

Recherche und Aufbereitung bestehender Erkenntnisse zur chemischen Iodzusammensetzung bei schweren Unfällen in ausländischen Kernkraftwerken zur Bewertung ihrer Relevanz für die Quellterm- und Dosisermittlung



Gesellschaft für Anlagenund Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH

Recherche und Aufbereitung bestehender Erkenntnisse zur chemischen Iodzusammensetzung bei schweren Unfällen in ausländischen Kernkraftwerken zur Bewertung ihrer Relevanz für die Quellterm- und Dosisermittlung

Michael Hage Anna Rempel Martin Sogalla

Juli 2024

Anmerkung:

Das diesem Bericht zugrunde liegende Forschungsvorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz, nukleare Sicherheit und Verbraucherschutz (BMUV) unter dem Förderkennzeichen 3623S62518 durchgeführt.

Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt bei der GRS.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung der GRS wieder und muss nicht mit der Meinung des BMUV übereinstimmen.

Deskriptoren effektive Dosis, Filter, Freisetzungen, Iod, Iodchemie, schwere Unfälle, Ventingsystem

Kurzfassung

Bei einem schweren Unfall in einem Kernkraftwerk mit potenziellen Radionuklidfreisetzungen in die Umgebung können neben Edelgasen und Cäsium vor allem lodfreisetzungen radiologisch relevant sein. Die lodfreisetzungen können dabei sowohl aerosolförmig sein als auch gasförmig auftreten. Der gasförmige lodanteil kann seinerseits sowohl in elementarer Form als auch in chemischer Verbindung, insbesondere in organischer Form vorliegen.

Für eine generische Anlage wurden prozentuale Zusammensetzungen der lodfreisetzung für eine exemplarische gefilterte Freisetzung in die Umgebung ermittelt. Diese lodfreisetzungen wurden genutzt, um die effektive Dosisbelastung über Inhalation und Bodenstrahlung für unterschiedliche lodzusammensetzungen zu bewerten.

Abstract

In the event of a severe nuclear accident in a nuclear power plant (NPP) with potential radionuclide releases into the environment, iodine release next to noble gases and cesium can play a major role in radiology. The iodine release can be in form of aerosols as well as in gaseous form, i. e. in elemental or in organic form.

Percentage compositions of iodine releases into the environment after a filtered venting event for a generic NPP have been determined. These iodine releases have been used to evaluate the effective doses for inhalation and ground radiation for different compositions of iodine.

Inhaltsverzeichnis

	KurzfassungI
	AbstractII
1	Einleitung und Ziel der Arbeiten1
2	Aktuelle Erkenntnisse über lod und die zugrundeliegende Iodchemie bei spezifischen, schweren Unfällen
2.1	Chemische Formen von lodfreisetzungen im Verlauf eines schweren Unfalls3
2.2	Aktuelle Forschungen zur Iodchemie7
2.3	lodzusammensetzung bei einem schweren Unfall (Ventingszenario nach LOCA-Fall)8
2.4	Berücksichtigung von Venting-Szenarien bei der anlagenexternen Notfallschutz Planung10
3	Analyse von Daten/Vorgehensweisen und Ergänzung des
	Kenntnisstands über Rückhaltesysteme und Filterwirkungen 13
3.1	Aufbau und Funktionsweise eines exemplarischen Ventingsystems 13
3.1.1	Allgemeine Trocken- und Nassfiltersysteme in Filtern
3.1.2	Spezifisches Sandbett-Filtersystem16
3.1.3	Mögliche Variationen der Zusammensetzung von lodfreisetzungen21
4	Vergleich von internationalen Analyseergebnissen mit aktuellen GRS-Erkenntnissen25
4.1	IRSN Untersuchungen für französische P4/Pʻ4 Anlagen (1300 MWe Klasse)
4.2	Ergebnisse aus Untersuchungen für DWR-Konvoi Anlagen27
4.2.1	Besonderheiten der zugrundeliegenden Simulationen
4.3	Ergebnisse aus PHEBUS Experimenten (PHEBUS-FPT1 Versuch) 32
5	Bewertung der Relevanz für die Quellterm- und Dosisermittlung 37
5.1	Relevanz für die freigesetzte Gesamtmenge von lod in die Umgebung 38

5.2	Relevanz für die Ausbreitung/ Deposition und die Strahlenexposition	.41
5.2.1	Ausbreitungsmodellierung	. 42
5.2.2	Variation relevanter Parameter	. 42
5.2.3	Randbedingungen der generischen ARTM Ausbreitungsrechnungen	.43
5.2.4	Ergebnisse	.45
5.3	Fazit der Rechnungen	. 54
6	Zusammenfassung und Ausblick	. 57
	Literaturverzeichnis	. 59
	Abkürzungsverzeichnis	. 67
	Abbildungsverzeichnis	. 69
	Tabellenverzeichnis	.71

1 Einleitung und Ziel der Arbeiten

Die im allgemeinen Notfallplan des Bundes dargestellte Auflistung von Referenzszenarien für die Notfallvorsorge nach Maßgabe des Strahlenschutzgesetzes deckt ein umfassendes Spektrum möglicher radiologischer Notfälle ab. Innerhalb dieses Szenarienspektrums liegen nach gegenwärtigem Stand von Wissenschaft und Technik Analysen mit z. T. unterschiedlicher Detailtiefe für die große Anzahl potenziell relevanter Freisetzungsmechanismen und Ereignisse, die zu Notfallexpositionssituationen führen können, vor. Im Rahmen des Forschungsvorhabens 3619S62586 wurden die verfügbaren Kenntnisse in Bezug auf die Belange der Notfallvorsorge zusammengeführt, aufbereitet und anschließend in Bezug auf ihre Relevanz für die Arbeit des Team Strahlenschutz des GRS-Notfallzentrums bewertet. Im Forschungsvorhaben 3622S62587 werden ausgewählte Ereignisse aus dem Spektrum des Referenzszenariums S3 "Kernkraftwerk im übrigen Europa" des allgemeinen Notfallplans des Bundes für den Notfallschutz zum Ausbau der Wissensbasis des Team Strahlenschutz für den Einsatz im Notfall im Detail bewertet. Neben Ereignisabläufen stehen dort auch Freisetzungspfade sowie zugehörige Freisetzungen von radiologisch relevanten Edelgasen sowie Cäsium und lod im Mittelpunkt der Arbeiten.

Bei bestimmten Ereignisabläufen in einem Kernkraftwerk (KKW), z. B. einem schweren Unfall mit Radionuklidfreisetzungen in die Umgebung, können neben Edelgasen und Cäsium vor allem lodfreisetzungen radiologisch relevant sein. Die lodfreisetzungen können dabei aerosolförmig oder gasförmig auftreten. Der gasförmige lodanteil kann seinerseits sowohl in elementarer Form als auch in chemischer Verbindung, insbesondere in organischer Form (im Folgenden auch als Organoiod bezeichnet) vorliegen.

Die Strahlenschutzkommission (SSK) beschreibt in ihrer Empfehlung "Radiologische Grundlagen für Entscheidungen über Maßnahmen zum Schutz der Bevölkerung bei unfallbedingten Freisetzungen von Radionukliden" in der zugehörigen Anlage "Verwendung von Jodtabletten zur Jodblockade der Schilddrüse bei einem kerntechnischen Unfall" /SSK 19a/:

"Zu den Spaltprodukten, die beim Betrieb von Kernreaktoren entstehen, gehören die verschiedenen radioaktiven Isotope des Jods. Sie nehmen wegen der biologischen Besonderheit des Jods, nämlich seiner Aufnahme in die Schilddrüse und den Einbau in die Schilddrüsenhormone, eine Sonderstellung ein. Da bei den in Kernreaktoren vorhandenen Temperaturen das Jod in gasförmigem Zustand vorliegt, muss bei Unfällen unter

1

ungünstigen Umständen mit der Abgabe von radioaktivem Jod in die Luft gerechnet werden. Dieses radioaktive Jod wird sich zum größten Teil auf dem Boden und auf Pflanzen niederschlagen. Von dort kann es mit den Nahrungsmitteln, insbesondere mit der Milch, in den Menschen gelangen. Radioaktives Jod kann aber auch mit der Atemluft aufgenommen und in den Lungen resorbiert werden."

Vor diesem Hintergrund ist das Ziel dieses Forschungsvorhabens, den Kenntnisstand zur Variation der Zusammensetzung von lodfreisetzungen bei schweren Unfallabläufen zu ermitteln und insbesondere für Unfälle in grenznahen ausländischen Anlagen in Bezug auf seine Relevanz für die Quelltermprognose und -abschätzung sowie für die Dosisprognose und -rekonstruktion zu bewerten.

Für das GRS-Notfallzentrum sind die in diesem Forschungsvorhaben gewonnen Erkenntnisse von essenzieller Bedeutung. Im Rahmen dieses Forschungsvorhabens wird die Wissensbasis und Kompetenz für die Arbeit des Notfallzentrums der GRS erweitert und vervollständigt. Dadurch wird die Fähigkeit der GRS gestärkt, die Erstellung des radiologischen Lagebildes auch bei unvorhergesehen oder bisher in der Planung nicht im Detail berücksichtigten Entwicklungen zeitschnell und fundiert zu unterstützen.

2 Aktuelle Erkenntnisse über lod und die zugrundeliegende lodchemie bei spezifischen, schweren Unfällen

lodfreisetzungen können bei bestimmten Ereignisabläufen in kerntechnischen Anlagen, wie z. B. schwere Unfälle, in verschiedenen chemischen Formen vorliegen, sowohl schwebstoffgebunden in Aerosolform (z. B. Cäsiumiodid, CsI) als auch gasförmig in elementarer Form (I₂) bzw. in organischen Verbindungen (Organoiod, z. B. als CH₃I). Das Rückhaltevermögen technisch realisierbarer Filtersysteme kann sich für die verschiedenen chemischen Formen stark unterscheiden. Dabei ist insbesondere die Rückhaltung von Organoiod in Ventingfiltern je nach Bauart des Filters unter Umständen deutlich geringer als für aerosolförmiges oder elementares Iod /OECD 14/. Zudem unterscheiden sich die verschiedenen chemischen Formen des freigesetzten lods in Bezug auf ihr atmosphärisches Abreicherungs- und Ablagerungsverhalten in der Anlagenumgebung. Des Weiteren unterscheiden sich die lodspezies in Verbindung mit dem Inhalationspfad bezüglich ihrer Radiotoxizität. Daher können Unterschiede in der chemischen Zusammensetzung von lodfreisetzungen, insbesondere bei Abläufen mit einer gefilterten Druckentlastung des Containments, die resultierende Exposition maßgeblich beeinflussen. Aktuelle Untersuchungen z. B. in den Forschungsvorhaben 4718R01313 und 4719R01377 zeigen, dass die genaue Zusammensetzung des lods bei derartigen Unfallabläufen weiterer Untersuchungen bedarf.

Die im Folgenden dargestellten Zusammenhänge gelten im Grundsatz für alle Reaktortypen, da sie grundlegende physikalische Zusammenhänge und chemische Prozesse abbilden. Diese sind also auch auf alle grenznahen Anlagen übertragbar.

2.1 Chemische Formen von lodfreisetzungen im Verlauf eines schweren Unfalls

Im Verlauf eines entsprechenden Ereignisses, wie dem schweren Unfall in einem KKW, kann es in Abhängigkeit vom genauen Ablauf zu einer Freisetzung von Radionukliden in die Umgebung kommen. Dabei kann es neben der Freisetzung von sehr leicht flüchtigen, inerten Edelgasen (z. B. Kr-88 oder Xe-133) auch zur Freisetzung von Radionukliden in Form von leicht flüchtigen Aerosolen (z. B. Cs-137 oder Te-132) bzw. schwer flüchtigen Aerosolen kommen. Neben den bereits genannten Radionukliden wird vor allem Iod aufgrund seiner radiologischen Relevanz in der aktuellen Forschung betrachtet. Die Iodfreisetzungen können als Aerosolpartikel (z. B. Csl) oder gasförmig auftreten. Der

3

gasförmige Iodanteil kann seinerseits sowohl in elementarer Form (I₂) als auch in chemischer Verbindung, insbesondere in organischer Form (z. B. als Methyliodid CH₃I) vorliegen.

Im Folgenden werden neben den chemischen und physikalischen Eigenschaften von lod auch die Eigenschaften der aerosolförmigen-, elementaren und organischen lodspezies beschrieben.

lod

lod gehört der Gruppe der Halogene (17. Gruppe bzw. VII. Hauptgruppe des Periodensystems) an. lod liegt mit elektropositiven Partnern im Wesentlichen in der Oxidationsstufe –1 vor (z. B. K⁺ I⁻; HI) und mit elektronegativen Partnern hauptsächlich in den Oxidationsstufen +1 (z. B. IO⁻), +3 (z. B. IO₂⁻),+5 (z. B. IO₃⁻) und +7 (z. B. IO₄⁻) /HOL 07/. Diese Bandbreite macht lod zu einer der reaktivsten Spaltprodukte im Spektrum der gesamten Spaltprodukte, die bei einer Kernschmelze aus dem Kern z. B. in das Primärkühlsystem und schließlich in das Containment bzw. in die Umgebung gelangen können /GUE 09/.

Elementares lod

Elementares lod ist unter Normalbedingungen fest, schmilzt bei 113,60 °C zu einer braunen, elektrisch leitenden Flüssigkeit und siedet bei 185,24 °C unter Bildung eines violetten Dampfes. Trotz der hohen Siedetemperatur ist lod schon bei Zimmertemperatur merklich flüchtig und die Flüchtigkeit steigt stark mit einer Temperaturerhöhung. Elementares lod löst sich nur in geringen Mengen in Wasser (0,0013 mol in 1 Liter bei 25 °C) /HOL 07/. Im Wasser tritt die Hydrolyse des elementaren lods unter Ausbildung eines Gleichgewichts auf /WRE 00/:

 $I_2 + H_2 O \rightleftharpoons HOI + I^- + H^+$

In lodid-haltigem Wasser (z. B. wässrigen Lösungen von Kaliumiodid und von Iodwasserstoff) erhöht sich die Löslichkeit aufgrund der Bildung des Triiodids I_3^- (EI · $I_2 = EI_3$, E= Element z. B. K, H) /HOL 07/.

Das Löslichkeitsverhalten von Gasen in Flüssigkeiten wird nach dem Henry-Gesetz beschrieben. Das Henry-Gesetz besagt, dass der Partialdruck eines Gases über einer Flüssigkeit direkt proportional zur Konzentration des Gases in der Flüssigkeit ist /ATK 06/. Der Stoffübergang zwischen den beiden Phasen wird durch Diffusion und hauptsächlich durch natürliche Konvektion bestimmt, die durch thermische Gradienten hervorgerufen wird /OECD 07/.

 $I_{2 (g)} \rightleftharpoons I_{2 (aq)}$

Elementares lod ist ein reaktives Molekül, das eine Vielzahl an Reaktionen eingehen kann. Mit stark elektrophilen Elementen kann lod zu Salzen regieren, wie beispielsweise zu Csl. Elementares lod kann an Oberflächen adsorbiert werden. Bei der Physisorption wird das l₂ reversibel durch van-der-Waals-Wechselwirkungen an der Oberfläche gebunden, bei Temperaturerhöhung an der Oberfläche oder Verringerung der lodkonzentration wird das lod wiederum desorbiert. Der Bedeckungsgrad an der Oberfläche ist abhängig vom Partialdruck des freien Gases /ATK 06/. Reagiert das lodmolekül mit der Oberfläche unter Ausbildung einer chemischen Bindung, meist kovalent, wird l₂ irreversibel an die Oberfläche gebunden (Chemisorption) /ATK 06/. Besonders relevant sind hierbei lackierte Flächen, die als Senke für l₂ und als Quelle für flüchtiges organisches lod (ionisierende Strahlung beschleunigt die radiochemische Reaktion zwischen lod und Farbe) dienen /OECD 07/. Die relative Luftfeuchtigkeit hat ebenso einen großen Einfluss auf die lodabscheidungsrate an lackierten Oberflächen /OECD 12/. Auch in Wasser gelöstes molekulares lod kann mit eingetauchten Oberflächen reagieren oder an ihnen adsorbieren /OECD 00/.

Aerosolförmiges lod

Aerosole sind mehrphasige Systeme von Gasen (z. B. Luft) und darin dispers verteilten Feststoffen (z. B. Staub oder Rauch) oder Flüssigkeiten (z. B. Nebel) /MAK 12/. Dispersionen aus festen lodverbindungen, wie Metalliodide (z. B. Csl, Cdl₂) oder lodoxide (IO_x) in einem Gas werden demnach als iodhaltige Aerosole bezeichnet /OECD 00/. Die Konzentration dieser iodhaltigen Partikel in der Luft wird durch die Aerosolphysik bestimmt, wobei die wichtigsten Abreicherungsmechanismen die Schwerkraftabsetzung, die Diffusiophorese und die Thermophorese sind /OECD 07/.

Metalliodide sind anorganische Salze, bestehend aus einem Metallkation und Iod-Anionen (MI_x). Die meisten Metall-Iodide sind wasserlöslich und dissoziieren teilweise mit der Ausnahme einiger Schwermetallverbindungen, wie Silberiodid. Silberiodid ist wasserunlöslich und unter Lichtausschluss stabil. Andere Metalliodide, wie Cs₂I₂, CsI, CdI₂, Rb₂I₂ und RbI sind dagegen flüchtiger und treten bei höheren Temperaturen in Dampfform auf /KOW 22/. CsI ist leicht hygroskopisch und dissoziiert im Wasser zu nicht flüchtigem I⁻ und Cs⁺ /WEB 12/.

Die Radiolyse in der Luft führt zur Bildung von Radiolyseprodukten, wie O_3 , NO_2 oder HNO_3 , die Iod oxidieren und zur Bildung von Iodoxiden (IO_x) führen können. Iodoxide liegen als fein disperse Aerosolpartikel vor /OECD 20/, /WEB 12/.

