

**Überprüfung des  
unfallbedingten  
Freisetzungsverhaltens  
bei der Beförderung  
radioaktiver Stoffe**



## **Überprüfung des unfallbedingten Freisetzungsverhaltens bei der Beförderung radioaktiver Stoffe**

Abschlussbericht

Arbeitspaket 3

Cornelia Richter  
Burkhard Forell  
Florence-Nathalie Sentuc

Oktober 2017

### **Anmerkung:**

Das diesem Bericht zu Grunde liegende FE-Vorhaben 3614R03343 wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz Bau und Reaktorsicherheit durchgeführt.

Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt beim Auftragnehmer.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung des Auftragnehmers wieder und muss nicht mit der Meinung des Auftraggebers übereinstimmen.

**Deskriptoren**

Beförderung radioaktiver Stoffe, thermische Einwirkung, Freisetzungsteile

## **Kurzfassung**

Die Beförderung radioaktiver Stoffe stellt im verkehrsrechtlichen Sinne einen Transport von Gefahrgütern dar, für die nationale und internationale Regelwerke existieren. Durch die Anwendung dieses Regelwerks wurde in der Vergangenheit weltweit ein hohes Sicherheitsniveau bei der Beförderung radioaktiver Stoffe erreicht.

Die Methodik zur Bewertung dieses Sicherheitsniveaus muss jedoch fortwährend überprüft und ggf. angepasst werden. Neben einer aktuellen Datengrundlage sind hierbei insbesondere die Überprüfung und Validierung der grundlegenden Eingangsparameter sowie der verwendeten Berechnungsgrundlagen und Modelle von wissenschaftlicher und auch praktischer Bedeutung.

Die wichtigsten Eingangsparameter stellen die sogenannten Freisetzungsteile dar, die den relativen Anteil eines bestimmten radioaktiven Inventars angeben, der bei einem Unfall unter bestimmten Brand- und Erwärmungsbedingungen aus einem bestimmten Abfallgebinde freigesetzt wird. Die Freisetzungsteile sind regelmäßig Gegenstand vieler nationaler und internationaler Forschungsvorhaben und experimenteller Untersuchungen.

Im Rahmen dieses Vorhabens wurde zunächst die Simulation der Abfalltemperatur überprüft. Der innerhalb der Transportstudien Konrad gewählten Temperatur-Zeit-Verlauf ist auch nach heutigem Stand des Wissens konservativ zur Beschreibung von Freibränden. Raumbrände, wie insbesondere Tunnelbrände, werden durch die gewählte Maximaltemperatur von 800 °C nicht immer abgedeckt. Die angenommenen Wärmeübergangsbedingungen und überprüften Materialeigenschaften sind insgesamt auch nach heutigen Maßstäben aktuell und abdeckend. Eine Besonderheit, die bislang nicht berücksichtigt wurde, stellen mögliche Betonabplatzungen dar. Diese treten bei hohen Temperaturgradienten auf und sind insbesondere für Schwebbeton nicht auszuschließen.

Eine Analyse der bisher im Rahmen der Transportstudien Konrad verwendeten Freisetzungsteile brachte einige Inkonsistenzen in den jeweils angewendeten Argumentationen für die Abschätzung konservativer Freisetzungsteile zutage. Aktualisierte Freisetzungsteile, bei denen derartige Inkonsistenzen nicht mehr auftreten, wurden im Rahmen dieses Vorhabens bestimmt und dokumentiert.



## **Abstract**

The transport of radioactive substances constitutes, in terms of traffic law, a transport of dangerous goods for which national and international regulations exist. Through the application of this code, a high level of safety in the transport of radioactive material has been achieved worldwide in the past.

However, the methodology for assessing this level of safety must be constantly reviewed and, if necessary, adjusted. In addition to a current state of underlying data, the verification and validation of the basic input parameters as well as the calculation bases and models used are of scientific and practical importance.

The most important input parameters are the so-called release fractions, which represent the relative proportion of a particular radioactive inventory released from a given waste package in an accident under certain fire and heating conditions. The release fractions are regularly the subject of many national and international research projects and experimental investigations.

As part of this project, the simulation of the waste temperature was first examined. The temperature time curve chosen within the Konrad transport studies is also conservative for the description of free atmosphere fires, even according to the current state of knowledge. Room fires, in particular tunnel fires, are not always covered by the selected maximum temperature of 800 °C. The assumed heat transfer conditions and verified material properties are up-to-date and comprehensive by today's standards. A special phenomenon that is not considered yet is possible concrete spalling. These occur at high temperature gradients and cannot be ruled out, especially for heavy concrete.

An analysis of the release fractions used so far in the Konrad transport studies revealed some inconsistencies in the arguments used for the estimation of conservative release rates. Updated release fractions that do not cause such inconsistencies were identified and documented in this project.



## Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung .....</b>	<b>1</b>
1.1	Motivation .....	1
1.2	Belastungsklassen.....	2
1.3	Abfallgebindegruppen.....	3
1.4	Freisetzungsteile.....	8
<b>2</b>	<b>Simulationen der Abfalltemperatur .....</b>	<b>11</b>
2.1	Verwendeter Temperatur-Zeit-Verlauf.....	11
2.2	Anmerkungen zum bisher verwendeten Temperatur-Zeit-Verlauf .....	13
2.3	Verwendete Wärmeübergangsbedingungen und Materialeigenschaften..	20
2.3.1	Dokumentierte Berechnungen für Behälter mit nicht-metallischem Inventar .....	21
2.3.2	Dokumentierte Berechnungen für Behälter mit metallischem Inventar .....	27
2.4	Fazit zur Überprüfung der dokumentierten Simulationen der Abfalltemperatur .....	31
<b>3</b>	<b>Einteilung in Flüchtigkeitsklassen .....</b>	<b>33</b>
<b>4</b>	<b>Abhängigkeit von der Art der Konditionierung/Art des Abfalls.....</b>	<b>39</b>
<b>5</b>	<b>Berechnungsmethodik zu den thermischen Freisetzungsteilen....</b>	<b>43</b>
<b>6</b>	<b>Unsicherheiten bei der Bestimmung von thermischen Freisetzungsteilen .....</b>	<b>45</b>
<b>7</b>	<b>Aktualisierung der Freisetzungsteile .....</b>	<b>47</b>
7.1	Abfallgebindegruppe 1 und Abfallgebindegruppe 6.....	49
7.2	Abfallgebindegruppe 2.....	52
7.3	Abfallgebindegruppe 3.....	54
7.4	Abfallgebindegruppe 4.....	55
7.5	Abfallgebindegruppe 5 und Abfallgebindegruppe 7.....	56

7.6	Abfallgebindegruppe 8.....	61
<b>8</b>	<b>Fazit und Ausblick.....</b>	<b>63</b>
	<b>Literaturverzeichnis.....</b>	<b>65</b>
	<b>Abkürzungsverzeichnis.....</b>	<b>73</b>
	<b>Abbildungsverzeichnis.....</b>	<b>75</b>
	<b>Tabellenverzeichnis.....</b>	<b>77</b>

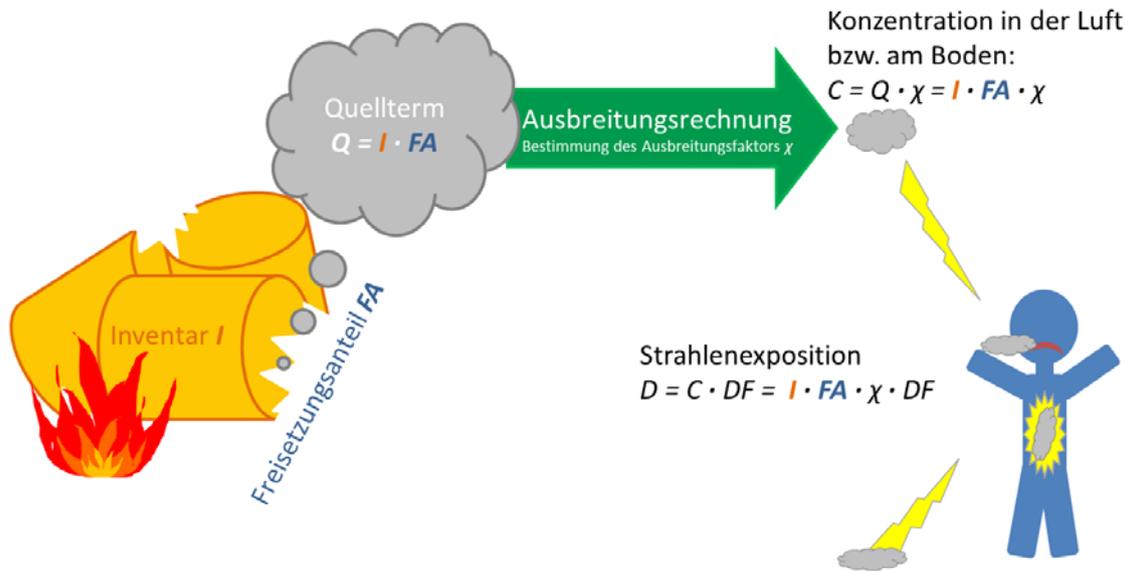
# 1 Einleitung

Die Beförderung radioaktiver Stoffe und die damit verbundenen Risiken stehen immer wieder im Fokus der Öffentlichkeit, insbesondere im Zusammenhang mit Rücktransporten von Wiederaufarbeitungsabfällen nach Deutschland. Radioaktive Stoffe sind im verkehrsrechtlichen Sinne Gefahrgüter, für die nationale und internationale Regelwerke existieren, bei deren Anwendung der sichere Transport und der Schutz vor den evtl. vom Transportgut ausgehenden Gefahren (hier: ionisierende Strahlung) grundsätzlich gewährleistet ist. Durch die Anwendung dieses international harmonisierten Regelwerks wurde in der Vergangenheit weltweit ein hohes Sicherheitsniveau bei der Beförderung radioaktiver Stoffe erreicht.

Die Methodik zur Bewertung dieses Sicherheitsniveaus muss jedoch fortwährend überprüft und ggf. angepasst werden. Neben einer aktuellen Datengrundlage sind hierbei insbesondere die Überprüfung und Validierung der grundlegenden Eingangsparameter sowie der verwendeten Berechnungsgrundlagen und Modelle von wissenschaftlicher und auch praktischer Bedeutung. Zu den grundlegenden Eingangsparametern gehören die sogenannten Freisetzungsteile (FA) für verschiedene Radionuklide bei unterschiedlichen Unfallbelastungen auf die Abfallgebinde. Die im Rahmen des Vorhabens gewonnenen Erkenntnisse zu den FA werden in diesem Bericht vorgestellt.

## 1.1 Motivation

Das Freisetzungverhalten von Radionukliden sowohl bei mechanischer als auch bei mechanisch-thermischer Belastung der Behälter bei Handhabungs- und Transportunfällen ist für eine radiologische Konsequenzenanalyse von entscheidender Bedeutung (vgl. Abb. 1.1). Die Bestimmung von Freisetzungsteilen (FA), also dem relativen Anteil an radioaktivem Inventar, der bei einem Unfall aus einem Abfallgebinde freigesetzt wird, ist daher regelmäßig Gegenstand vieler nationaler und internationaler Forschungsvorhaben und experimenteller Untersuchungen. Die FA sind dabei abhängig von der Stärke der mechanischen und/oder thermischen Beaufschlagung beim Unfall, der Art der Verpackung (Behältertyp), der Art der Konditionierung des Abfalls sowie der physikalischen und chemischen Form, in der die jeweiligen Radionuklide vorliegen. Eine Überprüfung des Standes von Wissenschaft und Technik in Bezug auf die Freisetzungsteile ist daher notwendig.



**Abb. 1.1** Bedeutung des Freisetzungsverhaltens für die Konsequenzenanalyse: Der Freisetzungsteil geht als linearer Faktor in die Berechnung der Strahlenexposition ein (siehe auch /BMU 12/, /SSK 99/).

Die Strahlenexposition ist in diesem Bild vereinfacht als  $C \cdot DF$  dargestellt, wobei  $DF$  für den zur jeweiligen Dosis  $D$  gehörenden Faktor (Kombination z.B. aus organ- und altersabhängigen Dosisleistungsfaktoren, altersabhängige Atemraten oder Verzehrsmengen, Transferfaktoren etc.) steht.

## 1.2 Belastungsklassen

In den bisher durchgeführten Transportstudien Konrad (/GRS 91a/, /GRS 10/) wurden die mechanischen und thermischen Belastungen in sogenannte Belastungsklassen eingeteilt. Dabei wird zwischen drei unterschiedlichen thermischen Belastungen, kein Brand, voll umhüllendes Feuer mit einer Temperatur von 800 °C und einer halben Stunde Dauer sowie ein gleichartiges Feuer von einer Stunde Dauer unterschieden. Bei den mechanischen Belastungen wird jeweils der Aufprall eines Abfallgebundes auf ein unnachgiebiges Hindernis betrachtet und ebenfalls zwischen drei unterschiedlichen mechanischen Belastungen unterschieden, die jeweils an einer maximalen Aufprallgeschwindigkeit ausgerichtet sind. Maßgeblich für die mechanische Belastung ist dabei der spezifische mechanische Energieeintrag, also der Energieeintrag, der pro Gebinde-masse für die Deformation und Zerstörung des Gebindes zur Verfügung steht. Die geringste mechanische Belastungsstufe beinhaltet Unfälle, bei denen das Abfallgebände mit einer Geschwindigkeit von maximal 35 km/h auf das Hindernis prallt. Dies entspricht einem freien Fall aus bis zu 4,8 m Höhe auf einen unnachgiebigen Boden bzw. einem

spezifischen mechanischen Energieeintrag von maximal 47,3 J/kg. Als nächsthöhere mechanische Belastungsstufe wird ein Aufprall mit bis zu 80 km/h (maximale Fallhöhe 25,2 m, spezifischer Energieeintrag bis zu 246,9 J/kg) angesetzt. Die höchste, in den Transportstudien betrachtete mechanische Belastungsstufe umfasst Unfälle mit einer Aufprallgeschwindigkeit von bis zu 110 km/h (maximale Fallhöhe 47,6 m, spezifischer mechanischer Energieeintrag bis 466,8 J/kg). Höhere Aufprallgeschwindigkeiten werden in den Transportstudien nicht betrachtet, da davon ausgegangen werden kann, dass Güterzüge bzw. LKW nicht schneller unterwegs sind. Auch Zusammenstöße mit anderen Fahrzeugen, bei denen unter Umständen höhere Aufprallgeschwindigkeiten vorkommen könnten, sind durch diesen höchsten angenommen spezifischen mechanischen Energieeintrag weitestgehend abgedeckt, da andere Fahrzeuge keine unnachgiebigen Hindernisse darstellen und somit bei einem Zusammenstoß auch verformt oder zerstört werden und somit nicht mehr die gesamte mechanische Energie zur Zerstörung des Abfallgebundes zur Verfügung steht.

Aus der Kombination der drei thermischen Belastungsstufen und der drei mechanischen Belastungsstufen ergeben sich insgesamt neun sogenannte Belastungsklassen (BK). Diese sind in Tabelle Tab. 1.1 zusammengestellt. Für die mechanischen Belastungen sind dabei die drei gebräuchlichen, gleichwertigen Einheiten angegeben.

