung von Partikelsystemen

Im folgenden soll die Vorgehensweise zur Berechnung von Partikelsystem infolge der Zerkleinerung fester Körper beschrieben werden.

Hierzu werden zunächst die theoretischen Grundlagen von Zerkleinerungsprozessen und Verteilungsfunktionen von Partikelsystemen beschrieben und dann wird auf durchgeführte experimentelle Untersuchungen eingegangen.

Aus beiden - Theorie und Experiment - wird ein halbempirischer Ansatz abgeleitet, mit dem sich Partikelsysteme in Abhängigkeit der Beaufschlagungsenergie und produktspezifischer Parameter bestimmen lassen.

2.1.1 Theoretische Grundlagen von Zerkleinerungsprozessen

Die theoretischen Grundlagen von Zerkleinerungsprozessen gehen auf die sogenannten Zerkleinerungsgesetze von [REDACTED] (1867) und [REDACTED] (1885) zurück. Hierin wird der Zusammenhang zwischen Bruchenergie und neugebildeter Bruchoberfläche hergeleitet. Die Beziehungen beruhen jedoch auf so idealisierten Annahmen, daß ihr Aussagewert sehr begrenzt ist.

Auch aus heutiger Sicht stellt sich der Bruchvorgang als energetisches Problem dar, bei dem zur Erzeugung neuer Grenzflächen Energie notwendig ist /RUM 72/. Der Quotient aus diesen neuen Grenzflächen und der zur Erzeugung aufgewendeten Energie wird als spezifische Bruchflächenenergie bezeichnet. Messungen ergaben hierfür Werte von 10^{-4} bis 10^{-3} J/cm² für Gläser, 10^{-3} bis 10^{-1} J/cm² für Kunststoffe und 10^{-2} bis 10 J/cm² für Metalle. Die Bruchauslösung erfolgt in der Regel an Fehlstellen und Strukturstörungen durch Überschreiten kritischer Festigkeitswerte. Mit abnehmender Größe der entstandenen Bruchstücke verringert sich die spezifische Anzahl der Fehlstellen und damit gewinnt der Körper zunehmend plastische Eigenschaften. Hierdurch wird bei kleinen Partikeln ein erhöhter Anteil der mechanischen Energie zur plastischen Verformung verbraucht, so daß für die Erzeugung kleiner Teilchen überproportional zunehmend mehr Energie aufgewendet werden muß. Bild 1 verdeutlicht diesen Zusammenhang.

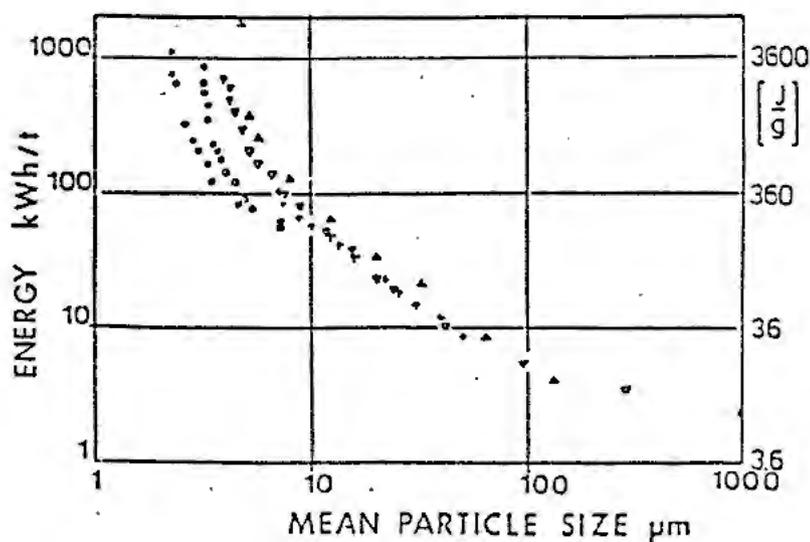


Bild 1:

Spezifische Energie zur Erzeugung kleiner Zement- und Kalkpartikel nach /Hei 76/

Für eine weitergehende Darstellung der Bruchphänomenologie mit den dazugehörigen Energiebedingungen sei auf die einschlägige Fachliteratur verwiesen, zum Beispiel /Bek 64/, /Ull 67/.

Im folgenden werden einige zerkleinerungstechnische Stoffeigenschaften zitiert, die quantitativ den Zusammenhang zwischen Beanspruchung und Zerkleinerungsgrad vermitteln.

Die folgenden Bilder sind so aufgeführt, daß sie keiner weiteren Erläuterung bedürfen. Für weitere Informationen wird auf die Quelle verwiesen /Rum 72/.

- Bruchwahrscheinlichkeit

Bild 2 verdeutlicht noch einmal den Sachverhalt, daß die Zerkleinerung kleiner Partikel mit einem höheren Energieumsatz verbunden ist als die von größeren Partikeln.

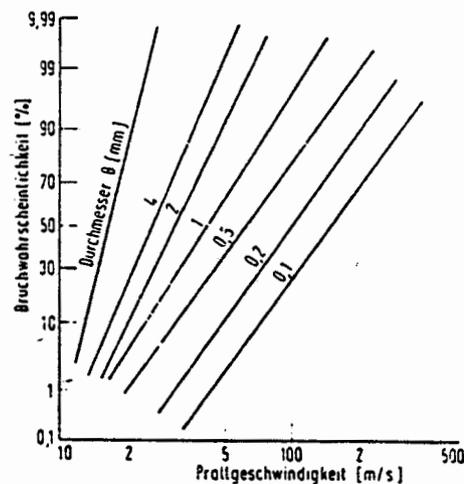


Bild 2:

Bruchwahrscheinlichkeit von
Glaskugeln bei einer Prall-
zerkleinerung
Parameter ist der Kugeldurch-
messer

- Dispersitätszustand nach der Zerkleinerung

Aus Bild 3 ist ersichtlich, daß zur Erzeugung eines nennenswerten Partikelanteils unter 100 µm Prallgeschwindigkeiten $v > 35$ m/s notwendig sind. Dies entspricht in etwa den beim Störfall auftretenden spezifischen Energien.

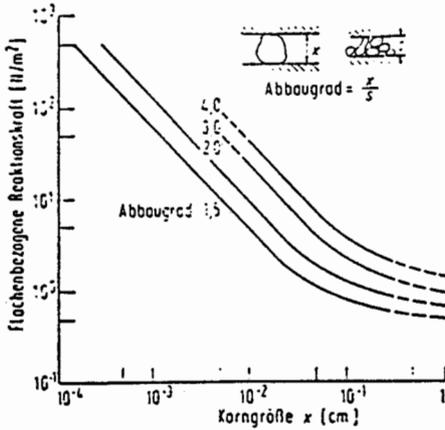


Bild 3:

Korngrößenverteilung nach einer Einzelkorn-Druckbeanspruchung (---) bzw. Einzelkorn-Prallbeanspruchung (—) von 0,11-cm-Kalksteinkörnern. Parameter sind Abbaugrad bzw. Prallgeschwindigkeit

- Oberflächenzunahme durch Zerkleinerungsarbeit

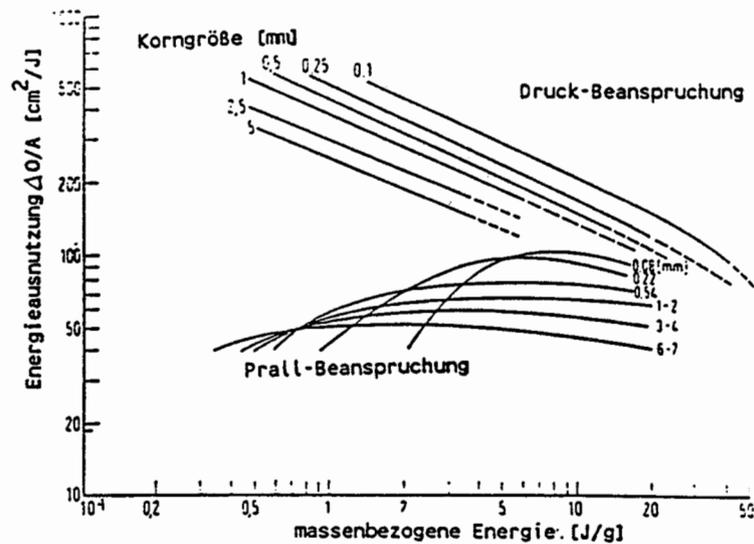


Bild 4:

Energieausnutzung der Einzelkornbeanspruchung von Kalkstein durch Druck bzw. Prall

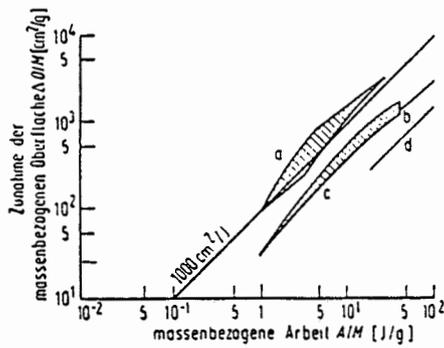


Bild 5:

Erzeugte massenbezogene Oberfläche bei der Zerkleinerung von Quarz als Funktion der massenbezogenen Zerkleinerungsarbeit
 a Einzelkorn-Druckbeanspruchung
 b Mahlbarkeitsprüfer
 c Einzelkorn-Prallbeanspruchung
 d Kugelmühlmahlung

In den Bildern 4 und 5 ist die Veränderung der Oberfläche als Funktion der spezifischen Energie dargestellt. Aus beiden Bildern geht der starke Einfluß der Beanspruchungsart hervor. Im Falle der mechanischen Einwirkung auf Abfallgebände ist von einer Kombination aus Druck, Prall und Reibung auszugehen.

2.2 Verteilungsfunktionen von Partikelspektren

Durch die Zerkleinerung fester Körper entsteht ein Kollektiv an Teilchen, welches bezüglich der Größe verteilt ist. Ehe auf die Verteilungsfunktionen selbst eingegangen wird, sollen zunächst einige charakteristische Größen erklärt werden, die für jede Partikelverteilung existieren. Hierbei müssen angelsächsische Terme übernommen werden, da sich die unterschiedlichen Bedeutungen der Vokabeln median, mean und average nur schwer ins Deutsche übertragen lassen.

- count mean diameter (\bar{d}) : arithmetischer Mittelwert
- count median diameter (d_g) : zentraler Wert, d.h. 50 % der Teilchen liegen unter und 50 % der Teilchen liegen über diesem Wert
- diameter of average area
oder
mean surface diameter (d_a) : Durchmesser, bei dem das Partikel den arithmetischen Mittelwert der Oberfläche hat
- diameter of average mass
oder
mean weight diameter (d_m) : Durchmesser, bei dem das Partikel den arithmetischen Mittelwert der Masse hat
- mass median diameter (d'_m) : Durchmesser, bei dem das Partikel den zentralen Wert der Masse hat

Verteilungsfunktionen im Zusammenhang mit Partikelspektren werden als Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen (differentielle Darstellung) oder als Summenhäufigkeiten (integrale Darstellung) angegeben. Die Wahrscheinlichkeiten können sich auf die Anzahl der Partikel, die Partikeloberfläche und die Partikelmassen beziehen. Eine wichtige Verteilung ist zum Beispiel die Massensummenhäufigkeit, die sich unmittelbar aus Siebanalysen ergibt.

Es existiert eine Vielzahl mathematischer Ansätze zur Beschreibung von Verteilungsfunktionen, auf die zum Beispiel in /Rem 74/ und /Den 76/ ausführlicher eingegangen wird. Im folgenden soll sich auf die Darstellung der Log-Normal-Verteilung beschränkt werden, die auch den Arbeiten zur Quelltermbestimmung zugrunde liegt.

Ein Partikelspektrum ist logarithmisch normalverteilt, wenn die Logarithmen der Partikeldurchmesser normal verteilt sind.

Für die Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion einer Log-Normal-Verteilung ergibt sich mit $\ln d$ als unabhängiger Variablen

$$y = \frac{dn}{d(\ln d)} = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \ln \sigma_g} \exp \left[- \frac{(\ln d - \ln d_g)^2}{2 \ln^2 \sigma_g} \right]$$

Die Anzahl der Partikel im Intervall i (d_1, d_2) erhält man durch Integration

$$n_i = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \ln \sigma_g} \int_{d_1/\ln \sigma_g}^{d_2/\ln \sigma_g} \exp \left[- \frac{(\ln d - \ln d_g)^2}{2 \ln^2 \sigma_g} \right] d(\ln d)$$

Die Größen d_g und σ_g sind geometrischer Mittelwert und geometrische Standardabweichung. Der geometrische Mittelwert d_g ist bei der Log-Normal-Verteilung identisch mit dem count median diameter. Die geometrische Standardabweichung ergibt sich als Verhältnis der folgenden Fraktile:

$$\sigma_g = \frac{84,13 \%}{50 \%} = \frac{50 \%}{15,87 \%}$$

In den Bildern 6 und 7 ist die differentielle und die integrale Form der Log-Normal-Verteilung für die Parameter $d_g = 1$ und $\sigma_g = 2$ dargestellt.

Aus Bild 7 ist ersichtlich, daß die Summenhäufigkeit auf Log-Normal-Wahrscheinlichkeitspapier eine Gerade darstellt. Die Summenhäufigkeiten von Anzahlverteilung, Oberflächenverteilung und Massenverteilung bilden parallele Geraden.

Der Zusammenhang zwischen den charakteristischen Durchmessern wird durch die folgenden Gleichungen gegeben (vgl. Bilder 6 und 7):

$$\begin{aligned} \text{Ind}^* &= \text{Ind}_g - \ln^2 \sigma_g \\ \text{Ind}_m &= \text{Ind}_g + 1,5 \ln^2 \sigma_g \\ \text{Ind}_a &= \text{Ind}_g + 1,0 \ln^2 \sigma_g \\ \text{Ind}_m^! &= \text{Ind}_g + 3,0 \ln^2 \sigma_g. \end{aligned}$$

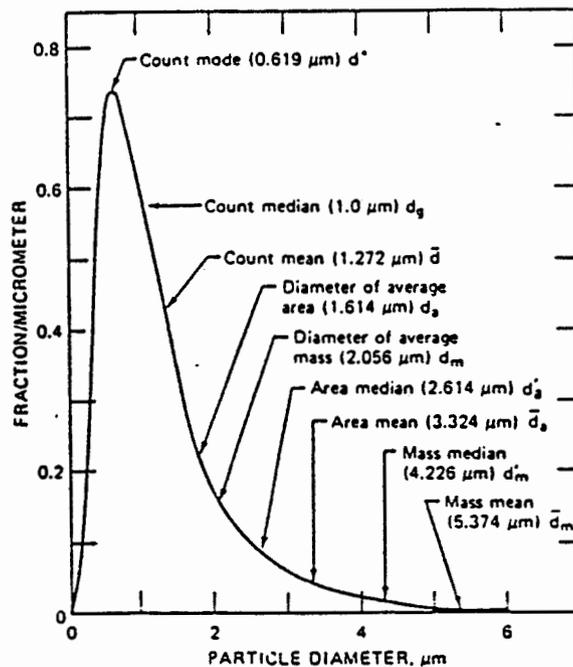


Bild 6:

Wahrscheinlichkeitsdichte einer Log-Normal-Verteilung in linearer Darstellung

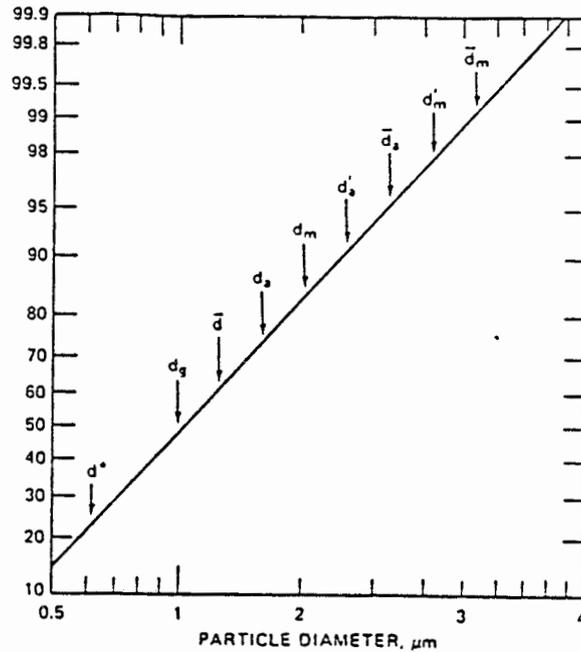


Bild 7:

Summenhäufigkeit einer Log-Normal-Verteilung, dargestellt auf Log-Normal-Wahrscheinlichkeitspapier

2.1.3 Experimentelle Untersuchungen

In der Literatur existiert eine Vielzahl von Experimenten zur Ermittlung von Parametern im Zusammenhang mit Zerkleinerungsvorgängen. Die experimentellen Randbedingungen sind jedoch meistens so speziell, daß eine Übertragbarkeit nicht gegeben ist.