Organisches lod

Bei organischem lod handelt es sich um organische Verbindungen mit mindestens einem kovalent gebundenen lodatom. Organische lodverbindungen kommen je nach organischem Rest und entsprechendem Molekulargewicht als flüchtige und nicht flüchtige Verbindungen vor. Verbindungen mit kleinen Resten, wie Methyliodid sind besonders flüchtige Verbindungen des Spaltprodukts lod /OECD 12/. Organisches lod kann durch Spaltung der R–I-Bindung radiolytisch zersetzt werden /WEB 12/. Niedermolekulare organische lodverbindungen liegen gasförmig vor und werden nur sehr schlecht in Lösungen und auf Oberflächen adsorbiert. Dies macht es schwierig die Verbindungen durch technische Systeme, wie Filter aus der Atmosphäre zu entfernen /OECD 07/.

Die Bildung von organischem lod kann in der Gasphase sowie in der wässrigen Phase nach der Ablagerung von elementarem lod an Oberflächen mit einem Farbanstrich oder anderen Oberflächen mit organischen Bestandteilen durch thermisch und radiolytisch induzierte Reaktionen stattfinden /WEB 11/. Die Bildung von organischen lodverbindungen in der wässrigen Phase wird als einer der Haupteinträge für gasförmige organische lodverbindungen im Containment angesehen /OECD 07/. In der wässrigen Phase werden organische Verunreinigungen z. B. durch das Auflösen von Oberflächenanstrichen gebildet. Durch radiolytische Zersetzungsreaktionen dieser gelösten organischen Verbindungen können die erzeugten Radikale mit elementarem lod zu organischen lodverbindungen reagieren. Durch diese Reaktionen entstehen verschiedene organische lodverbindungen, die in Abhängigkeit des organischen Restes unterschiedliche Löslichkeiten und Flüchtigkeiten besitzen. Die Zusammensetzung der entstehenden lodverbindungen ist nicht vollständig geklärt und ist seit vielen Jahren Gegenstand umfangreicher Studien /WRE 99/. Viele der organischen Verunreinigungen, die aus Farben freigesetzt werden, sind sauerstoffhaltige Verbindungen, wodurch ein großer Teil der organischen lodverbindungen sauerstoffhaltige Reste trägt und damit wasserlöslich und wenig flüchtig ist. Diese sauerstoffhaltigen lodverbindungen dominieren in der wässrigen

6

Phase. Iodverbindungen mit kleinen Alkylresten, wie Methyliodid (CH₃I), sind kaum löslich und zusätzlich sehr flüchtige Verbindungen, weshalb diese in der Gasphase vorliegen.

Da CH₃I eine der höchsten Flüchtigkeiten aufweist und andere organische lodverbindungen in Gegenwart von ionisierender Strahlung schließlich zu kleineren Verbindungen zerfallen würden, wird angenommen, dass CH₃I die dominierende Spezies in der Gasphase ist /OECD 07/.

2.2 Aktuelle Forschungen zur lodchemie

Aktuelle Forschungen zur zugrundeliegenden, relevanten lodchemie (z. B. im STEM-Projekt /OECD 23/, im MUSA Projekt /EU 23/ bzw. im SOARCA-Project /NRC 23/), die u. a. auf komplexe Experimente z. B. bei den PHEBUS Versuchen /WEB 12/, /RAI 13/ oder in der THAI Anlage /OECD 16/ basieren, zeigen die Aktualität der zugehörigen Thematik (z. B. /OECD 07/, /OECD 00/, /KOW 22/). Einzelne Aspekte der Forschung spiegeln sich ebenfalls in gegenwärtigen Trends in der Codeentwicklung wieder (u. a. /OECD 20/, /ARN 19/, /STE 17/, /GRS 08/, /KOW 22/). Bei einem schweren Unfall kann der Iod-Freisetzungspfad über das Brennelement in den Primärkreis (beim DWR), danach in das Containment und schließlich über gefilterte oder ungefilterte unterschiedliche Freisetzungspfade in die Umgebung erfolgen.

Dabei sind chemische und physikalische Interaktionen unter anderem mit den umgebenden Materialien (z. B. Eisen und Zirkonium im Reaktordruckbehälter), dem Kühlmittel (z. B. im Primärkreis bzw. dem Sumpf) sowie auch mit der Atmosphäre möglich. Das Metalliodid CsI liegt aerosolförmig vor und kann sich nach der Freisetzung aus dem Primärkreis in die Containmentatmosphäre im Verlauf des Ereignisses auf Oberflächen und im Sumpfwasser ablagern. Im Wasser formt sich dann, u. a. stark abhängig vom pH-Wert des Wassers bzw. der Wasserchemie /OECD 14/, durch Radiolyse elementares lod (I₂) und nach Kontakt mit organischem Material (z. B. Farben (s. /OECD 07/, /OECD 00/) organisches lod (z. B. CH₃I) (liquid phase chemistry). In der Containmentatmosphäre kann es u. a. zu weiteren Wechselwirkungen z. B. zwischen dem lod und der Umgebung kommen (gas phase chemistry). So kann lod z. B. mit der Farbe der gestrichenen Oberflächen interagieren oder bei einem Einsatz eines Containmentsprays, das eingesetzt wird, um den Containmentdruck zu senken, mit Spraytropfen des Kühlmittels in Kontakt kommen. Während des Unfallablaufs gibt es weitere komplexe Interaktionen der verschiedenen Iodverbindungen mit der Umgebung /OECD 00/, wie zum Beispiel Thermo- oder Diffusiophoresis /GAU 17/, die auch durch die ionisierende Strahlung beeinflusst werden /OECD 14/. Insgesamt zeigt sich die Iodchemie als komplexes Forschungsgebiet, dass von einer Vielzahl an Faktoren abhängt.

2.3 Iodzusammensetzung bei einem schweren Unfall (Ventingszenario nach LOCA-Fall)

Die Zusammensetzung der einzelnen Iodspezies (aerosolförmiges, elementares und organisches Iod) hängt wie im Kapitel 2.2 beschrieben von den physikalischen und chemischen Randbedingungen des Ereignisablaufs ab. Im NUREG-1465 Report wird die Iodfreisetzung aus dem Reaktorkühlkreislauf ins Containment wie folgt angenommen: 95 % CsI (Aerosolform), 4,85 % I₂ (elementares Iod) und 0,15 % RI (organisches Iod) /NUR 95/ (mit der zusätzlichen Bedingung, dass der pH-Wert über 7 liegt /IAEA 17/).

Bei einem Loss-of-Coolant Accident (LOCA) (Kühlmittverluststörfall, KMV), wird ein Kühlmittelaustritt aus dem Primärkreis (PK) in das Containment postuliert. Dies kann beispielsweise nach einem Bruch der Hauptkühlmittelleitung (HKML) passieren. Bei einem unterstellten gleichzeitigen Versagen mehrerer Sicherheitssysteme kann es zu einer (partiellen) Kernschmelze kommen. In einem solchen sehr unwahrscheinlichen Fall sammelt sich das ausgetretene Kühlmittel im unteren Bereich des Containments, dem Sumpf. Während eines solchen Unfallablaufs wird das Containment einem Druckaufbau ausgesetzt, der sich u. a. durch Verdunsten von Wasser oder Entstehung anderer Gase /SOL 17/ wie H₂ z. B. durch eine Beton-Schmelze-Wechselwirkung (Molten-Core-Concrete Interaction, MCCI) der Schmelze mit dem Boden des Containments im Sumpf ergibt. Zum Schutz der Integrität des Containments wird bei einer gefilterten Druckentlastung (GDE) /GAU 17/ beim Erreichen eines Grenzdrucks gezielt Druck abgelassen, indem die Containmentatmosphäre über ein Ventingsystem inklusive Filtern in die Umgebung gelassen wird. Durch dieses Filterverfahren kann die Kontamination von Radionukliden in die Umgebung bei einem solchen Ereignis deutlich reduziert werden.

Eine Zusammenstellung von lodzusammensetzungen im Containment, die unterschiedliche europäische Länder im Laufe eines LB-LOCA-Fall (Large Break Loss of Coolant Accident) für DBA (Design Base Accidents) erwarten, zeigt bereits große Bandbreiten für die Zusammensetzungen von organischem, elementaren und aerosolförmigen lod /EC 01/. Die dort behandelten Fälle sind DBA-Fälle, die explizit keine sehr umfangreiche Kernschmelze beinhalten. Im Folgenden werden im Gegensatz dazu die Auswirkungen von BDBA (Beyond Design Base Accidents) untersucht, die (nahezu) komplette Kernschmelzszenarien beinhalten und damit auch Szenarien mit größeren Radionuklidfreisetzungen beinhalten.

Die weitere Entwicklung der genauen lodzusammensetzung während des exemplarischen Ereignisablaufs hängt dabei unter anderem von der Verweildauer der Radionuklide im Containment ab. Diese Verweilzeitdauer definiert sich aus dem Zeitpunkt der Freisetzung der Radionuklide aus dem RKL in das Containment und dem Zeitpunkt der Freisetzung der gefilterten Menge an Radionuklide aus dem Containment in die Umgebung. Weiterhin gibt es Abhängigkeiten vom genauen zeitlichen Beginn der beiden Phasen und der damit verbundenen bereits abgelaufenen und gegenwärtigen chemischen und physikalischen Prozesse. Diese physikalischen und chemischen Randbedingungen im Containment können über integrale Rechencodes wie COCOSYS, MELCOR oder ASTEC bestimmt werden. Im Kapitel 4.2.1 wird ausführlicher auf COCOSYS Analysen und die daraus ableitbaren, möglichen lodzusammensetzungen eingegangen. Hervorzuheben ist der Aspekt, dass sich die exakte lodzusammensetzung im Verlauf eines Unfalls zeitlich gravierend ändern kann und insbesondere vom exakten Ereignisverlauf (bzw. Szenario) abhängt. Im Allgemeinen zeigt sich, dass u. a. deshalb die genaue Vorhersage von lodfreisetzungen mit sehr hohen Unsicherheiten verbunden ist (s. auch /SSK 05/).

Laut /SSK 19b/ ist die Zusammensetzung von gasförmigem zu partikelgebundenem Iod bei Freisetzungen nach Kernschmelzunfällen schwer vorherzusagen. Die Prozesse in der Dampfatmosphäre und im Sumpf können bisher nicht detailliert modelliert werden, weshalb nach /SSK 19b/ nur allgemeine Aussagen zu der Zusammensetzung und keine belastbaren Zahlenwerte vorgenommen werden können. Anteile des aerosolförmigen Iods können sedimentieren oder in Wasservorlagen ausgewaschen werden. Das betrachtete Methyliodid, als Vertreter des organischen Iods, sowie elementares Iod können aufgrund ihrer Siedepunkte innerhalb des Containments als praktisch gasförmig angesehen werden. Damit nimmt die Konzentration an aerosolförmigem Iod mit der Zeit schneller ab als die Konzentration der gasförmigen Iodspezies. Laut /SSK 19b/ wird im Falle einer gefilterten Druckentlastung organisches Iod (hier betrachtet CH₃I) den Quellterm in die Umgebung dominieren. Grund hierfür ist unter anderem die hohe Wirksamkeit

der Filter gegenüber Aerosolen und geringe Effizienz der Filter gegenüber organischem lod.

2.4 Berücksichtigung von Venting-Szenarien bei der anlagenexternen Notfallschutz Planung

Für die Zwecke der Notfallschutz-Planung wurden in Deutschland nach dem Kernkraftwerksunfall in Fukushima umfangreiche Simulationen potenzieller radiologischer Auswirkungen für unterschiedliche Unfallszenarien durchgeführt /WAL 15/. Zu diesem Zweck werden drei unterschiedliche Klassen von Unfällen betrachtet:

- 1. Kernschmelzunfall, in dessen Verlauf eine gefilterte Druckentlastung des Containments erfolgt,
- 2. Kernschmelzunfall, in dessen Folge eine ungefilterte Druckentlastung des Containments erfolgt (Versagen der Ventingleitung vor dem Filter),
- 3. Kernschmelzunfall mit Umgehung oder Versagen des Containments.

Für alle drei Ereignisklassen sind repräsentative Quellterme in der Quelltermbibliothek des Entscheidungshilfesystems RODOS hinterlegt, die nach Freisetzungskategorien benannt sind (FKI für einen Unfall mit gefilterter Druckentlastung, FKF für einen Unfall mit ungefilterter Druckentlastung sowie FKA für einen Unfall mit Umgehung des Containments). Diese Quellterme werden in /LÖF 10/ beschrieben und in /WAL 15/ als Grundlage für die Berechnung potentieller radiologischer Auswirkungen herangezogen.

Im Folgenden wird der Quellterm FKI zu Vergleichszwecken mit neueren Ergebnissen zur Freisetzung von Iod bei Kernschmelzunfällen mit gefilterter Druckentlastung sowie zum Vergleich mit im Ausland genutzten Referenzquellterm für analoge Unfallabläufe herangezogen (Kapitel 4). Dabei soll auch bewertet werden, inwiefern mögliche Bandbreiten der freigesetzten Iodmenge sowie der radiologischen Auswirkungen, die durch unterschiedliche Anteile der verschiedenen Iodspezies bedingt sind, durch die Wahl des Quellterms FKI repräsentiert sind (Kapitel 5).

In Frankreich (/CHA 08/, /RAI 13/), und in der Schweiz (/HSK 06/) sind ebenfalls Quellterme im Zusammenhang von Szenarien mit einer gefilterten Druckentlastung spezifiziert, die im Rahmen der Notfallschutzplanung herangezogen werden. In diesem Zusammenhang wird in der vorliegenden Untersuchung exemplarisch ein in Frankreich genutzter Quellterm nach /RAI 13/ in die Detailbetrachtung einbezogen (vgl. Abschnitt 3.1.3, 4.1und Kapitel 5).

3 Analyse von Daten/Vorgehensweisen und Ergänzung des Kenntnisstands über Rückhaltesysteme und Filterwirkungen

Im Verlauf eines Szenarios mit Kernschmelze in einem Kernkraftwerk (KKW) kann es z. B. nach einem Versagen des Reaktordruckbehälters durch Schmelzeeinfluss zu einer Beton-Schmelze-Wechselwirkung kommen, in dessen Folge es u. a. zur Bildung von H₂ bzw. CO kommt. Dies und andere Phänomene können im luftdicht verschlossenen Containment einen Druckaufbau bewirken, der die Integrität dieser Schutzhülle bedroht und dessen Folge, eine Zerstörung des Containments z. B. durch eine Leckage, einen ungefilterten Freisetzungspfad von Radionukliden in die Umgebung bedeuten würde. Um dem entgegenzuwirken, wurden in KKWs Filtered Containment Venting Systems (FCVS) eingeführt. Mit diesen konnte die schadensmindernde (mitigative) Maßnahme der gefilterten Druckentlastung (GDE) durchgeführt werden, das sogenannte Ventingszenario. Solche FCVS-Systeme dienen also durch den mit ihnen durchführbaren, gezielten Druckabbau dem Erhalt des Schutzziels der Containmentintegrität. Eine zusätzliche Aufgabe des Ventingsystems ist u. a. die möglichst effektive Radionuklidfilterung aus der Containmentatmosphäre, bevor diese über den Freisetzungspfad des Kamins in die Umgebung gelangen. Das FCVS erlaubt eine kontrollierte und reduzierte Radionuklidfreisetzung, deren Freisetzungsdauer bzw. -zeitpunkt sowohl von den Umgebungsbedingungen außerhalb der Anlage, z. B. dem Wetter oder Umsetzungsstand von frühen Schutzmaßnahmen, als auch explizit von Randbedingungen des Ereignisablaufs innerhalb der Anlage, z. B. dem aktuellen Druck im Containment, abhängig gemacht wird.

3.1 Aufbau und Funktionsweise eines exemplarischen Ventingsystems

Die Filtereigenschaften eines Systems werden durch den Dekontaminationsfaktor (DF) beschrieben (Verhältnis der initialen zur finalen Radionuklidmenge /SON 16/). Die Filtereigenschaften des Gesamtsystems, das aus mehreren Einzelfiltern bestehen kann, sind zum einen abhängig von den Eigenschaften der Einzelfilter, die nacheinander durchlaufen werden können, sowie zum anderen spezifisch von der chemischen Form, der Größe und der chemischen/physikalischen Eigenschaften der Verbindung des zu filternden Radionuklids. Im Allgemeinen können aerosolförmige Radionuklide besser gefiltert werden als gasförmige Radionuklide. Aerosole können aufgrund ihrer Größe bereits mit entsprechenden Partikelfiltern zurückgehalten werden. Für das zu untersuchende lod ergeben sich aufgrund ihrer unterschiedlichen chemischen Eigenschaften unterschiedliche

13

Filterfaktoren für aerosolförmiges lod und für die gasförmigen Spezies elementares lod (I₂) bzw. organisches lod in Form von CH₃I.

3.1.1 Allgemeine Trocken- und Nassfiltersysteme in Filtern

Insgesamt werden Filtersysteme unterteilt in Trocken- und Nassfilter bzw. in Kombinationen aus den entsprechenden Filtern.

In Nassfiltersystemen erfolgt die Abscheidung in einer Flüssigkeit. Nassfilter nutzen Wechselwirkungen an der Phasengrenze zwischen dem eingeleiteten Gas und Wasser. Wenn die Gase und Aerosole die Flüssigkeits-Gas-Grenzfläche erreichen, werden diese aufgrund der Van-der-Waals-Kräfte in der flüssigen Phase eingeschlossen /SON 16/. Dem Wasser können zusätzlich Additive hinzugefügt werden, wie beispielsweise Natriumhydroxid zur Einstellung des pH-Wertes oder Natriumthiosulfat (Na₂S₂O₃) als Reduktionsmittel. Natriumthiosulfat reduziert organisches und elementares lod zu nicht flüchtigen lodid-lonen. Nachteilig an Nassfiltern ist, dass das Wasser nachgefüllt werden muss. Bei einem zu geringen pH-Wert kann wiederum elementares lod entstehen und freigesetzt werden /BAL 19/. Die Vorteile von Nassfiltern sind, dass diese auch als Wärmesenke dienen. Die Nachzerfallswärme der Radionuklide wird durch das Verdampfen der Waschflüssigkeit sicher passiv abgeführt, ohne dass aktive Maßnahmen erforderlich sind /FRA 23/.