**Tab. 1.1** Nummerierung der Belastungsklassen in Abhängigkeit von mechanischer und thermischer Belastung

mechanische Belastungsstufen				thermische Belastungsstufen		
maximale Aufprallgeschwindigkeit des Abfallgebundes auf unnachgiebiges Hindernis	maximale Fallhöhe des Abfallgebundes auf unnachgiebigen Boden	maximaler spezifischer mechanischer Energieeintrag	kein Brand	halbe Stunde Brand	eine Stunde Brand	
35 km/h	9,7 m/s	4,8 m	47,3 J/kg	BK 1	BK 2	BK 3
80 km/h	22,2 m/s	25,2 m	246,9 J/kg	BK 4	BK 5	BK 6
110 km/h	30,6 m/s	47,6 m	466,8 J/kg	BK 7	BK 8	BK 9

### 1.3 Abfallgebindergruppen

Neben der mechanischen und thermischen Belastung spielt für die Höhe des Freisetzunganteils auch die Art des Abfalls und der Verpackung eine entscheidende Rolle.

Bei den Abfallarten wird im Zusammenhang mit der Einlagerung im Endlager Konrad in den Endlagerungsbedingungen /KUG 17/ zwischen sechs Abfallproduktgruppen (APG)

unterschieden, die aus den radioaktiven Rohabfällen erzeugt werden. Diese Abfallprodukte müssen allgemeinen Grundanforderungen genügen. Neben Anforderungen zu den Mengen bzw. spezifischen Aktivitäten von bestimmten Nukliden und insbesondere auch spaltbarem Material werden auch Bedingungen für die weiteren mechanischen, physikalischen und chemischen Eigenschaften gestellt. So müssen die Abfallprodukte beispielsweise in fester Form vorliegen, dürfen nicht faulen, gären, selbstentzündlich oder explosiv sein und dürfen (bis auf nicht vermeidbare Restgehalte) weder Flüssigkeiten noch Gase in Ampullen, Flaschen oder sonstigen Behältern enthalten /KUG 17/. Zu den einzelnen Abfallproduktgruppen werden in den Endlagerbedingungen die folgenden Angaben gemacht:

- APG 1: Alle Abfälle, die den Grundanforderungen genügen, können dieser Abfallproduktgruppe zugeordnet werden
- APG 2: Über die Grundanforderungen hinaus muss gewährleistet sein, dass brennbare Abfallstoffe mit einem Schmelzpunkt unter 300 °C entweder so verarbeitet sind, dass sie bei thermischer Belastung nicht aus dem Abfallprodukt austreten können oder dass ihr Anteil nicht mehr als 1 % an der Aktivität des Abfallproduktes aufweist
- APG 3: Neben der Bedingungen der Grundanforderungen muss hier gewährleistet sein, dass das Abfallprodukt nur aus Metallteilen bzw. aus Werkstoffen von Einbauteilen eines Reaktorkerns außer Graphit besteht.
- APG 4: Über die Grundanforderungen hinaus muss gewährleistet sein, dass der radioaktive Abfall mit einem Pressdruck von mindestens 30 MPa formstabil kompaktiert ist. Die Presslinge können auch in Innenbehälter verpackt und/oder Resthohlräume im Abfallbehälter mit inaktivem Zement/Beton verfüllt werden.
- APG 5: Neben den Grundanforderungen muss gewährleistet sein, dass der radioaktive Abfall in Zementstein oder Beton fixiert ist. Die Fixierung muss so ausgeführt sein, dass bei eingebundenen oder verfestigten radioaktiven Abfällen (z. B. Aschen, Pulvern oder wässrigen Konzentraten) die Aktivität gleichmäßig und vollständig im Zementstein oder Beton verteilt ist bzw.

bei vergossenen radioaktiven Abfällen (z. B. Schrott) die Aktivität möglichst gleichmäßig im Abfallprodukt verteilt ist, und dass die Druckfestigkeit des Abfallproduktes mindestens  $10 \text{ N/mm}^2$  beträgt.

APG 6: Das Abfallprodukt muss die Grundanforderungen erfüllen sowie aus einem festen Körper mit einer Druckfestigkeit von mindestens  $10 \text{ N/mm}^2$  bestehen und nicht brennbar sein.

Bei den Abfallbehältern wird in den Endlagerbedingungen zwischen zwei verschiedenen Abfallbehälterklassen (ABK) unterschieden. Für beide ABK gelten allgemeine Grundanforderungen. Diese geben unter anderem die Außenabmessungen und Bruttovolumina vor, (siehe Tab. 1.2). Weitere Vorgaben sind, dass sie bis zu einer Höhe von 6 m gestapelt werden können müssen, ohne dass ihre Dichtheit oder Integrität gefährdet ist und ihre spezifizierte Dichtheit gewährleisten. Wenn sie aus Stahlblech bestehen, müssen sie innen und außen korrosionsgeschützt sein und dürfen bei der Anlieferung nicht beschädigt sein (mechanisch oder korrosiv).

**Tab. 1.2** Tabelle 1 aus Anhang 1 der Endlagerungsbedingungen Konrad /KUG 17/: Behältergrundtypen für die Verpackung von radioaktiven Abfällen mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung

Nr.	Bezeichnung	Außenabmessungen			
		Länge / Durchmesser mm	Breite mm	Höhe mm	Bruttovolumen m <sup>3</sup>
1	Betonbehälter Typ I	ø 1060	—	1370 <sup>1)</sup>	1,2
2	Betonbehälter Typ II	ø 1060	—	1510 <sup>2)</sup>	1,3
2a	Betonbehälter Typ II ummantelt	ø 1060	—	1510	1,3
3	Gussbehälter Typ I	ø 900	—	1150	0,7
4	Gussbehälter Typ II	ø 1060	—	1500	1,3
4a	Gussbehälter Typ II/KfK	ø 1060	—	1370	1,2
5	Gussbehälter Typ III	ø 1000	—	1240	1,0
6	Container Typ I	1600	1700	1450	3,9
6a	Container Typ I/KfK	1600	1700	1400	3,8
7	Container Typ II	1600	1700	1700	4,6
8	Container Typ III	3000	1700	1700	8,7
9	Container Typ IV	3000	1700	1450	7,4
9a	Container Typ IV/KfK	3000	1700	1400	7,14
10	Container Typ V	3200	2000	1700	10,9
11	Container Typ VI	1600	2000	1700	5,4
<p><sup>1)</sup> Höhe 1370 mm + Lasche von 90 mm = 1460 mm</p> <p><sup>2)</sup> Höhe 1510 mm + Lasche von 90 mm = 1600 mm</p>					
<p>Containerwerkstoffe sind z. B. Stahlblech, armierter Beton oder Gusswerkstoff.</p>					

Neben den Grundanforderungen an Abfallbehälter muss ein Behälter der ABK I so ausgelegt sein, dass bis zu einer Aufprallgeschwindigkeit von 4 m/s die Integrität soweit erhalten bleibt, dass bei einer thermischen Belastung entsprechend der BK 3, 6 oder 9 der Sauerstoffzutritt in den Abfallbehälter zum Abfallprodukt soweit eingeschränkt ist, dass brennbare Abfallprodukte mit einem Schmelzpunkt über 300 °C nicht offen abbrennen, sondern lediglich pyrolysieren können. Für Behälter der ABK II wird zusätzlich zu den Grundanforderungen verlangt, dass nach einem Fall aus 5 m Höhe auf einen unnachgiebigen Untergrund die Gesamtleckrate (bezogen auf Standardbedingungen wie bei der Dichtheitsprüfung nach der Vakuum-Methode)  $1 \cdot 10^{-4} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3/\text{s}$  nicht überschreitet. Bei einem Schadensfeuer entsprechend BK 3, 6 oder 9 muss die Gesamtleckrate eines ABK II Behälters kleiner als  $1 \cdot 10^{-5} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3/\text{s}$  sein und die Stoffmenge, die während des Feuers und in den darauffolgenden 24 Stunden der Abkühlphase austritt, darf 1 Mol nicht überschreiten.

Um als störfallfest verpackt zu gelten, wird für Abfallprodukte in ABK I Behältern zusätzlich gefordert, dass der radioaktive Abfall entweder formstabil fixiert oder in einen Innenbehälter verpackt ist, der formstabil vergossen ist und diese Formstabilität auch bei einem Fall aus 5 m Höhe auf ein unnachgiebiges Hindernis erhalten bleibt. Weiterhin muss das Abfallprodukt allseitig von einer inaktiven Schicht mit einem hohen Wärmeleitwiderstand (Produkt aus Schichtdicke und reziproker Wärmeleitfähigkeit) von mindestens  $0,1 \text{ m}^2 \cdot \text{K}/\text{W}$  umgeben sein, die bei einem Aufprall mit 4 m/s intakt bleibt. Für Abfälle in ABK II Behältern wird zusätzlich gefordert, dass bei formstabil fixierten und in Innenbehältern verpackten radioaktiven Abfällen die Integrität der Innenbehälter nach einem Fall aus 5 m Höhe auf eine unnachgiebige Unterlage erhalten bleibt und dass die Wandung der Verpackung bis zu einer Aufprallgeschwindigkeit von 4 m/s einen Wärmeleitwiderstand wie bei der ABK I von mindestens  $0,1 \text{ m}^2 \cdot \text{K}/\text{W}$  besitzt, oder bei einer thermischen Belastung entsprechend der BK 3, 6 oder 9 und einer Abkühlphase von 24 Stunden keine radiologisch relevante Freisetzung von radioaktiven Stoffen erfolgt /KUG 17/. Zur Definition einer „radiologisch relevanten Freisetzung“ wird dabei auf Kapitel 7.3.3 aus /STE 10/ verwiesen, wobei der in dort definierte Summenwert für einen störfallfesten ABK II Behälter mit Abfall kleiner als 0,1 sein muss. (Die Definition und Berechnungsmethode für den Summenwert wird in Kapitel 7.3.3 /STE 10/ eingehend beschrieben und kann dort nachvollzogen werden.)

Zur Zuordnung von Freisetzunganteilen wurden in den Transportstudien für das Endlager Konrad zugelassene Abfallproduktgruppen und Abfallbehälterklassen sogenannte

Abfallgebindegruppen (AGG) definiert. Seit der Transportstudie Konrad 2009 (TSK 2009) /GRS 10/ sind diese AGG wie in Tabelle Tab. 1.3 angegeben definiert.

**Tab. 1.3** Definition der TSK Abfallgebindegruppen

<b>AGG</b>	<b>Behältertyp</b>	<b>ABK</b>	<b>Abfallart</b>	<b>APG</b>
1	Stahlblechcontainer	I	Brennbare, unfixierte Abfälle	1
2	Stahlblechcontainer oder Betonbehälter	I	Unfixierte und nicht kompaktierbare metallische und nicht metallische Abfälle (einschließlich Verdampferkonzentraten)	2
3	Stahlblechcontainer oder Betonbehälter	I	Metallische Abfälle	3
4	Stahlblechcontainer oder Betonbehälter	I	Kompaktierte Abfälle	4
5	Stahlblechcontainer	I	Zementfixierte Abfälle	5
6	Betonbehälter	I	Brennbare, unfixierte Abfälle	1-4
7	Betonbehälter	I	Zementfixierte Abfälle	5
8	Gussbehälter	II	Abfälle in Gussbehältern	1-5

#### 1.4 Freisetzungssanteile

Bereits im Rahmen des Vorhabens 3607R02600 wurden die in der Transportstudie Konrad /GRS 91a/ genutzten Freisetzungssanteile überprüft und insbesondere für rein mechanische Einwirkungen aufgrund neuerer experimenteller Studien /LAN 05/, /LAN 03/ und den im Vorhaben SR 2497 durchgeführten und dokumentierten Untersuchungen /LAN 07/ zum Freisetzungsverhalten von festen (sprödbrechenden) Materialien angepasst /GRS 13/. Dies führte zum Abbau bisher enthaltener übermäßiger Konservativitäten für die radiologische Konsequenzenanalyse, die bereits bei der Erstellung der TSK 2009 /GRS 10/ berücksichtigt werden konnten. Ziel der Transportstudien Konrad war nämlich gerade die möglichst realitätsnahe Abschätzung der mit den Abfalltransporten verbundenen potenziellen radiologischen Folgen.

Die Wahl der Freisetzungssanteile durch Brandeinwirkung in der TSK 1991 geht jedoch im Wesentlichen auf die Analysen im Rahmen der Systemanalyse Konrad zurück /GRÜ 87a/. Bei Nirex (UK) sind seit 1988 mehrere Experimentserien durchgeführt worden, die sich mit der Freisetzung radioaktiver Stoffe aus schwach- und mittelradioaktiven Abfällen bei Brandeinwirkung befasst haben /BAR 00/, /TUR 00a/. Neuere Experimente zur Bestimmung des Freisetzungsverhaltens radioaktiver Abfälle unter thermischer Lasteinwirkung wurden vom ISTec zusammen mit dem Bundesamt für Strahlenschutz

durchgeführt und veröffentlicht /BOE 04/, /BOE 05/, /BOE 06/. Diese umfassen Experimentserien mit einer Aufheizung und/oder Verbrennung verschiedener Abfallformen oder von Abfallsimulaten.

Im Folgenden wird der derzeitige Kenntnisstand zur Freisetzung aus thermischer Belastung aus der Auswertung der verfügbaren Literatur zusammenfassend dargestellt und mit Bezug auf die bisher in den Transportstudien Konrad verwendeten Ansätze diskutiert (Kapitel 2 bis 6).

Neben der Literaturrecherche zu den thermischen Freisetzungsteilen wurden die bisher verwendeten Freisetzungsteile zu den einzelnen Belastungsklassen (BK) und Abfallgebindegruppen (AGG) und Nuklidgruppen (sonstige Nuklide bzw. H-3, C-14 und Halogene) einer generellen Prüfung unterzogen. Dabei wurden insbesondere die zugrundeliegenden Annahmen bei der Herleitung der FA überprüft. Es zeigten sich einige Inkonsistenzen bei der in /GRS 91b/, Anhang IV vorgestellten Vorgehensweise. In Kapitel 7 werden diese Inkonsistenzen thematisiert und aufbauend auf einer aktualisierten, nun durchgängig konsistenten Vorgehensweise angepasste FA präsentiert.



## 2 Simulationen der Abfalltemperatur

Da die Freisetzungsmechanismen temperaturabhängig verlaufen bzw. erst bei bestimmten Temperaturen (Verdampfung, Sublimation, Pyrolyse) ermöglicht werden, müssen die durch mögliche Brandeinwirkung resultierenden Temperaturen des Behälterinventares berechnet werden. Hierzu wurden in der Vergangenheit Temperatur-Zeit-Verläufe und Wärmeübergangsbedingungen festgelegt und für repräsentative Behältertypen und Inventare die Erwärmung des Inventares simuliert. Die in der Vergangenheit festgelegten Szenarien und Randbedingungen werden im Folgenden dargestellt und nach heutigen Kenntnissen bewertet.

Der Bericht GRS-A 3684 /GRS 13/ dient für die aktuellen Untersuchungen als Ausgangsbasis. Eigenständige Berechnungen zu thermischen Einwirkungen werden im Bericht /GRS 13/ nicht dokumentiert. In Bezug auf die Transportstudie Konrad (TSK) /GRS 91b/ wird aber in /GRS 13/ dargestellt, dass die Analysen im Wesentlichen auf die Annahmen im Rahmen der Systemanalyse Konrad /GRÜ 87a/ zurückgehen.