Für die gegebene Problemstellung sind daher nur solche Experimente relevant, in denen energieabhängig das Zerkleinerungsverhalten von Probenkörpern, die ähnliche Eigenschaften wie die Abfallproduktgruppen aufweisen, untersucht werden. Dies trifft auf die Arbeiten /Räm 79/, /Vej 83/, /Wal 76/, /Nuk 84/ und /See 82/ zu.

In /Räm 79/ wird über Abwurfversuche von mit Zement verfestigten Abfallbinden berichtet. Parameter sind Abwurfhöhe (5 m bis 43 m), Anteil der Fremdstoffe in der Zementmatrix (10 % bis 20 %), Behältergröße und Verpackung. Ausgewertet werden Festigkeitswerte und die Partikelverteilung nach der Zertrümmerung.

Auch in /Vej 83/ wird ein Abwurfversuch eines zementierten Abfallgebundes beschrieben. Die Fallhöhe beträgt 60 m. Ausgewertet werden die Siebdurchlässe für 63 μm und 125 μm Maschenweite.

Bei den Experimenten von /Wal 76/ werden Proben in einem Mörser durch herabfallende Gewichte zertrümmert. Parameter sind Probenmaterialien und Zertrümmerungsenergie. Ausgewertet wird die Partikelverteilung und hierüber die neugebildete Oberfläche. Die Meßwerte weisen eine befriedigende Übereinstimmung mit den Stoffwerten gemäß Kapitel 3.1 auf. Die Teilchengrößenanalyse wird bis zu kleinsten Durchmessern von 0,6 μm durchgeführt.

Die Experimente der NUKEM /Nuk 84/ werden in gleicher Weise durchgeführt wie die von Wallace. Sie orientieren sich bezüglich des untersuchten Produktes enger an Abfallprodukten der Konrad-Abfälle. Im einzelnen werden folgende Produkte untersucht:

- Konzentrat-Zementprodukt,
- Asche-/Dekokonzentrat-/Waschwasser-Zementprodukt,
- Asche-Zementprodukt,
- Filterkonzentrat-Zementprodukt,
- Kugelharz-Zementprodukt.

Neben diesen Untersuchungen von Zementprodukten wird in /See 82/ das Zerkleinerungsverhalten von UO_2 -Pellets analysiert. Wie bei den beiden Experimenten erfolgt die mechanische Beaufschlagung durch fallende Körper.

Einige Ergebnisse dieser Untersuchungen sind in Bild 8 dargestellt, wobei sich die Nummern der einzelnen Spektren auf die Erläuterungen der Tabelle 1 beziehen.

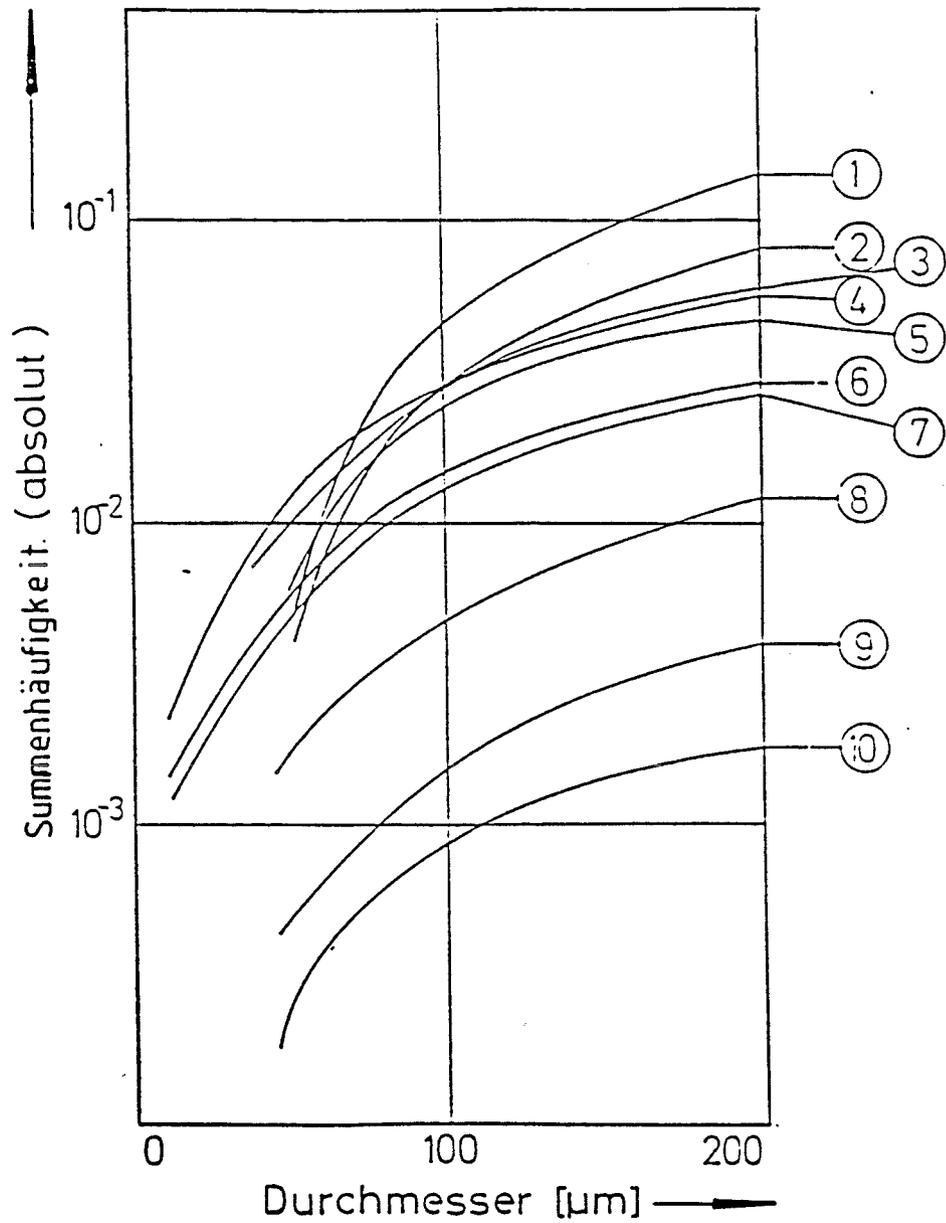


Bild 8:

Ergebnisse unterschiedlicher Experimente zum Zerkleinerungsverhalten von Zementprodukten als Massensummenhäufigkeit des geometrischen Partikeldurchmessers

Tab. 1

Erläuterungen zu Bild 8

lfd. Nr.	Literatur	Spez. Energie [J/g]	untersuchtes Produkt
1	/NUK 84/	2,6	kohlenstoffhaltiges Asche-Zementprodukt (Portlandzement)
2	/Wal 76/	7,5	High-Alumina, Neat
3	/NUK 84/	2,6	kohlenstoffhaltiges Asche-Zementprodukt (Hochofenzement)
4	/NUK 84/	2,6	Kugelharz-Zementprodukt
5	/NUK 84/	2,6	Asche-Dekokonzentrat-Zementprodukt
6	/NUK 84/	2,6	Asche-Zementprodukt
7	/NUK 84/	2,6	Filterkonzentrat-Zementprodukt
8	/Räm 79/	0,42	Kugelharz-Zementprodukt
9	/Räm 79/	0,2	Kugelharz-Zementprodukt
10	/Vej 83/	0,6	Konzentrat-Zementprodukt

2.1.4 Berechnung von Zerkleinerungsvorgängen

Im folgenden wird beschrieben, wie auf der Basis der geschilderten theoretischen und experimentellen Grundlagen ein Verfahren abgeleitet wird, mit dem Partikelsysteme als Funktion der Produkteigenschaften und der Beaufschlagungsenergie berechnet werden können.

Zur mathematischen Beschreibung der experimentell ermittelten Partikelverteilungen werden zunächst die Meßwerte durch Log-Normal-Verteilungen approximiert. Hierzu werden die einzelnen Werte in ein logarithmisches Wahrscheinlichkeitsnetz eingetragen und durch lineare Regression approximiert. Bild 9 zeigt dies exemplarisch für zwei Experimente aus /Wal 76/.

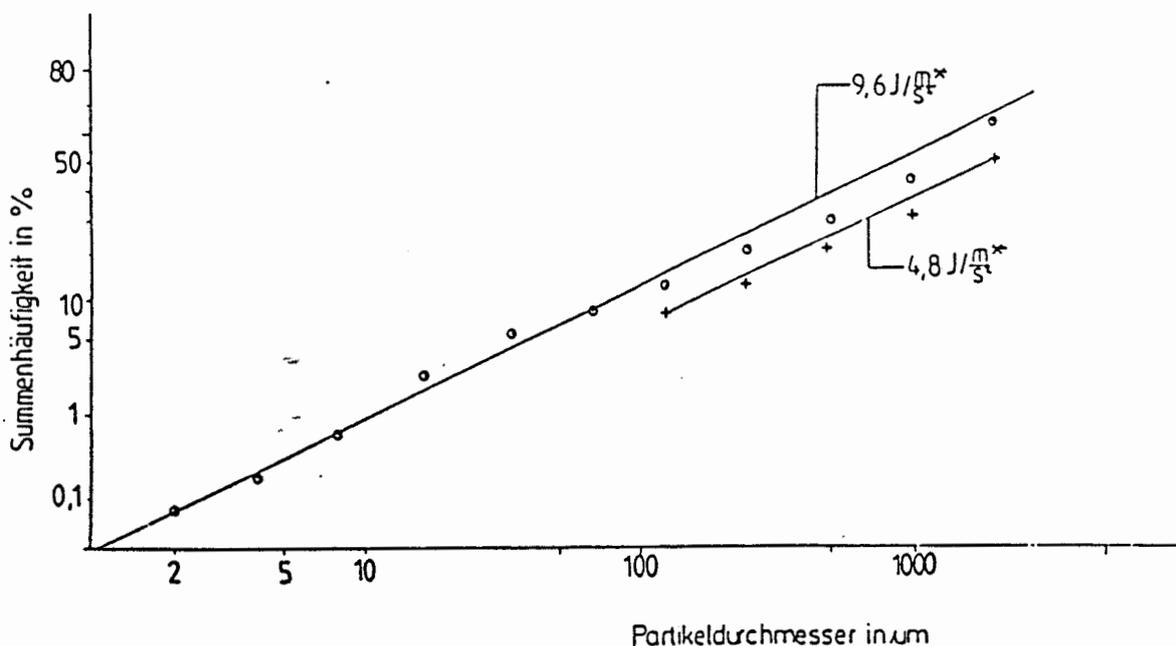


Bild 9:

Approximation der Partikelverteilung an eine Log-Normal-Verteilung
(Type III + 40 % Sludge)

* Energie ist auf Erdbeschleunigung normiert

Die dargestellten Verteilungen repräsentieren die Massensummenhäufigkeiten. Da diese parallel zur Anzahlsummenhäufigkeit verläuft, ergibt sich die geometrische Standardabweichung unmittelbar als Verhältnis der 50 %- und 15,87 %-Fraktile. Der mass median diameter d'_m (50 %-Wert) ist mit dem count median diameter d_g wie folgt verknüpft:

$$\ln d_g = \ln d'_m - 3 \times \ln^2 \sigma_g$$

Mit den Beziehungen entsprechend Kapitel 2.1.2 lassen sich dann alle anderen charakteristischen Größen der Partikelverteilung bestimmen.

Die Gesamtoberfläche erhält man bei gegebener Gesamtmasse aus den Durchmessern d_a und d_m :

$$A = n \pi d_a^2 = \frac{6 m d_a^2}{\rho d_m^3}$$

wobei die Gesamtmasse m definiert wird durch

$$m = \frac{n}{6} \pi \rho d_m^3$$

mit

n : Teilchenzahl
 ρ : Dichte der Teilchen

Aus der spezifischen Energie und der neugebildeten Oberfläche berechnet sich die spezifische Bruchflächenenergie. Damit lassen sich aus den Auswertungen der Partikelsysteme die folgenden Größen ableiten:

- charakteristischer Durchmesser d'_m
- geometrische Standardabweichung σ_g
- spezifische Bruchflächenenergie b

In Tabelle 2 sind diese Größen für die in Tabelle 1 / Bild 8 gezeigten Partikelsysteme, die zur Quelltermbestimmung herangezogen werden, aufgelistet. Hierbei wird anstelle der spezifischen Bruchflächenenergie der Kehrwert, die reziproke Bruchflächenenergie aufgeführt. Weiterhin sind die entsprechenden Werte für UO_2 -Pellets wiedergegeben. Die Spek-

trumsparameter σ_g und d'_m beziehen sich auf die angegebene Beaufschlagungsenergie.

Tab. 2:

Charakteristische Größen ausgewählter Partikelsysteme

lfd. Nr. gemäß Bild 8	reziproke Bruchflächen- energie [cm ² /J]	Beaufschlag- ungsenergie [J/g]	σ_g	d'_m [m]
1	37,7	2,6	3,5	6,7 E-4
2	7,4	7,5	5,75	2,5 E-3
3	18	2,6	6.1	3,3 E-3
4	14	2,6	8	7,2 E-3
5	8,4	2,6	8	1,2 E-2
6	7,4	2,6	13	4,2 E-2
7	7,4	2,6	13	4,5 E-2
8	19	0,43	8	3,3 E-1
9	21	0,2	8	6 E-1
10	3,6	0,6	10	2

UO ₂ -Pellets	3,3	2,5	3,2	2,9 E-3

Der Mittelwert der reziproken Bruchflächenenergien in Tabelle 2 beträgt 15,2 cm²/J, der Mittelwert der geometrischen Standardabweichung σ_g beträgt 7,8. Nach Tabelle 2 scheint eine Korrelation zwischen reziproker Bruchflächenenergie σ_g und geometrischer Standardabweichung zu existieren, und zwar nimmt σ_g mit steigender reziproker Bruchflächenenergie ab.