Bei Trockenfiltern wird das Gas durch ein festes Filtermedium geleitet. Hierbei werden große Abscheideflächen z. B. durch Kies- oder Sandbetten, durch Metallfasern oder durch Zeolithe bereitgestellt /IAEA 17/. Zeolithe sind kristalline mikroporöse Feststoffe, bestehend aus einem dreidimensional vernetzten Gerüst (SiO₄ und AlO₄) und Hohlräumen, in denen sich austauschbare Metallkationen befinden /AHA 23/. Bei der Rückhaltung von Partikeln in einem Faserfilter können mehrere Mechanismen verantwortlich sein. Die Kinetik und die damit verbundenen Mechanismen hängen stark von der Art der Partikel ab, die durch physikalische und chemische Eigenschaften bestimmt werden, wie z. B. Molekulargewicht oder Partikelgröße. Bei Partikelfiltern kann eine Filterung aufgrund von Porengrößen des Filtermediums erfolgen, wobei Aerosole bzw. Agglomerate, die die Porengröße überschreiten, zurückgehalten werden. Auch Partikel, die kleiner als die Poren des Filters sind, können in den Filtern zurückgehalten werden. Dieser Mechanismus ist beeinflusst von der Bewegung der Partikel. Bei einer hohen Trägheit folgen die Partikel nicht der Strömung, sondern können mit der Faser zusammenstoßen und physikalisch festgehalten werden. Auch können Partikel durch Wechselwirkungen

eingefangen werden, wie elektrostatische Wechselwirkungen. Die Diffusion von Aerosolpartikeln wird vorwiegend durch die Brown`sche Bewegung bestimmt. Dieser Effekt einer ständigen umorientierten Bewegung der Aerosolpartikeln im Raum wird durch Stöße von Gasmolekülen hervorgerufen und ist nur wirksam, wenn die Masse der Aerosolteilchen gering ist. Je kleiner der Partikel ist, desto höher ist die Wahrscheinlichkeit, dass dieser Partikel mit einer Filterfaser kollidiert und somit aus dem Gasstrom gefiltert wird. Diese Mechanismen wirken sich auf die Effektivität der Filterung aus. Damit werden sehr kleine Partikel < 0,1 µm (durch die Brown`sche Bewegung) sowie große Partikel > 1 µm (durch die höhere Trägheit bzw. relative Partikelgröße) effizienter zurückgehalten als mittelgroße Partikel /MAK 12/, /TCH 21/. Ein weiteres Phänomen der Trockenfilterung ist die Adsorption, bei der eine Substanz an der Grenzoberfläche des Adsorptionsmittels adsorbiert wird. Die Physisorption beruht weitestgehend auf der molekularen Wechselwirkung in Form von van-der-Waals-Wechselwirkungen zwischen Substrat und dem Adsorptionsmittel. Je größer die Oberfläche des Adsorptionsmittels ist, desto effizienter ist die Adsorption. Hierfür können Filtertypen, wie z. B. Aktivkohle oder Zeolithe eingesetzt werden. Die Chemisorption findet nur statt, wenn die Möglichkeit besteht, eine chemische Bindung zwischen Substrat und Adsorptionsmittel auszubilden. Es können beispielsweise Silber dotierte Zeolithe genutzt werden, die elementares lod durch Chemisorption binden. Die Physisorption ist ein einfacher und schneller Prozess, jedoch reversibel und unspezifisch, weshalb die Rückhaltung in Gegenwart von konkurrierenden Substraten, wie Verunreinigungen oder mit zunehmender Feuchtigkeit abnimmt. Zudem nimmt die Adsorptionsfähigkeit mit höherer Temperatur ab. Die Chemisorption nimmt hingegen bei steigender Temperatur zu. Das Adsorptionsmittel muss bei der Chemisorption jedoch selektiv auf das Substrat abgestimmt werden, um eine effiziente Rückhaltung zu gewährleisten /AHA 23/.

Die Nachteile eines Metallfaserfilters sind das mögliche Zusetzen der Filter bei hoher Aerosolladung und hohen Temperaturen sowie eine mögliche Korrosion und Schäden durch hohe Temperaturen an den Metallfasern. Nachteilig an Zeolithen ist, dass auch Schwefelverbindungen, Halogene, Säuredämpfe und andere Spaltprodukte in den Zeolithen eingebunden werden können /BAL 19/, so dass Iod nicht mehr aufgenommen werden kann.

Die kommerziell verfügbaren und genutzten Systeme verwenden eine Kombination aus mehreren Filtertypen. Dabei können mehrere Nassfilter, mehrere Trockenfilter oder eine Kombination aus den Filtertypen hintereinander geschaltet werden /BAL 19/. Im Rahmen des EU-Projekts PASSAM wurde ein System aus Trocken- und Nassfilterexperimentell auf Rückhaltefähigkeiten bzgl. organischen Iods durch eine zusätzliche Filterstufe (einem Molekularsieb) getestet /ALB 18/. Das untersuchte System mit einem Dekontaminationsfaktor für aerosolförmiges Iod (DF_{I_aer}) von 10.000 und einem Dekontaminationsfaktor für elementares Iod (DF_{I_ele}) von 200 konnte 98 % des organischen Iods zurückhalten (d. h. der Dekontaminationsfaktor für organisches Iod (DF_{I_org}) entspricht 50) /ALB 18/.

Ein verbessertes System bei der Nutzung von Nassfiltern wurde durch Zugabe eines weiteren Additivs entwickelt. Neben Natriumhydroxid und Natriumthiosulfat wurde auch das Reagenz Aliquat 336 (gemischtes quaternäres Ammoniumsalz mit dem Hauptbestandteil Methyltrioctylammoniumchlorid) als Co-Additiv zugesetzt. Es dient einerseits als Phasentransferkatalysator, indem das Methyliodid und Natriumthiosulfat zusammengebracht werden. Zum anderen wird das im Reagenz enthaltene Gegenion Chlorid durch ein lodid-Ion ersetzt (Ionenaustauschreaktion), womit die radiolytische Oxidation von lodid zu elementarem Iod verhindert wird. Der DF für organisches Iod konnte hierbei auf 1.000 gesteigert werden /BAL 19/, /OECD 16/, /SUC 16/.

Die in den Anlagen eingebauten Ventingsysteme mit den zugehörigen jeweils eingebauten Filtertypen sind anlagenspezifisch bzw. hängen von Anlagenbautyp ab. Grundsätzlich muss bei Radionuklidfiltersystemen die Nachzerfallswärme der Radionuklide im Design der Filter berücksichtigt werden.

Die derzeit verbauten Filtersysteme in ausländischen Anlagen mit den dazugehörigen DF-Werten variieren stark. Es sind DF-Werte zwischen 1.000 und 10.000 für Aerosole, DF-Werte zwischen 10 und 1.000 für elementares lod und DF-Werte zwischen 1 und 1.000 für organisches lod dokumentiert /BAL 19/.

3.1.2 Spezifisches Sandbett-Filtersystem

Im Folgenden werden Sandbett-Filtersysteme ausführlicher vorgestellt. Diese werden bei den im Kapitel 5 vorgestellten Ausbreitungs- und Dosisrechnungen für grenznahe, generische Anlagen in den Ventingsystemen unterstellt.

Sandbettfilter sind Trockenfilter, die Filtrationswerte DF_{I_aer} für Aerosole von $DF_{I_aer} > 100$ besitzen. Die spezifischen Filtrationswerte für kombinierte Sandbettfilter mit vorgeschalten metallischen Filtern ($DF_{I_aer} > 10$) /BAL 19/, wurden in

16

unterschiedlichen Forschungsprogrammen wie z. B. PITEAS oder FUCHIA abgeleitet /GUI 14/. Bei einer Reihenschaltung dieser Filter werden DF-Werte des Ventingsystems von $DF_{l_aer} > 1000$ erreicht. Wird der vorgeschaltete Metallfilter z. B. beim Zusetzen des Filters mit einem Bypass umgangen, fällt der entsprechende DF-Wert wieder auf einen Wert von $DF_{l_aer} > 100$ /OECD 14/.

Gasförmiges Iod, das bei Ereignissen mit Kernschmelze entstehen kann, wird unterschieden in organisches Iod (z. B. CH₃I) und in elementares Iod (I₂). Die geforderten Dekontaminationsfaktoren für elementares Iod werden mit DF_{I_ele} = 10 angegeben /OECD 14/, /RAI 13/. Eventuelle Filterungsmöglichkeiten für organisches Iod im Sandbettfilter wurden in den beiden Forschungsprogrammen MIRE und PASSAM untersucht. Für nachfolgende Abschätzungen werden die daraus resultierende DF-Werte für das organische Iod von DF_{I org} = 1 verwendet /RAI 13/, /ALB 18/.

Die Rückhaltung von organischem lod ist in gefilterten Ventingsystemen begrenzt. Organische lodverbindungen sind weniger löslich als anorganische lodverbindungen (z. B. CsI), weshalb organisches lod von Containmentsprühsystemen nur schlecht ausgewaschen wird /BOS 20/. Eine weitere Methode der Rückhaltung ist über den physikalischen Prozess der Adsorption. Ein poröses Material verstärkt die physikalische Adsorption durch die sehr große Oberfläche. Bei Sandbettfiltern, die in einigen Containment-Venting Systemen verwendet werden, hat der Sand eine kompakte Struktur und keine wirklich poröse Oberfläche (wie andere Materialien, die üblicherweise für die Adsorption von lod verwendet werden, z. B. Aktivkohle, etc.). Die spezifische Oberfläche ist mit etwa 1 cm²/g deutlich geringer als bei herkömmlichen porösen Oberflachen mit bis zu 1000 cm²/g. Das Siliziumdioxid des Sandes ist zudem chemisch inert /LER 19/. Elementares lod wird auf Oberflächen deutlich besser adsorbiert als Methyliodid. Ein Teil des elementaren lods (DF_{1_ele} = 10) wird daher in Sandbettfiltern zurückgehalten, Methyliodid hingegen nicht (DF_{I org} = 1) /RAI 13/. Diese Unterschiede in der Filtereffizienz werden ebenfalls bei metallischen Filtern beobachtet. Untersuchungen der Dampfphasenabscheidung auf Edelstahlplatten zeigten für Methyliodid eine um vier bis fünf Größenordnungen niedrigere Abscheidungsgeschwindigkeit als bei elementarem lod. Durch absichtlich aufgebrachte Ablagerungen von Silber- oder Cäsiumaerosolen auf metallischen Filtern oder im Sand kann die Abscheidung von elementarem lod verstärkt werden, da nach Adsorption an der Oberfläche durch radiolytisch induzierte Bindungsbrüche chemische Reaktionen zwischen I2 und den Metallen zu Metalliodiden stattfinden können. Methyliodid, eine gesättigte Verbindung mit einer starken C-I-Bindung ist hingegen sehr reaktionsträge /LER 19/.

Zusammenfassend werden für eine generische Anlage westlicher Bauart mit Ventingfiltersystem die in der Tab. 3.1 wiedergegebenen (Minimal-)Filterwerte postuliert.

Chemische Form von lod	DF-Wert
Aerosolförmiges lod (z. B. Csl)	1000
Elementares lod (I ₂)	10
Organisches Iod (CH ₃ I)	1

Tab. 3.1Iodspezies und zugehörige DF-Werte für ein generisches Sandbettfilter-
Ventingssystem

Die Anwendung eines Sandbettfilters erfordert ein kompaktes zugehöriges Bett mit einer definierten Oberfläche, die dann zu einer optimierten Anströmgeschwindigkeit führt. Die Filtermethode ist oft als Tiefbettfiltration unter trockenen Bedingungen ausgelegt. Ein solcher Filter ist mit verschiedenen Schichten und unterschiedlichen Korngrößen ausgestattet. Der schematische Aufbau eines Sandbettfilters ist in Abb. 3.1 dargestellt. Der Sandbettfilter besteht aus einem wärmeisolierten, zylindrischen Edelstahlbehälter. Im unteren Bereich des Behälters befindet sich der Leichtbetonboden, eine Schicht Blähton und darüber das Sandbett. Das Sandbett wird durch ein Kevlar-Gitter mit konstanter Maschenweite umhüllt, so dass das Gas gleichmäßig im gesamten Filter verteilt wird. Das Gas wird im Anschluss durch ein Netz von Edelstahlsieben im Blähton aufgefangen und in einen Sammelbehälter am Rand des Filters geleitet /OECD 14/. Substrate können in diesem Filter durch Physisorption an der Sandoberfläche, der porösen Oberflächenstruktur des Blähtons und des Betons zurückgehalten werden. Je nach Dotierung des Materials kann eine zusätzliche Rückhaltung durch Chemisorption erfolgen /AHA 23/.



Abb. 3.1 Schematischer Aufbau eines Sandbettfilters

Abbildung entnommen aus /OECD 14/

Der Sandbettfilter kann z. B. außerhalb der Containments installiert werden (s. Abb. 3.2). In Abb. 3.3 ist der schematische Aufbau eines Ventingsystems mit metallischem Vorfilter und Sandbettfilter dargestellt. Der metallische Vorfilter (1) befindet sich in dem gezeigten Aufbau innerhalb des Containments. Im Hilfsanlagengebäude befinden sich manuelle Containment-Absperrventile (2), gefolgt von einer Vorrichtung zur Druckentlastung (3). Im Falle eines schweren Unfalls wird das System vor Inbetriebnahme der gefilterten Druckentlastung vorgeheizt (4), um eine Wasserstoffexplosion im System durch einen lokal erhöhten Wasserstoffanteil nach einer Kondensation der Dampfatmosphäre aus dem Containment zu vermeiden /OECD 14/. Der Sandbettfilter (5) befindet sich in diesem Beispiel auf dem Hilfsanlagengebäude. Bevor die Abluft über den Kamin (7) abgelassen wird, wird die freigesetzte Aktivität der Abluft in der Position (6) gemessen.



Abb. 3.2 Anbringung des Filters außerhalb des Containments

Abbildung entnommen aus /OECD 14/





Im Trockensandbett findet eine Aerosolrückhaltung von festen und löslichen Aerosolen an den Kornoberflächen statt. Elementares Iod wird durch Adsorptionsprozesse an der großen Oberfläche der Sandbettfilter und in den vorgelagerten Rohrleitungen zurückgehalten. Ein Teil des adsorbierten I₂ kann wiederum durch Verdampfung freigesetzt werden (Desorption). Die Nettorückhaltung des elementaren Iods ergibt sich aus dem Verhältnis von Adsorption zu Desorption. Die trockenen Bedingungen des Sandbettfilters sind notwendig, um eine Wiederauflösung des zurückgehaltenen löslichen Aerosols durch Feuchtigkeit oder Wassertröpfchen zu vermeiden. Dies kann durch Vorheizen und eine effiziente Wärmedämmung des Prozesses zur Minimierung der Wärmeverluste vermieden werden. Das Vorheiz- und Konditionierungssystem besteht aus einem Gebläse und einem elektrischen Heizer und umspült den nachgeschalteten Teil des Containment-Belüftungssystems, einschließlich des Sandbettfilters /OECD 14/.

Um die Menge an radioaktiven Aerosolen im Sandbettfilter zu reduzieren, ist es Praxis, einen metallischen Vorfilter vorzuschalten. Dieser befindet sich üblicherweise im Reaktorgebäude am Entlüftungseinlass. Der metallische Vorfilter besteht aus Kartuschen aus gesinterten, verfestigten Edelstahlfasern, von denen jede zwei Arten von Filterschichten enthält, weiterhin aus einem Auslass, der mit der Entlüftungsleitung verbunden ist, sowie einer Leitung, die es ermöglicht, die durch die radioaktiven Ablagerungen im Filter erzeugte Restwärme abzuführen und schließlich vier Einlässen für das Gas in den Filter. Das Auslegungskriterium besteht darin, die Aerosolmasse, die den Vorfilter durchläuft, während der Zeit aufzufangen, die erforderlich ist, um die anfängliche Aktivität der Containment-Atmosphäre bei Systemöffnung um den Faktor 10 zu reduzieren. Wenn der Druckabfall durch den Filter aufgrund von Aerosolverstopfung 1 bar überschreitet, wird der Vorfilter durch ein ferngesteuertes Rückschlagventil im Reaktorgebäude umgangen (Bypass). Das Gas gelangt dann direkt in den Sandfilter ohne jegliche weitere Vorfiltration /OECD 14/.

Mögliche Probleme des Sandbettfilters sind u. a. das Risiko einer möglichen Wasserstoffverbrennung/-explosion, die seismische Widerstandsfähigkeit der Systeme sowie das mögliche Verstopfen der metallischen Vorfilter. Weiterhin können große Menge aktiver Aerosolpartikel aufgrund der akkumulierten Zerfallswärme ein Problem darstellen, da die Temperatur des Aerosolkuchens so hoch werden kann, dass gefilterte flüchtige Spaltprodukte wieder verdampfen oder teilweise schmelzen (z. B. kann Cäsium bei ca. 250–3000 °C wieder verdampfen) /BAL 19/.

3.1.3 Mögliche Variationen der Zusammensetzung von lodfreisetzungen

Aus internationalen Analysen lässt sich eine Ableitung von Bandbreiten der Zusammensetzungen der lodfreisetzungen im Hinblick auf ein Ventingszenario unter Berücksichtigung bekannter Unterschiede in Rückhaltesystemen abschätzen. Angenommen wird ein (LB-)LOCA, das heißt ein Kühlmittelverluststörfall. Wie in Kapitel 2.3 bereits angeführt, sind Aussagen über die konkreten Zusammensetzungen von Iod während eines Ereignisses mit Freisetzung von einer Vielzahl von Faktoren abhängig. Die IRSN in Frankreich hat u. a. unter Nutzung von Erkenntnissen aus dem WASH 1400 US-Report /NUR 75/ drei mit dem integralen Rechencode ASTEC /REI 10/, /STE 17/ errechnete Referenzquellterme zur Planung von Notfallmaßnamen von Referenzszenarien abgeleitet /RAI 13/, die sich auf die folgenden Szenarien beziehen:

- S1: kurzzeitiges Containmentversagen kurze Zeit nach Szenariobeginn, ungefilterte Freisetzung
- S2: mittelfristiges Containmentversagen 24 h nach dem Szenariobeginn, ungefilterte Freisetzung
- S3: mittelfristige Freisetzung über ein Ventingsystem 24 h nach dem Szenariobeginn, gefilterte Freisetzung

Für das Szenario S3 wird zusätzlich eine verspätete Freisetzung über ein zerstörtes Containment angenommen /RAI 13/, so dass das Szenario als abdeckend für verschiedene Szenarien (u. a. auch das Ventingszenario) benutzt werden kann. Es beinhaltet dadurch allerdings tendenziell zu hohe Freisetzungswerte.