### 2.1 Verwendeter Temperatur-Zeit-Verlauf

In /GRÜ 87a/ wird als thermische Einwirkung aus einem Brand eine 5-minütige Aufheizphase mit einem Temperaturanstieg von 30 °C auf 800 °C festgelegt, die von einer konstanten 60-minütigen Einwirkung von 800 °C gefolgt wird. Vereinfacht wird in diesem Zusammenhang von einem Brand bei 800 °C über 60 min gesprochen. In /GRS 91b/ wurden diese Werte für die TSK „zum Teil leicht angepasst und um ein Szenario mit 30 min Branddauer erweitert“.

In der TSK (Ergänzungsband II) /GRS 91b/ werden folgende Randbedingungen beschrieben:

*„Die thermische Belastung wird durch den Brandzeit-Temperatur-Verlauf charakterisiert, dem das Abfallgebinde allseitig ausgesetzt ist und der der Brandlast eines realistischen Schadensfeuers äquivalent ist.“* Innerhalb dort definierter mechanischer und thermischer Belastungsklassen werden drei thermische Klassen verwendet:

- kein Brand
- 30-minütiger Brand bei 800 °C
- 60-minütiger Brand bei 800 °C

Länger andauernde Brände bzw. Brände mit höheren Temperaturen werden bei der Klassifizierung nicht unterstellt, da diese durch die Definition des Brandzeit-Temperatur-Verlaufs abgedeckt seien.

So wird bzgl. der Expositionsdauer argumentiert, dass sich z. B. für den 60-minütigen Brand bei 800 °C, dem das Abfallgebilde allseitig unterworfen ist, höhere Temperaturen des Transportgutes ergeben, als z. B. bei einem mehrstündigen Brand in geringer Entfernung des Abfallgebildes, der nur zu einer partiellen Beaufschlagung des Abfallgebildes führt. Mehrstündige Brände mit allseitiger Flammenumschließung der Abfallgebilde seien praktisch auszuschließen, da sich mehrstündige Brände nur ergeben könnten, wenn benachbarte Waggons mit großen Brandlasten abbrennen. Dies führe jedoch nur zur einseitigen thermischen Beaufschlagung.

Bzgl. der Höhe der Brandtemperatur sei die Situation vergleichbar. Flammentemperaturen in der heißen Temperaturzone lägen bei stöchiometrischer Verbrennung i. A. erheblich über den unterstellten 800 °C. Die Realisierung derartig hoher Flammentemperaturen sei jedoch nur in speziellen Konfigurationen möglich, z. B. Schweißbrenner. Untersuchungen zur Brandtemperaturermittlung ergeben, dass „*im Freiland*“ mittlere Brandtemperaturen deutlich unter 800 °C lägen. Lediglich in geschlossenen Räumen mit ungünstiger Wärmestrahlungsgeometrie könnten sich höhere Temperaturen ergeben, jedoch seien auch diese durch abdeckende Annahmen bei der Wärmeübertragungsrechnung abgedeckt, so dass sich rechnerisch höhere Abfallprodukttemperaturen ergäben, als bei entsprechenden Untersuchungen gemessen wurden. Konkrete Berechnungsbeispiele werden für die vorhandene Konservativität gegenüber höheren Brand(raum)temperaturen nicht angegeben.

Als abdeckende Annahmen bei den Aufheizrechnungen, die den Quelltermittlungen zugrunde liegen, werden aufgeführt:

1. Wahl konservativer Wärmeübertragungsparameter wie Einstrahlzahlen, Emissionskoeffizienten und Wärmeübergangskoeffizienten
2. Vernachlässigung abschirmender Strukturen
3. Vernachlässigung der Kühl- und Isolierwirkung eventueller Löschmittel beim Löschangriff

Die genannten abdeckenden Annahmen in Kombination mit den angenommenen Brandzeit-Temperaturverläufen stellten sicher, dass bei allen Unfallsituationen die mögliche

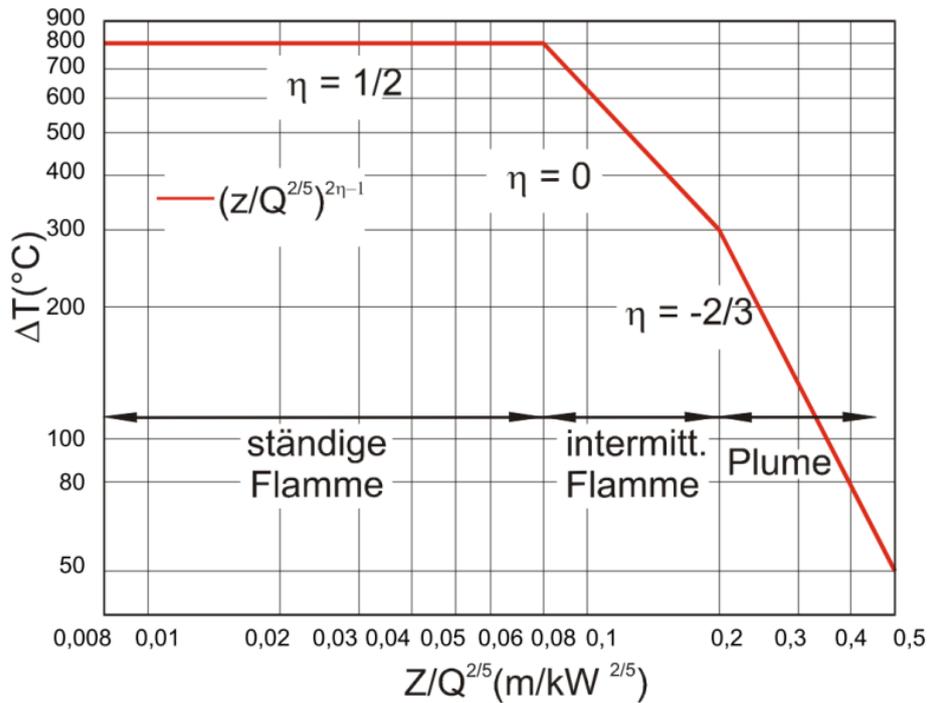
Aufheizung des Abfallgebindes abdeckend ermittelt wird. Die Zuordnung der jeweiligen Belastungen zu den einzelnen Belastungsklassen ergibt sich aus Tab. 1.1.

Im Hauptband der TSK /GRS 91a/ wird dargestellt, dass Brände, die einer solchen Konfiguration (Branddauer 30 bzw. 60 Minuten, Temperatur 800 °C, allseitige Umschließung) entsprechen, gerade bei großen Transportbehältern, wie sie für den Abfalltransport verwendet werden, selbst in gezielten Experimenten nur mit speziellem Aufwand erreichbar seien. Insofern decke schon eine so spezifizierte Brandbelastung von 30 Minuten Dauer einen hohen Prozentsatz real auftretender Brandbelastungen ab, und die 60-minütige Brandbeaufschlagung erfasse auch weitgehend extreme Brandsituationen. Ein 30-minütiger Brand bei 800 °C entspricht dem Referenzbrand, den die Prüfvorschriften der internationalen Transportvorschriften der IAEA (damals /IAEA 90/, heute /IAEA 12/) im Rahmen der Qualifikation von unfallsicheren Typ B-Transportbehältern fordern.

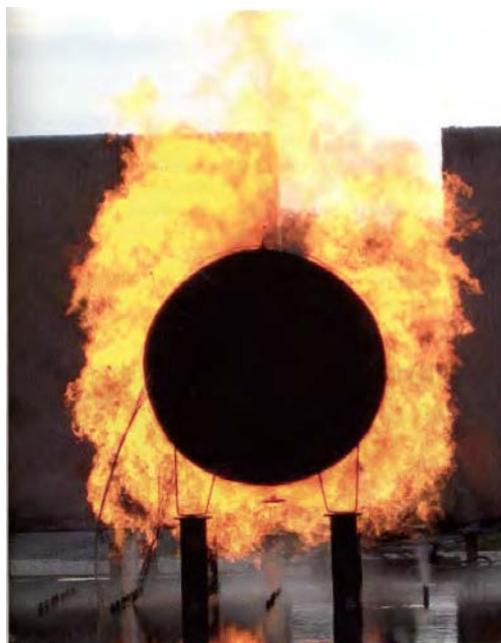
## **2.2 Anmerkungen zum bisher verwendeten Temperatur-Zeit-Verlauf**

Die Temperatur von 800 °C wird auch in einer grundlegenden Arbeit von McCaffrey bestätigt, die z. B. im „Leitfaden Ingenieurmethoden des Brandschutzes“ der Vereinigung zur Förderung des deutschen Brandschutzes (vfdb) /VFDB 13/ wiedergegeben wurde. Die Temperaturerhöhung  $\Delta T$  in einer turbulenten Diffusionsflamme eines frei brennenden Feuers wird in Abb. 2.1 in Abhängigkeit des Parameters Messhöhe (Z) durch Wärmeleistung (hier als: Q) hoch zwei Fünftel beschrieben. In der Mittelachse der ständig sichtbaren Flamme wurde – unabhängig von der Wärmefreisetzungsrate – eine Temperaturerhöhung von 800 °C gemessen. Oberhalb der ständig sichtbaren Flamme tritt diese intermittierend auf. Über der Flammenzone befindet sich die Rauchgassäule (Plume). Innerhalb der letztgenannten Bereiche nimmt die Temperaturerhöhung  $\Delta T$  über die Höhe Z kontinuierlich ab.

Zum weiteren Vergleich sind Versuche der BAM /OTR 11/ zu nennen, bei denen ein Modell eines Tanks umseitig durch einen Gasbrand beflammt wurde (vgl. Abb. 2.2). Dabei beliefen sich die Flammentemperaturen an der 90° und der 270° Messposition am Modelltank auf 700 °C bis maximal 900 °C.



**Abb. 2.1** Temperaturentwicklung über die Mittelachse der Flamme (ständige Flamme bzw. intermittierende Flamme) und des Rauchgasplumes /VFDB 13/



**Abb. 2.2** Modelltank, der den Gasflammen exponiert ist /OTR 11/

Die Messergebnisse waren weitgehend unabhängig von der Wärmefreisetzungsrate (gemessen als Gasdurchsatz) des Versuchsaufbaus. Auch diese Messwerte können

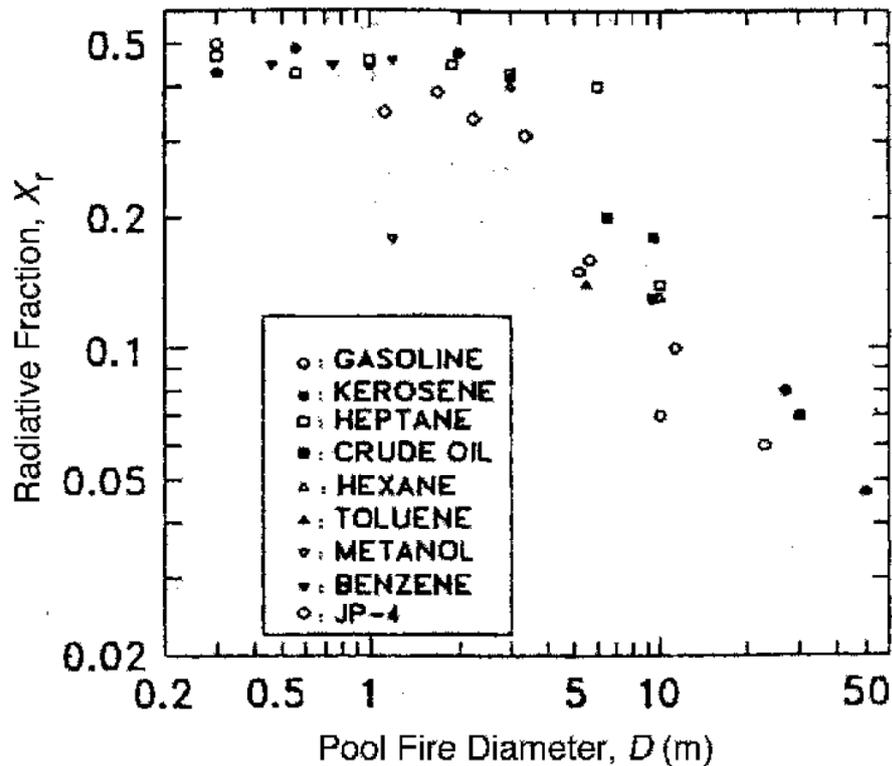
grundsätzlich als Bestätigung des Wertes von 800 °C für Freibrände innerhalb von Modellmaßstäben bzw. kleinen Freibränden angesehen werden.

Der relativ gut reproduzierbare Temperaturwert von ca. 800 °C gilt allerdings nur für Freibrände, bei denen die Diffusionsflammen kalte Umgebungsluft einmischen und der Strahlungsanteil  $X_r \approx 0,3$  der Wärmefreisetzung (ca. 1/3 der Gesamtwärmefreisetzung) an die Umgebung verloren geht. Diese Randbedingungen sind nicht immer gegeben, so dass im Folgenden

- der Einfluss der Ausdehnung des Feuers in Form der Brandfläche bzw. des Branddurchmessers  $D$  sowie
- der Unterschied von „Freibränden“ und „Raumbränden“

betrachtet wird.

Bei ausgedehnten Flüssigkeitsbränden (sog. Poolbränden) im Freien mit Durchmessern von mehreren Metern ist bekannt, dass die Strahlungsverluste der Flammen  $X_r$  geringer werden. Bei Pooldurchmessern von mehr als 5 m wurden Strahlungsverluste deutlich unter  $X_r = 0,3$  gemessen (vgl. Abb. 2.3).