Bild 10 verdeutlicht diese Korrelation. Dargestellt sind für die Werte der Tabelle 2 σ_g über der reziproken Bruchflächenenergie und die Regressionsgerade durch diese Punkte. Parameter dieser Regressionsgerade sind

$$a = 10,46 \quad (\text{x-Achsenabschnitt})$$

$$b = 0,175 \quad (\text{Steigung})$$

mit einem Korrelationskoeffizienten von $-0,677$. Dieser Korrelationskoeffizient bedeutet, daß die Korrelation zwar nicht besonders gut ist, daß jedoch beide Größen korreliert sind.

Im Hinblick auf die Konservativität der beiden betrachteten Parameter kann ausgeführt werden, daß der Zerkleinerungsgrad der Matrix mit steigender reziproker Bruchflächenenergie zunimmt. Dieses eindeutige Verhalten trifft auf σ_g nicht zu. Ein kleines σ_g bedeutet eine große Steigung der Massensummenhäufigkeit, also relativ eine Erhöhung des Anteils großer Partikel bei gleichzeitiger Verringerung des Anteils kleiner Partikel. Welcher Wert für σ_g zu einem konservativen Ergebnis führt, wird nach der Herleitung der Zusammenhänge zwischen spezifischer Oberfläche σ_g und einem charakteristischen Durchmesser abgeschätzt.

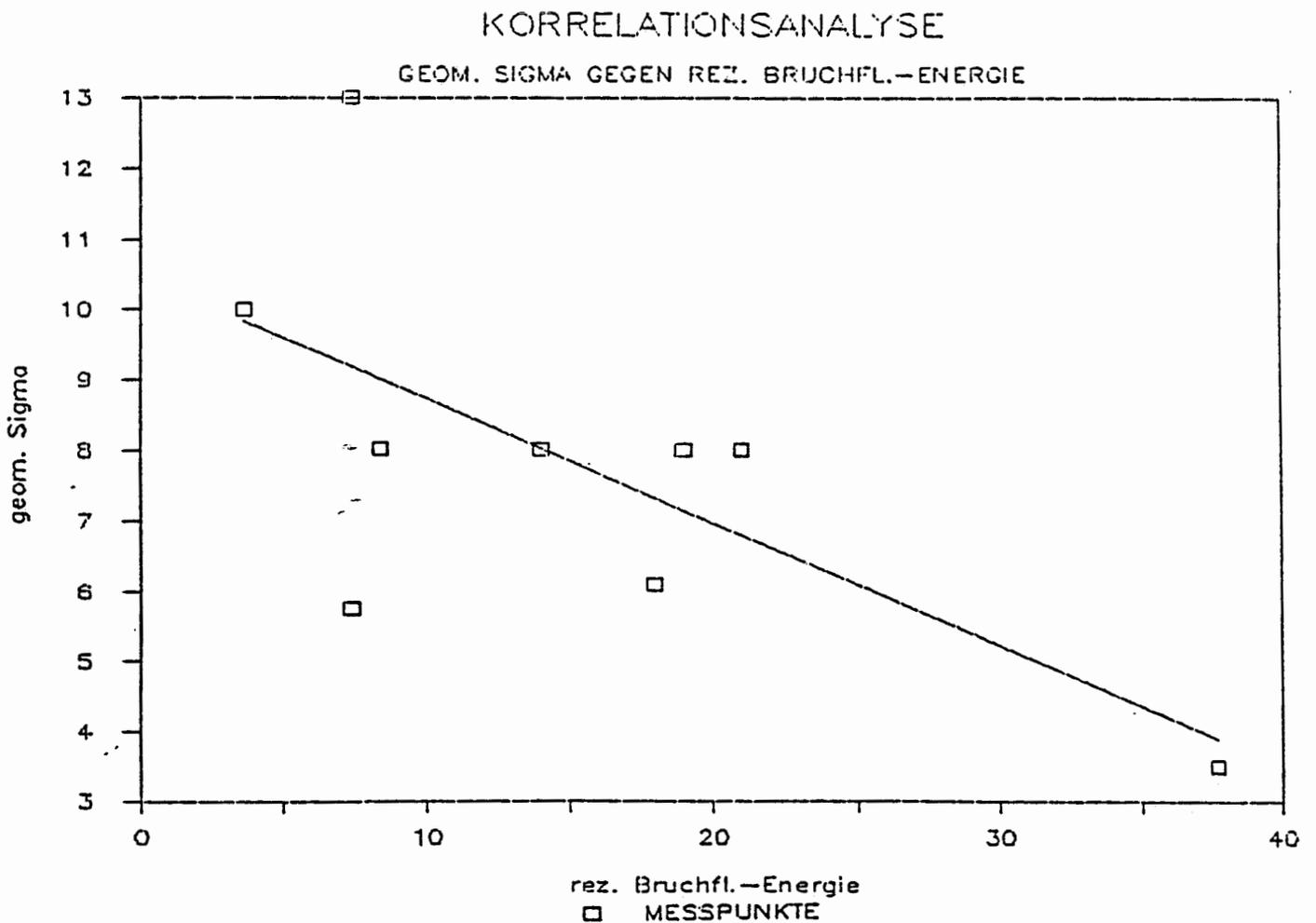


Bild 10:

Abhängigkeit der geometrischen Standardabweichung von der reziproken Bruchflächenenergie

Aus der spezifischen Bruchflächenenergie und der spezifischen Energiebeaufschlagung ergibt sich die spezifische Oberfläche A^* :

$$A^* = \frac{e}{b} \rho$$

mit A^* : spezifische Oberfläche
 e : spezifische Energiebeaufschlagung
 b : spezifische Bruchflächenenergie

Die spezifische Oberfläche ist die gesamte Oberfläche bezogen auf das gesamte Volumen:

$$A^* = \frac{A}{V}$$

mit A : gesamte Oberflächen
 V : gesamtes Volumen

Für diese integralen Größen gilt

$$A = n \cdot 4 \pi \cdot (d_a/2)^2$$

und

$$V = n \cdot 4/3 \cdot \pi \cdot (d_m/2)^3$$

mit n : Gesamtteilchenzahl
 d_a : arithm. Mittelwert der Oberfläche
 d_m : arithm. Mittelwert der Masse

Mit den Zusammenhängen in Kap. 2.2 ergibt sich aus den o.a. Gleichungen:

$$A^* = \frac{6 \cdot (\exp(\ln^2 \sigma_g))^2 \cdot (\exp(\ln d_g))^2}{(\exp(1,5 \cdot \ln^2 \sigma_g))^3 \cdot (\exp(\ln d_g))^3}$$

bzw. nach d_g aufgelöst

$$d_g = \frac{6 \cdot (\exp(\ln^2 \sigma_g))^2}{A^* \cdot (\exp(1,5 \cdot \ln^2 \sigma_g))^3}$$

Mit den Größen d_g und σ_g ist das Partikelsystem eindeutig festgelegt.

Entsprechend dieser Vorgehensweise werden für eine spezifische Beaufschlagungsenergie von 0,05 J/g aus Tabelle 2 die charakteristischen Durchmesser zur Beschreibung von Partikelsystemen abgeleitet.

In Bild 11 sind die hiermit berechneten Massensummenhäufigkeiten für unterschiedliche Parameter, die reziproke Bruchflächenenergie (b^{-1}) und σ_g , die der Korrelation gemäß Bild 10 genügen, dargestellt. Hiernach ist die Massensummenhäufigkeit im Bereich 10^{-4} cm bis 0,1 cm für die reziproke Bruchflächenenergie von 20 cm^2/J und $\sigma_g = 7$ abdeckend gegenüber den Massensummenhäufigkeiten der anderen Wertepaare $b^{-1} = 5 \text{ cm}^2/\text{J}$ und $\sigma_g = 9,6$ bzw. $b^{-1} = 36 \text{ cm}^2/\text{J}$ und $\sigma_g = 4,2$.

MASSENSUMMENHÄUFIGKEITEN

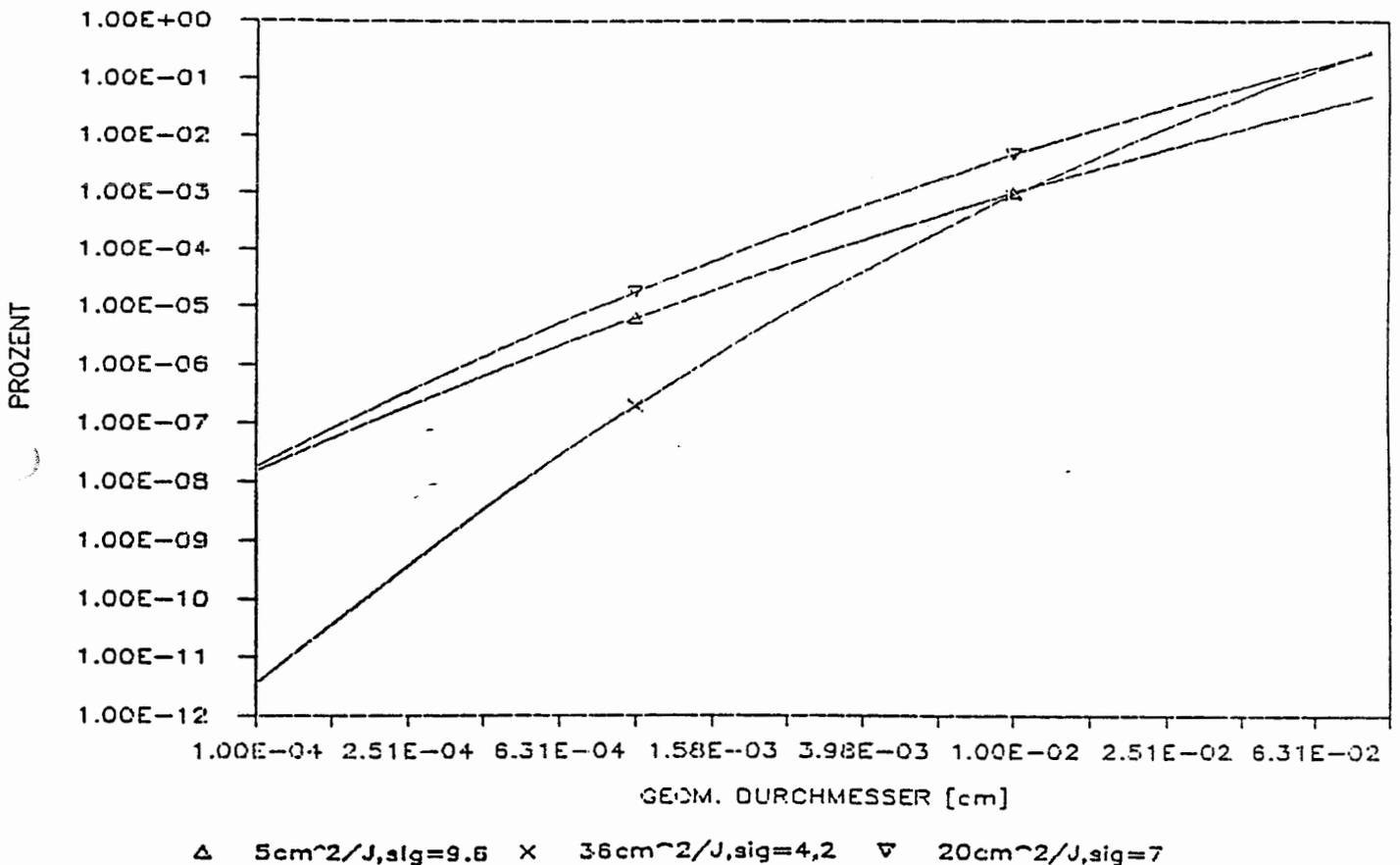


Bild 11:

Die Gültigkeit der Beziehungen zur Berechnung von Partikelverteilungen und die Bewertung auf Konservativität soll an einem Beispiel gezeigt werden.

Dabei wird im folgenden mit den Werten $0,2 \text{ J/cm}^2$ für die spezifische Bruchflächenenergie und $\sigma_g = 7$ für die geometrische Standardabweichung der 60 m-Fall eines Abfallgebundes gerechnet. Diese Werte sind repräsentativ für eine sehr feste Zementmatrix. Sie werden gewählt, um einen möglichst geringen Feinstaubanteil zu ermitteln. Der errechnete Wert für die $125 \mu\text{m}$ -Summenhäufigkeit wird mit dem bei einem realistischen 60 m-Abwurf eines maßstäblichen Abfallgebundes ermittelten Wert /Vej 83/ verglichen. Stimmen die Ergebnisse in etwa überein, kann davon ausgegangen werden, daß das Verfahren zur Quelltermbestimmung anwendbar ist.

$$\begin{aligned}
 A^* &= \frac{e}{b} \rho \\
 &= \frac{0,6 \text{ J/g}}{0,2 \text{ J/cm}^2} \cdot 2 \text{ g/cm}^3 \\
 &= 6 \text{ cm}^2/\text{cm}^3 \\
 d_g &= \frac{6 \cdot (\exp(\ln^2 \sigma_g))^2}{6 \cdot (\exp(1,5 \cdot \ln^2 \sigma_g))^3} \quad [\text{cm}] \\
 &= 7,7 \text{ E-5 cm} \\
 d_m &= \exp(\ln(4 \text{ E-5}) + 1,5 \ln^2 \sigma_g) \\
 &= 2,3 \text{ E-2 cm} \\
 d'_m &= 6,6 \text{ cm}
 \end{aligned}$$

Die $125 \mu\text{m}$ -Massensummenhäufigkeit ergibt sich aus der numerischen Lösung des folgenden Integrals

$$\Phi_{125\mu\text{m}} = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \ln \sigma_g} \cdot \int_0^{125 \mu\text{m}/\ln \sigma_g} \exp \left[-\frac{(\ln d - \ln d'_m)^2}{2 \ln^2 \sigma_g} \right] d(\ln d) = 0,07 \%$$

In den Abwurfversuchen in /Vej 83/ wird für eine Gesamtmasse von 500 kg ein $125 \mu\text{m}$ -Siebdurchlaß von 600 g ermittelt. Dies entspricht 0,12 %.

Aus dem Vergleich beider Werte kann geschlossen werden, daß das theoretische Verfahren das Zerkleinerungsverhalten fester Körper bei mechanischer Beaufschlagung hinreichend realistisch beschreibt. Bei entsprechender Wahl der Parameter wird sichergestellt, daß die Ergebnisse konservativ sind.

Für ein alle Zementprodukte abdeckendes Partikelspektrum sind durch Parameterstudien die folgenden Parameter ermittelt worden:

$$\begin{aligned}\sigma_g &= 11 \\ b &= 0,023 \text{ J/cm}^2\end{aligned}$$

Für den 60 m-Fall ergibt sich mit diesen Parametern für 125 μm eine Massensummenhäufigkeit von 1,7 %; das heißt, die gewählten Parameter liefern ein konservatives Ergebnis.

Eine weitere Bestätigung, daß die gewählten Parameter geeignete Ergebnisse liefern, ergibt sich durch Nachrechnungen von Abwurfversuchen in /Räm 79/. Als 44 μm -Siebdurchlaß wurden für den 5 m-Fall Fraktionen von 0,008 % bis 0,017 % gemessen. Für $\sigma_g = 11$ und $b = 0,023 \text{ J/cm}^2$ errechnet sich

$$\begin{aligned}d_m^i &= 25 \text{ cm und} \\ \phi_{44 \mu\text{m}} &= 0,016 \%,\end{aligned}$$

das heißt, auch dieser Lastfall wird ausreichend genau reproduziert.