In der Tab. 3.2 sind die in der IRSN-Publikation /RAI 13/ ermittelten Freisetzungswerte angegeben.

Quellterm (Jahr)	S3 (1990)	S3 (2000)	S3 (2000)
Anlagentyp	900 MWe	900 MWe	1300 MWe
Edelgase	7,5E-01	9,5E-01	9,5E-01
Aerosolförmiges lod	-	4,2E-05	4,5E-05
Gasförmiges elementares lod (I ₂)	-	2,5E-07	2,2E-03
Nicht organisches lod (l₂ und ae- rosolförmiges lod)	3,0E-03	4,5E-05	2,2E-03
Organisches lod	5,5E-03	4,2E-03	2,2E-02
Caesium	3,5E-03	3,5E-05	3,5E-05
Actinoide	5,0E-05	9,8E-08	1,0E-07

Tab. 3.2Exemplarische Freisetzungsanteile (Anteile am Kerninventar) bei schwe-
ren Unfällen (entnommen aus /JAC 15/, /RAI 13/)

Die Tabelle zeigt einen signifikanten Abfall der Caesium Freisetzungen (Faktor 100) für die später eingeführten Quellterme (S3 (2000) für 900 MWe und für 1300 MWe) aufgrund der Berücksichtigung von Aerosolablagerungen /POW 96/ und Filtereffizienzen /RAI 13/.

Für die weiteren Betrachtungen wurde der Quellterm S3 (2000) für 1300 MWe (rechte Spalte Tab. 3.2) gewählt.

4 Vergleich von internationalen Analyseergebnissen mit aktuellen GRS-Erkenntnissen

Simulationen von schweren Unfällen erlauben wichtige Erkenntnisse über Details in Unfallabläufen und den damit zusammenhängenden physikalischen und chemischen Prozessen u. a. im Containment, so dass daraus wesentliche Größen und Ereignisse, wie z. B. der Druckaufbau im Containment oder der Zeitpunkt der gefilterten Druckentlastung, das Durchschmelzen des Containments und der Quellterm abgeleitet werden können. Diese deterministischen Sicherheitsanalysen werden spezifisch für einzelne Unfallabläufe und für einzelne Anlagen durchgeführt. Ein wichtiges Teilergebnis deterministischer Analysen sind szenario- und anlagenspezifische Radionuklidfreisetzungen in die Umgebung in Form eines Quellterms, inklusive der zugehörigen Freisetzungsmengen und -zeitpunkte.

In Tab. 4.1 werden auf Grundlage verschiedener Quellterme prozentuale lodzusammensetzungen von aerosolförmigem, elementarem und organischem lod zueinander (bezogen auf ihre Masse, Summe 100 %) bei Freisetzungen in die Umgebung nach einer Filterung mit den in Tab. 3.1 angegebenen DF-Werten (DF_{1_aer} = 1000, DF_{1_org} = 1, DF_{I ele} = 10) beschrieben. In der Spalte "S3 1300 MWe" der Tab. 4.1 sind IRSN-Ergebnisse aus dem Jahr 2000 für Freisetzungen in die Umgebung aus einem Ventingszenario für einen 1300 MWe P4/P'4 Reaktor (siehe auch rechte Spalte Tab. 3.2) /RAI 13/ in Form einer prozentualen Verteilung aufgeführt. Die Spalte "DWR KONVOI a" der Tabelle zeigt GRS-Ergebnisse aus COCOSYS-Rechnungen für ein Kraftwerk mit Druckwasserreaktor (DWR) vom Typ Konvoi, wobei hier die freigesetzten Massen nach der Filterung miteinander in Bezug gebracht wurden (Bericht GRS-641 /HAG 21/). Die Spalte "DWR KONVOI b" der Tabelle zeigt die Ergebnisse des GRS-677 Berichts /KOW 22/, der wiederum auf dem Bericht GRS-641 aufbaut. Die Spalte "PHEBUS Analyse" zeigt schließlich GRS-Ergebnisse aus COCOSYS-Rechnungen für das französische PHEBUS FPT-1 Experiment /WEB 12/, wobei hier die Freisetzungen im Gas nach der Filterung miteinander in Bezug gesetzt wurden. In der rechten Spalte "FKI" ist zum Vergleich die lodzusammensetzung angegeben, die dem Quellterm FKI zugrunde liegt (/LÖF 10/, vgl. Abschnitt 2.4). Diese wird in Abschnitt 5.1 für weitere Betrachtungen herangezogen.

25

Tab. 4.1Prozentuale Zusammensetzung der Iodspezies (Massenprozent) für Freisetzungen in die Umgebung für verschiedene Quellterme zu gefilterten
Ventingszenarien

Angenommene DF-Werte nach Tab. 3.1 ($DF_{I_aer} = 1000$, $DF_{I_org} = 1$, $DF_{I_ele} = 10$). Die Zusammensetzung bezieht sich auf die gesamte in die Umgebung freigesetzte lodmenge (d. h. Summe 100 %).

Chomiacho	lodzusammensetzung Umgebung (nach Filterung) [%]					
Form von lod	S3 1300 MWe, /RAI 13/	DWR KONVOI /HAG 21/	DWR KONVOI /KOW 22/	PHEBUS- Analyse /WEB 12/	FKI /LÖF 10/	
Aerosolför- miges lod	0,19	0,006	0,004	0,32	0,29	
Elementares lod (I ₂)	9,07	0,616	0,617	2,60	68,22	
Organisches Iod (CH ₃ I)	90,74	99,378	99,379	97,08	31,49	

Das analysierte Ensemble von Unfallabläufen spiegelt die große Bandbreite an möglichen lodzusammensetzungen wider. Dabei ist gegenwärtig keine Aussage darüber möglich, inwiefern hohe Anteile an Organoiod plausibler sind als niedrige. In den folgenden Analysen wird die Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse von Weber verwendet, um Bandbreiten quantifizieren zu können.

Bei einem Vergleich von Unfallabläufen in unterschiedlichen Reaktoren westlicher Bauart gibt es anlagenspezifische Unterschiede, die sich auf den Unfallablauf auswirken können. Prinzipiell handelt es sich um Leichtwasserreaktoren, so dass das zu betrachtende Inventar im Wesentlichen vergleichbar ist. Auch die Größe der Anlage, Einbauten mit Oberflächen, prinzipielle Systeme wie Noteinspeisung etc. sind einander ähnlich. Der wesentlichste Unterschied dürfte jedoch hinsichtlich jener Anlagentypen sein, in denen ein Sprühsystem verbaut ist, welches sehr effektiv Radionuklide aus der Containmentatmosphäre auswaschen kann. Aber auch kleinere bauliche Abweichungen können zu nennenswert anderen Resultaten führen, wie z. B. die Lage von Druckausgleichsklappen. Ein weiterer nennenswerter Unterschied liegt in der Art der Filterung, wobei im Konvoi ein Metallfilter und ein Venturiwäscher /OECD 14/ zum Einsatz kommen, wohingegen in anderen Anlagentypen Sand als Filtermedium verwendet wird.

4.1 IRSN Untersuchungen für französische P4/P'4 Anlagen (1300 MWe Klasse)

In den Simulationen von IRSN zur P4/P'4 Anlage wurde das Doppelcontainment und das zugehörige Ventilationssystem berücksichtigt (Spalte "S3 1300 MWe" in Tab. 4.1). Das Ventilationssystem dient u. a. der Filterung von Radionukliden und dem Erzeugen eines Unterdrucks zur Vermeidung bzw. Reduzierung von Radionuklidfreisetzungen in die Umgebung bei einem schweren Unfall.

In den Simulationen wurden die Radionuklidfreisetzungen aus der Schmelze während der in-vessel Phase /NUR 95/ berücksichtigt. Zudem wurden u. a. die Beton-Schmelze-Wechselwirkung /JAC 15/ und die Aerosolablagerung bzw. das Verhalten der Aerosole im Containment simuliert.

Für die IRSN Analyse wurden u. a. folgende Annahmen in Bezug auf das lod gemacht /RAI 13/:

- Phasentransfer des gasförmigen lods zwischen Gasphase und wässriger Phase
- Reaktion von lod mit Silber im Containment
- Iodadsorption an dem Farbanstrich des Containments
- Bindung von organischen lodverbindungen nach der Adsorption an der Farbe

4.2 Ergebnisse aus Untersuchungen für DWR-Konvoi Anlagen

Die Ergebnisse im GRS-641 Bericht /HAG 21/ (Spalte "DWR KONVOI a" in Tab. 4.1) beziehen sich auf einen DWR Konvoi Reaktor. Die dort aufgezeigten Berechnungen behandeln Unfallabläufe, die in einem Ventingszenario enden. Dabei wurden in COCOSYS implementierte Module (Advanced Iodine Model, AIM) zur Berechnung der Iodchemie im Containment genutzt. Der Haupteintrag von Iod ins Containment über eine MELCOR-COCOSYS-Schnittstelle erfolgt durch CsI, welches als Aerosol vorkommt und im Wasser teilweise zu Cs-Kationen und I-Anionen dissoziiert. Die Schnittstelle zwischen dem Integralcode MELCOR (Sandia National Labs, USA) /HUM 18/, /NRC 17/ und dem GRS Code COCOSYS wird ausführlich im Kapitel 4.2.1 beschrieben. Die Iod-Anionen können eine Vielzahl an Reaktionen eingehen, die u. a. vom pH-Wert des Sumpfes, des γ-Strahlungsfeldes und den vorhandenen Reaktionspartnern abhängen. Unter radiolytischen Bedingungen entsteht I₂, was die Hauptquelle für elementares Iod im Sumpf und damit

auch in der Gasphase darstellt. AIM berücksichtigt 53 chemische Reaktionen und 18 physikalische Prozesse für 27 lodspezies und 16 iodfreie Spezies.

In COCOSYS sind dabei u. a. folgende Prozesse besonders hervorzuheben /GRS 20/:

- Iodspezies und ihr physikalisches Verhalten: Neben den physikalischen Verhalten der verschiedenen Iodspezies, insbesondere I₂, CsI, IO_X und organischem Iod wurden auch die Prozesse der Physisorption und Chemisorption von Iodspezies (I₂, I⁻) auf nassen und trockenen Oberflächen betrachtet.
- Reaktionen im Sumpf:
 - Hydrolyse von lod (stark abhängig vom pH-Wert)
 - Bildung von I₂ durch Oxidation von Iodid durch Reaktion mit gelöstem Sauerstoff oder durch radiolytische Prozesse
 - Bildung von Silberiodid, welches eine Senke für lod darstellt
 - Bildung und Zersetzung von organischem lod
 - Reaktion mit Farb-, Stahl- und Zementoberflächen
- Reaktionen in der Gasphase:
 - Oxidation von I₂ mit Ozon zu Iodoxiden (IO_x)
 - Zersetzung von organischem lod
 - Reaktion mit Farb-, Stahl- und Zementoberflächen
- pH-Modell: Der pH-Wert hat einen wesentlichen Einfluss auf das lodverhalten im Sumpf. Je höher der pH-Wert, desto geringer ist der Anteil an flüchtigem lod. Hierfür wurden mehrere pH-beeinflussende Substanzen berücksichtigt, wie Borsäure, Kohlenstoffdioxid, Salpetersäure oder Cäsiumhydroxid.
- Aerosol Prozesse: Agglomeration, Kondensation an Partikeln, Diffusion, Deposition und Resuspension von Aerosolen (CsI, IO₃⁻, AgI und Ag). Besonders präzise wurde auf die Aerosole CsI als Haupteintragsquelle und IO₃⁻ als Produkt aus einer radiolytischen Oxidation von I₂ eingegangen.

Die Analysen verwenden das neuere AIM 3 Modell, wobei im Vergleich zur vorherigen Version die folgenden Phänomene als wesentliche Erweiterungen der lodprozesse zu nennen sind /HAG 21/, /GRS 20/:

- Iod-Wechselwirkungen mit Farbanstrichen und Stahl: In AIM 3 wird die Physisorption und anschließende Chemisorption an Farbanstrichen bzw. an Stahl führen in der wässrigen sowie der Gasphase zur Bildung von organischen Iodverbindungen bzw. Fel₂ berücksichtigt. Neben der Ablagerung wird im Wasser auch die Resuspension, die thermisch oder radiolytisch induziert sein kann, betrachtet.
- I₂-Ozon-Wechselwirkung: In bestrahlter Luft/Dampfatmosphäre werden Radiolyseprodukte, wie Ozon (O₃) gebildet. Ozon oxidiert elementares lod zu lodoxiden IO_x in verschiedener Stöchiometrie. Im AIM 3 Modell wird das Aerosolverhalten der lodoxide anhand von IO₃⁻ betrachtet.

4.2.1 Besonderheiten der zugrundeliegenden Simulationen

4.2.1.1 GRS-Bericht 641

Im GRS-Bericht 641 /HAG 21/ wurden im Rahmen einer Erweiterung und Erstellung eines einheitlichen Ereignisbaums der PSA Level 2 neben anderen Fragestellungen auch Simulationen mit dem GRS-Code COCOSYS /GRS 22/, /ARN 19/, /GRS 08/ zur Ermittlung der lodfreisetzung bei einem spezifischen, schweren Unfall in die Umgebung durchgeführt und analysiert.

Dieser in den Analysen verwendete Containment Rechencode COCOSYS ist Bestandteil des integralen Rechencodes AC² (ATHLET-CD und COCOSYS /GRS 19/, /GRS 16a/, /GRS 16b/), der genau wie andere Integralcodes (z. B. MELCOR /NRC 17/ oder MAAP /FAU 23/), schwere Unfallabläufe vom Beginn bis zum Ende des Szenarios simulieren kann. Da es sich im Falle von COCOSYS um einen reinen Containment-Code handelt, der nicht die Prozesse im Reaktorkühlkreislauf (RKL) abbildet, ist es notwendig gewesen, COCOSYS eben diese noch fehlenden Informationen zu übergeben. Diese Informationen bestehen dabei typischerweise in der Wärmeabgabe des RKL, Austräge von thermohydraulischen Stoffen wie Wasser, Wasserdampf und Wasserstoff und dem Austrag von Schmelze nach dem Versagen der unteren Kalotte. Weiterhin sind Informationen über Radionuklidfreisetzungen aus dem zerstörten Reaktordruckbehälter (versagende untere Kalotte oder postuliertes Leck) und über das Abblaseventil bzw. die
Sicherheitsventile des RKL notwendig. Diese Informationen stammen dabei aus einer integralen MELCOR-Simulation, welche die wesentliche Phänomenologie des gesamten Unfallablaufes, auch innerhalb des Containments, beschreibt. Da jedoch MELCOR aktuell über kein ausreichend zuverlässiges Modell für die Iodchemie verfügt, sind die Ergebnisse in Hinsicht auf die Freisetzung gasförmiger Iodspezies lückenhaft, welches die wesentliche Motivation für die Vorhaben 4718R01313 und 4719R01377 war.

Für die Übergabe besagter Informationen ist eine aufwändige Schnittstelle konzipiert und ausgeführt worden, mit der zusätzlich diverse Parameter variiert werden konnten. Das betrachtete Szenario ist das "kleine Leck" und die variierten Parameter waren der Wasseraustrag aus dem Leck, Wärmeübertrag in das Containment, Dosisleistung in den Räumen des Containments, I₂- , CsOH-, CsI-, Ag-Eintrag in das Containment, Eintrag von CO₂ in das Containment und die Fläche der epoxidhaltigen Anstriche im Sumpfbereich. Die Variation sollte mit der Auswahl der Parameter und der Streubreite ein möglichst breites Spektrum an Szenarien abdecken, um letztlich Korrelationen von Iodfreisetzung mit Parametern zu erkennen, so dass daraus abgeleitet eine Korrelation zur Abschätzung der Freisetzung aus dem Containment vorliegt.

Die Ergebnisse der in /HAG 21/ dokumentierten Rechnungen sind in Tab. 4.2 in Form von Freisetzungswerten für unterschiedliche Iodspezies darstellt. Die Ergebnisse sind "best estimate"-Rechnung der Variationsrechnung mit COCOSYS unter Nutzung der oben beschriebenen Schnittstelle (und damit auch der zugehörigen MELCOR-Ergebnisse, diese jedoch nur auf Seiten des RKL).

Grundsätzlich sind alle Simulationsergebnisse von Rechencodes mit Unsicherheiten behaftet. Aktuelle Untersuchungen zu dieser Thematik finden sich im MUSA Projekt /EU 23/ bzw. im SOARCA-Project /NRC 23/. Bei der Betrachtung von Unsicherheiten lassen sich verschiedene Quellen auf Seiten der Codemodelle und auch der Anlagenmodelle ausmachen. Auf Seiten des Codes gibt es viele Parameter, die Einfluss auf das Ergebnis haben können. Dabei ist zu bedenken, dass in den Integralcodes häufig vereinfachte Korrelationen statt eines mechanistischen Modells gegeben sind, um den numerischen Aufwand und den Zeitbedarf zu begrenzen. Die damit verknüpften Parameter sind dann an die jeweiligen Bedingungen anzupassen, was nicht immer möglich ist. So ist in MELCOR beispielsweise der Ursprung des Strahlensystems, an welchem die Erosion in der Modellierung der Schmelze-Beton-Wechselwirkung orientiert ist, ein freier, vom Anwender zu wählender Parameter.