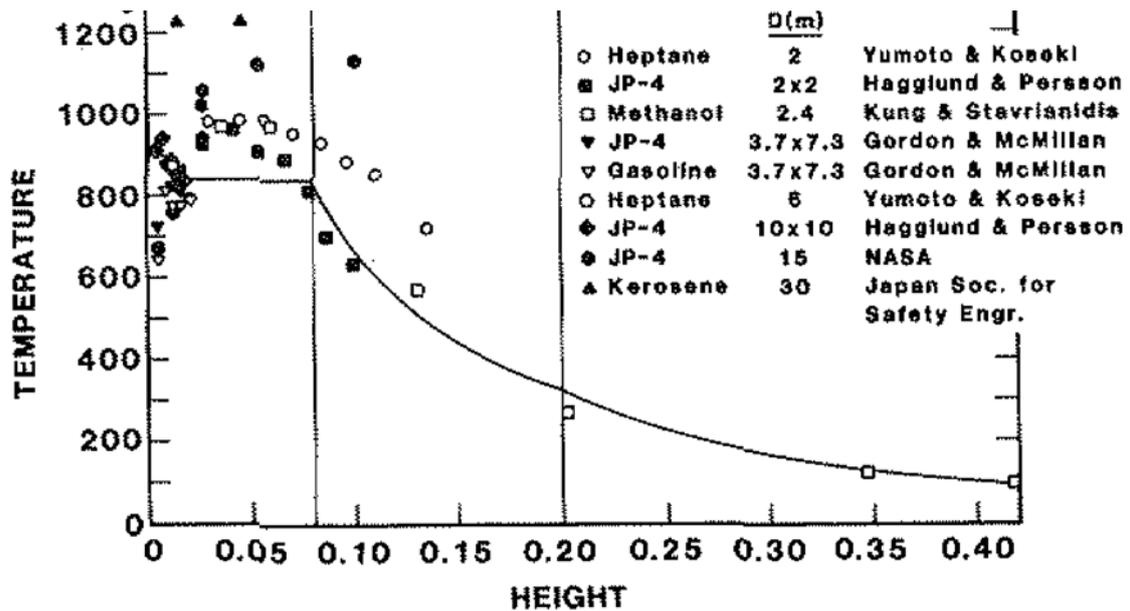


**Abb. 2.3** Zusammenhang zwischen dem Strahlungsverlust  $X_r$  von Flammen von Poolbränden und steigendem Pooldurchmesser  $D$  (aus /QUI 06/, S. 316)

Die geringeren Strahlungsanteile führen offensichtlich zu höheren Temperaturen in den Kernzonen ausgedehnter Brände. In einer Auswertung von Temperaturen in den Flammzonen von Poolbränden von Baum und McCaffrey zeigt sich, dass Flammentemperaturen von 800 °C auch deutlich überschritten werden können (vgl. Abb. 2.4). So wurden bei Bränden von

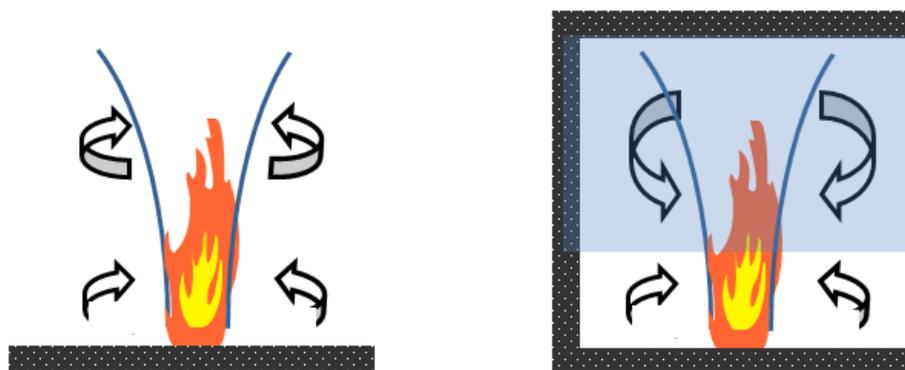
- JP-4 Flugzeugtreibstoff auf 2 m · 2 m Fläche Temperaturen im Bereich von 900 °C,
- Methanol ( $D = 2,4$  m) bzw. Heptan ( $D = 6$  m) Temperaturen bis knapp 1000 °C,
- JP-4 Flugzeugtreibstoff ( $D = 15$  m) Temperaturen im Bereich von 1020 °C bis 1120 °C und
- Flugzeugtreibstoff ( $D = 30$  m) Temperaturen im Bereich von 1230 °C

gemessen.



**Abb. 2.4** Vergleich der Flammentemperaturen von großskaligen Bränden mit der aus kleinskaligen Bränden abgeleiteten Korrelation (durchgezogene Linie). Die Höhe der kontinuierlichen Flamme gilt bis zu einem Wert von 0,8 (aus /BAU 88/, S. 141)

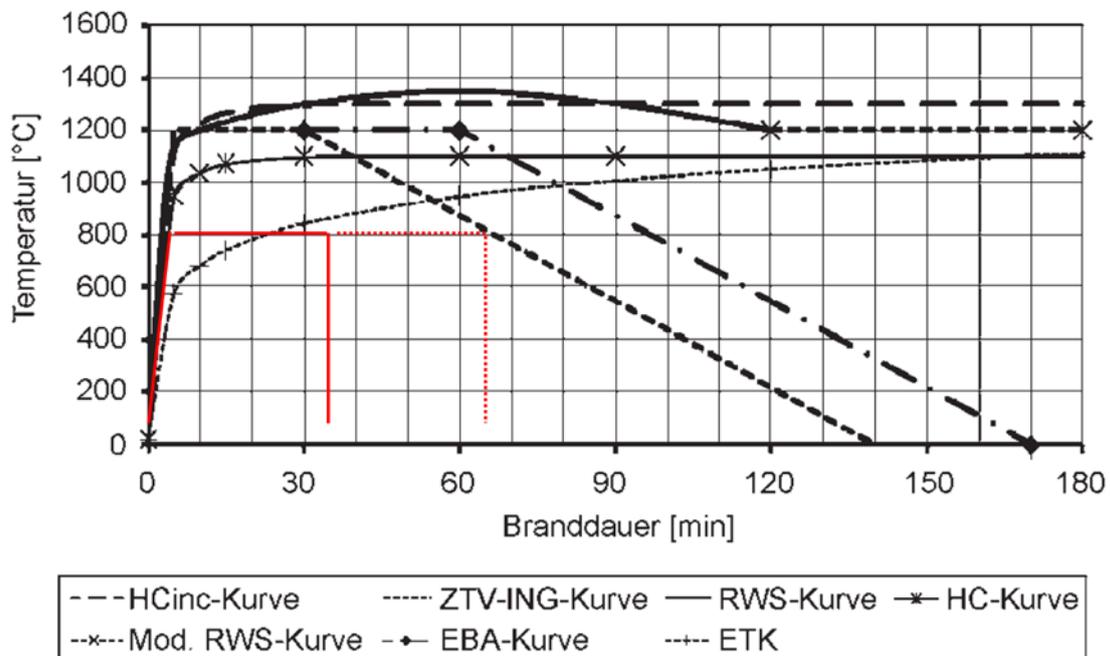
Neben der Ausdehnung eines Feuers können auch raumbrandartige Bedingungen zu deutlich höheren Brandtemperaturen als 800 °C führen. Im Unterschied zu den bisher betrachteten Freibränden wird bei Raumbränden nicht kalte Umgebungsluft, sondern bereits erwärmte Raumluft in den Feuerplume eingemischt (vgl. Abb. 2.5). Daneben sind die Strahlungsverluste geringer, da die Umfassungsbauteile die Wärme teilweise zurückgeben.



**Abb. 2.5** Schematischer Vergleich der Lufteinmischung in einer Feuerplume bei einem Freibrand (links) und einem Raumbrand (rechts)

Raumbrandähnliche Bedingungen können einerseits erreicht werden, falls Trümmerstücke einen Abfallbehälter derart abdecken, dass sich eine Heißgasschicht ausbildet, innerhalb der dieser Abfallbehälter positioniert ist. Hierdurch entsteht neben höheren Temperaturen auch eine quasi allseitige Wärmeeinwirkung auf den Behälter, so dass die in der TSK getroffenen Annahmen zur allseitigen Wärmeeinwirkung mit Einstrahlzahlen von 1 nicht mehr konservativ sind.

Ein besonderes Raumbrandszenario ist der Brand in einem Tunnel. Auf Grund der Ventilationsbedingungen in Tunneln können bei Bränden besonders schnelle Temperaturanstiege und besonders hohe Maximaltemperaturen erreicht werden. In Abb. 2.6 werden die Verläufe einiger wichtiger Temperatur-Zeit-Kurven für die Bemessung von Tunnelbauwerken mit der Einheits-Temperaturzeitkurve (ETK) sowie den Bemessungsbränden der TSK (rot eingezeichnet) verglichen. Während als Bemessungskurve für Brände von Feststoffen im Hochbau die Einheits-Temperaturzeitkurve (ETK) (in Abb. 2.6 gestrichelt und mit dem geringsten, streng-monotonen Temperaturanstieg) in Deutschland /DIN 77/ bzw. international /ISO 02/ breite Anwendung findet, werden für die Brandschutzbemessung von Tunnelkonstruktionen international verschiedene Temperaturzeitkurven verwendet, die alle gegenüber der ETK einen deutlich schnelleren Anstieg der Temperatur und ein höheres Temperaturmaximum beinhalten.



**Abb. 2.6** Verschiedene Temperatur-Zeit-Kurven für Tunnelbrände im Vergleich zur Einheitstemperaturzeitkurve (ETK) für Hochbauten /BLO 09/ und den in /GRÜ 87a/ verwendeten Temperatur-Zeit-Verläufen

In der Abb. 2.6 werden folgende Bemessungskurven dargestellt /BLO 09/:

- Die **ZTV-ING-Kurve** (= „zusätzliche Vertragsbedingungen für Ingenieurbauwerke“) wird für die brandschutztechnische Bemessung von Straßentunneln in Deutschland herangezogen. Durch die ZTV-ING-Kurve werden mit der Festlegung der Abkühlungsphase nach 30 min Brandlasten zwischen 100 000 MJ bis 150 000 MJ und maximale Brandleistungen zwischen 90 MW und 100 MW abgedeckt.
- Die **EBA-Kurve** (= Eisenbahn-Bundesamt) unterscheidet sich von der ZTV-ING-Kurve nur durch eine stationäre Phase von 55 min gegenüber 25 min. Sie wird in Deutschland beim Bau und Betrieb von neuen Eisenbahntunneln angewendet.
- Die **HC-Kurve** (Hydrocarbon) wurde in den 1970er Jahren für Industrie und Off-Shore-Anlagen zur Modellierung von Kohlenwasserstoffbränden entwickelt. Sie erreicht nach 30 min ein Temperaturmaximum von 1100 °C und wird mit unterschiedlicher Branddauer in einigen europäischen Ländern ebenfalls zur Bemessung von Eisenbahn- bzw. Straßenverkehrstunneln verwendet.
- Demgegenüber wurde mit der **HCinc-Kurve** (inc = increased) eine erhöhte Hydrocarbon-Kurve basierend auf der HC-Kurve entwickelt, um für Brände in Tunneln den höheren Brandlasten beim Gütertransport Rechnung zu tragen. Diese Kurve erreicht ein Temperaturmaximum von 1300 °C. Die Bemessungskurve wird teilweise für Bahn- bzw. Straßentunnel in der Schweiz, Österreich und Frankreich verwendet.
- Die **RWS-Kurve** (Rijkwaterstaat, eine niederländische Infrastrukturbehörde) wurde entwickelt, um einen Brand von 45 m<sup>3</sup> Treibstoff (Benzin bzw. Dieselöl) innerhalb von 120 min abzudecken. Nach einem Temperaturmaximum von 1350 °C nach 60 min fällt die Kurve bis zur 120. Minute wieder auf 1200 °C ab. Die Bemessungskurve wird teilweise für Bahn- bzw. Straßentunnel in den Niederlanden, der Schweiz, Österreich und in Nordeuropa verwendet.
- Bei der **mod. RWS-Kurve** besteht die Modifikation der RWS-Kurve aus der Verlängerung der Kurve nach 120 Minuten um weitere 60 Minuten auf einem Temperaturniveau von 1200 °C. Die Modifikation wurde vom Welt-Straßenverband (World Road Association (PIARC)) vorgeschlagen, dem Vertreter sowohl aus Behörden als auch Einzelpersonen aus ca. 140 Ländern angehören.

Die Tab. 2.1 stellt für die verschiedenen Bemessungskurven die nach 5 Brandminuten erreichte Temperatur sowie den Gradienten bei angenommenen linearen Anstieg dar /BLO 09/.

**Tab. 2.1** Temperaturzunahme innerhalb der ersten 5 min bei den verschiedenen Brandkurven /BLO 09/

Brandkurve	Temperatur [°C]		Lineare Temperatur- zunahme [K/min]
	Brandbeginn	Nach 5 min	
ZTV/EBA	20	1.200	236
RWS/mod RWS	20	1.140	224
HC	20	948	186
HC <sub>inc</sub>	20	1.120	220
ETK/ISO	20	576	111

Abweichend von der bisherigen deutschen Vorgehensweise bzw. den Anforderungen der IAEA wurden bei der britischen NIREX /BAR 03/ zur Untersuchung von Abfallbehältern unter Brandbedingungen Brandtemperaturen von 1000 °C über eine Stunde als Szenario angesetzt.

Auf Grund des bei hohen Temperaturen großen Anteils der Wärmestrahlung am Gesamtwärmeübergang und der Abhängigkeit der Strahlungsleistung von der vierten Potenz der Kelvintemperatur hat die Brandtemperatur einen signifikanten Einfluss auf den Wärmeübergang auf einen Abfallbehälter. So vergrößert sich bei einer Oberflächentemperatur des Abfallbehälters von 30 °C und einer Flammentemperatur (Gastemperatur) von beispielsweise 1200 °C gegenüber den bisher angenommenen 800 °C der konvektive Wärmeübergang um den Faktor 1,52. Der radiative Wärmeübergang vergrößert sich unter den gleichen Bedingungen um den Faktor 3,57.

### **2.3      Verwendete Wärmeübergangsbedingungen und Materialeigenschaften**

Neben dem Temperatur-Zeit-Verlauf des einwirkenden Schadensfeuers bestimmen die Wärmeübergangsbedingungen auf die Abfallbehälter sowie die gewählten thermischen Materialeigenschaften von Behälterwandung und Inventar die resultierenden Innentemperaturen.

Laut den Ergebnissen der letzten Abfalldatenerhebung /GRS 10/ werden die radioaktiven Abfälle vorwiegend in quaderförmigen Abfallcontainern Typ IV und in zylindrischen Betonbehältern Typ I angeliefert.

Der GRS liegen zwei Arbeitsberichte vor, in denen für verschiedene Abfallgebinde Berechnungen zu Temperaturverteilungen aus Brandbeanspruchung dokumentiert wurden. Im Bericht von F. Piefke und H. Kriegel /PIE 84/ aus Braunschweig wurden verschiedene Abfallbehälter mit nicht-metallischem Inventar modelliert. Hierin enthalten sind ebenfalls zylindrische Betonbehälter des Typs I.

Ergänzend hierzu wurden im Bericht von D. Gründler und F. Peiffer /GRÜ 87b/ der GRS repräsentative Behälter mit metallischen Feststoffen (APG 2 und 3) als Inventar untersucht. Als repräsentative Behälter wurden ein Stahlblechcontainer Typ I und ein Gussbehälter Typ II 16/0 ausgewählt. Der Gussbehälter Typ II 16/0 hat keine Abschirmung, die einen zusätzlichen Wärmeleitfähigkeitswiderstand darstellt und ist daher bezüglich Temperaturentstehung auch für den größeren Behältertyp IV abdeckend.

Im Folgenden werden die in den Berichten dokumentierten thermophysikalischen Randbedingungen auf Aktualität überprüft und bewertet.