Der Nachweis des abdeckenden Verhaltens ist in Bild 12 gegeben:

Hier sind die Ergebnisse der experimentellen Untersuchungen nach Umrechnung auf einen einheitlichen Energieeintrag von 0,05 J/g dargestellt. Die Randziffern beziehen sich wiederum auf die Erläuterungen der Tabellen 1 und 2. Die Kurve mit dem Randbuchstaben M ist die mit den angegebenen Parametern für diesen Lastfall berechnete Modellkurve. Sie deckt über den radiologisch relevanten Bereich alle anderen Spektren ab.

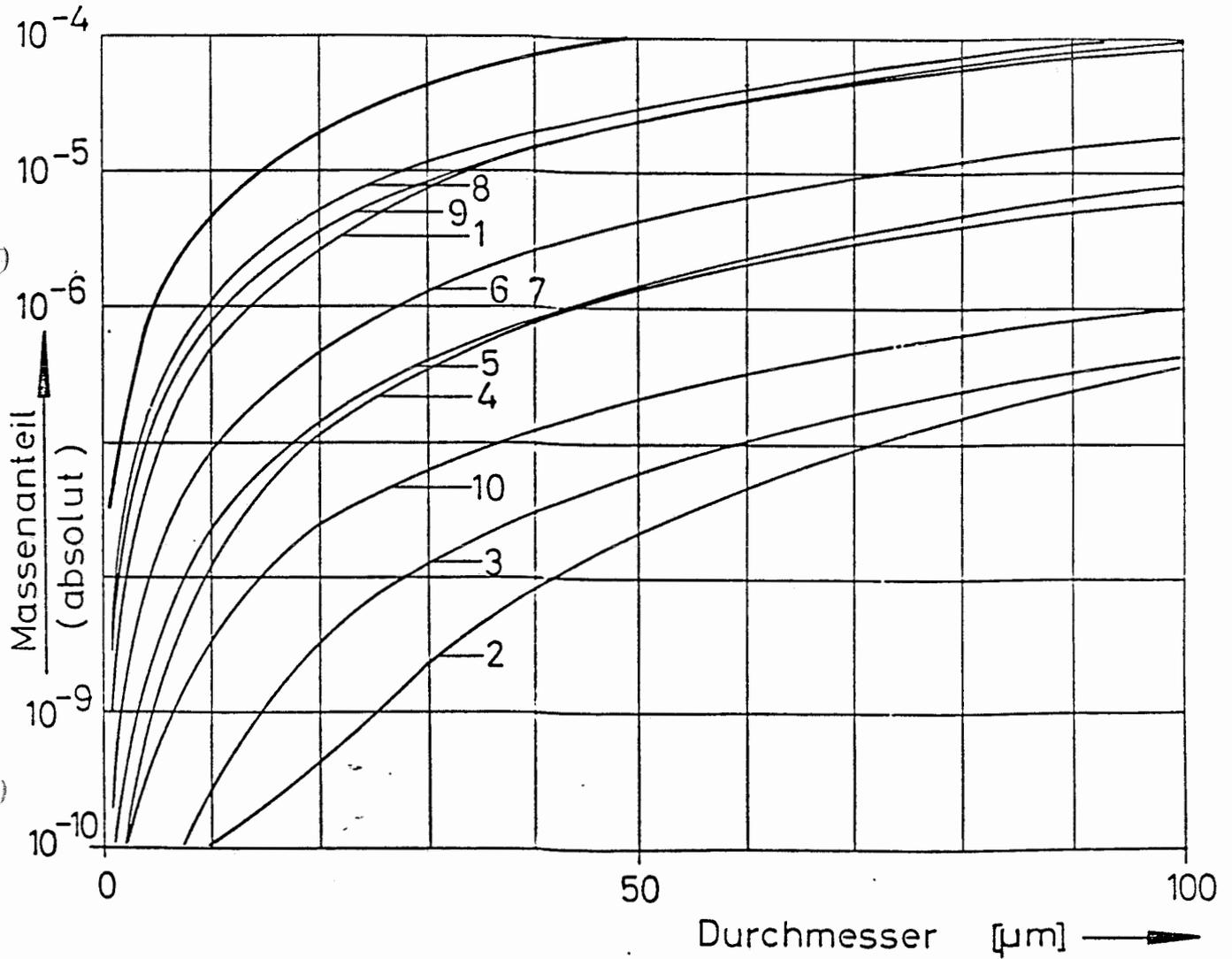


Bild 12:

Ergebnisse der Zerkleinerungsexperimente bei einem Energieeintrag von $0,05 \text{ J/g}$ und theoretische Modellkurve (M) bei demselben Energieeintrag

2.2 Dispergierbare Partikelsysteme

Neben den Abfallproduktgruppen, aus denen infolge der mechanischen Beaufschlagung gemäß der Beschreibung in Kapitel 2.1 freisetzbare Partikel entstehen, existieren weitere Abfallproduktgruppen, die an sich dispergierbare Aktivität enthalten, die beim Störfall offengelegt wird und somit ausgebreitet werden kann.

Gemäß den Anforderungen im Plan KONRAD sind für die Abfallproduktgruppen 01, 02, 03 und 04 unfixierte Abfälle ohne weitere Anforderungen an die Partikelverteilung zulässig. Im Hinblick auf größere Anteile pulvriger Substanzen im Abfallprodukt der Abfallproduktgruppe 03 sind nur SWR-Steuerstäbe relevant, da hier das Absorbermaterial B_4C pulverförmig vorliegt. Hierauf wird in Kapitel 4 noch eingegangen. Abfälle mit signifikanten Anteilen an Pulvern sind gemäß einer Erhebung bei den Abfallverursachern nicht in Abfällen der Abfallproduktgruppe 03 vorgesehen und es ist auch bei zukünftigen Abfällen nicht abzusehen, daß größere Anteile reiner Metallpulver auftreten werden.

Somit sind für die Auswahl repräsentativer Partikelsysteme die Abfallproduktgruppen 01, 02 und 04 relevant. Realistische Rohabfälle, die zu derartigen Abfallproduktgruppen konditioniert werden können und die einen signifikanten Pulveranteil aufweisen, sind insbesondere Verbrennungsrückstände und Filterhilfsmittel. Diese beiden Rohabfallformen werden zur Auswahl des repräsentativen Partikelsystems vertieft untersucht.

- Verbrennungsrückstände

Das Veraschen brennbarer Abfälle ist ein derzeit gängiges Konditionierungsverfahren mit hoher Volumenreduktion. Die Konsistenz der Rückstände (chemische Zusammensetzung, Partikelspektrum) hängt von der Prozeßführung - Temperatur, Luftzufuhr, Stützfeuer u.ä. - und von der Art der Rohabfälle ab. Allgemein kann gesagt werden, daß ein optimaler Verbrennungsprozeß bei hohen Temperaturen mit hohem Oxidationsverhältnis ein kohlenstoffarmes Produkt mit nur geringem freisetzbarem Anteil liefert (der Massenanteil an Partikeln $< 125 \mu m$ geometrisch beträgt etwa 5 % /TN 84/). Verbrennungsvorgänge bei geringerem Temperaturniveau mit schlechterem Oxidationsverhältnis führen zu einem koh-

lenstoffreicheren Produkt mit höherem freisetzbarem Anteil. So liefert zum Beispiel normale Hausasche aus der Verbrennung von Holz nach Siebung mit 2 mm Maschenweite einen Massenanteil an Partikeln $< 100 \mu\text{m}$ geometrisch /See 87/ von über 50 %..

Aufgrund des signifikant größeren freisetzbaren Anteils gegenüber Aschen aus industriellen Prozessen wird diese Hausasche als repräsentatives Produkt für Verbrennungsrückstände den experimentellen Untersuchungen zugrunde gelegt.

Die mittels Siebanalyse bestimmte Massenverteilung als Funktion des geometrischen Durchmessers ist als Kurve 1a in Bild 13 dargestellt. Messungen der Partikeldichte mit Pyknometer und Volumenometer ergeben einen Wert von 2100 kg/m^3 . Eine einfache Umrechnung der geometrischen Verteilung in eine aerodynamische Verteilung mittels des Stoke'schen Gesetzes war nicht möglich, so daß die aerodynamische Verteilung (Massenverteilung als Funktion des aerodynamischen Durchmessers) in Bild 13, Kurve 1b, in einer separaten Messung mit einem aerodynamischen Verfahren ermittelt wurde.

- Filterhilfsmittel

Als Filterhilfsmittel mit hohem freisetzbarem Anteil sind unter anderem Pulverharze, Kieselgur oder eine Mischung beider Substanzen relevant. Voruntersuchungen an einer Mischung aus Pulverharz (Lewasorb) und Kieselgur (Hyflo) ergeben, daß

- Siebanalysen zu einer Entmischung führten und
- durch Bindung von Kieselgurpartikeln an feuchten Pulverharzpartikeln bei Fallversuchen keine Freisetzung resultiert.

Eine Trocknung des Pulverharzes führte zu keiner Verbesserung des Ergebnisses. Aufgrund der ausgeprägten hygroskopischen Eigenschaften, die auch im Abfallgebände gegeben sind, kehrte das Pulverharz sehr schnell zum feuchten Zustand zurück.

Aus diesen Gründen wird als repräsentatives Partikelsystem für Filterhilfsmittel die Reinsubstanz Kieselgur herangezogen.

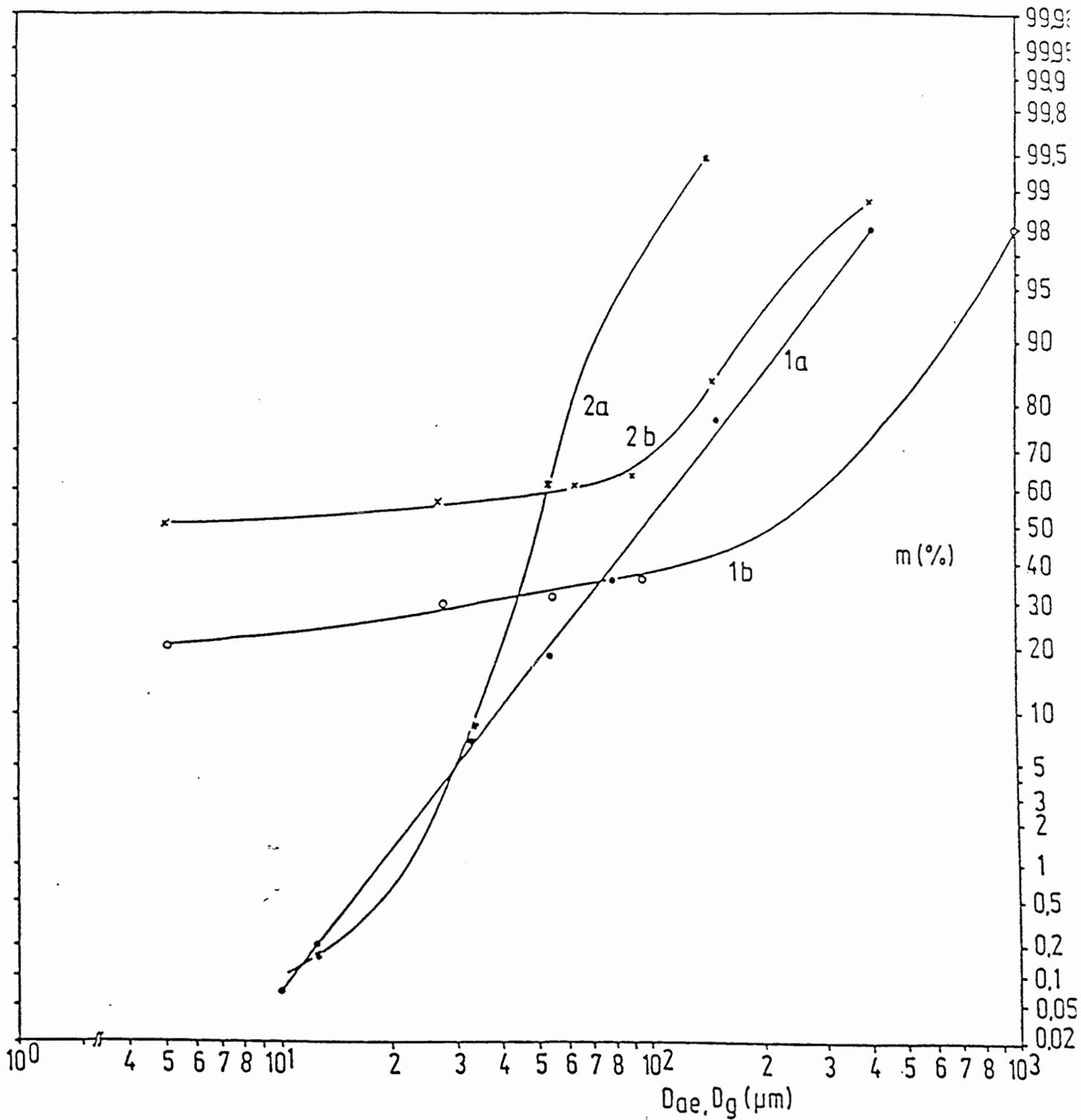


Bild 13:

Größenverteilungen der Substanzen Kieselgur und Hausasche

Kurve 1a : Hausasche (Siebanalyse)

Kurve 2a : Kieselgur (Siebanalyse)

Kurve 1b : Hausasche (Schwingbettgenerator)

Kurve 2b : Kieselgur (Schwingbettgenerator)

Die Massenverteilung als Funktion des geometrischen Durchmessers ist in Bild 13 als Kurve 2a dargestellt. Die Partikeldichte des Kieselgur beträgt $1\,800\text{ kg/m}^3$. Wie bei der Hausasche läßt sich auch beim Kieselgur die geometrische Verteilung nicht in eine aerodynamische Verteilung umrechnen, so daß auch hier aerodynamische Messungen durchgeführt werden mußten. Das Ergebnis - die Massenverteilung als Funktion des aerodynamisch äquivalenten Durchmessers - ist als Kurve 2b in Bild 13 dargestellt.

Bei beiden Partikelsystemen ergeben die aerodynamischen Messungen gegenüber den geometrischen Messungen eine Erhöhung des Massenanteils kleiner Partikel und eine Verringerung des Massenanteils großer Partikel. Von den Experimentatoren wird diese Inkonsistenz - gemäß Stoke'schem Gesetz sollten sich aerodynamische und geometrische Verteilung nur um einen konstanten Faktor unterscheiden und damit in log-normal-Wahrscheinlichkeitsdarstellung parallel abbilden - durch physikalische Effekte mit der Folge von Meßfehlern bei der Siebung erklärt /See 87/.

Zur Interpretation der weiteren Ergebnisse werden daher im folgenden nur noch die Massenverteilungen als Funktion des aerodynamisch äquivalenten Durchmessers herangezogen. Wie aus Bild 13 ersichtlich ist, besitzt Kieselgur einen erheblich größeren freisetzbaren Massenanteil als die Hausaschen und wird daher als repräsentatives Partikelsystem für die Abfallproduktgruppen 01, 02 und 04 ausgewählt.

3. BESTIMMUNG DES DISPERGIERTEN ANTEILS VON PARTIKELSYSTEMEN

Von den in einem Störfall gebildeten bzw. offengelegten Partikeln wird durch die mechanische Beaufschlagung nur ein bestimmter Anteil freigesetzt und zur Dosis beitragen.

Da geeignete theoretische Verfahren zur Bestimmung dieses Anteils fehlen, sind experimentelle Untersuchungen durchgeführt worden, um das Freisetzungsverhalten in Abhängigkeit verschiedener Einflußgrößen zu quantifizieren. Im vorliegenden Kapitel werden die Ergebnisse dieser Experimente beschrieben, soweit sie für die Quelltermbestimmung

von Bedeutung sind. Für eine vollständige Beschreibung der Experimente sei auf die ausführliche Dokumentation in /See 87/ verwiesen.