Tab. 4.2Freigesetzte lodmengen in die Umgebung nach dem Filter nach /HAG 21/,
mit angepassten Filterfaktoren (DF-Werten)

Chemische Form von Iod	Masse in kg	Aggregat zustand / Dispersi- onszu- stand	DF-Wert	Freiset- zung Ge- samtiod- spezies (z. B. Csl) in die Um- gebung in kg	Freiset- zung lod (z. B. I aus CsI) in die Umgebung in kg
I ₂	1,01E-02	gasförmig	10	1,01E-03	1,01E-03
CH₃I	1,63E-01	gasförmig	1	1,63E-01	1,46E-01
Csl	6,95E-03	Aerosol	1000	6,95E-06	3,39E-06
IO ₃	3,02E-03	Aerosol	1000	3,02E-06	2,19E-06

Dieser Parameter beeinflusst, ob die Erosion eher vertikal oder radial stattfindet. Dies wiederum bestimmt, ob und/oder wann der biologische Schild versagt und Schmelze in den Sumpf gelangt. Dies wiederum bestimmt den Druckaufbau im Containment und den Zeitpunkt des Ventings. Ein weiterer, weitgehend frei zu wählender Parameter ist die Zeitschrittweite, die Einfluss auf den Rechenfortschritt und somit auf die Rechnerökonomie hat. Es zeigt sich hierbei jedoch auch, dass die Zeitschrittweite Einfluss auf die Phänomenologie hat, so kann z. B. das RDB-Versagen zu erheblich anderen Zeiten erfolgen nur unter Einfluss dieses Einzelparameters.

Hierbei ist ebenfalls zu bedenken, dass sich die Unsicherheit von gewissen Parametern teils höchst nichtlinear auf den Unfallablauf auswirken kann. So kann beispielsweise eine Änderung des genauen Zeitpunkts der primärseitigen Druckentlastung im Unfallablauf dazu führen, dass ein Unfallverlauf beherrschbar bleibt, falls dann eine Einspeisung in den RDB ermöglicht wird. Für gewisse Zeitintervalle mag sich die Wahrscheinlichkeit zur Beherrschung kaum ändern. Wird jedoch eine kritische Zeit überschritten, sinkt diese Wahrscheinlichkeit drastisch.

4.2.1.2 GRS-Bericht 677

Im GRS-Bericht 677 über "Optimierung der bestehenden Unfallanalysen hinsichtlich der Jodfreisetzung aus dem Reaktorkühlkreislauf unter Berücksichtigung neuer Erkenntnisse (z. B. IRSN) (AP 7 aus dem Vorhaben 4719R01370)" /KOW 22/ finden sich Analysen zur Iodfreisetzung, die auf die vorherigen Iodanalysen in /HAG 21/ aufbauen und insbesondere Freisetzungen aus dem Primärkreis in das Containment betrachten. Die prozentuale lodzusammensetzung (Massenprozent), berechnet aus den Ergebnissen des GRS-Berichts ist in der Spalte "DWR KONVOI b" in Tab. 4.1 dargestellt. Auch in diesem Vorhaben sind Variationssimulationen durchgeführt worden, um Korrelationen als einfache Handhabe zur lodfreisetzung aus den aufwändigen Modellen in ATHLET-CD zu erkennen und zu extrahieren. Um beide Projekte zusammenzubringen, sind integrale Vergleichsrechnungen durchgeführt worden, so dass für den "SBO" (Station Black Out) und das "kleine Leck" gekoppelte ATHLET-CD-COCOSYS-Simulationen vorliegen. Diese sind mit der seinerzeit aktuellen AC²-Version und mit aktuellen Anlagenmodellen, wenngleich auf COCOSYS-Seite vereinfacht, durchgeführt worden. Auch hier zeigt sich, dass Organoiod > 99 % der Freisetzung des gasförmigen lods ausmacht (Filterung nicht berücksichtigt, Werte bezogen auf die Stoffmenge).

4.3 Ergebnisse aus PHEBUS Experimenten (PHEBUS-FPT1 Versuch)

Die Ergebnisse im GRS-A-3676 Bericht (Spalte "PHEBUS Analyse" in Tab. 4.1) beziehen sich auf COCOSYS Analysen, die auf PHEBUS Experimenten beruhen. Das PHEBUS Fission Product (FP) Projekt war ein internationales Forschungsprogramm zu schweren Unfällen bei der IRSN, Frankreich. In den Experimenten wurde das integrale Reaktorverhalten beim Aufheizen des Brennstoffs bis hin zur Spaltprodukt-Freisetzung an die Umgebung untersucht /WEB 12/. Zwischen 1993 und 2004 wurden in der PHEBUS-Anlage in Cadarache, Frankreich, insgesamt 5 Versuche durchgeführt. In 4 Versuchen (FPT0, FPT1, FPT2, FPT3) wurde ein Brennstoffbündel zusammen mit einem Steuerstab zum Schmelzen gebracht und das Verhalten der freigesetzten Spaltprodukte (SP) in einem vereinfachten Primärkreis und einem angeschlossenen Containment gemessen /WEB 12/.

Die Simulation des Iodverhaltens ist aufgrund der Vielzahl chemischer Reaktionen und chemisch-physikalischer Prozesse mit größeren Unsicherheiten verbunden. Im Bericht von Weber /WEB 12/ wurden Unsicherheits- und Sensitivitätsanalysen (Uncertainty and Sensitivity Analysis, UaSA) zur Simulation des Iodverhaltens mit COCOSYS-AIM durchgeführt um die Aussagesicherheit der Iod-Ergebnisse zu bestimmen und die spezifische Auswirkung der Unsicherheit einzelner Modell- und Anlagenparametern auf die Berechnung des Iodverhaltens im Containment und den Iodquellterm zu ermitteln. Insgesamt wurden 93 Parameter identifiziert, die signifikante Auswirkungen auf das Ergebnis haben. 37 betreffen die Thermohydraulik- und Aerosolrechnung sowie Randbedingungen für die Iodrechnung, wie der pH-Wert des Sumpfwassers, die Anfangskonzentration organischer Reste im Sumpf und der Stöchiometrie-Faktor für das Modell der IO_x-Bildung. Von den insgesamt 93 berücksichtigten Parametern beschreiben 56 Iod-Reaktionskonstanten u. a. für die Hydrolyse und Radiolyse im Sumpf, die homogene organische Iod-Reaktionen im Sumpf oder die Iod/Ozon-Reaktion im Gas.

Der potenzielle Quellterm wurde aus den wichtigsten luftgetragenen lodspezies I_2 , CH_3I , IO_X und CsI, die im Falle eines Containmentlecks in die Umgebung entweichen können, gebildet.

Für den Referenzlauf diente eine COCOSYS-AIM-Nachrechnung des PHEBUS-Versuchs FPT1 aus /BOS 12/. Die aus der Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse gewonnenen Unsicherheitsbereiche werden in Form zeitabhängiger zweiseitiger statistischer 95 % / 95 % Toleranzgrenzen wiedergegeben. Die Schärfe dieser Unsicherheitsaussagen wird dabei durch zwei statistische Größen β und γ vorgegeben. Die Größe β (Überdeckungswahrscheinlichkeit) gibt an, welcher Anteil der Ergebnisunsicherheit von den zu ermittelnden Grenzen erfasst werden soll (β = 95 %). Die Größe γ (Vertrauensgrad, Konfidenzniveau) gibt an, mit welcher statistischen Sicherheit (Vertrauen, Konfidenz) dies aufgrund der Beschränktheit des Stichprobenumfangs gelten soll (γ = 95 %) (weitere Details siehe /WEB 12/). Hiermit wird der Einfluss des Schätzfehlers berücksichtigt, der aus einer begrenzten Anzahl von Rechnungen resultiert.

In Anlehnung an /RAI 13/ und /CHA 08/ wird die Freisetzung über ein Ventingsystem zum Zeitpunkt t = 24 h betrachtet. Hierfür wurden die Konzentrationen der Iodspezies des Referenzlaufs, sowie der unteren und oberen Toleranzgrenze aus der Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse zum Zeitpunkt t = 24 h aus den zeitlichen Konzentrationsverläufen in /WEB 12/ abgelesen. Die CsI-Konzentration zeigt einen starken Abfall im zeitlichen Verlauf /WEB 12/. Der Wert der unteren Toleranzgrenze der CsI-Konzentration wurde durch Extrapolation abgeschätzt. In Tab. 4.3 sind die Verteilungen der Iodspezies in Massenprozent nach der Filterung aus den jeweiligen Konzentrationen zum Zeitpunkt 24 h des Referenzlaufs aufgelistet.

Tab. 4.3 Prozentuale Zusammensetzungen der lodspezies (Massenprozent) für Freisetzungen in die Umgebung für ein Ventingszenario abgeleitet aus den Werten des Referenzlaufs aus /WEB 12/

Angenommene DF-Werte nach Tab. 3.1 ($DF_{I_aer} = 1000$, $DF_{I_org} = 1$, $DF_{I_ele} = 10$). Die Zusammensetzung bezieht sich auf die gesamt freigesetzte lodmenge (d. h. Summe 100 %).

Chemische Form von lod	lodzusammensetzung in %
Aerosolförmiges lod (Csl und IO ₃)	0,32
Elementares lod (I ₂)	2,60
Organisches Iod (CH ₃ I)	97,08

Hierfür wurden die Konzentrationen der jeweiligen Verläufe zum Zeitpunkt 24 h abgelesen, die Masse pro Volumeinheit bestimmt und ins Verhältnis gesetzt. Für die Betrachtung der gefilterten Freisetzung wurden die DF-Werte ($DF_{I_aer} = 1000$, $DF_{I_org} = 1$, $DF_{I_ele} = 10$) auf die Massen pro Volumeneinheit der Iodspezies angewandt und anschließend ins Verhältnis gesetzt.

Für eine weitere Betrachtung der Bandbreiten wurden die Konzentrationen der unteren (min) und oberen (max) Toleranzgrenzen der jeweiligen lodspezies miteinander kombiniert und das Verhältnis in Massenprozent nach der Filterung bestimmt. Die Ergebnisse sind in Tab. 4.4 dargestellt.

Die ausgewählten lodzusammensetzungen 3, 6 und 8 (grau unterlegt in Tab. 4.4) beziehen sich jeweils auf das Maximum einer Spezies bei gleichzeitigem Minimalwert der weiteren lodspezies. Diese werden für die Ausbreitungs- und Dosisrechnungen im Folgekapitel 5 verwendet, um Bandbreiten der Zusammensetzungen zu untersuchen.

Tab. 4.4Prozentuale Zusammensetzungen der Iodspezies nach der Filterung aus
Kombinationen der Werte der unteren und oberen Toleranzgrenzen aus
/WEB 12/

Max = obere Toleranzgrenze, min = untere Toleranzgrenze. Angenommene DF-Werte nach Tab. 3.1 (DF_{I_aer} = 1000, DF_{I_org} = 1, DF_{I_ele} = 10). Die Zusammensetzung bezieht sich auf die gesamt freigesetzte Iodmenge (d. h. Summe 100 %). I_aer = Aerosolförmiges Iod (CsI und IOx), I_ele = elementares Iod, I_org = organisches Iod.

Nr.	Kurven- verlauf I_aer	Kurven- verlauf I_eler	Kurven- verlauf I_org	Massen- prozent I_aer in %	Massen- prozent I_ele in %	Massen- prozent I_org in %
1	max	max	max	0,16	2,61	97,23
2	max	max	min	4,71	75,57	19,72
3	max	min	min	17,48	9,35	73,17
4	max	min	max	0,17	0,09	99,74
5	min	max	max	0,01	2,61	97,38
6	min	max	min	0,23	79,12	20,65
7	min	min	min	0,96	11,22	87,82
8	min	min	max	0,01	0,09	99,90

5 Bewertung der Relevanz für die Quellterm- und Dosisermittlung

Die SSK beschreibt in ihrer Empfehlung "Radiologische Grundlagen für Entscheidungen über Maßnahmen zum Schutz der Bevölkerung bei unfallbedingten Freisetzungen von Radionukliden" in der zugehörigen Anlage "Verwendung von Jodtabletten zur Jodblockade der Schilddrüse bei einem kerntechnischen Unfall" die biologische Besonderheit und die damit einhergehenden Risiken des radioaktiven lods. Radioaktives lod besitzt die gleichen chemischen und biologischen Eigenschaften wie das natürlich vorkommende lod und kann analog in der Schilddrüse aufgenommen und gespeichert werden. Die Freisetzung von radioaktivem lod in unterschiedlichen chemischen Formen kann z. B. durch einen schweren Unfall in einem Kernkraftwerk verursacht werden. Die Aufnahme der lodisotope in den Körper kann über den Nahrungsmittelpfad aber auch über die Atemluft erfolgen zu einer konzentrierten Speicherung des radioaktiven lods in der Schilddrüse führen /SSK 19a/.

Unter anderem aus dieser Empfehlung leitet sich die Bedeutung des lods und der Analyse seiner Auswirkungen auf den Menschen ab, die im Folgenden in Einzelbetrachtungen analysiert wird. Diese Einzelbetrachtungen beziehen sich dann auf eine grenznahe, generische Anlage mit dem in Kapitel 3.1.2 genannten spezifischen Venting- und Filtersystem.

Bei bestimmten Ereignisabläufen in einem KKW mit Radionuklidfreisetzungen in die Umgebung können neben Edelgasen und Cäsium vor allem Iodfreisetzungen radiologisch relevant sein. Die Iodfreisetzungen setzen sich zusammen aus aerosolförmigem und gasförmigem Iod. Gasförmiges Iod kann sowohl in elementarer Form (I₂) als auch in organischen Verbindungen, wie z. B. als Methyliodid CH₃I vorliegen /FOR 15/, /OECD 16/, /OECD 07/.

lodfreisetzungen in organischen Verbindungen unterscheiden sich bezüglich der Rückhaltung (z. B. in Ventingfiltern /IAEA 17/, /OECD 14/), Deposition und Abreicherung verglichen mit elementarem und aerosolförmigem Iod /FOR 15/, /OECD 16/, /OECD 07/ (s. Kapitel 2). Dabei können insbesondere folgende Effekte relevant für die Bewertung radiologischer Auswirkungen sein:

 Organoiod wird je nach Prinzip und Bauart von Ventingfiltern /IAEA 17/, /OECD 14/ oder anderen Rückhaltesystemen unter Umständen erheblich schlechter zurückgehalten als elementares oder aerosolförmiges lod. Dadurch kann es bei entsprechenden Unfallszenarien je nach angenommener lodzusammensetzung zu Unsicherheiten bei der Ermittlung der lodfreisetzung kommen.

- Organoiod deponiert im geringeren Maße als die anderen lodspezies auf Oberflächen in der Umgebung und reichert sich dementsprechend weniger schnell in der luftgetragenen Nuklidwolke ab. Demgegenüber deponiert elementares lod deutlich stärker als die anderen lodspezies an Oberflächen und reichert sich dementsprechend schneller in den bodennahen Luftschichten ab. Bei unbekannter chemischer Zusammensetzung der lodfreisetzungen kann dieser Effekt zu Unsicherheiten bei der Ermittlung sowohl der Inhalationsdosis als auch der Dosis durch Bodenstrahlung führen.
- Bezüglich der Exposition durch Inhalation weisen elementares lod und Organoiod eine höhere Radiotoxizität auf als aerosolförmiges lod. Bei unbekannter chemischer Zusammensetzung der lodfreisetzungen kann dieser Effekt zu Unsicherheiten bei der Ermittlung der Inhalationsdosis führen.

Im Folgenden wird die potenzielle Bedeutung dieser Effekte anhand der in Kapitel 4 besprochenen Variationen in der Iodzusammensetzung anhand von Beispielrechnungen abgeschätzt und diskutiert.

5.1 Relevanz für die freigesetzte Gesamtmenge von lod in die Umgebung

In diesem Abschnitt wird der Effekt von Unterschieden in der Zusammensetzung auf die freigesetzte Aktivität von Iod betrachtet, die auf der unterschiedlichen Wirkung der erwähnten Filter für die einzelnen Iodspezies beruht. Dieser Effekt wird anhand des relativen Iod-Freisetzungsanteils, bezogen auf die anfängliche Gesamtmasse von Iod im Kerninventar, quantifiziert. Zur Erklärung von Unterschieden werden die Zusammensetzung und die Menge des Iods in der Atmosphäre des Containments und in der Umgebung verglichen.

Die prozentuale Netto-Zusammensetzung der Iodspezies (Massenprozent) der Containmentatmosphäre ist in Tab. 5.1 zusammengefasst. Die Werte wurden durch Invertierung der Iodzusammensetzung in der Umgebung gemäß Tab. 4.1 mit dem Kehrwert der Dekontaminationsfaktoren nach Tab. 3.1 berechnet. Im Vergleich mit Tab. 4.1 fällt auf, dass der Anteil von Organoiod in der Umgebung bei allen Quelltermen außer dem FKI-Quellterm mit mehr als 90 % dominiert, in der Containmentatmosphäre jedoch nur bei den Quelltermen nach /HAG 21/ und /KOW 22/. Bei den Quelltermen nach /RAI 13/ und /WEB 12/ hingegen macht Organoiod etwa ein Fünftel bis ein Viertel des lodgehalts der Containmentatmosphäre aus, beim FKI-Quellterm sind es nur wenige Prozent.

Tab. 5.1Prozentuale Zusammensetzung der Iodspezies (Massenprozent) der Con-
tainmentatmosphäre für die Quellterme zu gefilterten Ventingszenarien
nach Tab. 4.1.

Chemische Form von Iod	Iodzusammensetzung Containment (vor Filterung) [%]				
	S3 1300 MWe, /RAI 13/	DWR KONVOI a /HAG 21/	DWR KONVOI b /KOW 22/	PHEBUS- Analyse /WEB 12/	FKI /LÖF 10/
Aerosolför- miges lod	50,6	5,4	3,7	72,2	28,9
Elementares lod (I ₂)	24,7	5,5	5,6	5,9	68,0
Organisches Iod (CH ₃ I)	24,7	89,1	90,7	21,9	3,1

Die im Integral über alle lodspezies freigesetzten Anteile des ursprünglichen Kerninventars in die Containmentatmosphäre und die Umgebung sind für die betrachteten Quellterme in Tab. 5.2 zusammengefasst. Dabei bezieht sich der "Netto-Freisetzungsanteil in die Containmentatmosphäre" (oberste Datenzeile in Tab. 5.2) auf den hypothetischen lodgehalt im Containment, der nach Abschluss aller Anreicherungs-, Umwandlungs-, und Ablagerungsprozesse für die Freisetzung durch die Containment-Druckentlastung zur Verfügung steht. Dieser relative lodgehalt ist für alle Quellterme außer S3 (/RAI 13/) innerhalb eines Faktors 2 gleich. Beim S3-Quellterm ist er eine Größenordnung höher.