### **2.3.1 Dokumentierte Berechnungen für Behälter mit nicht-metallischem Inventar**

Im Bericht /PIE 84/ werden die numerischen Ergebnisse von zwölf Aufwämberechnungen angegeben. Es wurden verschiedene Fälle aus Abfallbehälter und Befüllung mit ihren verwendeten thermophysikalischen Parametern und geometrischen Approximationen (aus Radius  $R$  und halber Höhe  $H$ ) betrachtet:

1. 400 I – Betonfass (homogener Betonzylinder  $R = 0,355$  m,  $H = 0,54$  m)
2. VBA 200 (VBA: verlorene Betonabschirmung) (homogener Betonzylinder  $R = 0,53$  m,  $H = 0,635$  m)
3. VBA 400 (homogener Betonzylinder  $R = 0,53$  m,  $H = 0,705$  m)
4. VBA 400 aus Schwerbeton (außen  $R = 0,53$  m,  $H = 0,705$ , Dicke: Ober-/Unterseite  $0,167$  m, umlaufend  $0,176$  m) mit Zementsteinfüllung

5. VBA 400 aus Beton (außen  $R = 0,53$  m,  $H = 0,705$ , Dicke: Ober-/Unterseite  $0,167$  m, umlaufend  $0,176$  m) mit Zementsteinfüllung (Hinweis: in /PIE 84/ Abb. S. 83, Baustoffe offenbar vertauscht)
6. DWK - Betonabschirmung (homogener Betonzylinder  $R = 0,7$  m,  $H = 1,0$  m)
7. Gussbehälter Mosaik II ohne Bleiabschirmung gefüllt mit Polystyrol (außen  $R = 0,53$  m,  $H = 0,75$  m, Dicke: Ober-/Unterseite  $0,167$  m, umlaufend  $0,15$  m)
8. Gussbehälter Mosaik II ohne Bleiabschirmung gefüllt mit Steinsalz (außen  $R = 0,53$  m,  $H = 0,75$  m, Dicke: Ober-/Unterseite  $0,167$  m, umlaufend  $0,15$  m)
9. Gussbehälter Mosaik II mit Bleiabschirmung gefüllt mit Polystyrol (außen  $R = 0,53$  m,  $H = 0,75$  m)  
Gusseisen: Dicke Ober-/Unterseite  $0,15$  m, umlaufend  $0,167$  m  
Blei: Dicke Ober-/Unterseite  $0,025$  m, umlaufend  $0,019$  m ohne Spalt
10. Gussbehälter Mosaik II mit Bleiabschirmung gefüllt mit Steinsalz (außen  $R = 0,53$  m,  $H = 0,75$  m)  
Gusseisen: Dicke Ober-/Unterseite  $0,15$  m, umlaufend  $0,167$  m  
Blei: Dicke Ober-/Unterseite  $0,025$  m, umlaufend  $0,019$  m
11. Gussbehälter Mosaik III ohne Bleiabschirmung gefüllt mit Polystyrol (außen  $R = 0,5$  m,  $H = 0,58$  m, Dicke: Ober-/Unterseite  $0,077$  m, umlaufend  $0,088$  m)
12. Gussbehälter Mosaik III ohne Bleiabschirmung gefüllt mit Steinsalz (außen  $R = 0,5$  m,  $H = 0,58$  m, Dicke: Ober-/Unterseite  $0,077$  m, umlaufend  $0,088$  m)

Die modellierten Dicken wurden teilweise an den im Simulationsmodell gewählten Knotenabstand angepasst. Luftspalte zwischen Behälterinnenwand und Inventar wurden in /PIE 84/ nicht beschrieben. Insofern ist davon auszugehen, dass zwischen den unterschiedlichen Materialien konservativ eine ungehinderte Wärmeleitung angenommen wurde. Die in /PIE 84/ verwendeten thermophysikalischen Parameter der Behälterumfassung (Normal- oder Schwerbeton, Gusseisen), falls vorhanden der Bleiabschirmung und des Abfallinventars (als Zementstein, Steinsalz oder Polystyrol modelliert) sind in Tab. 2.2 wiedergegeben.

Eine Diskussion oder Referenzierung der einzelnen thermischen Parameter findet in /PIE 84/ nicht statt. Aus den in den ersten drei Spalten angegebenen thermischen Parametern resultiert die Temperaturleitfähigkeit

$$\alpha_{TLF} = \lambda / (\rho c) \quad \text{in } m^2/s$$

mit:

$\lambda$       Wärmeleitfähigkeit in W/(m K)

$\rho$       Dichte in kg/m<sup>3</sup> und

$c$       spezifische Wärmekapazität in J/(kg K)

Eine hohe resultierende Temperaturleitfähigkeit ist dabei grundsätzlich konservativ für die Materialien der Behälterumfassung.

**Tab. 2.2** In /PIE 84/ angegebene thermische Parameter der simulierten Materialien

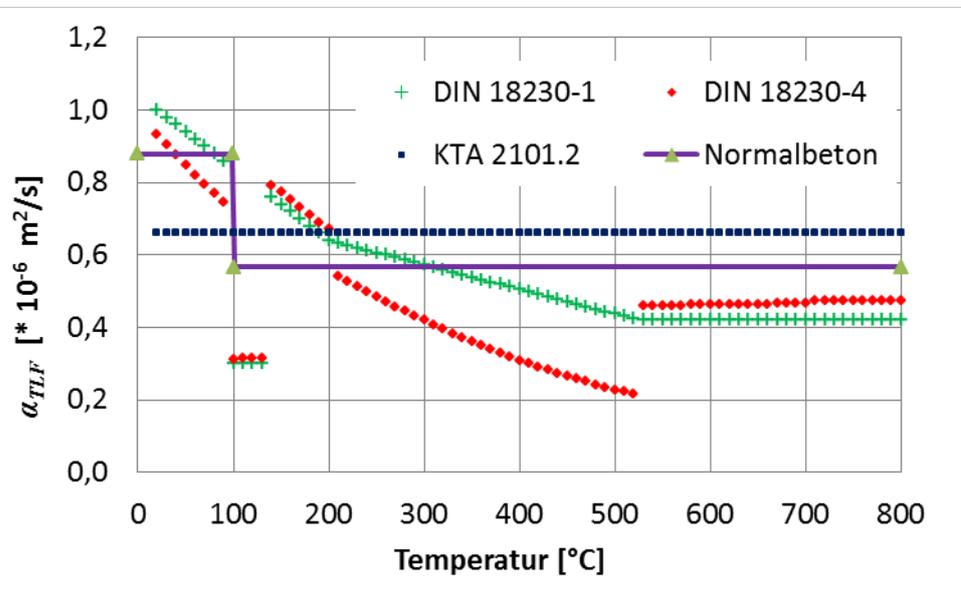
Material	Dichte in kg/m <sup>3</sup>	Wärmeleit- fähigkeit in W/m K	spez. Wärme- kapazität in J/kg K	Temperatur leitfähigkeit in m <sup>2</sup> /sec
Normalbeton (feucht, 5% Wasseranteil)	2400	2.3	1090	0.879E-6
Normalbeton (trocken)	2280	1.2	930	0.566E-6
Schwerbeton (*) (feucht, 5% Wasseranteil)	3500	1.4		0.4 E-6
Schwerbeton (*) (trocken)	3300	0.8		0.29 E-6
Zementstein (feucht, 10% und 20% Wasseranteil)	2000	1.0		0.6 E-6
Zementstein (trocken)	1600-1800	0.5		0.25 E-6
Gußeisen	7200	42.0	494	11.8 E-6
Steinsalz (feucht, 10% Wasseranteil)	2080	3.66		1.74 E-6
Steinsalz (trocken)		4.0		2.14 E-6
Polystyrol	1050	0.14	1250	0.107E-6
Blei (fest)	11340	35.3		23.8 E-6
Blei (flüssig)	10600	15.1		9.7 E-6

**Bemerkung:** Die Stofferte sind teilweise nur geschätzt und müssen noch genauer bestimmt werden.

(\*) mit Barytzuschlag

Für Normalbeton werden in Abb. 2.7 teilweise temperaturabhängige Temperaturleitfähigkeiten angegeben, die den aktuellen brandschutztechnischen DIN 18230-1 „Baulicher Brandschutz im Industriebau – Teil 1: Rechnerisch erforderliche Feuerwiderstands-

dauer“, DIN SPEC 18230-4 „Baulicher Brandschutz im Industriebau - Teil 4: Brandsimulation“, KTA 2101.2 „Brandschutz in Kernkraftwerken – Teil 2: Brandschutz an baulichen Anlagen“ zu Grunde liegen. Im Vergleich dazu sind die in /PIE 84/ für Normalbeton verwendeten Werte (vgl. Tab. 2.2) für Temperaturen unterhalb/oberhalb 100 °C eingetragen. Insgesamt liegen die in /PIE 84/ verwendeten Werte im mittleren Bereich.



**Abb. 2.7** In verschiedenen Regelwerken zu Grunde liegende Temperaturleitfähigkeiten für Normalbeton im Vergleich zu den Annahmen aus /PIE 84/

Als Schwerbeton (Strahlenschutzbeton) wird ein Beton mit  $\rho > 2600 \text{ kg/m}^3$  bezeichnet. Durch den bei /PIE 84/ angenommenen Zuschlag des Minerals Baryt ( $\text{CaSO}_4$ ) (Rohdichte  $4000 \text{ kg/m}^3 < \rho < 4300 \text{ kg/m}^3$ ) werden höhere Betondichten erreicht. Die gegenüber Normalbeton sehr deutlich reduzierte Temperaturleitfähigkeit konnte anhand eigener Recherchen nicht ganz bestätigt werden. Zwar wirkt sich die hohe Dichte im Vergleich zu Normalbeton günstig auf die Temperaturleitfähigkeit  $\alpha_{TLF}$  aus, doch ist die spezifische Wärmekapazität deutlich reduziert. Z. B. werden in /EPP 61/  $c = 590 \text{ J}/(\text{kg K})$  für Schwerbeton mit  $2165 \text{ kg/m}^3$  Barytzuschlag (Betondichte  $\rho = 3680 \text{ kg/m}^3$ ) angegeben. Für die Wärmeleitfähigkeit wird in /EPP 61/ für feuchten Beton  $\lambda = 1,3 \text{ W}/(\text{m K})$  genannt, so dass die Temperaturleitfähigkeit  $\alpha_{TLF} = 5,97 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$  beträgt. Der in /PIE 84/ verwendete Wert von  $\alpha_{TLF} = 4,0 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$  erscheint daher nicht konservativ.

Bei schnellen Temperaturanstiegen in Betonbauteilen kann es zum Abplatzen von Betonstücken kommen, der durch thermo-mechanische und thermo-hydraulische Spannungen im Beton bedingt ist. Dieses bekannte Phänomen führt z. B. für Tunnelbauwerke zur Verwendung von Spezialbetonen. Bei Richter /RIC 11/ wird die Thematik anhand

verschiedener Parameter umfassend beschrieben, so dass hier Risikofaktoren für ein Abplatzen qualitativ diskutiert werden können: In /RIC 11/ wird ein Temperaturanstieg größer 70 K/min in den ersten Brandminuten als eine risikoerhöhende Randbedingung gesehen. Für den angenommenen Anstieg von 770 K / 5 min = 154 K/min besteht damit die Möglichkeit des Abplatzens. Der Ausnutzungsgrad (das Verhältnis der auftretenden Druckspannung zur maximal möglichen Druckspannung) des Betons wird seitens der GRS als gering angenommen und führt nicht zur Risikoerhöhung. Bei /PIE 84/ wird ein Betonfeuchtegehalt von 5 % angenommen. Diese hohe Feuchte würde zu einer Risikoerhöhung führen. Für Schwerbeton ist zudem von einem erhöhten Abplatzrisiko auszugehen, da der Wasserdampfdruck schlechter abgeführt werden kann. Thermo-mechanische Spannungen steigen im Beton durch unterschiedliches Wärmeausdehnungsverhalten von Zementstein und Zuschlägen. Während zu den Zuschlägen im Normalbeton keine Aussagen getroffen werden können, wird in /PIE 84/ von Baryt als Schwerbetonzuschlag ausgegangen. In /EPP 61/ wird für Schwerbeton aus Portlandzement mit 2165 kg/m<sup>3</sup> Barytzuschlag ein thermischer Ausdehnungskoeffizient von  $\alpha_T = 15,5$  bis  $17 \cdot 10^{-6}$  K und mit 3060 kg/m<sup>3</sup> Barytzuschlag ein  $\alpha_T = 18 \cdot 10^{-6}$  K angegeben. Gemäß der Einschätzung in /RIC 11/ führt dieser Wert zu einer Risikoerhöhung. Obwohl einige Randbedingungen insbesondere der Behälter aus Schwerbeton das Auftreten von Abplatzungen unter Brandbedingungen begünstigen, kann an dieser Stelle auf Grund der zu großen Teilen noch unerforschten Thematik keine verlässliche Aussage getroffen werden /RIC 17/. Abplatzungen wurden in /PIE 84/ nicht betrachtet. Wenn diese auftreten, führt dieses zu einer Reduzierung der Isolierdicke der Betonbehälter.

Für die in /PIE 84/ betrachteten Behälter aus Gusseisen wird nach Kenntnissen der GRS der Werkstoff Sphäroguss mit der alten Bezeichnung GGG-40 nach DIN 1693 verwendet. Für dieses Material werden als Richtwerte /BDG 10/ die Dichte mit 7100 kg/m<sup>3</sup>, die Wärmeleitfähigkeit bei 300 °C mit 36,2 W/(m K) und die spezifische Wärmekapazität im Bereich von 20 °C bis 500 °C mit 515 J/(kg K) angegeben. Die resultierende Wärmeleitfähigkeit beträgt  $9,7 \cdot 10^{-6}$  m<sup>2</sup>/s. Im Vergleich ist der von /PIE 84/ verwendete Wert von  $11,8 \cdot 10^{-6}$  m<sup>2</sup>/s konservativ.

Die in /PIE 84/ angegebenen Daten für Blei ergeben eine mittlere spezifische Wärmekapazität von 31 J/(kg K) für festes Blei bzw. 147 J/(kg K) für flüssiges Blei. Insgesamt sind die Werte konservativ, zumal die Schmelzwärme von 24 800 J/kg beim Schmelzpunkt von 327 °C offensichtlich nicht explizit als Wärmesenke berücksichtigt wurde.

Die Starttemperatur bei den Simulationen betrug  $T_{umgeb} = 30 \text{ °C}$ . Die Temperatur des Brands wurde mit  $T_F = 800 \text{ °C}$  angesetzt. Die Einwirkungsdauer betrug 3 900 s (1 h, 5 min). Es ist nicht dokumentiert, dass eine 5 min Aufheizphase berücksichtigt wurde. Stattdessen ist davon auszugehen, dass auf Grund der Möglichkeiten des Modells konservativ konstant  $T_F = 800 \text{ °C}$  angesetzt wurden. Die Temperaturverteilung wurde bis 7,5 h (27 000 s) nach Brandbeginn bestimmt. Die Zeitschrittweite betrug zwischen 4 s für höher leitfähige Außenmaterialien (z. B. Gusseisen) und 60 s für Betonkörper.

Für den konvektiven Wärmeübergang während der Brandphase wurde ein  $\alpha_1 = 37 \text{ W/m}^2\text{K}$  unabhängig vom Behältermaterial gewählt. Für die Abkühlphase wurde ein  $\alpha_2 = 6 \text{ W/m}^2\text{K}$  verwendet.

Für den radiativen Wärmeübergang ist von einem konservativ gewählten Konfigurationsfaktor von 1 auszugehen, da dieser nicht angegeben ist. Emissionsbeiwerte sind mit  $\varepsilon_1 = 0,6$  und  $\varepsilon_2 = 0,8$  angegeben. Es liegt nahe, dass sich die genannten Werte auf den Zustand der Beflammung ( $\varepsilon_1$ ) und Abkühlung ( $\varepsilon_2$ ) beziehen. Alternativ kann angenommen werden, dass damit die Einzelbeiträge für die Flammenoberfläche  $\varepsilon_{Flamme}$  und die Behälteroberfläche  $\varepsilon_{Container}$  beschrieben werden, so dass effektiv  $\varepsilon_{eff} = 0,48$  verwendet wurde (vgl. z. B. die Darstellung in /GRÜ 87b/). Der resultierende Effektivwert wäre allerdings nicht konservativ.