Gegenstand der Untersuchungen sind dispergierbare Partikelsysteme, die durch die mechanische Beaufschlagung offengelegt werden. Partikelsysteme, die durch mechanische Beaufschlagung gebildet werden, werden in den Untersuchungen nicht berücksichtigt, da bei diesen von einer 100 % Freisetzung der ausbreitungsfähigen Partikel ausgegangen werden kann, ohne daß die Auswirkungen des thermischen Lastfalls erreicht werden.

Zur Durchführung der Untersuchungen wird ein mit verschiedenen Substanzen gefüllter Behälter in einer geschlossenen Kammer aus unterschiedlichen Höhen fallengelassen (die Darstellung der Ergebnisse wird im folgenden nur noch für die als repräsentativ ausgewählte Substanz Kieselgur gegeben, vgl. Kapitel 2.2).

Der Behälter ist so konstruiert, daß er beim Aufprall die Seitenwände abklappt, so daß die Freisetzung nicht durch eine Restbarrierewirkung des Behälters beeinflusst wird.

Die Kammer ist so instrumentiert, daß eine zeit-, größen- und höhenabhängige Messung der Partikelkonzentration möglich ist.

Die Untersuchungseinrichtung erlaubt Versuche mit einem maximalen Substanzvolumen von ca. 8 l. Dies entspricht für das untersuchte Kieselgur einer Masse von 1 kg. Da diese Masse nicht zu den realistischen Massen (bis zu ca. 10 t) hin gesteigert werden kann, wird die Massenabhängigkeit an kleineren Massen untersucht. Neben der maximalen Masse von 1 kg werden noch 0,25 kg untersucht. Tabelle 3 faßt exemplarisch die Ergebnisse aus /See 87/ für Kieselgur und den 5 m-Fall mit Ventilation zusammen. Dargestellt sind die Freisetzungsanteile

$$f_{j,i} = \frac{m_{f,i}}{m_j}$$

mit

$f_{j,i}$: Freisetzungsanteil, bezogen auf Masse j im Größenintervall i (AED) in %

$m_{f,i}$: freigesetzte Masse im Größenintervall i (AED)

m_j : eingesetzte Masse

Tabelle 3:

Massenabhängigkeit von Freisetzungsteilen in % für verschiedene Größenintervalle (AED) (Kieselgur)

Masse [kg]	Größenintervall		
	< 10 µm*	10 µm ... 70 µm	> 70 µm
0,25	0,07	0,5	7
1,00	0,02	0,3	4,8

* respirable mass nach /See 87/

Als allgemeine Tendenz ergibt sich aus Tabelle 3, daß in allen Größenbereichen die Freisetzungsteile mit zunehmender Masse abnehmen. Dieses Verhalten, was sich einfach durch die zunehmende Eigenbarrierewirkung größerer Massen erklärt, spiegelt sich in allen Versuchen in /See 87/ wieder.

Die beschränkte Anzahl von Untersuchungen erlaubt keine belastbare Extrapolation zu größeren Massen. Aus diesem Grunde werden zur Ableitung der Quellterme die Untersuchungen mit der Masse 1 kg herangezogen. Aus der Massenabhängigkeit der Ergebnisse kann jedoch geschlossen werden, daß die Übertragung der 1 kg-Ergebnisse auf realistische Massen eine konservative Vorgehensweise darstellt.

Als relevante Lastfälle, für die aufgrund unterschiedlicher Ausbreitungsbedingungen der freigesetzten radioaktiven Stoffe gegebenenfalls Quellterme zu bestimmen sind, gelten

1. Absturz von Abfallgebinden aus maximal 5 m in der Einlagerungskammer,
2. Absturz von Abfallgebinden aus maximal 3 m in der Umladehalle und in der Pufferhalle,
3. Absturz von Abfallgebinden aus maximal 1,75 m am Füllort,

4. Absturz von Abfallgebinden aus maximal 1,20 m im Sonderbehandlungsraum.

Die untertägig herrschende Bewetterung wird in den Experimenten durch entsprechende Ventilation berücksichtigt. Demgegenüber kann in den obertägigen Anlagenbereichen aufgrund der langsamen Luftströmungen der Einfluß einer Ventilation auf die Freisetzung vernachlässigt werden.

Diese die Freisetzung beeinflussenden Faktoren werden durch Abwürfe des mit 1 kg Kieselgur befüllten Behälters aus 1 m bis 5 m jeweils mit und ohne Ventilation untersucht. Die Tabellen 4 und 5 und die Bilder 14 bis 16 geben die entsprechenden Ergebnisse wieder.

Tabelle 4:

Höhenabhängigkeit von Freisetzungsanteilen in % für verschiedene Größenintervalle (AED) ohne Ventilation

Fallhöhe [m]	Größenintervall		
	< 10 µm*	10 µm ... 70 µm	> 70 µm
1	1,9 E-3	0,09	0,22
2	1,9 E-3	0,1	0,3
3	6,7 E-3	0,21	2,1
5	7,3 E-3	0,23	(2,6)

* respirable mass nach /See 87/

Tabelle 5:

Höhenabhängigkeit von Freisetzungsteilen in % für verschiedene Größenintervalle (AED) mit Ventilation

Fallhöhe [m]	Größenintervall		
	< 10 µm*	10 µm ... 70 µm	> 70 µm
1	7,7 E-3	0,078	0,53
2	0,015	0,13	0,9
3	6 E-3	0,16	1,53
5	0,017	0,32	6,9

* respirable mass nach /See 87/

Freigesetzter Kieselgurstaub(<10AED)

als Funktion der Fallhöhe

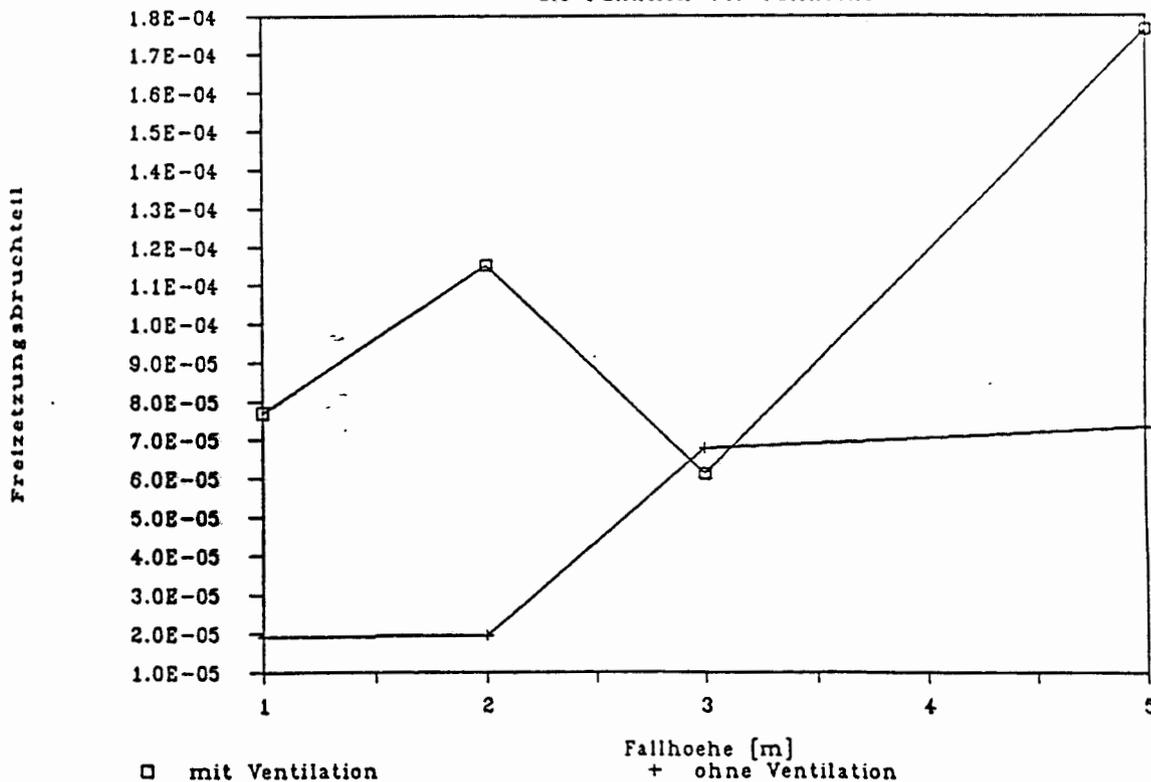


Bild 14:

Höhenabhängigkeit der Partikelfraktion < 10 µm (AED)

Freigesetzter Kieselgurstaub(<70AED)

als Funktion der Fallhoehe

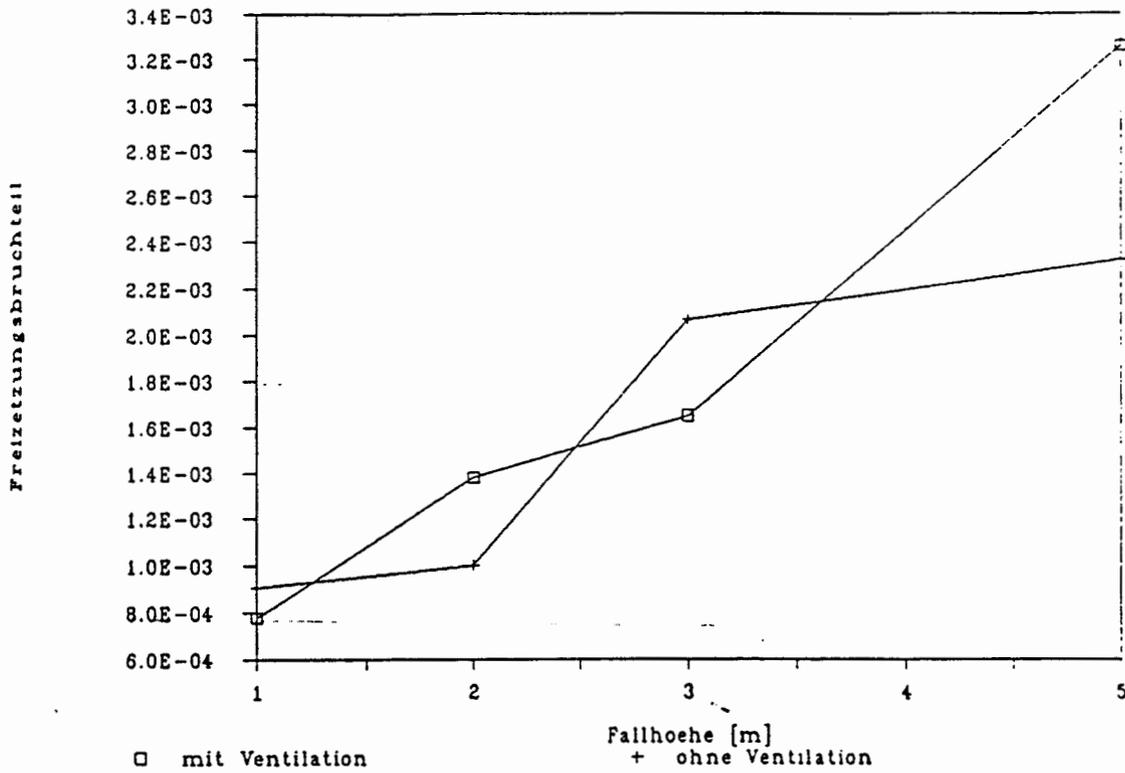


Bild 15:

Höhenabhängigkeit der Partikelfraktion 10 µm ... 70 µm (AED)

Freigesetzter Kieselgurstaub(>70AED)

als Funktion der Fallhoehe

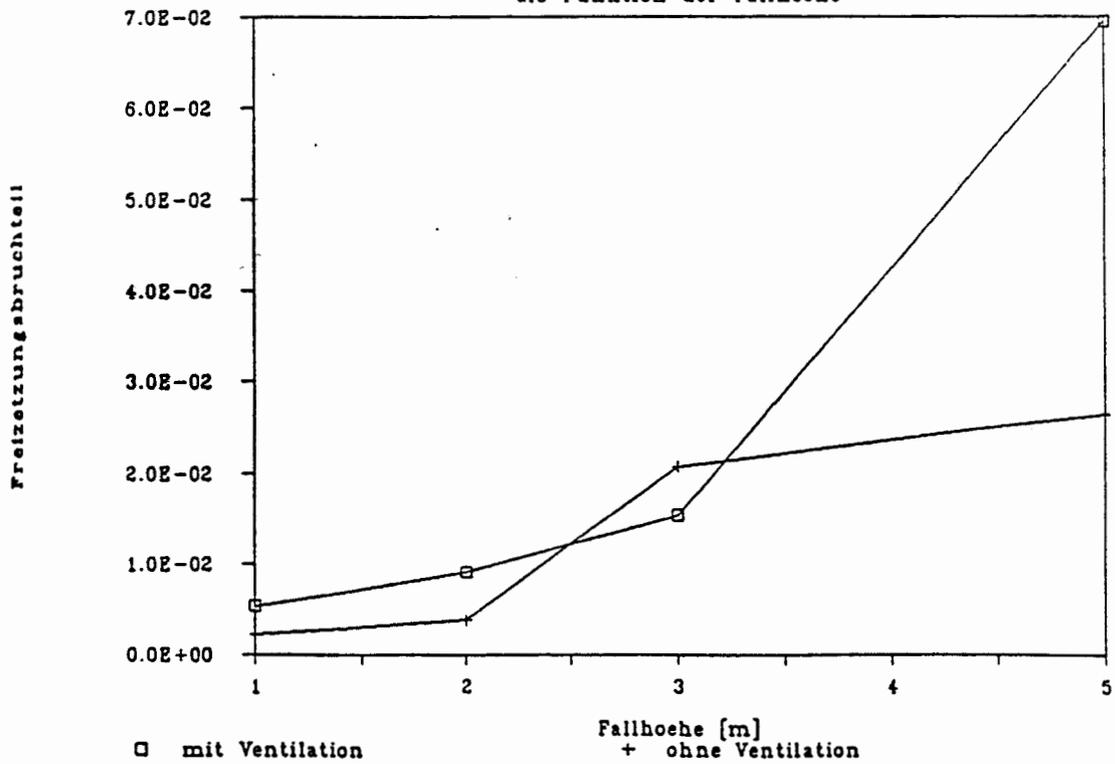


Bild 16:

Höhenabhängigkeit der Partikelfraktion > 70 µm (AED)

Die Ergebnisse geben für die zwei Fälle mit und ohne Ventilation deutlich den Trend wieder, daß mit zunehmender Fallhöhe die freigesetzten Anteile steigen. Außerhalb dieses Trends liegt der Versuch mit 3 m Fallhöhe mit Ventilation. Zu erklären ist diese Abweichung insbesondere durch Zufälligkeiten beim Aufprall des Behälters, siehe hierzu die Dokumentation des Aufpralls in /See 87/.

Die Quelltermbestimmung erfolgt für die Lastfälle

- 5 m-Fall mit Ventilation,
- 2 m-Fall mit Ventilation,
- 3 m-Fall ohne Ventilation,
- 1 m-Fall ohne Ventilation

und basiert auf den entsprechenden Ergebnissen der entsprechenden Untersuchungen für 1 kg Kieselgur.