Der letztlich für die radiologischen Auswirkungen maßgebliche Freisetzungsanteil für lod in die Umgebung ist in der zweiten Datenzeile von Tab. 5.2 enthalten. Für den S3-Quellterm ist dieser Anteil mit fast 0,025 am höchsten, gefolgt von den Quelltermen nach /HAG 21/ und /KOW 22/ mit etwa 0,007. Für den Quellterm nach /WEB 12/ und den FKI-Quellterm beträgt der Freisetzungsanteil für lod in die Umgebung etwa 0,001.

Als Vergleichsgröße für die integrale Reduktionswirkung des Ventingfilters ist in der untersten Datenzeile von Tab. 5.2 der effektive Dekontaminationsfaktor (d. h. das Verhältnis des Netto-Freisetzungsanteils in die Containmentatmosphäre zum Freisetzungsanteil in die Umgebung) angegeben. Dieser beschreibt letztlich die Filterwirkung auf die Gesamt-lodfreisetzung und wird neben den technischen Dekontaminationsfaktoren des Filters für die einzelnen lodspezies (Tab. 3.1) von der lodzusammensetzung in der Containmentatmosphäre bestimmt. Demenentsprechend ist die Filterwirkung bei den durch Organoiod in der Containmentatmosphäre dominierten Quelltermen nach /HAG 21/ und /KOW 22/ mit einem effektiven Dekontaminationsfaktor von 1,1 fast vernachlässigbar. Bei den Quelltermen nach /RAI 13/ und /WEB 12/ liegt er etwa bei 4, während er beim FKI-Quellterm aufgrund der Dominanz des elementaren lods in der Containmentatmosphäre etwa bei 10 liegt.

Tab. 5.2Freisetzungsanteile und effektive Dekontaminationsfaktoren für die Quell-
terme zu gefilterten Ventingszenarien nach Tab. 4.1 (Erläuterungen im
Text)

Parameter [-]	S3 1300 MWe, /RAI 13/	DWR KONVOI /HAG 21/	DWR KONVOI /KOW 22/	PHEBUS- Analyse /WEB 12/	FKI /LÖF 10/
Netto-Freiset- zungsanteil in die Containmentat- mosphäre	8,9E-02	7,2E-03	7,1E-03	5,9E-03	9,5E-03
Freisetzungsanteil in die Umgebung	2,4E-02	6,5E-03	6,5E-03	1,3E-03	9,5E-04
Effektiver Dekontamina- tionsfaktor	3,7	1,1	1,1	4,4	10,0

Der Effekt von Variationen in der lodzusammensetzung der Containmentatmosphäre auf die Freisetzung in die Umgebung wird im Vergleich des FKI-Quellterms mit den Quelltermen nach /HAG 21/ und /KOW 22/ deutlich. Obwohl sich der Netto-Freisetzungsanteil in die Containmentatmosphäre bei allen drei Quelltermen nur geringfügig unterscheidet, ist die freigesetzte lodmenge in die Umgebung bei den Quelltermen nach /HAG 21/ und /KOW 22/ aufgrund des sehr hohen Anteils an Organoiod etwa siebenmal höher als beim FKI-Quellterm. Für Organoiodgehalte in der Containmentatmosphäre bis etwa 60 % liegt der Abdeckungsgrad der potenziellen Gesamtfreisetzung an lod in die Umgebung durch den FKI-Quellterm jedoch innerhalb eines Faktors 2. Der hohe Freisetzungsanteil in die Umgebung beim S3-Quellterm ist hingegen vor allem auf einen wesentlich höheren Netto-Austrag von Iod aus dem Kern in die Containmentatmosphäre als bei den anderen betrachteten Quelltermen zurückzuführen.

5.2 Relevanz für die Ausbreitung/ Deposition und die Strahlenexposition

In diesem Abschnitt werden die Einflüsse der chemischen lodzusammensetzung auf das Ausbreitungs- und Depositionsverhalten sowie auf die Radiotoxizität der inhalierten Nuklide untersucht. Über diese Effekte können sich Variationen in der lodzusammensetzung auch bei jeweils gleicher Menge an freigesetzten lodnukliden auf die potenzielle Strahlenexposition wie folgt auswirken:

- Ein höherer Anteil an Organoiod bewirkt tendenziell eine Erhöhung der Luftkonzentration sowie eine Erniedrigung der Bodenkontamination aufgrund der geringeren Neigung zur Deposition als die anderen lodspezies.
- Ein höherer Anteil an elementarem lod bewirkt tendenziell eine Erniedrigung der Luftkonzentration sowie eine Erhöhung der Bodenkontamination bei trockenen Verhältnissen aufgrund der größeren Neigung zur trockenen Deposition als die anderen lodspezies.
- Ein höherer Anteil an Organoiod oder elementarem lod bewirkt tendenziell eine Erhöhung der Inhalationsdosis aufgrund der höheren Radiotoxizität als von aerosolförmigem lod.

Zur Quantifizierung der Einflüsse werden synthetische Ausbreitungsrechnungen für verschiedene lodzusammensetzungen sowie eine Auswahl von räumlich homogenen und stationären meteorologischen Randbedingungen durchgeführt. Mittels der Ausbreitungsrechnungen werden die effektive Dosis für Erwachsene durch Inhalation sowie durch Bodenstrahlung in den ersten sieben Tagen nach Freisetzungsbeginn als Funktion der Entfernung unter der Fahnenachse ermittelt. Die Betrachtung beider Expositionspfade ermöglicht eine Aufschlüsselung der Variationen in der Strahlenexposition nach den o. g. Effekten sowie eine Betrachtung ihres Zusammenwirkens.

Um die o. g. Effekte von dem im vorigen Abschnitt behandelten Einfluss der Iodzusammensetzung auf den Freisetzungsanteil trennen zu können, wird für die durchgeführten Rechnungen stets von der gleichen emittierten Menge an Iod ausgegangen. Die zu diesem Zweck für eine Einheitsfreisetzung an Gesamtiod berechneten Dosen werden auf das jeweilige Maximum der zum Vergleich herangezogenen Quellterme nach /LÖF 10/ (FKI bzw. FKA, vgl. Abschnitt 2.4) normiert.

5.2.1 Ausbreitungsmodellierung

Die GRS hat im Rahmen des Forschungsvorhabens StSch 4443 "Entwicklung, Validierung und Bereitstellung eines atmosphärischen Ausbreitungsmodells für luftgetragene radioaktive Stoffe auf der Basis des Ausbreitungsmodells AUSTAL2000 der neuen TA-Luft" zusammen mit dem Ing.-Büro Janicke, Gesellschaft für Umweltphysik, das Programmsystem "Atmosphärisches Radionuklid-Transportmodell" (ARTM) entwickelt und im Rahmen von mehreren Folgevorhaben bis heute weiterentwickelt. So erfolgte im Vorhaben 3608S05005 "Erweiterung und Validierung von ARTM für den Einsatz als Ausbreitungsmodell in AVV und SBG" eine Ausweitung des Anwendungsbereichs von ARTM auf Stör- und Unfallsituationen. Derzeit erfolgt eine Weiterentwicklung von ARTM im Rahmen des Forschungsvorhabens 3621S52510.

Bei ARTM /GRS 23/ wird ein Lagrangesches Partikelmodell genutzt. Mit ARTM lässt sich nicht nur die Menge an Schadstoffen an einem bestimmten Punkt analysieren, sondern liefert auch eine räumliche und zeitabhängige Erfassung der Ausbreitung. Das Programm bezieht neben meteorologischen Daten wie z. B. Windgeschwindigkeit und Niederschlag auch Parameter wie die Grenzschichtmodelle in die Berechnung mit ein /GRS 23/.

5.2.2 Variation relevanter Parameter

Die in der Einleitung dieses Kapitels erläuterten Effekte von Unterschieden in der lodzusammensetzung auf die Radiotoxizität einerseits und das Depositionsverhalten andererseits werden in den exemplarischen Modellrechnungen durch Variation der Inhalationsdosiskoeffizienten sowie der in ARTM verwendeten Modellparameter zur Charakterisierung der trockenen und nassen Deposition abgebildet.

Tab. 5.3 fasst die verwendeten Dosiskoeffizienten für I-131 zusammen. Für aerosolförmiges lod wurde jeweils der maximale Dosiskoeffizient (Lungenabsorptionsklasse f) angesetzt. Bei der Berechnung der Bodenstrahlung wirkt sich die chemische Zusammensetzung des einmal abgelagerten I-131 nicht auf den Dosiskoeffizienten aus. Es wurde einheitlich ein Bodenstrahlungskoeffizient von 3,6E-16 Sv m²/Bq angesetzt /BASE 01/.

Chemische Form von I-131	DK I-131; Effektive Dosis Inhalation (ED), Erwachsene in Bq/Sv	Verhältnis zum DK für aerosol- förmiges lod (Ef- fektive Dosis)	DK I-131; Schild- drüsendosis In- halation (SD), Er- wachsene in Bq/Sv	Verhältnis zum DK für aerosol- förmiges lod (Schilddrüsendo- sis)
elementar	2,0E-08	2,70	3,9E-07	2,60
organisch	1,5E-08	2,03	3,1E-07	2,07
aerosolförmig	7,4E-09	1	1,5E-7	1

Tab. 5.3 Verwendete Inhalationsdosiskoeffizienten (DK) nach /BASE 01/

Tab. 5.4 fasst die verwendeten Parameter zur Berechnung der Deposition zusammen. Die Werte sind der Modellbeschreibung von ARTM /RIC 15/ entnommen. Dort finden sich auch weitere Angaben bezüglich der verwendeten Parameter des Berechnungsverfahrens.

 Tab. 5.4
 Parameter zur Berechnung der Deposition nach /RIC 15/

Chemische Form der lodisotope	Depositionsge- schwindigkeit für trockene Deposi- tion in m/s	Verhältnis zum Wert für schweb- stoffgebundenes Iod	Washoutkoeffi- zient für nasse Deposition in 1/s	Verhältnis zum Wert für schweb- stoffgebundenes Iod
elementar	0,01	10	7E-05	0,7
organisch	0,0001	0,1	7E-07	0,007
aerosolförmig	0,001	1	1E-04	1

5.2.3 Randbedingungen der generischen ARTM Ausbreitungsrechnungen

Im Folgenden werden die Ergebnisse der ARTM-Rechnungen vorgestellt. Es wurden vier Berechnungen (A bis D) der effektiven Dosis für die drei Iodspezies elementares Iod, organisches Iod und aerosolförmiges Iod mit unterschiedlichen Wetterparametern durchgeführt:

- A) Pasquill-Klasse E, 2 m/s Wind und trocken (kein Regen), Kaminhöhe
- B) Pasquill-Klasse D, 2 m/s Wind und trocken (kein Regen), Kaminhöhe
- C) Pasquill-Klasse D, 2 m/s Wind und konstant 1mm/h Regen, Kaminhöhe
- D) Pasquill-Klasse E, 2 m/s Wind und trocken (kein Regen), Gebäudehöhe

Neben der Inhalationsdosis (Freisetzungsdauer von 24 h) wurde der Dosisbeitrag durch die Bodenstrahlung (Expositionsdauer von 7 d) sowie die aus beiden gewonnenen effektive Gesamtdosis für alle vier Rechnungen bestimmt. Der Einfluss der Gammasubmersion und der direkten Strahlung wird nicht betrachtet.

Bei den ersten drei Rechnungen (A, B und C) wurden Freisetzungen über den Kamin mit einer Kaminhöhe von h = 100 m unterstellt und die Auswirkungen bis zu einer Entfernung von 100 km berechnet (in den Abbildungen dieses Kapitels sind Auszüge von 0 bis 25 km dargestellt). In den folgenden Abbildungen für die Rechnungen A, B und C werden die Auswirkungen der Freisetzungen mit den Werten der Freisetzungskategorie FKI aus der RODOS Quelltermbibliothek verglichen (/LÖF 10/, vgl. Abschnitt 2.4).

Für die Zusatzrechnung D wird eine Freisetzung in Gebäudehöhe mit h = 25 m unterstellt. Im Gegensatz zu den drei Rechnungen A bis C wird als Vergleich die Kategorie FKA herangezogen. Die Freisetzungskategorie FKA beschreibt z. B. eine Freisetzung aus einem Bypass durch ein unbedecktes DE-Heizrohrleck (/LÖF 10/, vgl. Abschnitt 2.4). Diese Zusatzrechnung dient einer ersten Einschätzung des potenziellen Effekts von Variationen in der lodzusammensetzung bei schweren Unfallabläufen mit Umgehung oder Versagen des SB auf die Strahlenexposition.

Die den Rechnungen A, B und C nach der RODOS Quelltermbibliothek zugrundeliegende Zusammensetzung der Iodspezies für die Freisetzungskategorie FKI ist in Tab. 4.1 angegeben. Die der Rechnung D zugrundeliegende Freisetzung nach der RODOS Quelltermbibliothek für die Freisetzungskategorie (FKA) besteht wie in /LÖF 10/ angegeben, zu 100 % aus aerosolförmigem Iod.

Für jede Rechnung wurden Verläufe für verschiedene Iodspezies-Zusammensetzungen gewählt, die sich u. a. auf den im Kapitel 4.3 vorgestellten GRS-Bericht von Weber /WEB 12/ beziehen:

- i) Maximaler Aerosolanteil (Name "Weber max aer", aus Tab. 4.4 Nr. 3)
- ii) Maximaler Elementariodanteil (Name "Weber max ele", aus Tab. 4.4 Nr. 6)
- iii) Maximaler Organoiodanteil (Name "Weber max org", aus Tab. 4.4 Nr. 8)
- iv) 100 % Aerosoliodanteil (Name "100 % Aerosol")
- v) RODOS Quelltermbibliothek FKI/FKA

5.2.4 Ergebnisse

Rechnung A: Pasquill-Klasse E, 2 m/s Wind und trocken (kein Regen), Kaminhöhe

In der Rechnung A wurde die Pasquill-Stabilitätsklasse E (stabil) für die Atmosphärenschichtung angenommen. Es wurden ein Wind mit der Geschwindigkeit von 2 m/s in 10 m Höhe und Bedingungen ohne Regen postuliert. Die Freisetzung findet auf Kaminhöhe statt.

Der Verlauf der effektiven Dosen für die Inhalation ist in Abb. 5.1 dargestellt.

Es zeigt sich, dass die Dosis des organischen lods den Verlauf der Inhalationsdosis dominiert. Dabei wird der maximale Effekt der unterschiedlichen Abreicherung aufgrund von Deposition im Vergleich mit dem Dosisverlauf mit maximalem elementarem lod Anteil ("Weber max ele") deutlich.

In den zugrundeliegenden Berechnungen ergibt sich aufgrund der geringeren Abreicherung für eine hypothetische reine Organoiodfreisetzung im Bereich des Dosismaximums eine Erhöhung der Luftkonzentration von ca. 60 % gegenüber einer reinen Freisetzung an elementarem Iod und von etwas weniger als 10 % gegenüber einer reinen Freisetzung an aerosolförmigem Iod (ohne Abb.).

Der abreicherungsbedingte Unterschied zwischen Organoiod und elementarem Iod wird in Abb. 5.1 teilweise durch den höheren Dosiskoeffizienten von elementarem Iod kompensiert. Insgesamt ergibt sich im Vergleich zwischen beiden Spezies eine maximal 20 % höhere Inhalationsdosis für Organoiod.

Für eine reine Aerosolfreisetzung ergibt sich im Vergleich zu einer von elementarem Iod dominierten Freisetzung eine Dosisreduktion von etwa 50 % im Bereich des Dosismaximums. Hier wird der Effekt der Abreicherung durch die geringere Radiotoxizität von aerosolförmigem Iod überkompensiert.

Insgesamt wirken sich Unterschiede in der Iodzusammensetzung stärker über die Radiotoxizität als über die Abreicherung durch Deposition auf die Strahlenexposition durch Inhalation aus. Für die Schilddrüsendosis aufgrund von Inhalation ergeben sich analoge Zusammenhänge bei etwas geringeren Unterschieden zwischen den Kurvenverläufen (ohne Abb.).



Abb. 5.1Änderung der normierten effektiven Inhalationsdosis in Abhängigkeit von
der Entfernung für die Rechnung A



Abb. 5.2Änderung der normierten effektiven Dosis aus der Bodenstrahlung in Ab-
hängigkeit von der Entfernung für die Rechnung A

Bei der Betrachtung der Dosis aus der Bodenstrahlung dominiert das effektiver am Boden abgelagerte elementare Iod (graue Kurve in Abb. 5.2), was durch die höhere Ablagerungsgeschwindigkeit des elementaren Iods im Vergleich zu den anderen Spezies erklärt werden kann (vgl. Abb. 5.2).

Dieser Effekt führt zu einer bis zu sechsmal höheren Dosis durch Bodenstrahlung bei einer von elementarem lod dominierten Freisetzung im Vergleich zu einer von aerosolförmigen lod dominierten Freisetzung im Bereich des Dosismaximums. Im Gegensatz dazu bewirkt eine durch Organoiod dominierte Freisetzung nur etwa 10 % der Dosis durch Bodenstrahlung im Vergleich zu einer von aerosolförmigem lod dominierten Freisetzung.

In der Gesamtdarstellung aus Inhalation und Bodenstrahlung (s. Abb. 5.3) lässt sich erkennen, dass sich für die Variationen der Zusammensetzungen ähnliche Ergebnisse für die relative Dosis um den Wert 100 % im Vergleich zum FKI-Fall ergeben. Der Verlauf der reinen Aerosolfreisetzung (Kurve "100 % Aerosol") liegt deutlich unter dem Kurvenverlauf der anderen betrachteten Fälle.



Abb. 5.3Änderung der summierten Dosen (Inhalation und Bodenstrahlung) aus der
in Abhängigkeit von der Entfernung für die Rechnung A

Rechnung B: Pasquill-Klasse D, 2 m/s Wind und trocken (kein Regen), Kaminhöhe

In der Rechnung B wurde die Pasquill-Stabilitätsklasse D für die Atmosphärenschichtung angenommen. Es wurde ein Wind mit der Geschwindigkeit von 2 m/s und Bedingungen ohne Regen postuliert. Die Freisetzung findet auf Kaminhöhe statt. Der Verlauf der effektiven Dosen für die Inhalation ist in Abb. 5.4 gegeben. Im Vergleich zur Rechnung A sind die Maximalwerte der Dosen bei geringeren Entfernungen zum Kamin zu finden. Durch die geringere Stabilität der Atmosphäre werden die Radionuklide schneller durchmischt und gelangen schneller zum Boden.