### **2.3.2 Dokumentierte Berechnungen für Behälter mit metallischem Inventar**

Ergänzend zur Arbeit in /PIE 84/ sollten in /GRÜ 87b/ die Temperaturverteilungen in repräsentativen Behältern mit metallischen Feststoffen als Inventar – relevant für die Abfallproduktgruppen 02 und 03 – beschrieben werden. Als repräsentative Behälter wurden für die Abfallklasse I ein Stahlblechcontainer Typ I und für die Abfallklasse II ein Gussbehälter Typ II 16/0 ausgewählt. Der Stahlblechcontainer Typ I sei laut /GRÜ 87b/ von den zur Einlagerung in Konrad vorgesehenen dünnwandigen Behältern der kleinste, so dass dort die höchsten Inventartemperaturen zu erwarten sind. Für die Einlagerung von Abfällen der APG 02 und 03 der Abfallklasse II würden Gussbehälter Typ II verwendet. Der Gussbehälter Typ II 16/0 hat keine Abschirmung, die einen zusätzlichen Wärmeleitfähigkeitswiderstand darstellt und ist daher bezüglich des Temperaturaufbaus im Behälter abdeckend. Für die vorgenannten Behältertypen wurden mit /GRÜ 87b/ wärmetechnische Berechnungen veröffentlicht.

## Wärmeübergangsbedingungen

Ein im Anhang IV „Freisetzung aus radioaktiven Abfallgebänden bei mechanischen und thermischen Belastungen“ des TSK Ergänzungsbands /GRS 91b/ zitierter interner Bericht in Vorbereitung (dort: (Gründler, D., et al.: *Bestimmung störfallbedingter Aktivitätsfreisetzung bei thermischer Beaufschlagung*, GRS 1990 (interner Bericht in Vorbereitung)), in dem die Parameter zum Wärmeübergang dokumentiert seien, stand den Autoren dieser Studie nicht zur Verfügung. Allerdings wurde in einer späteren, weiterführenden Arbeit von Gründler und Linden /GRÜ 96/ auf die „Ergebnisse früherer Rechnungen“ eingegangen und dort unter Hinweis auf /GRÜ 87a/ bzw. den Ergebnisbericht /GRÜ 87b/ folgende Parameter für den Wärmeübergang wiedergegeben (Hinweis: in /GRÜ 87a/ und /GRÜ 87b/ sind folgende Werte nicht dokumentiert):

### Während des Feuers:

- Konvektiver Wärmeübergang Flamme-Behälter mit Wärmeübergangskoeffizient:  $\alpha = 37 \text{ W/m}^2\text{K}$  (konstant) (gleicher Wert wie /PIE 84/)
- Strahlung mit  $\varepsilon_{\text{Flamme}} = 0,9$ ,  $\varepsilon_{\text{Container}} = 0,6$

Bezüglich des Strahlungsaustauschs von Flamme (Feuer) und Behälteraußenwand sind  $\varepsilon_{\text{Flamme}}$  und  $\varepsilon_{\text{Container}}$  multiplikativ verknüpft, so dass für die Systemanalyse Konrad /GRÜ 87a/ mit  $\varepsilon_{\text{effekt.}} = 0,54$  gerechnet wurde (vgl.  $\varepsilon_1 = 0,6$  bei /PIE 84/).

Im Vergleich dazu wurde bei der britischen Nirex /BAR 03/ ein effektiver Koeffizient von  $\varepsilon_{\text{effekt.}} = 0,8$  ( $\varepsilon_{\text{Flamme}} = 1,0$  und  $\varepsilon_{\text{Container}} = 0,8$ ) verwendet (zusammen mit einer Flammentemperatur von  $T = 1000 \text{ }^\circ\text{C}$ ). Als konvektiver Wärmeübergangskoeffizient wurde  $\alpha = 15 \text{ W/m}^2\text{K}$  verwendet.

Innerhalb der europäischen Brandschutznormung (Eurocodes) werden für die Heißbemessung von Bauteilen für den Strahlungsaustausch im Regelfall die gleichen Parameter wie bei Nirex verwendet /DIN 10a/ (S.24). In Ergänzung dazu darf laut /DIN 10b/ (S.19) für Baustähle  $\varepsilon_{\text{Baustahl}} = 0,7$  ( $\varepsilon_{\text{effekt.}} = 0,7$ ) verwendet werden. Für nichtrostende Stähle darf  $\varepsilon$  weiter reduziert werden. Der konvektive Wärmeübergangskoeffizient nach Eurocode ist  $\alpha_c = 25 \text{ W/m}^2\text{K}$ .

Der Vergleich zeigt, dass für /GRÜ 87a/ der konvektive Wärmeübergang durch den hohen Übergangskoeffizienten  $\alpha$  tendenziell konservativ angenommen wurde, während der

Strahlungsübergang im Vergleich zu anderen Vorgehensweisen nicht konservativ berechnet wurde. Auf Grund der Abhängigkeit des Strahlungsaustauschs von der vierten Potenz der Temperaturdifferenzen zwischen Feuer und Behälteraußenwand müssen die Auswirkungen der unterschiedlichen Annahmen im Einzelfall betrachtet werden.

Nach dem Feuer (Abkühlung):

- Konvektiver Wärmeübergang Behälter-Atmosphäre mit Wärmeübergangskoeffizient:  $\alpha = 6 \text{ W/m}^2\text{K}$  (konstant) (gleicher Wert wie /PIE 84/)
- Keine Berücksichtigung der Abkühlung durch Strahlung (vgl.  $\varepsilon_2 = 0,8$  bei /PIE 84/)

Wärmedurchgang durch den Luftspalt zwischen Containermantel und Abfall (während des Feuers und Abkühlungsphase)

Abweichend von den Annahmen in /PIE 84/ wird bei /GRÜ 87a/ teilweise ein Luftspalt zwischen Behälterinnenwand und Abfallobersfläche angenommen. Dieser Spalt tritt z. B. durch Schwund beim Trocknen von Zement/Beton zur Fixierung oder als Toleranzabstand beim Einfüllen von nicht kompaktierbaren metallischen Abfällen auf.

Der Wärmetransport durch Strahlung wurde jeweils mit einem  $\varepsilon_{\text{Behälterinnenwand}} = \varepsilon_{\text{Abfallobersfläche}} = 0,8$  ( $\varepsilon_{\text{effekt.}} = 0,64$ ) berechnet.

Der konvektive Wärmeübergang wurde mit einem effektiven Durchgangskoeffizienten  $k_{\text{eff}}$  [ $\text{W}/(\text{m}^2\cdot\text{K})$ ] berechnet, der die Beiträge aus Wärmeleitung und natürlicher Konvektion berücksichtigt. Zusammen mit der Spaltdicke  $s$  [m] zwischen Containerinnenwand und Abfall ergibt sich eine effektive Wärmeleitfähigkeit

$$\lambda_{\text{eff}} = k_{\text{eff}} \cdot s = \lambda_{\text{Wärmeleitung}} + \lambda_{\text{Naturkonvektion}}$$

für die sich entsprechend der Standardliteratur die Gleichung

$$\lambda_{\text{eff}} = \lambda \cdot \left( 1 + 0,00236 \cdot (\text{Gr} \cdot \text{Pr})^{1,393} / (\text{Gr} \cdot \text{Pr} + 1,01 \cdot 10^4) \right)$$

ergibt.

Dabei ist Gr die dimensionslose Grashof-Zahl. Sie tritt im Zusammenhang mit thermischen Auftriebseffekten aufgrund von Dichteunterschieden auf und ist als das Verhältnis

des statischen Auftriebs eines Fluids zu der auf das Fluid wirkenden Kraft durch Viskosität, multipliziert mit dem Verhältnis der Trägheitskraft zur viskosen Kraft, definiert. Die Prandtl-Zahl  $Pr$  ist als das Verhältnis zwischen kinematischer Viskosität und Temperaturleitfähigkeit definiert.

Entsprechend der in /GRÜ 96/ zitierten Auswertung aus /GRÜ 87a/ der o. g. Beziehungen ist der Beitrag der Naturkonvektion am Gesamtwärmeübergang mit weniger als einer Promille vernachlässigbar, d.h.

$$\lambda_{\text{eff}} = k_{\text{eff}} \cdot s \approx \lambda_{\text{Wärmeleitung}}$$

Der effektive Wärmedurchgangskoeffizient wird damit zur Funktion der (temperaturabhängigen) Wärmeleitung von Luft und der Spaltdicke

$$k_{\text{eff}} \approx \lambda_{\text{Wärmeleitung}} / s$$

In /GRÜ 96/ und /GRÜ 87a/ werden beispielhaft Tabellen für den effektiven Wärmedurchgangskoeffizienten berechnet. Die Ergebnisse sind nachvollziehbar und liegen unter Berücksichtigung der Temperaturniveaus nur geringfügig unterhalb der Werte nach Tabelle 2 der DIN EN ISO 6946 (2008-04) zu Berechnungsverfahren von Wärmedurchlasswiderständen und Wärmedurchgangskoeffizienten von Bauteilen.

In /GRÜ 96/ und /GRÜ 87a/ liegt die dokumentierte Erhöhung von  $k_{\text{eff}}$  durch den Anstieg der mittleren Lufttemperatur (Mittelwert der Temperatur von Behälterinnenwand, die auf  $700\text{ °C}$  gesetzt wurde und Abfalloberfläche (zwischen  $0\text{ °C}$  und  $700\text{ °C}$ )) im Bereich von  $350\text{ °C}$  und  $700\text{ °C}$  nur bei maximal 37 %. Verglichen damit hat die Wahl der Spaltdicke  $s$  durch die reziproke Abhängigkeit einen deutlich größeren Einfluss auf  $k_{\text{eff}}$ . Zum Beispiel wird bei dem in /GRÜ 87a/ angenommenen Spalt von  $s = 0,003\text{ m}$  und  $T_{\text{mittel}} = 500\text{ °C}$  der Koeffizient  $k_{\text{eff}} = 19,5\text{ W/m}^2\text{K}$ , womit er schon deutlich kleiner als der bei /PIE 84/ und /GRÜ 87a/ angenommene konvektive Wärmeübergangskoeffizient Flamme-Behälter von  $\alpha = 37\text{ W/m}^2\text{K}$  ist. Der Wärmestrom über den Spalt wird unter diesen Voraussetzungen durch Strahlung dominiert.

Inwieweit sich ein modellierter Spalt auf die Endtemperatur des Inventars und damit auf den Freisetzungsfaktor auswirkt, kann nur durch vergleichende Berechnungen des gesamten Aufwärmprozesses bestimmt werden.

## **2.4 Fazit zur Überprüfung der dokumentierten Simulationen der Abfalltemperatur**

Im vorstehenden Kapitel wurden sowohl die für die TSK angenommenen Temperatur-Zeit-Verläufe überprüft, als auch die verwendeten Wärmeübergangsbedingungen und Materialeigenschaften exemplarisch mit aktuellen bzw. alternativen Referenzen verglichen. Der Einfluss von etwaigen Abweichungen wurde durch Vergleichsrechnungen abgeschätzt, wobei keine neuen Berechnungen der Abfalltemperatur unter geänderten Randbedingungen im Rahmen des Vorhabens durchgeführt werden konnten.

Die für die TSK angenommenen Temperatur-Zeit-Verläufe mit einem Temperaturmaximum von 800 °C nach einem schnellen Anstieg sind zusammen mit der Annahme eines umhüllenden Feuers sehr konservativ und abdeckend für Freibrände. Inwieweit höhere Temperaturen anzunehmen sind, wie sie insbesondere durch raumbrandartige Randbedingungen zu erwarten sind, hängt maßgeblich von Verkehrsweg ab. Insbesondere Tunnelbrände können auf Grund der nicht auszuschließenden schnellen Temperaturanstiege, hohen Maximaltemperaturen, allseitigen Wärmeeinwirkungen und erschwerten Löschmaßnahmen zu Brandverläufen führen, die die Annahmen der TSK überschreiten.

Die für die TSK angenommenen Wärmeübergangsbedingungen und überprüften Materialeigenschaften sind insgesamt auch nach heutigen Maßstäben aktuell und abdeckend. Etwaig fehlende Konservativitäten für einzelne Parameter werden an anderer Stelle durch die insgesamt konservativen Annahmen kompensiert. Eine Besonderheit stellen die – in den 1980er Jahren noch relativ unbekannt – möglichen Betonabplatzungen dar. Diese treten bei hohen Temperaturgradienten auf und sind insbesondere für Schwerbeton nicht auszuschließen. Dieses Phänomen wurde in der damaligen Arbeit /PIE 84/ nicht betrachtet. Betonabplatzungen können zu einem deutlich reduzierten Isoliervermögen der Behälter führen.



### 3 Einteilung in Flüchtigkeitsklassen

Unterschiedliche chemische und physikalische Eigenschaften radioaktiver Abfälle führen dazu, dass sich das Freisetzungsverhalten dieser verschiedenen Abfallarten bei gleichen thermischen Belastungen teils um mehrere Größenordnungen unterscheidet. Eine gebräuchliche Vorgehensweise zur Gruppierung der Abfälle besteht darin, die chemischen Elemente, aus denen der Abfall besteht, in sogenannte Flüchtigkeitsklassen einzuteilen. Dass keine weitere Unterteilung nach chemischer Verbindung, in der das Element vorliegt, oder Art der Konditionierung vorgenommen wird, ist der Tatsache geschuldet, dass die experimentelle Datenlage eine weitere Unterteilung selten zulässt (siehe z.B. /BOE 06/).

In den Transportstudien Konrad /GRS 91a/ mit /GRS 91b/ sowie /GRS 10/ mit /GRS 13/ findet bisher eine Einteilung in 2 Hauptgruppen statt. Die erste Gruppe besteht aus H-3, C-14 und Halogenen und die zweite Gruppe aus den sonstigen Nukliden. Für jede dieser Gruppen werden pro Abfallgebindegruppe (AGG) und Belastungsklasse (BK)<sup>1</sup> dieselben Freisetzunganteile für Gase bzw. kleine Partikel (mit einem aerodynamischen Äquivalentdurchmesser (AED) zwischen 0 und 10 µm) und bei den sonstigen Nukliden auch für große Partikel (AED zwischen 10 µm und 100 µm) angegeben. Lediglich bei den AGG 5 und 7 wird bei den BK mit Brand innerhalb der ersten Gruppe noch zwischen H-3, C-14 und Halogenen unterschieden, wobei für Halogene jeweils der größte Freisetzunganteil angenommen, der FA für H-3 ca. eine Größenordnung geringer und der für C-14 ca. 3 Größenordnungen geringer angenommen wird (siehe hierzu Tabellen 8.3 und 8.2 aus /GRS 10/).

Eine vom TSK Ansatz abweichende Einteilung wird in den Untersuchungen einer internationalen Forschergruppe mit Beteiligung der GRS zur Verbesserung der radiologischen und experimentellen Basis für die Weiterentwicklung der Anforderungen in den IAEA Transport Regularien für LSA<sup>2</sup> und SCO<sup>3</sup> Material im Jahr 2003 /LAN 03/ vorgestellt. Die Autoren dieser Studie ordnen auch Schwefel (S) und Selen (Se) der Gruppe der leichtflüchtigen Elemente zu, für die bei thermischer Belastung als Unfallfolge für die

---

<sup>1</sup> Zum Konzept der AGG und BK siehe beispielsweise /GRS 10/.