Die Ergebnisse der Experimente für den Partikelgrößenbereich ca. $< 15 \mu\text{m}$ AED sind in Tabelle 6 aufgeführt. Die Spaltenüberschriften Versuch 6 usw. beziehen sich auf die Numerierung der Versuche in /See 87/. Es bedeuten:

- Versuch 6 : 5 m-Fall mit Ventilation,
- Versuch 20 : 2 m-Fall mit Ventilation,
- Versuch 10 : 3 m-Fall ohne Ventilation,
- Versuch 19 : 1 m-Fall ohne Ventilation.

In der ersten Hauptspalte stehen die Kanalnummer des Meßgerätes (APS) und die oberen Intervallgrenzen des jeweiligen Kanals in μm .

Die nächsten Spalten sind jeweils in drei Unterspalten gegliedert. Die erste - "CONCENTR. MASSE" - beinhaltet die volumenbezogene Konzentration im Intervall. Diese Werte werden während der Versuche direkt vom Meßgerät geliefert. Die in der Tabelle 6 aufgeführten Werte entsprechen den maximalen Werten während der ersten 10 Minuten nach Versuchsbeginn. In der nächsten Unterspalte - "MASSENSUMME" - sind die Massenkonzentrationen aufsummiert. Die dritte Spalte liefert die Freisetzunganteile als Massensumme bezogen auf die eingesetzte Masse.

KANAL-NUMMER	INTERV.-GRENZE	VERSUCH 6			VERSUCH 20			VERSUCH 10			VERSUCH 19		
		CONCENTR. MASSE MG/M ³	MASSEN SUMME MG/M ³	FREIS. ANTEIL %	CONCENTR. MASSE MG/M ³	MASSEN SUMME MG/M ³	FREIS. ANTEIL %	CONCENTR. MASSE MG/M ³	MASSEN SUMME MG/M ³	FREIS. ANTEIL %	CONCENTR. MASSE MG/M ³	MASSEN SUMME MG/M ³	FREIS. ANTEIL %
0	0.486	0.0000837	0.0000837	3.01E-07	0	0	0.00E+00	0.0000193	0.0000193	6.95E-08	0	0	0.00E+00
1	0.504	0.000125	0.0002087	7.51E-07	0.0000404	0.0000404	1.45E-07	0.0000651	0.0000844	3.04E-07	0	0	0.00E+00
2	0.542	0.000467	0.0006757	2.43E-06	0.0000501	0.0000905	3.26E-07	0.000242	0.0003264	1.18E-06	0	0	0.00E+00
3	0.582	0.00106	0.0017357	6.25E-06	0.0000618	0.0001523	5.48E-07	0.000473	0.0007994	2.88E-06	0	0	0.00E+00
4	0.626	0.00201	0.0037457	1.35E-05	0.000537	0.0006893	2.48E-06	0.000866	0.0016654	6.00E-06	0.0000384	0.0000384	1.38E-07
5	0.673	0.00275	0.0064957	2.34E-05	0.00163	0.0023193	8.35E-06	0.00163	0.0032954	1.19E-05	0.000239	0.0002774	9.99E-07
6	0.723	0.00253	0.0090257	3.25E-05	0.00297	0.0052893	1.90E-05	0.00215	0.0054454	1.96E-05	0.000416	0.0006934	2.50E-06
7	0.777	0.00372	0.0127457	4.59E-05	0.0045	0.0097893	3.52E-05	0.00215	0.0075954	2.73E-05	0.000591	0.0012844	4.62E-06
8	0.835	0.00451	0.0172557	6.21E-05	0.00733	0.0171193	6.16E-05	0.00264	0.0102354	3.68E-05	0.000916	0.0022004	7.92E-06
9	0.897	0.00564	0.0228957	8.24E-05	0.0083	0.0254193	9.15E-05	0.0024	0.0126354	4.55E-05	0.00125	0.0034504	1.24E-05
10	0.964	0.00953	0.0324257	1.17E-04	0.00945	0.0348693	1.26E-04	0.00507	0.0177054	6.37E-05	0.00169	0.0051404	1.85E-05
11	1.03	0.0115	0.0439257	1.58E-04	0.0131	0.0479693	1.73E-04	0.00486	0.0225654	8.12E-05	0.00193	0.0070704	2.55E-05
12	1.11	0.0124	0.0563257	2.03E-04	0.0156	0.0635693	2.29E-04	0.00809	0.0306554	1.10E-04	0.00261	0.0096804	3.48E-05
13	1.19	0.0218	0.0781257	2.81E-04	0.0213	0.0848693	3.06E-04	0.00807	0.0387254	1.39E-04	0.0035	0.0131804	4.74E-05
14	1.28	0.0252	0.1033257	3.72E-04	0.0207	0.1055693	3.80E-04	0.0141	0.0528254	1.90E-04	0.00669	0.0198704	7.15E-05
15	1.38	0.0385	0.1418257	5.11E-04	0.0278	0.1333693	4.80E-04	0.026	0.0788254	2.84E-04	0.00623	0.0261004	9.40E-05
16	1.48	0.0498	0.1916257	6.90E-04	0.0278	0.1611693	5.80E-04	0.0206	0.0994254	3.58E-04	0.00721	0.0333104	1.20E-04
17	1.59	0.0811	0.2727257	9.82E-04	0.0384	0.1995693	7.18E-04	0.0244	0.1238254	4.46E-04	0.00639	0.0397004	1.43E-04
18	1.71	0.118	0.3907257	1.41E-03	0.0507	0.2502693	9.10E-04	0.0475	0.1713254	6.17E-04	0.0174	0.0571004	2.06E-04
19	1.84	0.15	0.5407257	1.95E-03	0.0708	0.3210693	1.16E-03	0.0697	0.2410254	8.68E-04	0.0128	0.0699004	2.52E-04
20	1.98	0.202	0.7427257	2.67E-03	0.0989	0.4199693	1.51E-03	0.104	0.3450254	1.24E-03	0.0183	0.0882004	3.18E-04
21	2.12	0.255	0.9977257	3.59E-03	0.139	0.5589693	2.01E-03	0.116	0.4610254	1.66E-03	0.0364	0.1246004	4.49E-04
22	2.28	0.41	1.4077257	5.07E-03	0.184	0.7429693	2.67E-03	0.183	0.6440254	2.32E-03	0.0244	0.1490004	5.36E-04
23	2.45	0.525	1.9327257	6.96E-03	0.198	0.9409693	3.39E-03	0.139	0.7830254	2.82E-03	0.0257	0.1747004	6.29E-04
24	2.64	0.631	2.5637257	9.23E-03	0.252	1.1929693	4.29E-03	0.205	0.9880254	3.56E-03	0.0347	0.2094004	7.54E-04
25	2.83	0.9	3.4637257	1.25E-02	0.438	1.6309693	5.87E-03	0.252	1.2400254	4.46E-03	0.0575	0.2669004	9.61E-04
26	3.05	1.03	4.4937257	1.62E-02	0.464	2.0949693	7.54E-03	0.27	1.5100254	5.44E-03	0.0758	0.3427004	1.23E-03
27	3.27	1.21	5.7037257	2.05E-02	0.564	2.6589693	9.57E-03	0.335	1.8450254	6.64E-03	0.0609	0.4036004	1.45E-03
28	3.52	1.41	7.1137257	2.56E-02	0.639	3.2979693	1.19E-02	0.289	2.1340254	7.68E-03	0.0824	0.4860004	1.75E-03
29	3.78	1.62	8.7337257	3.14E-02	0.707	4.0049693	1.44E-02	0.341	2.4750254	8.91E-03	0.136	0.6220004	2.24E-03
30	4.06	1.88	10.6137257	3.82E-02	0.846	4.8509693	1.75E-02	0.323	2.7980254	1.01E-02	0.0952	0.7172004	2.58E-03
31	4.37	1.74	12.3537257	4.45E-02	0.774	5.6249693	2.02E-02	0.267	3.0650254	1.10E-02	0.144	0.8612004	3.10E-03
32	4.69	1.98	14.3337257	5.16E-02	0.782	6.4069693	2.31E-02	0.377	3.4420254	1.24E-02	0.212	1.0732004	3.86E-03
33	5.04	1.96	16.2937257	5.87E-02	1.09	7.4969693	2.70E-02	0.273	3.7150254	1.34E-02	0.182	1.2552004	4.52E-03
34	5.42	1.95	18.2437257	6.57E-02	0.978	8.4749693	3.05E-02	0.388	4.1030254	1.48E-02	0.226	1.4812004	5.33E-03
35	5.82	2.51	20.7537257	7.47E-02	0.747	9.2219693	3.32E-02	0.518	4.6210254	1.66E-02	0.187	1.6682004	6.01E-03
36	6.26	2.73	23.4837257	8.45E-02	1.24	10.4619693	3.77E-02	0.373	4.9940254	1.80E-02	0.0386	1.7068004	6.14E-03
37	6.73	3.21	26.6937257	9.61E-02	0.862	11.3239693	4.08E-02	0.549	5.5430254	2.00E-02	0.24	1.9468004	7.01E-03
38	7.23	2.8	29.4937257	1.06E-01	0.832	12.1559693	4.38E-02	0.508	6.0510254	2.18E-02	0.0595	2.0063004	7.22E-03
39	7.77	3.59	33.0837257	1.19E-01	1.4	13.5559693	4.88E-02	0.505	6.5560254	2.36E-02	0.0738	2.0801004	7.49E-03
40	8.35	3.4	36.4837257	1.31E-01	0.549	14.1049693	5.08E-02	0.656	7.2120254	2.60E-02	0	2.0801004	7.49E-03
41	8.97	3.69	40.1737257	1.45E-01	1.48	15.5849693	5.61E-02	1.25	8.4620254	3.05E-02	0.227	2.3071004	8.31E-03
42	9.64	3.83	44.0037257	1.58E-01	0.846	16.4309693	5.92E-02	0.141	8.6030254	3.10E-02	0.282	2.5891004	9.32E-03
43	10.2	5.3	49.3037257	1.77E-01	1.05	17.4809693	6.29E-02	2.1	10.7030254	3.85E-02	0.35	2.9391004	1.06E-02
44	11.1	7.48	56.7837257	2.04E-01	1.95	19.4309693	7.00E-02	1.36	12.0630254	4.34E-02	0	2.9391004	1.06E-02
45	11.9	7.14	63.9237257	2.30E-01	1.35	20.7809693	7.48E-02	0.741	12.8040254	4.61E-02	0	2.9391004	1.06E-02
46	12.8	5.44	69.3637257	2.50E-01	2.01	22.7909693	8.20E-02	1.91	14.7140254	5.30E-02	0.334	3.2731004	1.18E-02
47	13.8	4.98	74.3437257	2.68E-01	1.66	24.4509693	8.80E-02	1.68	16.3940254	5.90E-02	0.83	4.1031004	1.48E-02
48	14.8	12.9	87.2437257	3.14E-01	2.06	26.5109693	9.54E-02	4.25	20.6440254	7.43E-02	0.515	4.6181004	1.66E-02
49	15.4	12.1	99.3437257	3.58E-01	0	26.5109693	9.54E-02	1.92	22.5640254	8.12E-02	0	4.6181004	1.66E-02

Ergebnisse der Freisetzungsforschungen im Partikel-
 Größerenbereich < 15 µm
 Tabelle 6:

Die Werte der Massenkonzentration gelten für eine Partikeldichte von $1\ 000\ \text{kg/m}^3$. Eine volumenometrische Dichtebestimmung der Partikel ergibt einen Wert von ca. $1\ 800\ \text{kg/m}^3$. Dies bedeutet, daß die Partikelspektren zu größeren Teilchen verschoben werden bzw. daß die angegebenen Werte abdeckend sind. Angesichts der bereits erwähnten Problematik der Umrechnung von Partikeldurchmessern über die Dichte wird von diesem Effekt kein Kredit genommen.

Neben diesen Ergebnissen im Partikelgrößenbereich $< 15\ \mu\text{m}$ existieren noch Meßwerte für Partikel mit einem AED $\leq 70\ \mu\text{m}$ und $> 70\ \mu\text{m}$ /See 87/, vergl. Tabelle 2 und 3. Während der Meßwert AED $> 70\ \mu\text{m}$ nur eingeschränkt aussagekräftig ist, da dieser Massensummenhäufigkeit keine eindeutige unabhängig veränderliche Variable zugeordnet werden kann, kann der Meßwert $< 70\ \mu\text{m}$ zur Quelltermbestimmung mit herangezogen werden.

Bild 17 zeigt neben der aerodynamisch ermittelten Partikelverteilung der Kieselgurschüttung die Partikelspektren des bei den relevanten Untersuchungen dispergierten Kieselgurs, wobei der gestrichelte Teil des Spektrums $> 70\ \mu\text{m}$ aufgrund der obengenannten Unsicherheiten nur qualitativen Aussagewert besitzt.

Für die radiologischen Rechnungen sind für den untertägigen 5 m-Fall und die obertägigen Lastfälle Angaben über den Spektrumsbereich bis $70\ \mu\text{m}$ AED notwendig, für die keine Meßwerte aus den Experimenten vorliegen. Für den untertägigen 1,75 m-Fall sind Partikel bis $100\ \mu\text{m}$ zu berücksichtigen. Wie aus Bild 17 hervorgeht, stellt eine lineare Interpolation zwischen dem $15,4\ \mu\text{m}$ -Wert und dem $< 70\ \mu\text{m}$ -Wert im log-normal-Wahrscheinlichkeitsmaßstab ein passendes Verfahren zur Ermittlung der Massensummenhäufigkeiten zwischen $15,4\ \mu\text{m}$ und $70\ \mu\text{m}$ dar.

Die Notwendigkeit eines modifizierten Vorgehens ergibt sich für Versuch 6. Hier liegt die maximale APS-Messung für die $15,4\ \mu\text{m}$ -Massensummenhäufigkeit über der durch Filtermessungen gewonnenen $70\ \mu\text{m}$ -Massensummenhäufigkeit, vgl. /See 87/. Zu erklären ist dies durch kurzfristiges Ansaugen von Schlieren mit der Folge einer Konzentrationsüberschätzung. Um Massenanteile in den Größenintervallen zwischen $15,4\ \mu\text{m}$ und $70\ \mu\text{m}$ zu erhalten, wird angenommen, daß der $15,4\ \mu\text{m}$ -Wert in gleicher Weise ansteigt wie die Massensummenhäufigkeiten beim Ver-

such 20, der ebenfalls mit Ventilation durchgeführt wurde. Diese Vorgehensweise bewirkt eine Überschätzung des Quellterms um ca. 60 %.

Wie aus den Ergebnissen des Experimentes 20 die Freisetzungsteile für den untertägigen 1,75 m-Fall bis 100 μm AED abgeleitet werden, soll anhand von Bild 18 erläutert werden.

Dargestellt sind in Bild 18 relative Anteile der Kieselgurausgangssubstanz und des beim Versuch 20 in der Kammer freigesetzten Kieselgurs für verschiedene Größenbereiche. Die Anteile der Kieselgurausgangssubstanz ergeben sich durch log-normal-Regression der Meßwerte in Bild 13. Relevante Parameter der Regression sind:

$$\begin{aligned} d'_m &= 5 \mu\text{m} \\ \sigma &= 5450 \end{aligned}$$

Wie aus Bild 18 hervorgeht, fallen die Anteile der Kieselgurausgangssubstanz im betrachteten Größenbereich monoton. Die durch Extrapolation in log-normal-Wahrscheinlichkeitsdarstellung gewonnenen Anteile der in der Kammer freigesetzten Substanz bis 70 μm folgt in etwa diesem Verhalten.