Es zeigt sich, aus den gleichen Gründen wie bei der Rechnung A, dass die Dosisverläufe von Organoiod dominiert werden (gelbe Kurve in Abb. 5.4). Die durch Abreicherungseffekte bewirkten Unterschiede sind insgesamt geringer ausgeprägt als bei stabiler Schichtung.



Abb. 5.4Änderung der normierten effektiven Inhalationsdosis in Abhängigkeit von
der Entfernung für die Rechnung B

Bei der Betrachtung der Dosis aus der Bodenstrahlung dominiert wieder das effektiver am Boden abgelagerte elementare Iod (graue Kurve in Abb. 5.5).



Abb. 5.5Änderung der normierten effektiven Dosis aus der Bodenstrahlung in Ab-
hängigkeit von der Entfernung für die Rechnung B



Abb. 5.6Änderung der summierten Dosen (Inhalation und Bodenstrahlung) aus der
in Abhängigkeit von der Entfernung für die Rechnung B

In der Gesamtdarstellung aus Inhalation und Bodenstrahlung (s. Abb. 5.6) lässt sich erkennen, dass sich für die Variationen der Zusammensetzungen wieder ähnliche Ergebnisse für die relative Dosis um den Wert 100 % im Vergleich zum FKI-Fall ergeben. Der Verlauf der reinen Aerosolfreisetzung (Kurve "100 % Aerosol") liegt deutlich unter dem Kurvenverlauf der anderen Fälle.

Rechnung C: Pasquill-Klasse D, 2 m/s Wind und 1 mm/h Regen, Kaminhöhe

In der Rechnung C wurde die Pasquill-Stabilitätsklasse D für die Atmosphärenschichtung angenommen. Es wurde ein Wind mit der Geschwindigkeit von 2 m/s und einer über die gesamte Simulationszeit konstant gehaltene Regenrate von 1 mm/h angenommen. Die Freisetzung findet auf Kaminhöhe statt. Der Verlauf der effektiven Dosen für die Inhalation ist in Abb. 5.7 gegeben. Die Maximalwerte der Inhalationsdosen sind aufgrund der gleichen ARTM-Parameterwahl bei den gleichen Entfernungen zum Kamin zu finden wie in Rechnung B.

Es zeigt sich, aus den gleichen Gründen wie bei der Rechnung A, dass Organoiod die Dosisverläufe bzgl. der Inhalation dominiert (gelbe Kurve in Abb. 5.7).



Abb. 5.7Änderung der normierten effektiven Inhalationsdosis in Abhängigkeit von
der Entfernung für die Rechnung C

Bei der Betrachtung der Dosis aus der Bodenstrahlung, in Abb. 5.8 dargestellt, dominiert hier im Gegensatz zur Rechnung A und B das aerosolförmige Iod. Das Aerosoliod wird durch den Regen am effektivsten ausgewaschen (vgl. Tab. 5.2) und sammelt sich an Oberflächen. In der Gesamtdarstellung aus Inhalation und Bodenstrahlung (s. Abb. 5.9) lässt sich erkennen, dass sich für die Variationen der Zusammensetzungen wieder ähnliche Ergebnisse für die relative Dosis um den Wert 100 % im Vergleich zum FKI-Fall ergeben. Aufgrund des höheren Relativbeitrages durch die Bodenstrahlung dominieren diesem Fall jedoch die Freisetzungen mit hohen Anteilen an aerosolförmigen bzw. elementaren lod.



Abb. 5.8 Änderung der normierten effektiven Dosis aus der Bodenstrahlung in Abhängigkeit von der Entfernung für die Rechnung C

Die Zusatzrechnung D soll eine erste Einschätzung möglicher Variationen der Exposition ermöglichen, die sich bei einer ungefilterten frühen Freisetzung mit Umgehung oder Beschädigung des Containments durch Unterschiede in der chemischen lodzusammensetzung ergeben können. Zu diesem Zweck wird der Quellterm der Freisetzungskategorie FKA (ungefilterte frühe Freisetzung, Aerosoliodanteil 100 % /LÖF 10/) in einem ersten Schritt mit den in Abschnitt 3.1.3 beschriebenen Zusammensetzungen der lodspezies bei der gefilterten Freisetzung verglichen. Der Vergleich kann ungeachtet der unterschiedlichen Unfallabläufe durchgeführt werden, da hier nur die Annahmen zur chemischen Zusammensetzung relevant für die Unterschiede zwischen den Freisetzungen sind.



Abb. 5.9 Änderung der summierten Dosen (Inhalation und Bodenstrahlung) aus der in Abhängigkeit von der Entfernung für die Rechnung C

Zusatzrechnung D: Pasquill-Klasse E, 2 m/s Wind und trocken (kein Regen), Freisetzungshöhe von 25 m

In der Rechnung D wurde die Pasquill-Stabilitätsklasse E für die Atmosphärenschichtung angenommen. Es wurde ein Wind mit der Geschwindigkeit von 2 m/s mit Bedingungen ohne Regen postuliert. Die Freisetzung findet nicht auf der Kaminhöhe statt, sondern bei einer reduzierten Freisetzungshöhe von h = 25 m (Annahme eines defekten Containments). Diese Freisetzung auf niedrigerer Höhe entspricht einer ungefilterten Freisetzung, wie sie die Freisetzungskategorie FKA darstellt /GRS 01/.

Der Verlauf der effektiven Dosen für die Inhalation ist in Abb. 5.10 gegeben. Die Maximalwerte der Dosen sind im Vergleich zur Rechnung A mit der gleichen Pasquill-Klasse aufgrund der niedrigeren Freisetzungshöhe bei deutlich geringeren Entfernungen zum Kamin zu finden. Es zeigt sich, aus den gleichen Gründen wie bei der Rechnung A, dass das Organoiod die Dosisverläufe dominiert (gelbe Kurve in Abb. 5.10).

Bei Betrachtung der Dosis aus der Bodenstrahlung dominiert wieder das effektiver am Boden abgelagerte elementare Iod (graue Kurve in Abb. 5.11). In der Gesamtdarstellung aus Inhalation und Bodenstrahlung (s. Abb. 5.12) lässt sich erkennen, dass sich für die Variationen der Zusammensetzungen deutlichere Unterschiede bei den Ergebnissen für die relative Dosis im Vergleich zum FKA-Fall ergeben (Größenordnung Faktor 2). Diese Unterschiede sind auch auf die deutlich höheren relativen Bodenstrahlungswerte zurückzuführen (ca. 500 % im Vergleich zu FKA).



Abb. 5.10 Änderung der normierten effektiven Inhalationsdosis in Abhängigkeit von der Entfernung für die Rechnung D



Abb. 5.11 Änderung der normierten effektiven Dosis aus der Bodenstrahlung in Abhängigkeit von der Entfernung für die Rechnung D



Abb. 5.12 Änderung der summierten Dosen (Inhalation und Bodenstrahlung) aus der in Abhängigkeit von der Entfernung für die Rechnung D

5.3 Fazit der Rechnungen

Die durchgeführten Untersuchungen zeigen den Einfluss der chemischen Iodzusammensetzung auf die potenzielle Strahlenexposition bei einer gefilterten Druckentlastung des Containments. Dabei wurden die folgenden Einflüsse bewertet:

 Einfluss auf die Freisetzung in die Umgebung: Ein sehr hoher Anteil von Organoiod in der Containmentatmosphäre (> 90 %) kann zu deutlich erhöhter Freisetzung der Gesamtiodmenge in die Umgebung führen. Im Vergleich mit dem in Deutschland zur Planung von Notfallschutzmaßnahmen herangezogenen Quellterm FKI nach /LÖF 10/ ergeben sich bis zu siebenfach höhere Freisetzungsmengen. Für Organoiodgehalte in der Containmentatmosphäre bis etwa 60 % liegt der Abdeckungsgrad der potenziellen Gesamtfreisetzung an Iod in die Umgebung durch den FKI-Quellterm jedoch innerhalb eines Faktors 2. Für die untersuchten Fälle zeigte sich, dass die Ergebnisse der gefilterten späten Freisetzungen für einen großen Teilbereich der analysierten Unfallabläufe in guter Übereinstimmung mit der bisherigen Freisetzungskategorie FKI bzw. dem zugehörigen Quellterm liegen. Bei sehr hohen Anteilen an Organoiod in der Containmentatmosphäre kann jedoch die Gesamtmenge an in die Umgebung freigesetzten lod deutlich höher liegen.

- Einfluss auf die Strahlenexposition durch Inhalation: Gegenüber einer reinen Aerosolfreisetzung führen Freisetzungen mit größeren Anteilen an Organoiod oder elementarem lod zu einer bis zum Zweieinhalbfachen erhöhten Strahlenexposition durch Inhalation. Dabei dominiert der Effekt der Radiotoxizität gegenüber depositionsbedingen Unterschieden in der Abreicherung. Durch den FKI-Quellterm nach /LÖF 10/ werden diese Einflüsse ausgewogen berücksichtigt.
- Einfluss auf die Strahlenexposition durch Bodenstrahlung: Gegenüber einer reinen Aerosolfreisetzung führen Freisetzungen mit größeren Anteilen an elementarem Iod bei trockenen Verhältnissen zu einer bis zum sechsfachen erhöhten Strahlenexposition durch Bodenstrahlung. Durch den FKI-Quellterm nach /LÖF 10/ wird dieser Einfluss ebenfalls berücksichtigt.

Ferner wurde eine Ersteinschätzung des Einflusses von Variationen in der Iodzusammensetzung auf die Strahlenexposition bei einer ungefilterten Freisetzung untersucht (Rechnung D in Abschnitt 5.2). In dieser zeigt sich bei einer Abweichung der Annahme einer Freisetzung von 100 % Aerosoliod eine deutliche Erhöhung der potenziellen Strahlenexposition. Es ist in einem nächsten Schritt die Überprüfung dieser Annahme notwendig, da eine Zusammensetzung unterschiedlicher Iodspezies zu höheren Dosiswerten führen kann.

6 Zusammenfassung und Ausblick

Bei Ereignisabläufen in kerntechnischen Anlagen, bei denen es zu Radionuklidfreisetzungen in die Umgebung kommen kann (z. B. bei schweren Unfällen), können neben Edelgasen und Cäsium vor allem Iodfreisetzungen radiologisch relevant sein. Die Iodfreisetzungen können dabei aerosolförmig oder gasförmig auftreten. Der gasförmige Iodanteil kann seinerseits sowohl in elementarer Form als auch in chemischer Verbindung, insbesondere in organischer Form vorliegen.

Für eine grenznahe, generische Anlage wurden unter Berücksichtigung iodspeziesabhängiger Dekontaminationsfaktoren lodfreisetzungen für gefilterte Freisetzungen in die Umgebung ermittelt. Diese lodfreisetzungen wurden in einem nächsten Schritt genutzt, um über Ausbreitungsrechnungen die effektive Dosis durch Inhalation und Bodenstrahlung für unterschiedliche lodzusammensetzungen bei unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen zu bewerten.

Das analysierte Ensemble von Unfallabläufen spiegelt die große Bandbreite an möglichen lodzusammensetzungen wider. Dabei ist gegenwärtig keine Aussage darüber möglich, inwiefern hohe Anteile an Organoiod plausibler sind als niedrige.

Für die untersuchten Fälle zeigte sich, dass die Ergebnisse der gefilterten späten Freisetzungen für einen großen Teilbereich der analysierten Unfallabläufe in guter Übereinstimmung mit der bisherigen Freisetzungskategorie FKI bzw. dem zugehörigen Quellterm liegen. Bei sehr hohen Anteilen an Organoiod in der Containmentatmosphäre kann jedoch die Gesamtmenge an in die Umgebung freigesetzten Iod deutlich höher liegen.

Es zeigt sich ein weiterer Analysebedarf der lodspezieszusammensetzung bei einer ungefilterten Freisetzung. Eine Ersteinschätzung ergibt bei einer Abweichung der lodzusammensetzung von 100 % Aerosoliod (wie z. B. beim Quellterm FKA angenommen) eine Erhöhung der relativen effektiven Dosen. Es erscheint daher sinnvoll, die potenzielle Variationsbreite der lodzusammensetzung bei Unfallabläufen mit ungefilterten Freisetzungen genauer zu analysieren, da eine Zusammensetzung unterschiedlicher lodspezies zu höheren Dosiswerten führen kann.

Literaturverzeichnis

- /AHA 23/ Ahad, J., Ahmad, M., Farooq, A., Waheed, K., Irfan, N.: Removal of iodine by dry adsorbents in filtered containment venting system after 10 years of Fukushima accident. Environmental science and pollution research international, Bd. 30, Nr. 30, S. 74628–74670, DOI 10.1007/s11356-023-27485-1, 2023.
- /ALB 18/ Albiol, T., Herranz, L., Riera, E., Dalibart, C., Lind, T., Del Corno, A., Kärkelä, T., Losch, N., Azambre, B., Mun, C., Cantrel, L.: Main results of the European PASSAM project on severe accident source term mitigation. Annals of Nuclear Energy, Bd. 116, S. 42–56, DOI 10.1016/j.anucene.2018.02.024, 2018.
- /ARN 19/ Arndt, S., Band, S., Beck, S., Eschricht, D., Iliev, D., Klein-Heßling, W., Nowack, H., Reinke, M., Sonnenkalb, M., Spengler, C., Weber, G.: COCOSYS 3.0 User Manual. Hrsg.: GRS gGmbH, GRS-P-3/Vol. 1, Mai 2019.
- /ATK 06/ Atkins, P. W., Paula, J. de: Physikalische Chemie, 4. vollständig überarbeitete Auflage. Wiley-VCH, 2006.
- /BAL 19/ Bal, M.: Control of accidental discharge of radioactive materials by filtered containment venting system: A review. Nuclear Engineering and Technology, Bd. 51, Nr. 4, S. 931–942, DOI 10.1016/j.net.2019.01.008, 2019.
- /BASE 01/ Bundesamt für die Sicherheit der nuklearen Entsorgung (BASE): Dosiskoeffizienten zur Berechnung der Strahlenexposition. Erreichbar unter https:// www.base.bund.de/DE/base/gesetze-regelungen/dosiskoeffizienten/ dosiskoeffizienten node.html, Stand von 2001.
- /BOS 12/ Bosland, L., Weber, G., Klein-Hessling, W., Girault, N., Clement, B.: Modeling and Interpretation of Iodine Behavior in PHEBUS FPT-1 Containment with ASTEC and COCOSYS Codes. Nuclear Technology, Bd. 177, Nr. 1, S. 36–62, DOI 10.13182/NT12-A13326, 2012.

- /BOS 20/ Bosland, L., Colombani, J.: Review of the potential sources of organic iodides in a NPP containment during a severe accident and remaining uncertainties. Annals of Nuclear Energy, Bd. 140, S. 107127, DOI 10.1016/j.anucene.2019.107127, 2020.
- /CHA 08/ Charpin, F., Raimond, E., Chaumont, B.: Technical basis for off-site emergency planning in France. International Journal of Risk Assessment and Management, Bd. 8, Nr. 1-2, S. 37–51, DOI 10.1504/IJRAM.2008.01614, 2008.
- /EC 01/ European Commission (EC): Nuclear Safety and the Environment, Determination of the in-containment source term for a Large-Break Loss of Coolant Accident. 2001.
- /EU 23/ EU: MUSA Management and uncertainties of severe accidents. Stand vom 12. Mai 2023, erreichbar unter https://musa-h2020.eu/, 2023.
- /FAU 23/ Fauske: MAAP Modular-Accident-Analysis-Program. Erreichbar unter https://www.fauske.com/maap-modular-accident-analysis-program, abgerufen am 10. August 2023.
- /FOR 15/ St. Foreman, M. R. J.: An introduction to serious nuclear accident chemistry.
 Cogent Chemistry, Bd. 1, Nr. 1, S. 1049111, DOI 10.1080/23312009.2015.1049111, 2015.
- /FRA 23/ framatome: Filtered Containment Venting System Efficient Containment Pressure Limitation. 2023.
- /GAU 17/ Gauntt, R.: ACCIDENT CONSEQUENCES AND ANALYSIS IAEA Workshop on Severe Accident Management Guidelines, 11-15 December 2017, Vienna, Austria, Präsentation. 2017.
- /GRS 01/ Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH (Hrsg.): Bewertung des Unfallrisikos fortschrittlicher Druckwasserreaktoren in Deutschland, Methoden und Ergebnisse einer umfassenden Probabilistischen Sicherheitsanalyse (PSA), Entwurf zur Kommentierung. GRS-175: Köln, Oktober 2001.

- /GRS 08/ Klein-Heßling, W., Arndt, S., Weber, G., Wolff, H., Schwarz, S., Spengler, C.: COCOSYS, Short description. Hrsg.: Gesellschaft f
 ür Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, 28. Mai 2008.
- /GRS 16a/ Weber, S., Austregesilo, H., Bals, C., Band, S., Hollands, T., Köllein, C., Lovasz, L., Pandazis, P., Schubert, J.-D., Sonnenkalb, M.: Weiterentwicklung des Rechenprogramms ATHLET-CD, Abschlussbericht. Hrsg.: Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-445, Oktober 2016.
- /GRS 16b/ Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: ATHLET, Program Overview. Febrary 2016.
- /GRS 19/ Hollands, T., Austregesilo, H., Bals, C., Buchholz, S., Hristov, H., Lovasz, L., Pandazis, P., Sarkadi, P., Tiborcz, L.: Vertiefte Validierung ATHLET und ATHLET-CD, Entwurf des Abschlussberichtes. GRS-549, August 2019.
- /GRS 20/ Arndt, S., Band, S., Beck, S., Eschricht, D., Iliev, D., Klein-Heßling, W., Nowack, H., Reinke, M., Sonnenkalb, M., Spengler, C., Weber, G.: COCOSYS 3.0, User Manual, GRS-P-3/Vol. 1, Rev. 54. Hrsg.: GRS gGmbH, Juni 2020.
- /GRS 22/ GRS gGmbH: COCOSYS Web Page. Erreichbar unter https://usercodes.grs.de/node/7, Stand vom August 2023.
- /GRS 23/ Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: Das atmosphärische Radionuklid Transportmodell ARTM. Erreichbar unter https:// www.grs.de/de/aktuelles/projekte/das-atmosphaerische-radionuklid-transportmodell-artm, abgerufen am 20. März 2024.
- /GUE 09/ Guentay, S., Bruchertseifer, H., Venz, H., Wallimann, F., Jaeckel, B.: A Novel Process for Efficient Retention of Volatile Iodine Species in Aqueous Solutions during Reactor Accidents, OECD Workshop on "Implementation of Severe Accident Management Measures, ISAMM". 2009.
- /GUI 14/ Guieu, S.: French NPPs Filtered Containment Venting Design, International Society for Nuclear Air Treatment Technologies, 33rd Nuclear Air Cleaning Conference. 2014.