<sup>2</sup> Low Specific Activity: niedrige spezifische Aktivität

<sup>3</sup> Surface Contaminated Object: oberflächenkontaminiertes Objekt

betrachteten Transportbehälter generell ein Freisetzunganteil von 1 konservativ angenommen wird:

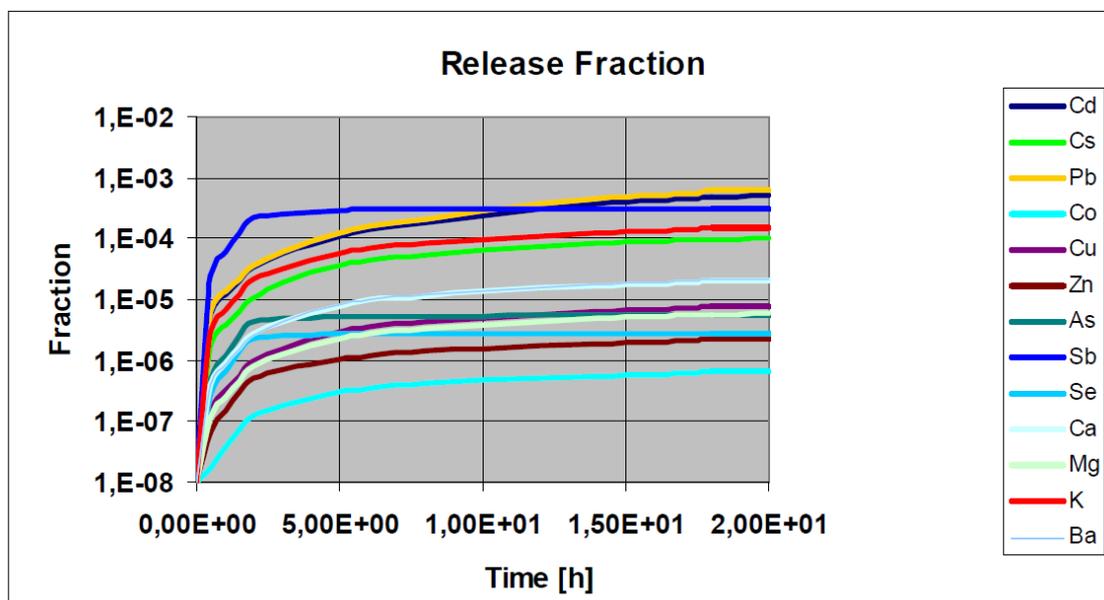
*„For all species expected to be volatile for thermodynamic reasons a release fraction of 1 is conservatively assumed on thermal impact, regardless of the waste composition. This applies to noble gases, H, C, Br, I, S and Se.“*

Auch im Abschlussbericht des Vorhabens SR 2497 /LAN 07/ werden S und Se in dieselbe Flüchtigkeitsklasse wie C, H und Halogene eingruppiert:

*“The results of the different real scale experiments in the literature show a release fraction of  $10^{-4}$  for a cemented waste package in a 30 min fire of 800°C to be a conservative approach even for elements with higher vapour pressures like Cs or Ru.*

*For all species expected to be volatile for thermodynamic reasons a release fraction of 1 is conservatively assumed on thermal impact, regardless of the waste composition. This applies to noble gases, H, C, Br, I, S and Se.”*

Der Eingruppierung von Se in die „flüchtigste“ Gruppe widersprechen allerdings die Untersuchungen von Boetsch et. al. /BOE 06/. Bei den vorgestellten Simulationsergebnissen für einen Konrad Typ 1 Container für den Auslegungsfall (einstündiges Feuer mit 800 °C und 24stündiger Abkühlphase) ergeben sich Freisetzunganteile für Se, die über zwei Größenordnungen unter denen von Blei liegen (siehe Abb. 3.1)



**Abb. 3.1** Elementspezifische Freisetzunganteile für einen Konrad Typ 1 Container.  
Quelle: /BOE 06/

Abgesehen von der Eingruppierung von S und Se in die „flüchtigste“ Gruppe, unterscheidet sich die Vorgehensweise der britischen Nirex bzw. deren Nachfolgeorganisation

NDA (National Decommissioning Authority) vor allen Dingen dadurch, dass nicht nur zwei, sondern sechs Flüchtigkeitssklassen definiert werden. Abweichend von der bereits in /GRS 13/ zitierten Gruppierung aus /TUR 00b/ werden laut /NDA 10/ zusätzlich sämtliche Edelgase und Nichtmetalle sowie Arsen (As) und Quecksilber in die flüchtigste Gruppe einsortiert (siehe Tab. 3.1). Dabei beruft sich /NDA 10/ auf Untersuchungen von AEA Technology /DIC 04/.

**Tab. 3.1** Einteilung in Flüchtigkeitssklassen nach /NDA 10/. Für die blauen, unterstrichenen Nuklide liegen der NDA experimentell bestimmte Freisetzunganteile vor.

Volatility group	Elements
I	Ar, As, At, Br, C, Cl, F, H, He, Hg, I, Kr, N, Ne, O, P, Rn, S, Se, Xe
II	B, Bi, Cd, <u>Cs</u> , Fr, Ge, In, K, Li, Na, Os, Po, Rb, Re, Sb, Sn, Tc, Te, Tl
III	Ag, Ba, Be, Ga, Mo, Pb, Ra, <u>Ru</u> , W, Zn
IV	Al, Au, Ca, <u>Co</u> , Cr, Cu, <u>Eu</u> , Fe, La, Mg, Mn, Ni, Pd, <u>Sr</u> , <u>U</u> , V
V	Ac, <u>Am</u> , Bk, Ce, Cf, Cm, Es, Fm, Lr, Md, Nd, No, Np, <u>Pu</u> , Rh, Si, Y, Zr
VI	Db, Dy, Er, Gd, Hf, Ho, Ir, Lu, Nb, Pa, Pm, Pr, Pt, Rf, Sc, Sm, Ta, Tb, Th, Ti, Tm, Yb

In der Veröffentlichung /DIC 04/ wird eine Überprüfung der Eingruppierung in Flüchtigkeitss- und Löslichkeitskategorien („Review of Volatility and Solubility Categrisations“) vorgestellt, die aus /MIG 00a/ und /MIG 00b/ stammen. In der Einleitung von /DIC 04/ wird darauf hingewiesen, dass die Einteilung in Flüchtigkeitssklassen auf thermodynamischen Modellierungen basiere, in die Annahmen darüber eingingen, welche chemische Form die Elemente in der Gasphase bei den angenommenen Unfallbedingungen annehmen. Es wurde vermutet, dass der Übergang der angenommenen gasförmigen chemischen Form von der Festen in die Gasphase proportional zu deren Partialdruck und festgelegten Standardbedingungen sei.<sup>4</sup>

Beim Blick auf die experimentell bestimmten Freisetzunganteile aus verschiedenen Messkampagnen wird in Kapitel 2 von /DIC 04/ dann aber betont, dass die gemessenen

<sup>4</sup> /DIC 04/: „A second method was intended to apply to the higher temperature situation and was based on the volatility of species in the wasteform into a flowing air/steam atmosphere [4].“ (/MIG 00b/) “This involved a thermodynamic assessment of the likely chemical form of the elements during the accident scenario and calculations of the total partial pressure of the gaseous species as a function of the temperature. The assumption was that the net rate of transfer from the solid to the vapour phase is propotional to the partial pressure over the solid phase under a set of standard conditions;”

Unterschiede zwischen den Freisetzungsteilen der Radionuklide signifikant kleiner seien, als durch die thermodynamischen Modellierungen vorhergesagt.<sup>5</sup> Es gäbe Anzeichen innerhalb einer Testreihe, dass es eine Korrelation zwischen der Flüchtigkeit und den Freisetzungsteilen gäbe. Allerdings könne dies nur für die halbflüchtigen Elemente Cs und Ru mit einiger Sicherheit behauptet werden. Bei anderen Radionukliden sei der Unterschied in den Freisetzungsteilen zu gering bzw. zu wenig von der Temperatur abhängig, als dass der dominante Freisetzungsprozess sensitiv bezüglich chemischer Eigenschaften wie Löslichkeit oder Flüchtigkeit sein könne.<sup>6</sup> Weiterhin wird in Kapitel 2 darauf hingewiesen, dass die chemische Form, die ein Element in der Abfallmatrix annehme, einen starken Einfluss auf die Freisetzung habe.<sup>7</sup> Diese Aussage steht in gewissem Widerspruch zu den Annahmen der thermodynamischen Modellierungen, da dabei die (angenommene) chemische Form in der Gasphase statt der chemischen Form in der Abfallmatrix verwendet wird. In Kapitel 3.3 von /DIC 04/ wird dieser Widerspruch ebenfalls thematisiert.<sup>8</sup>

In Kapitel 5 von /DIC 04/ (Discussion) wird erneut darauf hingewiesen, dass die experimentellen Daten zu Freisetzungsteilen im Allgemeinen keine starke Korrelation zu berechneten Löslichkeits- oder Flüchtigkeitsgruppierungen zeigen.<sup>9</sup> Es wird weiter vermutet, dass es eine Art „baseline“ Freisetzung von wenig flüchtigen Nukliden gäbe, für die

---

<sup>5</sup> /DIC 04/: „A point to note is that, in each test in the ILW programme, the release fractions for most of the radionuclides were within a range of not more than one or two orders of magnitude. This is significantly smaller than the elemental volatility or solubility range predicted by thermodynamic calculations and less than that observed in the ARFAC tests.”

<sup>6</sup> /DIC 04/: „There is some evidence from the BNFL ILW tests for a correlation between volatility and release fractions. However, this correlation can only be claimed with some certainty for the semi-volatile elements Cs and Ru. Other radionuclides appear to release in fractions that are not sufficiently different from each other, or sufficiently temperature dependent, for their dominant release mechanism to be particularly sensitive to chemical factors such as solubility or volatility.”

<sup>7</sup> /DIC 04/: „The chemical state of the condensed phase of the element stabilized in the waste would have a strong influence on the release from the various wastefoms.”

<sup>8</sup> /DIC 04/: „The calculations of the vapour pressure were carried out for the most thermodynamically stable condensed phases of the selected element in equilibrium with an air/steam atmosphere over the temperature range of interest (300 to 1200°C). Hence the stable phases considered included the element, oxide, hydroxide or a two phase mixture of these. As stated previously this is a simplistic approach and a more rigorous method would involve the determination of the chemical state of the element in the wasteform. This would depend on the chemical treatment of the waste before fixing in the matrix. Such an approach is still not recommended in view to the limited experimental database and the uncertainties in the results.”

<sup>9</sup> /DIC 04/: „The available release fraction data do not generally show a strong correlation with the calculated solubility or volatility groups.“...“The latest data do not, in most cases, indicate a very clear correlation between release fraction and the solubility or volatility groupings.”

ein physikalischer Freisetzungsmechanismus verantwortlich sein könne. Diese physikalische Freisetzung könnte wiederum stark von der Methode abhängig sein, wie die Proben präpariert wurden. Es könne daher sein, dass die experimentellen Daten nicht repräsentativ für reale Abfallmatrizen seien.<sup>10</sup>

Abschließend wird im Fazit von /DIC 04/ (Kapitel 6, Conclusions) betont, dass die Verlässlichkeit der beiden Methoden (Gruppeneinteilung nach Löslichkeit bzw. Flüchtigkeit) davon abhängig sei, ob die zugrundeliegenden Annahmen zur chemischen Form des Elementes im Abfall korrekt seien. Wenn dies nicht der Fall sei, dann wären die Gruppierungen nicht anwendbar.<sup>11</sup> Der Gebrauch von Gruppen, um Elementen, für die keine experimentellen Daten vorliegen, Freisetzungsanteile zuzuordnen, hänge davon ab, dass die richtigen Freisetzungsmechanismen angenommen werden. Obwohl qualitative Übereinstimmungen zum Modellansatz gefunden wurden, seien diese wenig überzeugend.<sup>12</sup>

Als wenig überzeugend wird die Übereinstimmung zwischen Theorie und gemessenen Daten auch schon in /MIG 00b/, Kapitel 3.2, dargestellt.<sup>13</sup> In Anbetracht der Inkonsistenzen zwischen Berechnungen und experimentellen Daten gäbe es gewisse Unsicherheiten bei der Zuordnung von Freisetzungsanteilen.<sup>14</sup>

---

<sup>10</sup> /DIC 04/: „This suggests that there is a “baseline” release of the less soluble materials by some physical mechanism such as particle entrainment. This physical release is again likely to be very dependent on the method used to prepare the samples so the experimental data may not be representative of the real wasteform.”

<sup>11</sup> /DIC 04/: „The reliability of both methods of categorization is dependent on the correct assumptions being made about the chemical form of the element in the wasteform. If this is not the case, either because of deficiencies in the thermodynamic data or kinetic limitations preventing equilibrium species being formed in the waste, the groupings will be inapplicable.”

<sup>12</sup> /DIC 04/: „Finally, it should be noted that the use of groupings to assign release fractions to elements for which there are no experimental data depends on the correctness of the assumed release mechanisms. Although the results show some qualitative consistency with the modelling approach, they are far from conclusive.”

<sup>13</sup> /MIG 00b/: „A comparison of measured release fractions at 1000°C with the calculated vapour pressures in an air/steam atmosphere from steel hulls and cemented Magnox sludge waste are presented in Tables 6 and 7 respectively. As can be seen, the agreement between the data is poor.”

<sup>14</sup> /MIG 00b/: „In view of the inconsistencies between the experimental data and the calculations, due to the simplified approach adopted and the limited experimental measurements, there are some uncertainties in the assignment of the release fractions.”

### **Fazit zur Einteilung in Flüchtigkeitsklassen**

Der in der TSK gewählte Ansatz, bei dem bei der Zuordnung von thermischen Freisetzunganteilen lediglich zwischen H, C, Halogenen und sonstigen Nukliden unterschieden wird, stellt weitestgehend einen konservativen Ansatz dar. Fraglich ist lediglich, ob S und Se, wie in /LAN 03/ und /LAN 07/ vorgeschlagen, nicht den sonstigen Nukliden zugeordnet werden sollten, sondern gesonderte, im Vergleich zu den sonstigen Nukliden höhere thermische Freisetzunganteile zugeordnet bekommen sollten. Experimentelle Ergebnisse von /BOE 06/ widersprechen zumindest für Se allerdings der Zuordnung höherer thermischer Freisetzunganteile.

Die Einteilung von Nukliden in 6 verschiedene Flüchtigkeitsklassen, wie sie von der NDA vorgeschlagen wird, erscheint als nicht ausreichend belastbar, um in Transportstudien wie der TSK verwendet zu werden. Grund dafür sind die großen Unsicherheiten bei den Modellannahmen, insbesondere zu den dominierenden Freisetzungsmechanismen, und den in der Ausgangsliteratur aufgezeigten wenig überzeugenden Korrelationen zwischen thermodynamischen Modellierungen und gemessenen Freisetzunganteilen.

#### 4 Abhängigkeit von der Art der Konditionierung/Art des Abfalls

Für die einzelnen Flüchtigkeitsklassen werden in /FRY 10/ mit Verweis auf /HAR 01/ für insgesamt sieben verschiedene Abfallformen temperaturabhängige Freisetzungsteile angegeben (siehe Tabellen Tab. 4.1 bis Tab. 4.7). Zwischen den einzelnen angegebenen Temperaturstufen werden die Freisetzungsteile linear interpoliert bzw. bei einigen Abfallformen für Temperaturen über 300 °C bzw. 450 °C extrapoliert. Ein Blick in die Tabellen zeigt, dass für Temperaturen unter 50 °C für alle Abfallformen und Flüchtigkeitsklassen keine Freisetzungen angenommen werden und für alle Abfallformen ein FA von 1 für die Flüchtigkeitsklasse I bei Temperaturen über 50 °C. Bei einer Temperatur von 1000 °C ist die Datenlage hingegen nicht mehr eindeutig. Vielmehr liegen die angegebenen FA um bis zu 5 Größenordnungen auseinander.