Zur Abschätzung der Anteile über 70 μm AED bieten sich insbesondere zwei Vorgehensweisen an:

1. Der differentielle Freisetzungsteil wird das Größenintervall 60 μm - 70 μm als Verhältnis des freigesetzten Anteils im Größenintervall berechnet. Das Resultat wird als differentieller Freisetzungsfaktor für die Größenintervalle von 70 μm - 100 μm übernommen. Die Ergebnisse sind normiert auf den maximalen differentiellen Freisetzungsteil für die Größenintervalle 70 μm - 80 μm , 80 μm - 90 μm und 90 μm - 100 μm als "freig. Anteile" in Bild 18 dargestellt.
2. Der differentielle freigesetzte Anteil des Größenintervalls 60 μm - 70 μm wird linear bis 100 μm extrapoliert, das heißt, in allen Größenintervallen von 70 μm - 100 μm liegt der gleiche differentielle freigesetzte Anteil vor. Die Ergebnisse sind als "konserv. Extrap." dargestellt.

(konservativ, weil die Ergebnisse höher liegen als die unter (1) berechneten Werte) in Bild 18 aufgeführt.

Tabelle 5 zeigt die Ergebnisse der vier relevanten Versuche für die jeweils radiologisch signifikanten Partikelbereiche. Die Werte von 70 μm - 100 μm für den 2 m-Fall mit Ventilation wurden nach 2. (siehe oben) ermittelt.

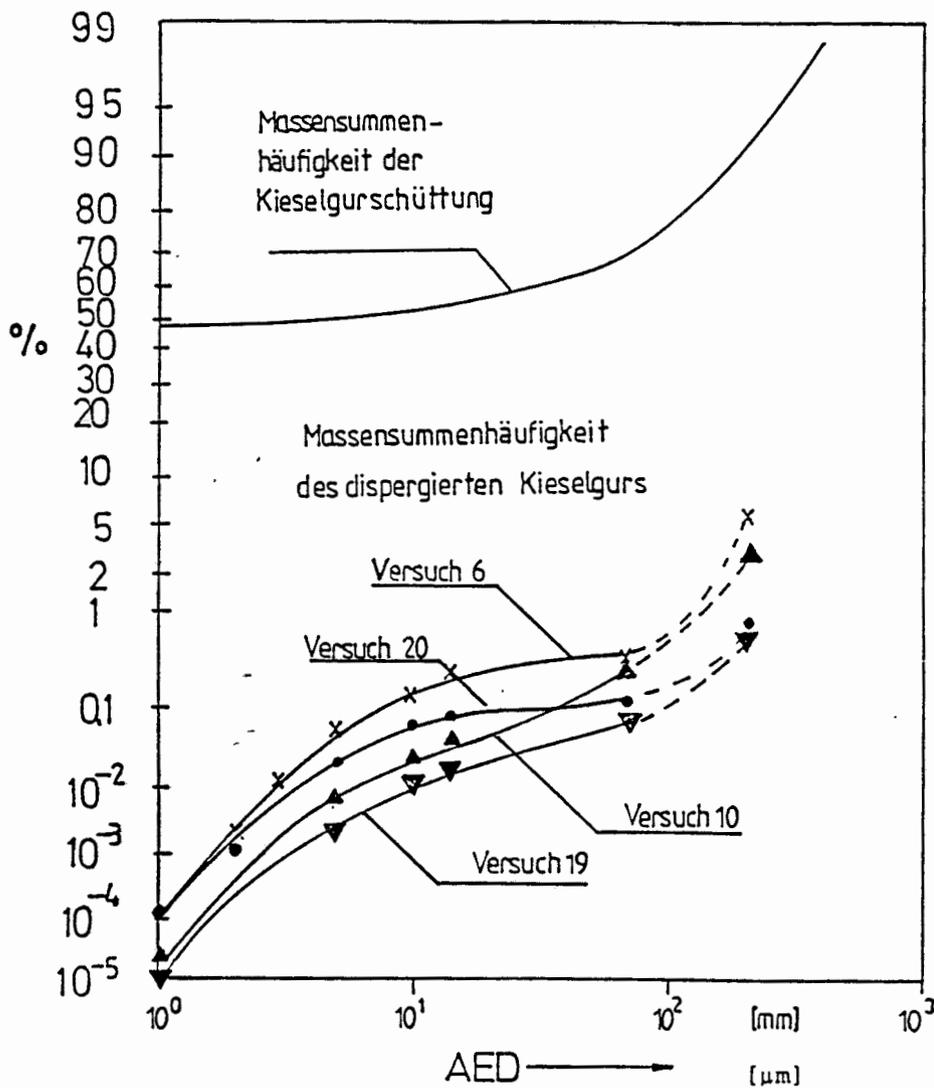


Bild 17:

Massensummenhäufigkeiten der Kieselgurschüttung und des dispergierten Kieselgurs in %

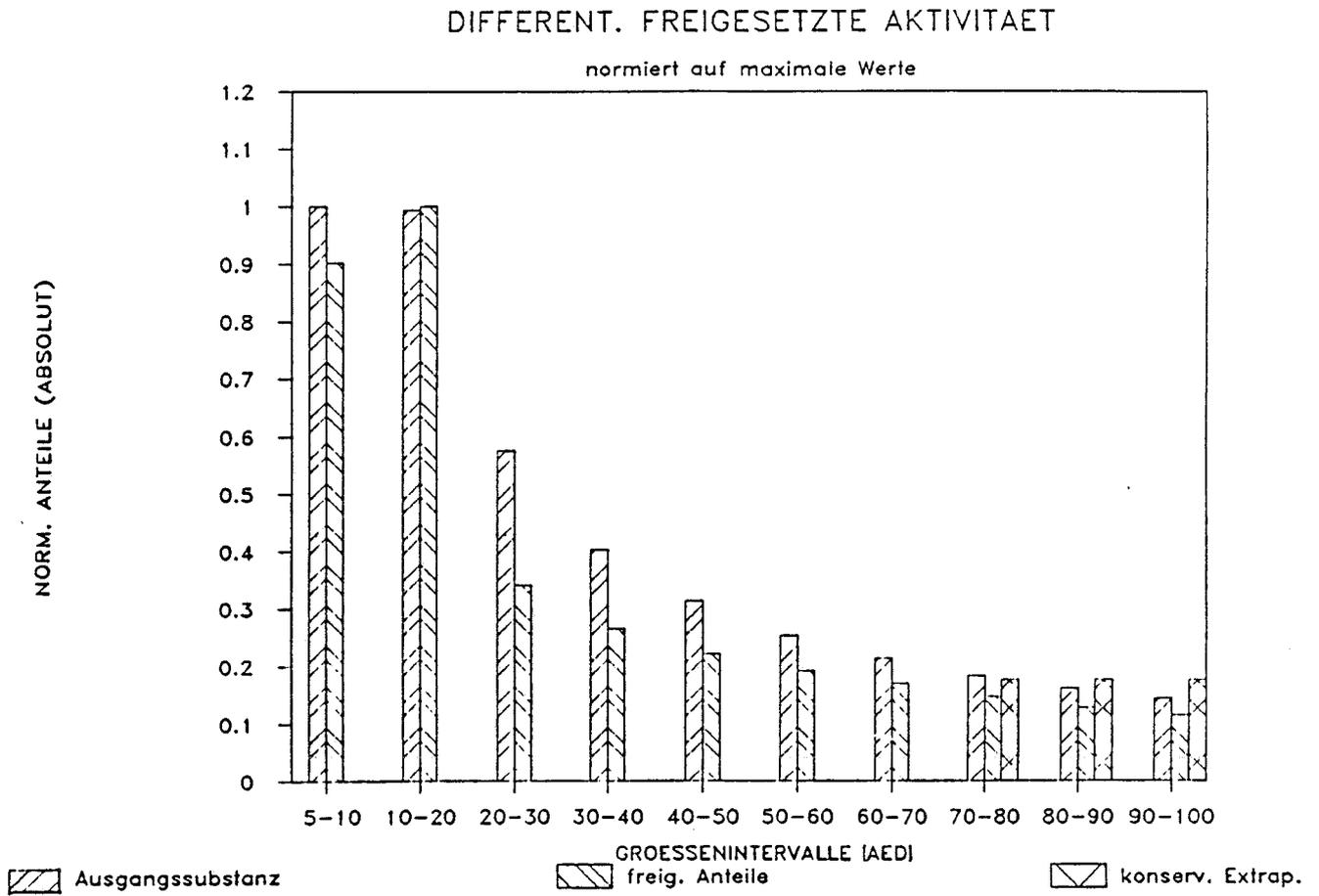


Bild 18: Anteile der Kieselgurausgangssubstanz und differenzielle Freisetzungsanteile in radiologisch relevanten Größenintervallen

Tabelle 7:

Größenabhängige Freisetzunganteile für die vier relevanten Lastfälle

Partikelgrößenbereich	5 m-Fall mit Vent. [%]	2 m-Fall mit Vent. [%]	3 m-Fall ohne Vent. [%]	1 m-Fall ohne Vent. [%]
< 5 µm	0,059	0,027	0,014	0,0045
< 10 µm	0,18	0,063	0,039	0,011
< 20 µm	0,39	0,103	0,10	0,022
< 30 µm	0,44	0,116	0,12	0,035
< 40 µm	0,48	0,127	0,15	0,05
< 50 µm	0,51	0,136	0,17	0,062
< 60 µm	0,54	0,143	0,19	0,078
< 70 µm*	0,56	0,15	0,21	0,092
< 80 µm	* *	0,157	* *	* *
< 90 µm	* *	0,164	* *	* *
< 100 µm	* *	0,171	* *	* *

* Dieser Wert wird gebildet aus der Summe m_F und m_2 der Tabelle 3 in /See 87/

4. VORGEHENSWEISEN UND ARBEITSHYPOTHESEN ZUR QUELLTERMBESTIMMUNG BEI ABFALLKLASSE I

Im folgenden wird im einzelnen ausgeführt, welche Vorgehensweisen den Ermittlungen der angegebenen Quellterme zugrunde liegen. Sofern auf Arbeitshypothesen zurückgegriffen werden muß, sind diese angegeben.

- Abfallproduktgruppen 01 und 02

An Abfälle der Abfallproduktgruppen 01 und 02 werden keine Anforderungen an Fixierung bzw. Immobilisierung des Abfallproduktes gestellt, so daß ein Abfallprodukt zulässig ist, welches ausschließlich aus

Pulver besteht. Da derzeit kein theoretisches Verfahren zur Umrechnung der experimentellen Randbedingungen auf reale Lastfälle verfügbar ist, werden die größenabhängigen Freisetzungsteile der Tabelle 7 direkt als Quellterme angesetzt. Hierbei wird der 1,20 m-Absturz im Sonderbereich durch den 1 m-Fall ohne Ventilation und der 1,75 m-Absturz im untertägigen Entladebereich durch den 2 m-Fall mit Ventilation abgedeckt. Die geringfügig verringerte Lastannahme beim 1 m-Fall wird durch die mit den experimentellen Untersuchungen verbundenen Konservatismen kompensiert.

- Abfallproduktgruppe 03

Zur Abfallproduktgruppe 03 zählen laut Definition Abfälle, die nur aus Metallteilen oder aus Werkstoffen von Einbauteilen eines Reaktors bestehen. Zum Zerkleinerungsverhalten derartiger Materialien liegen keine Untersuchungen vor, aufgrund allgemeiner Erfahrungen ist jedoch bekannt, daß zumindest Metallteile eine höhere Festigkeit aufweisen als zum Beispiel Zementprodukte und entsprechend schlechter zu zerkleinern sind. Für sonstige Materialien aus dem Reaktorkern läßt sich eine derartige Aussage nicht treffen, insbesondere da bei zerschnittenen SWR-Steurelementen Borcarbid pulverförmig vorliegen kann.

Die Abschätzung des freigesetzten Aktivitätsanteils aus Abfällen der Abfallproduktgruppe 03 bei mechanischer Beaufschlagung erfolgt daher anhand derartiger SWR-Steuerstäbe. Hierbei werden folgende Arbeitshypothesen zugrunde gelegt:

- Nach /UII 77/ beträgt die mittlere Körnung des Borcarbids ca. 100 μm . Während des Reaktorbetriebs verbackt das Borcarbid zu größeren Brocken /Gid 84/. Freigesetztes Borcarbid ist somit nicht relevant, da nur Partikel mit einem Durchmesser $< 70 \mu\text{m}$ in den radiologischen Rechnungen berücksichtigt werden müssen. Um mit dieser Betrachtung verbundene Unsicherheiten abzudecken, zum Beispiel die Möglichkeit, daß durch die mechanische Beaufschlagung oder beim Schneiden der Stäbe feine B_4C -Partikel entstehen können, wird konservativ unterstellt, daß die Partikelverteilung des Borcarbids (oder anderer pulverförmiger Anteile) durch die in Kapitel 2.2 spezifizierte Größenverteilung des Kieselgurs abgedeckt wird.

- Der Massenanteil an Borcarbid in einem Steuerstab beträgt weniger als 10 %Gew. Zur Bestimmung des pulverförmig vorliegenden Aktivitätsanteils wird unterstellt, daß das Borcarbid-Pulver die gleiche nuklidspezifische spezifische Aktivität aufweist wie die sonstigen Steuerstabkomponenten. Diese Hypothese ist im Hinblick auf die radiologischen Auswirkungen konservativ, da die spezifische Aktivität aller Radionuklide, außer Tritium, im Borcarbid-Pulver überschätzt wird. Die Unterschätzung der Tritiumaktivität ist nicht relevant, da die Begrenzung der Tritiumaktivität im Abfall auf der Freisetzung im thermischen Lastfall mit einer 100 %-Tritiumfreisetzung basiert.
- Das Borcarbid wird in die Hüllrohre einvibriert. Dabei wird durch Stahlkugeln eine Unterteilung des Stabs vorgenommen, damit bei einem Hüllrohrschaden nur ein kleiner Teil des Absorbermaterials austreten kann. Diese Unterteilung führt in Kombination mit dem Effekt des Schwellens und Zusammenbackens des Absorbermaterials dazu, daß auch beim Schneiden der Steuerstäbe nur ein kleiner Prozentsatz des Absorbermaterials aus dem Hüllrohr freigesetzt wird. Zur Quelltermbestimmung wird unterstellt, daß insgesamt 10 % des Borcarbid-Pulvers beim Schneiden austritt.

Diese drei Arbeitshypothesen führen zu folgendem Quellterm:

1 % der Aktivität liegt im Behälter pulverförmig vor. Hierfür wird die Größenverteilung des Kieselgurs gemäß Kapitel 2.2 unterstellt. Als Quellterm für die pulverförmigen Anteile werden daher um einen Faktor 100 reduzierte Werte der Tabelle 7 herangezogen.

- Abfallproduktgruppe 04

Abfälle der Abfallproduktgruppe 04 müssen gemäß den Anforderungen an diese Abfallprodukte formstabil kompaktiert sein. Dies bedeutet nach /Gru 86/, daß maximal 1 % des Abfallproduktes mobil sein darf, zum Beispiel als Pulver außerhalb der verpreßten Kartusche.

Im Hinblick auf die Freisetzung im mechanischen Lastfall wird unterstellt, daß die erste Barriere, der Abfallbehälter, total versagt, die zweite Barriere jedoch, die plastisch sehr stark deformierten

Kartuschen, ihre Integrität soweit bewahrt, daß keine Aktivität freigesetzt wird. Somit steht für die Freisetzung lediglich der freie Aktivitätsanteil außerhalb des Preßlings zur Verfügung. Hierfür wird konservativ eine hundertprozentige Freisetzung unterstellt. Die unterstellte Obergrenze von 1 % bedeutet, daß zur Freisetzung mehr als die untersuchte Masse von 1 kg zur Verfügung steht. Damit können für die freisetzbare Masse die Freisetzungssanteile gemäß Tabelle 8 übernommen werden. Bezogen auf die gesamte Aktivität im Behälter bedeutet dies, daß als Quellterme im mechanischen Lastfall die Werte der Tabelle 7, reduziert um den Faktor 100, herangezogen werden können.