- /HAG 21/ Hage, M. Johst, S., Kowalik, M.: Weiterentwicklung der Modell- und Datenbasis zur Durchführung von Unfallanalysen für die Fortschreibung eines einheitlichen Ereignisbaums. 2021.
- /HOL 07/ Holleman, A. F., Wiberg, N., Wiberg, E.: Holleman-Wiberg Lehrbuch der Anorganischen Chemie, 102. Auflage. de Gruyter, 2007.
- /HSK 06/ Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen (HSK) (Hrsg.): Referenzszenarien für den Notfallschutz in der Umgebung der schweizerischen Kernkraftwerke, Ausgabe 2. HSK-AN 6073, 2. Aufl., Oktober 2006.
- /HUM 18/ Humphries, Laron, L.: MELCOR 2.2 Severe Accident Analysis Code Current Status and Plans for Future. 2018.
- /IAEA 17/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Severe accident mitigation through improvements in filtered containment vent systems and containment cooling strategies for water cooled reactors, Proceedings of a Technical Meeting on Severe Accident Mitigation through Improvements in Filtered Containment Venting for Water Cooled Reactors Held in Vienna, Austria, 31 August-3 September 2015. IAEA TECDOC Series No. 1812, v.1812, 166 S., ISBN 9789201538178, International Atomic Energy Agency: Vienna, Austria, 2017.
- /JAC 15/ Jacquemain, D.: Nuclear Power Reactor Core Melt Accidents Current State of Knowledge. 1 S., ISBN 9782759818358, DOI 54899, EDP Sciences: Erscheinungsort nicht ermittelbar, 2015.
- /KOW 22/ Kowalik, M., Obergfell, M.: Optimierung der bestehenden Unfallanalysen hinsichtlich der Jodfreisetzung aus dem Reaktorkühlkreislauf unter Berücksichtigung neuer Erkenntnisse, Abschlussbericht zum Arbeitspaket AP 7. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit, GRS, Bd. 677, 154 S., ISBN 9783949088681, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: Köln, Garching b. München, Berlin, Braunschweig, März 2022.

- /LER 19/ Leroy, O., Monsanglant-Louvet, C.: Trapping measurements of volatile iodine by sand bed and metallic filters. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Bd. 322, Nr. 2, S. 913–922, DOI 10.1007/s10967-019-06786-1, 2019.
- /LÖF 10/ Löffler, H., Mildenberger, O., Sogalla, M., Stahl, T.: Aktualisierung der Quelltermbibliothek des Entscheidungshilfesystems RODOS für Ereignisse im Leistungsbetrieb, Abschlussbericht zum Vorhaben 3609S60009. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-A-3580: Köln, 30. Oktober 2010.
- /MAK 12/ MAK Commission: Aerosole Stäube, Rauche und Nebel [MAK Value Documentation in German language, 1997]. The MAK-Collection for Occupational Health and Safety, DOI 10.1002/3527600418, 2012.
- /NRC 17/ Humphries, L. L., Beeny, B. A., Gelbard, F., Louie, D. L., Phillips, J.: MELCOR Computer Code Manuals. Hrsg.: U.S. Nuclear Regulatory Commission (NRC), Version 2.2.9541 2017, 2. Aufl., Januar 2017.
- /NRC 23/ U.S. Nuclear Regulatory Commission (NRC): State-of-the-Art Reactor Consequence Analyses (SOARCA). Stand vom 12. Mai 2023, erreichbar unter https://www.nrc.gov/about-nrc/regulatory/research/soar.html, 2023.
- /NUR 75/ NUREG: Reactor Safety Study: An Assessment of Accident Risks in U.S. Commercial Nuclear Power Plants, NUREG-75/014 (WASH-1400). 1975.
- /NUR 95/ NUREG: Accident Source Terms for Light-Water Nuclear Power Plants, NUREG 1465. 1995.
- /OECD 00/ Organisation for Economic Co-operation and Development (OECD), Nuclear Energy Agency (NEA): Insights into the Control of the Release of Iodine, Caesium, Strontium and other Fission Products in the Containment during a Severe Accident Management, NEA/CSNI/R(2000)9. https://www.oecdnea.org/jcms/pl_17428/insights-into-the-control-of-the-release-of-iodine-cesium-strontium-and-other-fission-products-in-the-containment-by-severeaccident-management?details=true. 2000.

- /OECD 07/ Organisation for Economic Co-operation and Development (OECD), Nuclear Energy Agency (NEA): State of the Art Report on Iodine Chemistry. https://www.oecd-nea.org/jcms/pl_18434/state-of-the-art-report-on-iodinechemistry?details=true. 2007.
- /OECD 12/ Organisation for Economic Co-operation and Development (OECD), Nuclear Energy Agency (NEA): Behaviour of Iodine Project - Final Summary Report. https://www.oecd-nea.org/jcms/pl_19098/oecd/nea-behaviour-of-iodine-project-final-summary-report?details=true. 2012.
- /OECD 14/ Organisation for Economic Co-operation and Development (OECD), Nuclear Energy Agency (NEA): Status Report on Filtered Containment Venting. https://www.oecd-nea.org/jcms/pl_19514/status-report-on-filtered-containment-venting?details=true. 2014.
- /OECD 16/ Organisation for Economic Co-operation and Development (OECD), Nuclear Energy Agency (NEA): INTERNATIONAL IODINE WORKSHOP: Full Proceedings, NEA/CSNI/R(2016)5. https://www.oecdnea.org/jcms/pl_19702/international-iodine-workshop-full-proceedings?details=true. 2016.
- /OECD 20/ Organisation for Economic Co-operation and Development (OECD), Nuclear Energy Agency (NEA): Improving Evaluations of Source Terms for Severe Accidents at Nuclear Installations, Final Report of the Source Term Evaluation and Mitigation Project (STEM). https://www.oecdnea.org/jcms/pl_37981/improving-evaluations-of-source-terms-for-severeaccidents-at-nuclear-installations-final-report-of-the-sourceterm-evaluationandmitigation-project-stem?details=true. 2020.
- /OECD 23/ Organisation for Economic Co-operation and Development (OECD), Nuclear Energy Agency (NEA): Source Term Evaluation and Mitigation (STEM) Project. Stand vom 12. Mai 2023, erreichbar unter https://www.oecd-nea.org/ jcms/pl_25255/source-term-evaluation-and-mitigation-stem-project, 2023.
- /POW 96/ Powers, D. E. a.: A Simplified Model of Aerosol Removal by Natural Processes in Reactor Containments, NUREG/CR-6189, SAND94-0407. 1996.

- /RAI 13/ Raimond, E., Clément, B., Denis, J., Guigueno, Y., Vola, D.: Use of Phébus FP and other FP programs for atmospheric radioactive release assessment in case of a severe accident in a PWR (deterministic and probabilistic approaches developed at IRSN). Annals of Nuclear Energy, Bd. 61, S. 190– 198, DOI 10.1016/j.anucene.2013.05.035, 2013.
- /REI 10/ Nils Reinke, Walter Erdmann, Holger Nowack, Martin Sonnenkalb: Vergleichende Unfallanalysen f
 ür einen DWR vom Typ KONVOI mit den Integralcodes ASTEC V1.33 und MELCOR 1.8.6. GRS - A - 3559, August 2010.
- /RIC 15/ Richter, C., Sogalla, M., Thielen, H., Martens, R.: ARTM Atmosphärisches Radionuklid-Transport-Modell mit Radon Postprozessor und SBG-Modul, Modellbeschreibung zu Version 2.8.0, Stand 2015-09-15. Hrsg.: Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, 15. September 2015.
- /SOL 17/ Solaija, T. J.: Filtered Containment Venting System (FCVS) for Removal of Elemental and Organic Iodine during Severe Nuclear Power Plant Accidents. 2017.
- /SON 16/ Song, J., Jo, H., Ha, K., Jung, J., An, S., Kim, H., Revankar, S. T.: A Scaling Analysis for a Filtered Containment Venting System, yyy. Nuclear Technology, Bd. 195, Nr. 1, S. 29–43, DOI 10.13182/NT15-128, 2016.
- /SSK 05/ Strahlenschutzkommission (SSK) (Hrsg.): Grundsätze und Methoden zur Berücksichtigung von statistischen Unsicherheiten für die Ermittlung repräsentativer Werte der spezifischen Aktivität von Rückständen, Erläuterung zur Empfehlung und zur ihrer Anwendbarkeit, Stellungnahme der Strahlenschutzkommission. 20 S.: Bonn, 2005.
- /SSK 19a/ Strahlenschutzkommission (SSK) (Hrsg.): Verwendung von Jodtabletten zur Jodblockade der Schilddrüse bei einem Notfall mit Freisetzung von radioaktivem Jod, Empfehlung der Strahlenschutzkommission. 21 S., Februar 2019.
- /SSK 19b/ Strahlenschutzkommission (SSK) (Hrsg.): Einsatz partikelfiltrierender Halbmasken im Notfallschutz, Empfehlung der Strahlenschutzkommission. Juni 2019.
- /STE 17/ Steinhoff, T., Jacht, V.: Ausbau und Modernisierung der numerischen Verfahren in den Systemcodes ATHLET, ATHLET-CD, COCOSYS und ASTEC.
 Hrsg.: Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS,
 Bd. 469, GRS-469, 59 S., ISBN 9783946607526, GRS: Köln, Garching b.
 München, Berlin, Braunschweig, Juli 2017.
- /SUC 16/ Suckow, D., Furrer, M., Yang, J., Jäckel, B., Lind, T.: Investigation of iodine retention in a filtered containment venting system in the VEFITA test program. In: International Iodine Workshop: Full Proceeding.
- /TCH 21/ Tcharkhtchi, A., Abbasnezhad, N., Zarbini Seydani, M., Zirak, N., Farzaneh, S., Shirinbayan, M.: An overview of filtration efficiency through the masks: Mechanisms of the aerosols penetration. Bioactive materials, Bd. 6, Nr. 1, S. 106–122, DOI 10.1016/j.bioactmat.2020.08.002, 2021.
- /WAL 15/ Walter, H., Gering, F., Arnold K., Gerich, B., Heinrich, G., Welte, U.: Simulation potentieller Unfallszenarien für den Notfallschutz in der Umgebung von Kernkraftwerken mit RODOS. Deutschland. Bundesamt für Strahlenschutz, Schriften / Bundesamt für Strahlenschutz, 55/14, Online-Ressource, Bundesamt für Strahlenschutz: Salzgitter, 2015.
- /WEB 11/ Weber, G.: Ausgewählte Rechnungen mit dem Iodmodell AIM, GRS Köln, COCOSYS Schulung. Präsentation, 14. Februar 2011.
- /WEB 12/ Weber, G.: Unsicherheits- und Sensitivitätsuntersuchung der COCOSYSAIM-Ergebnisse zum Iodverhalten im PHEBUS-Versuch FPT1, GRS - A - 3676. 2012.
- /WRE 99/ Wren, J. C., Ball, J. M., Glowa, G. A.: The Interaction of Iodine with Organic Material in Containment. Nuclear Technology, Bd. 125, Nr. 3, S. 337–362, DOI 10.13182/NT99-A2952, 1999.
- /WRE 00/ Wren, J. C., Ball, J. M., Glowa, G. A.: The Chemistry of Iodine in Containment. Nuclear Technology, Bd. 129, Nr. 3, S. 297–325, DOI 10.13182/NT129-297, 2000.

Abkürzungsverzeichnis

AIM	Advances Iodine Model
ARTM	Atmosphärisches Radionuklid-Transport-Modell
AVV	Allgemeine Verwaltungsvorschrift
COCOSYS	Containment Code System
DBA	Design Base Accidents
BDBA	Beyond Design Base Accidents
DF	Dekontaminationsfaktor
DFM	Dry Filter Method
DK	(Inhalations) Dosiskoeffizienten
DWR	Druckwasserreaktor
FCVS	Filtered Containment Venting System
FKA	Freisetzungskategorie A
FKI	Freisetzungskategorie I
GDE	Gefilterte Druckentlastung
GDE	Gefilterte Druckentlastung
HKML	Hauptkühlmittelleitung
l_aer	aerosolförmiges lod
l_ele	elementaries lod
I_org	organisches lod

IRSN	Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire
KKW	Kernkraftwerk
KMV	Kühlmittelverluststörfall
LB-LOCA	Large-Break LOCA
LOCA	Loss of coolant accident
MCCI	Molten Core Concrete Interaction (Schmelze-Beton-Wechselwirkung)
MELCOR	Methods for Estimation of Leakages and Consequences of Releases
NPP	Nuclear Power Plant
PK	Primärkreis
RODOS	Realtime Online Decision Support System
RKL	Reaktorkühlkreislauf
RI	organisches lod
SP	Spaltprodukte
SBG	Störfallberechnungsgrundlagen
SSK	Strahlenschutzkommission
UasA	Unsicherheits- und Sensitivitätsanalysen (Uncertainty and Sensitivity Analysis

Abbildungsverzeichnis

Abb. 3.1	Schematischer Aufbau eines Sandbettfilters	19
Abb. 3.2	Anbringung des Filters außerhalb des Containments	20
Abb. 3.3	Aufbau eines Ventingsystems mit metallischem Vorfilter und Sandbettfilter	20
Abb. 5.1	Änderung der normierten effektiven Inhalationsdosis in Abhängigkeit von der Entfernung für die Rechnung A	46
Abb. 5.2	Änderung der normierten effektiven Dosis aus der Bodenstrahlung in Abhängigkeit von der Entfernung für die Rechnung A	46
Abb. 5.3	Änderung der summierten Dosen (Inhalation und Bodenstrahlung) aus der in Abhängigkeit von der Entfernung für die Rechnung A	47
Abb. 5.4	Änderung der normierten effektiven Inhalationsdosis in Abhängigkeit von der Entfernung für die Rechnung B	48
Abb. 5.5	Änderung der normierten effektiven Dosis aus der Bodenstrahlung in Abhängigkeit von der Entfernung für die Rechnung B	49
Abb. 5.6	Änderung der summierten Dosen (Inhalation und Bodenstrahlung) aus der in Abhängigkeit von der Entfernung für die Rechnung B	49
Abb. 5.7	Änderung der normierten effektiven Inhalationsdosis in Abhängigkeit von der Entfernung für die Rechnung C	50
Abb. 5.8	Änderung der normierten effektiven Dosis aus der Bodenstrahlung in Abhängigkeit von der Entfernung für die Rechnung C	51
Abb. 5.9	Änderung der summierten Dosen (Inhalation und Bodenstrahlung) aus der in Abhängigkeit von der Entfernung für die Rechnung C	52
Abb. 5.10	Änderung der normierten effektiven Inhalationsdosis in Abhängigkeit von der Entfernung für die Rechnung D	53
Abb. 5.11	Änderung der normierten effektiven Dosis aus der Bodenstrahlung in Abhängigkeit von der Entfernung für die Rechnung D	53
Abb. 5.12	Änderung der summierten Dosen (Inhalation und Bodenstrahlung) aus der in Abhängigkeit von der Entfernung für die Rechnung D	54

Tabellenverzeichnis

Tab. 3.1	lodspezies und zugehörige DF-Werte für ein generisches Sandbettfilter-Ventingssystem	18
Tab. 3.2	Exemplarische Freisetzungsanteile (Anteile am Kerninventar) bei schweren Unfällen (entnommen aus /JAC 15/, /RAI 13/)2	22
Tab. 4.1	Prozentuale Zusammensetzung der lodspezies (Massenprozent) für Freisetzungen in die Umgebung für verschiedene Quellterme zu gefilterten Ventingszenarien	26
Tab. 4.2	Freigesetzte lodmengen in die Umgebung nach dem Filter nach /HAG 21/, mit angepassten Filterfaktoren (DF-Werten)	31
Tab. 4.3	Prozentuale Zusammensetzungen der lodspezies (Massenprozent) für Freisetzungen in die Umgebung für ein Ventingszenario abgeleitet aus den Werten des Referenzlaufs aus /WEB 12/	34
Tab. 4.4	Prozentuale Zusammensetzungen der lodspezies nach der Filterung aus Kombinationen der Werte der unteren und oberen Toleranzgrenzen aus /WEB 12/	35
Tab. 5.1	Prozentuale Zusammensetzung der lodspezies (Massenprozent) der Containmentatmosphäre für die Quellterme zu gefilterten Ventingszenarien nach Tab. 4.1.	39
Tab. 5.2	Freisetzungsanteile und effektive Dekontaminationsfaktoren für die Quellterme zu gefilterten Ventingszenarien nach Tab. 4.1 (Erläuterungen im Text)	40
Tab. 5.3	Verwendete Inhalationsdosiskoeffizienten (DK) nach /BASE 01/	13
Tab. 5.4	Parameter zur Berechnung der Deposition nach /RIC 15/	13

Gesellschaft für Anlagenund Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH

Schwertnergasse 1 50667 Köln Telefon +49 221 2068-0 Telefax +49 221 2068-888

Boltzmannstraße 14 **85748 Garching b. München** Telefon +49 89 32004-0 Telefax +49 89 32004-300

Kurfürstendamm 200 **10719 Berlin** Telefon +49 30 88589-0 Telefax +49 30 88589-111

Theodor-Heuss-Straße 4 **38122 Braunschweig** Telefon +49 531 8012-0 Telefax +49 531 8012-200

www.grs.de