- Abfallproduktgruppe 05

Beim mechanischen Lastfall werden Abfälle der Abfallproduktgruppe 05, das heißt, zementierte, betonierte Abfallstoffe so zerkleinert, daß ausbreitungsfähige Partikel entstehen. Es wird unterstellt, daß die gesamte Radioaktivität aus dem Rohabfall in die Zementmatrix übergegangen ist, so daß die kleinen Zementpartikel Aktivitätsträger darstellen. Die Ermittlung der Größenverteilung dieser Zementpartikel erfolgt gemäß der Vorgehensweise in Kapitel 2.1.4 mit den Parametern

$$b = 0,023 \text{ J/cm}^2$$

$$\sigma = 11$$

für die abdeckende Modellkurve.

Berechnet man mit dieser Partikelverteilung die Strahlenexposition in der Umgebung, so resultieren Dosen, die bis zu 1 000 mal unter den Dosen durch den thermischen Lastfall liegen. Da dies bedeutet, daß das maximal zulässige Aktivitätsinventar im Abfallgebinde durch den thermischen Lastfall bestimmt wird, wird von dem in /See 87/ quantifizierten Anteil der in der Atmosphäre dispergierten Aktivität kein Kredit genommen.

- Abfallproduktgruppe 06

Abfälle der Abfallproduktgruppe 06 werden getrocknet und bilden in diesem Zustand einen festen Körper, der bezüglich der Zerkleinerungs-

eigenschaft zementierten Abfallstoffen ähnelt. In Ermangelung direkter Untersuchungen werden die Parameter der zementierten, betonierten Abfälle übernommen.

$$b = 0,023 \text{ J/cm}^2, \sigma = 11$$

Wie für die Abfallproduktgruppe 05 ausgeführt wurde, liegen auch im Falle der Abfallproduktgruppe 06 die Dosen durch das mit den obengenannten Parametern berechneten Partikelspektrum um bis zu einem Faktor 1 000 unter den für den thermischen Lastfall berechneten Dosen. Würde man den in /See 87/ experimentell untersuchten Effekt berücksichtigen, daß nur ein Bruchteil der ausbreitungsfähigen Partikel dispergiert und freigesetzt wird, würde sich die resultierende Strahlenexposition um einen weiteren Faktor 100 vermindern, vgl. Bild 17.

Insgesamt darf somit der Quellterm um bis zu ca. 5 Größenordnungen über dem mit den obengenannten Parametern ermittelten Partikelspektrum liegen, ohne daß es zu einer Überschreitung zulässiger Dosisgrenzwerte kommt. Diese Sicherheitsreserve dient der Abdeckung eventueller Unsicherheiten, die mit der Wahl der verwendeten, aber experimentell nicht abgesicherten Parameter zur Quelltermbestimmung verbunden ist.

5. FREISETZUNG AUS BEHÄLTERN DER ABFALLKLASSE II

Bei Behältern der Abfallklasse II wird unterstellt, daß bei den mechanischen Lastfällen ihre Integrität gewahrt bleibt. Dies bedeutet, daß Freisetzungen nur noch durch kleine Leckagen über definierte Gas- bzw. Molekularströmungen aus dem Behälter stattfinden bzw. anders ausgedrückt, daß der Druckabfall pro Zeiteinheit sehr klein ist.

Quantifiziert wird dies durch die Angabe der Leckrate, aus der sich entsprechend den Gesetzen der Thermodynamik sowohl der Druckabfall im Behälter als auch die Ausströmrates aus dem Behälter bestimmen läßt. In Anlehnung an die Anforderungen von Typ-B-Behältern gemäß den Bestimmungen der GGVS /GGV 79/ wird nach /PTB 86/ für Behälter der Abfallklasse II eine maximale Leckrate von $< 10^{-4} \text{ Pa m}^3\text{s}^{-1}$ (bezogen auf

Standardbedingungen wie bei der Dichtheitsprüfung nach der Vakuummethode) zugelassen. Diese maximal zugelassene Leckrate stellt sicher, daß die infolge mechanischer Beaufschlagung freigesetzte Aktivität erheblich unter der infolge thermischer Beaufschlagung freigesetzten Aktivität liegt. Dies wird auf der Basis der folgenden konservativen Arbeitshypothesen gezeigt:

- das Abfallprodukt besteht ausschließlich aus dispergierbaren Partikeln mit einem AED $< 10 \mu\text{m}$. Dies ist konservativ, weil nur derartig kleine Partikel durch das mögliche Leck passen und somit die gesamte Aktivität zur Freisetzung beitragen kann.
- Die Produktmasse beträgt maximal 50 kg. Dies ist konservativ, weil eine so kleine Masse nur bei einem einzigen Behältertyp vorkommen kann (Typ I 15/12) und somit bei allen anderen Behältern die spezifische Aktivität (Bq/g) überschätzt wird.
- Die Aktivität ist homogen auf die Abfallmasse verteilt.
- Ablagerungen im Spalt während des Ausströmens werden nicht berücksichtigt.
- Es wird eine Freisetzungsdauer von 10 h unterstellt. Es ist davon auszugehen, daß dieser Zeitraum für Gegenmaßnahmen ausreicht.
- Der Behälterinnendruck durch Radiolysegasbildung und Aufheizung in der Sonne beträgt 0,2 MPa.

Gemäß diesen Arbeitshypothesen kann der Freisetzungsvorgang folgendermaßen beschrieben werden:

Durch die mechanische Beaufschlagung wird die gesamte Aktivität im Behälter dispergiert. Dies führt zu einer extrem hohen Aerosolkonzentration, die sich jedoch sehr schnell durch Sedimentations- und Koagulationsprozesse abbaut und die gegen einen Grenzwert konvergiert.

Infolge des Behälterüberdrucks strömt entsprechend der vorgegeben Leckrate ein kleiner Gasstrom aus dem Behälter, der die gleiche Aerosolkonzentration wie die Behälteratmosphäre besitzt. Aus dem zeitli-

chen Integral der ausgetragenen Aerosolmasse und der spezifischen Aktivität ergibt sich die freigesetzte Aktivität.

Eine zeitabhängige Aerosolkonzentration wird zum Beispiel in einer experimentellen Untersuchung in /Mis 76/ beschrieben. Hierbei wurden zunächst 4,5 kg feinpulveriges UO_2 Pulver in einem Volumen von ca. 3 l dispergiert und anschließend wurde die Aerosolkonzentration gemessen. Es ergaben sich die folgenden Werte:

Anfangskonzentration:	100 g/m ³
Konzentration nach 100 s:	$3,3 \cdot 10^{-2}$ g/m ³
Konzentration nach 1 000 s:	$3 \cdot 10^{-3}$ g/m ³

Der Wert der Anfangskonzentration entspricht einer molbezogenen Konzentration von 1,12 g/mol für ein Molvolumen von 11,2 m³/kmol bei einem Behälterinnendruck von 0,2 MPa. Anhand dieser hohen Anfangskonzentration, die physikalisch nicht stabil ist, kann bereits gezeigt werden, daß die Freisetzungsteile des thermischen Lastfalls nicht erreicht werden.

Die Umrechnung der Leckrate auf den austretenden Molenstrom ergibt sich aus der Zustandsgleichung für ideale Gase:

$$L = \frac{d(pV)}{dt}$$

mit

$$pV = n \cdot R \cdot T$$

p = Druck

V = Volumen

n = Molzahl

R = allgemeine Gaskonstante

T = Temperatur [K]

hieraus folgt

$$\frac{dn}{dt} = \frac{L}{RT}$$

bzw.

$$1\text{E-}4 \text{ Pa m}^3 \text{ s}^{-1} = 4 \text{ E-}8 \text{ mol s}^{-1} \text{ für } T = 300 \text{ K}$$

Mit der Aerosolkonzentration von 1,12 g/mol im Behälter und diesem Molenstrom ergibt sich als gesamt ausgetragene Masse:

$$\begin{aligned} m &= 4 \text{ E-8} \cdot 1,12 \cdot 36 \text{ 000} \\ &= 1,6 \text{ E-3 g} \end{aligned}$$

Das Verhältnis der ausgetragenen Masse zur Gesamtmasse entspricht wegen der Voraussetzung der homogenen Aktivitätsverteilung dem freigesetzten Aktivitätsanteil:

$$f = \frac{1,6 \text{ E-3}}{50 \text{ 000}} = 3 \text{ E-8}$$

Dieser Wert bleibt erheblich unter dem für den thermischen Lastfall ermittelten Freisetzunganteil. Damit ist der thermische Lastfall bestimmend für die Ableitung des zulässigen Aktivitätsinventars.

6. ZUSAMMENFASSUNG

Im vorliegenden Anhang wird die Vorgehensweise bei der Quelltermbestimmung für mechanische Lastfälle beschrieben.

Ausgehend von theoretischen Grundlagen zur Bildung und Beschreibung von Partikelsystemen wird zunächst auf die Quelltermbestimmung der Abfallklasse I eingegangen. Bei den Abfallproduktgruppen 01, 02, 03 und 04 wird unterstellt, daß die freigesetzte Aktivität durch dispergierbare Bestandteile im Abfallprodukt bestimmt wird. Hierbei basieren Partikelverteilung und Dispersionsverhalten auf experimentellen Untersuchungen.

Demgegenüber wird bei den Abfallproduktgruppen 05 und 06 angenommen, daß die dispergierbare Aktivität erst durch die mechanische Beaufschlagung gebildet wird. Zur Bestimmung der Partikelverteilung wird ein halbempirisches Berechnungsverfahren abgeleitet. Es wird unterstellt, daß die gesamte durch mechanische Beaufschlagung gebildete dispergierbare Aktivität freigesetzt wird.

Im Falle der Aktivitätsfreisetzung aus Abfallgebinden der Abfallklasse II infolge mechanischer Beaufschlagung kann anhand eines einfachen konservativen Modells gezeigt werden, daß der mechanische Lastfall durch den thermischen Lastfall abgedeckt ist.

7. LITERATUR

- /Bek 64/ Bekle, B.
Principles of Communiton
Akademiai Kirade, Budapest, 1964
- /Den 76/ Dennis, R.
Handbook on Aerosols
Technical Information Center Energy Research
and Development Administration, TID-26608,
1976
- /GGV 79/ GGVS
Gefahrgutverordnung Straße
Anlagen A und B zur Verordnung über die
Beförderung gefährlicher Güter auf der Straße
Anlagenband zum Bundesgesetzblatt, Teil II, Nr. 55,
1979
- /Gid 84/ Gidarakos, E.
Verhalten von Tritium in B_4C -Absorbermaterial
Chem.-Ing.-Tech. MS 1301/84
- /Gru 86/ D. Gründler, et al.
Systemanalyse KONRAD, Teil 3
Beschreibung und Quantifizierung von Kenngrößen und
Ableitung zweckmäßiger Maßnahmen zur Produktkontrolle
GRS-A-1313, Dezember 1986
- /Hei 76/ Heiskanen, K.
A Method to Calculate Communiton Energies of Particle
Distributions
in: Dechema-Monographien, Band 79, Nr. 1576-1588,
Teil A/2m Verlag Chemie, Weinheim, 1976
- /Mis 76/ Mishima, J.
Potential Aerosol Generation Mechanismus
from Damaged Shipping Packages
IAEA-SR-10/15, Wien, 1976

- /NUK 84/ NUKEM GmbH
Neue Ergebnisse zur Freisetzung aus radioaktiven
Abfällen bei mechanischer und thermischer Belastung
Anhang zu FUE 84010, Hanau, 1984
- /PTB 86/ Physikalisch-Technische Bundesanstalt
Plan - Endlager für radioaktive Stoffe -
Schachtanlage KONRAD - Salzgitter (Stand 3/1986)
- /Räm 79/ Rämö, E., et al
Damage of Reactor Waste Packages in Transport
Accidents
NKA, AO (79) 17, 1979
- /Rem 74/ Remenyi, Karoly
The Theorie of Grindability and the comminution
of binary mixtures
Akademiai Kiado, Budapest, 1974
- /Rum 72/ Rumpf, H.
Zerkleinern
in: Ullmanns Encyklopadie der technischen
Chemie, Band 2, Ausgabe 1972
- /SAN 83/ SANDIA
Analysis, Scale Modeling and Full-Scale Tests
of Low-Level Nuclear Waste Drum Responseto
Accident Environments
SAND 80-2517, TTC 0315, Sandia National Laboratories,
January 1983
- /See 82/ Seehars, H.D., Hochrainer, D.
Durchführung von Experimenten zur Unterstützung
der Annahmen zur Freisetzung von Plutonium bei
einem Flugzeugabsturz
BMI-Auftrag SR 0205 A
FhG ITA, Graftschaft, 1982

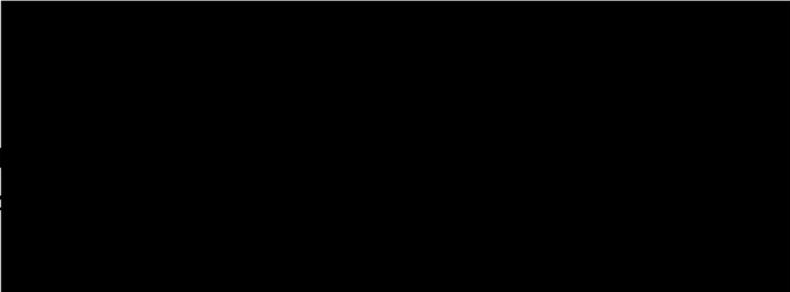
- /See 87/ H.D. Seehars, et al.
 Experimente zur Freisetzung und Quelltermbestimmung
 bei mechanischer Belastung von mit pulvrigen Sub-
 stanzen gefüllten Abfallbehältern
 Fraunhofer-Institut für Umweltchemie und Ökotoxi-
 kologie, Schmalleberg-Grafschaft, Juli 1987
- /TN 84a/ TRANSNUKLEAR GmbH
 Siebanalysen von radioaktiven Pulverharzen
 TN 8450, Hanau, April 1984
- /TN 84b/ TRANSNUKLEAR GmbH
 Volumenreduktion radioaktiver Betriebsabfälle
 TN 8434, Hanau, April 1984
- /Ull 67/ Ullmann, H.
 Mechanische Verfahrenstechnik
 Springer, Berlin-Heidelberg-New York, 1967
- /Ull 77/ Ullmanns
 Encyklopädie der technischen Chemie
 Band 14
 Verlag Chemie, Weinheim, New York, 1977
- /Vej 83/ Vejmelka, P., et. al.
 Activity Release from Waste Packages Containing
 ILLW-Cemented Waste Forms Under Mechanical and
 Thermal Stresses
 CEC-Seminar: Testing, Evaluation and Shallow Land
 Burial of Low and Medium Radioactive Waste Forms
 Geel, Belgium, 28-29 September, 1983
- /Wal 76/ Wallace, R.M., et al.
 An Impact Test for Solid Waste Forms
 E.I. Du Pont de Nemours and Company
 Savannah River Laboratory
 Aiken, South Carolina
 March 1976

VERTEILER:

Physikalisch-Technische Bundesanstalt,
Braunschweig (5 x)

GRS

Geschäftsführer
Bereichsleiter
Projektbetreuung
Abteilungsleiter
Autor



Gesamtauflage: 21 x