**Tab. 4.1** Temperaturabhängige FA für ‚Encapsulated Floc and Sludge Wasteforms‘ aus /FRY 10/

Volatility group	<50°C	50°C	300 °C	1000°C
I	0	1	1	1
II	0	$3 \times 10^{-3}$	$3 \times 10^{-3}$	$3 \times 10^{-1}$
III	0	$3 \times 10^{-3}$	$3 \times 10^{-3}$	$1 \times 10^{-2}$
IV	0	$3 \times 10^{-4}$	$3 \times 10^{-4}$	$1 \times 10^{-2}$
V	0	$9 \times 10^{-5}$	$9 \times 10^{-5}$	$3 \times 10^{-4}$
VI	0	$9 \times 10^{-5}$	$9 \times 10^{-5}$	$3 \times 10^{-4}$

**Tab. 4.2** Temperaturabhängige FA für ‚Encapsulated Hulls and Similar Wasteforms‘ aus /FRY 10/

Volatility group	<50°C	50°C	700 °C	1000°C
I	0	1	1	1
II	0	$7 \times 10^{-4}$	$7 \times 10^{-4}$	$5 \times 10^{-3}$
III	0	$7 \times 10^{-4}$	$7 \times 10^{-4}$	$5 \times 10^{-3}$
IV	0	$6 \times 10^{-5}$	$6 \times 10^{-5}$	$6 \times 10^{-5}$
V	0	$3 \times 10^{-5}$	$3 \times 10^{-5}$	$3 \times 10^{-5}$
VI	0	$3 \times 10^{-5}$	$3 \times 10^{-5}$	$3 \times 10^{-5}$

**Tab. 4.3** Temperaturabhängige FA für 'Compacted Magnox Sludge Wasteform' aus /FRY 10/

Volatility group	<50°C	50°C	150°C	300°C	>300°C
I	0	1	1	1	Use extrapolation of the 150°C to 300°C relationship
II	0	$4 \times 10^{-5}$	$4 \times 10^{-5}$	$2 \times 10^{-4}$	
III	0	$4 \times 10^{-5}$	$4 \times 10^{-5}$	$2 \times 10^{-4}$	
IV	0	$9 \times 10^{-7}$	$9 \times 10^{-7}$	$5 \times 10^{-6}$	
V	0	$7 \times 10^{-7}$	$7 \times 10^{-7}$	$4 \times 10^{-6}$	
VI	0	$7 \times 10^{-7}$	$7 \times 10^{-7}$	$4 \times 10^{-6}$	

**Tab. 4.4** Temperaturabhängige FA für 'Cemented Ion Exchange Wasteform' aus /FRY 10/

Volatility group	<50°C	50°C	1000°C
I	0	1	1
II	0	$8 \times 10^{-6}$	$8 \times 10^{-6}$
III	0	$8 \times 10^{-6}$	$8 \times 10^{-6}$
IV	0	$1 \times 10^{-6}$	$1 \times 10^{-6}$
V	0	$1 \times 10^{-6}$	$1 \times 10^{-6}$
VI	0	$1 \times 10^{-6}$	$1 \times 10^{-6}$

**Tab. 4.5** Temperaturabhängige FA für 'Ion Exchanger Wastes in Resin Matrix' aus /FRY 10/

Volatility group	<50°C	50°C	300°C	1000°C
I	0	1	1	1
II	0	$2 \times 10^{-5}$	$2 \times 10^{-5}$	$2 \times 10^{-3}$
III	0	$2 \times 10^{-5}$	$2 \times 10^{-5}$	$2 \times 10^{-3}$
IV	0	$5 \times 10^{-6}$	$5 \times 10^{-6}$	$3 \times 10^{-5}$
V	0	$1 \times 10^{-9}$	$1 \times 10^{-9}$	$1 \times 10^{-9}$
VI	0	$1 \times 10^{-9}$	$1 \times 10^{-9}$	$1 \times 10^{-9}$

**Tab. 4.6** Temperaturabhängige FA für 'Ungrounted Metal Wastes' aus /FRY 10/

Volatility group	<50°C	50°C	300°C	450°C	>450°C
I	0	1	1	1	Use extrapolation of the 300°C to 450°C relationship
II	0	$3 \times 10^{-4}$	$3 \times 10^{-4}$	$3 \times 10^{-4}$	
III	0	$3 \times 10^{-4}$	$3 \times 10^{-4}$	$3 \times 10^{-4}$	
IV	0	$2 \times 10^{-5}$	$2 \times 10^{-5}$	$2 \times 10^{-5}$	
V	0	$3 \times 10^{-6}$	$3 \times 10^{-6}$	$4 \times 10^{-6}$	
VI	0	$3 \times 10^{-6}$	$3 \times 10^{-6}$	$4 \times 10^{-6}$	

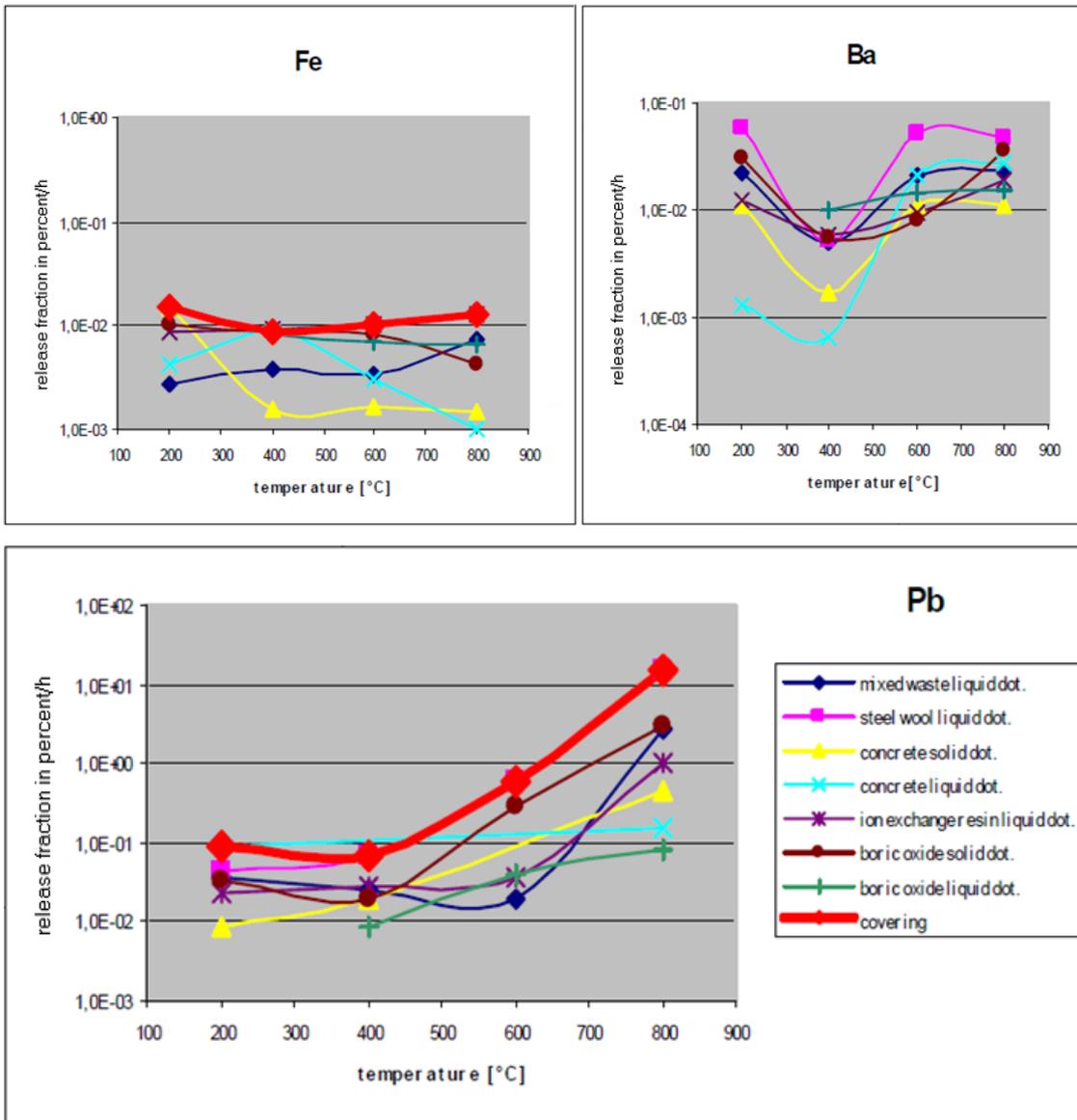
**Tab. 4.7** Temperaturabhängige FA für 'Compacted LLW' aus /FRY 10/

Volatility group	<50°C	50°C	150°C	450°C	700°C	1000°C
I	0	1	1	1	1	1
II	0	$1 \times 10^{-6}$	$1 \times 10^{-6}$	$1 \times 10^{-2}$	$2 \times 10^{-2}$	$2 \times 10^{-2}$
III	0	$1 \times 10^{-6}$	$1 \times 10^{-6}$	$1 \times 10^{-2}$	$2 \times 10^{-2}$	$2 \times 10^{-2}$
IV	0	$1 \times 10^{-6}$	$1 \times 10^{-6}$	$6 \times 10^{-6}$	$2 \times 10^{-5}$	$1 \times 10^{-3}$
V	0	$2 \times 10^{-8}$	$2 \times 10^{-8}$	$5 \times 10^{-7}$	$2 \times 10^{-5}$	$2 \times 10^{-5}$
VI	0	$2 \times 10^{-8}$	$2 \times 10^{-8}$	$5 \times 10^{-7}$	$2 \times 10^{-5}$	$2 \times 10^{-5}$

Große Unterschiede der FA in Abhängigkeit von der Abfallart wurden auch bei experimentellen Untersuchungen von Boetsch et. al. /BOE 05/ festgestellt<sup>15</sup>. Bei der graphischen Darstellung der Messergebnisse **Abb. 4.1** fällt insbesondere auf, dass selten eine lineare Abhängigkeit der FA von der Temperatur besteht, sondern ausgeprägte Nichtlinearitäten zu finden sind. Ebenfalls auffällig in der Darstellung ist der bei 800 °C um nahezu 3 Größenordnungen höhere FA von Pb im Vergleich zu Fe.

<sup>15</sup> Bei den untersuchten Abfallformen handelte es sich um:

- I. Cemented waste:
  - a. Inactive elements applied dissolved in solution, solution is used to prepare cement sample
  - b. Inactive elements applied on dry cement sample
- II. Mixed waste: Representative mixture from rubber, paper, textile etc. doped with dissolved elements
- III. Metallic waste: Steel wool is sprayed with elements solution and dried before testing
- IV. Concentrates
  - a. Boric oxide doped with dissolved elements
  - b. Boric oxide mixed with doped and dried cellulose
- V. Ion exchange granulates: Common ion exchange granulates are doped with solution from dissolved elements



**Abb. 4.1** Elementspezifische FA für unterschiedliche Trägermaterialien (Quelle: /BOE 05/)

## 5 Berechnungsmethodik zu den thermischen Freisetzungsteilen

Um aus den gemessenen bzw. meist simulierten zeitabhängigen Temperaturfeldern innerhalb des Abfallgebundes und den elementspezifischen, temperaturabhängigen Freisetzungsteilen von Abfall-Simulaten die Gesamt-Freisetzungsteile für ein komplettes Abfallgebunde zu bestimmen, gibt es ebenfalls unterschiedliche Ansätze. Nirex bzw. die NDA verfolgen den Ansatz, dass allein die maximal erreichte Temperatur in jedem Volumenelement des Abfalls entscheidend ist /BAR 03/. Mit dieser Methode berechnete FA wurden für die in Großbritannien relevanten Abfallgebunde in /FRY 10/ veröffentlicht (siehe Tab. 5.1).

**Tab. 5.1** Abhängigkeit von Flüchtigkeit sowie Abfall- und Gebindetyp /FRY 10/

Volatility group	Waste Package Type								
	Disposal canister	500 litre Drum (Homogeneous)	500 litre Drum (Heterogeneous)	500 litre Drum (Annular grouted)	3 cubic metre box	3 cubic metre drum	MBGWS box	2 metre and 4 metre box	WAGR Box
I	0	1	1	1	1	1	1	1	1
II	0	3e-2	9e-4	3e-4	1e-3	1e-2	7e-4	7e-4	7e-4
III	0	4e-3	9e-4	3e-4	1e-3	3e-3	7e-4	7e-4	7e-4
IV	0	1e-3	6e-5	2e-5	6e-5	6e-4	6e-5	6e-5	6e-5
V	0	1e-4	3e-5	3e-6	3e-5	1e-4	3e-5	3e-5	3e-5
VI	0	1e-4	3e-5	3e-6	3e-5	1e-4	3e-5	3e-5	3e-5

Im Unterschied dazu wird in /GRÜ 87a/ für die Sublimation von radioaktiven Stoffen von einer Oberfläche ein zeitabhängiger Ansatz verfolgt, bei dem nicht nur die erreichte Temperatur eine Rolle spielt, sondern auch die Dauer, während der ein Volumenelement gewisse Schwellenwerte überschreitet. Auf Basis dieser Methodik wurden auch die in /BOE 06/ gezeigten Werte ermittelt (Abb. 3.1).

Im Gegensatz zur NDA wird neben Pyrolyse, Verdampfen / Sublimation und Mitriss beim Verdampfen von Wasser bei den Herleitungen im Rahmen der Transportstudien Konrad /GRS 91a/ mit /GRS 91b/ auch der Brand des Abfalls berücksichtigt. Für die betrachteten Behälter in /FRY 10/ wird hingegen davon ausgegangen, dass die Behälter nach einem Unfall im Endlager noch nahezu intakt sind und somit im Brandfall keine Luftzufuhr zum Abfall stattfinden kann. Ein aktives Verbrennen des Abfalls wird daher ausgeschlossen.



## **6            Unsicherheiten bei der Bestimmung von thermischen Freisetzunganteilen**

Neben den bereits genannten unterschiedlichen Herangehensweisen bei der Zuordnung von chemischen Elementen zu Flüchtigkeitsklassen, den Annahmen beim Brand und der Berücksichtigung unterschiedlicher Freisetzungsprozesse von verschiedenen Organisationen, werden in /HOW 12/ generell die Schwierigkeiten bei der Bestimmung von FA im thermischen Lastfall thematisiert.

Zu den experimentellen Bestimmungen wird angeführt, dass die Reproduzierbarkeit der Ergebnisse nur bis auf einen Faktor 6 gegeben sei. Zudem wird die bei der NDA angewendete lineare Interpolation und Extrapolation zwischen gemessenen Temperaturwerten kritisch bewertet. Einige Abhängigkeiten von der Herstellungsweise der Proben seien zudem bisher noch nicht untersucht. Die Auswahlkriterien für die Freisetzunganteile der verschiedenen chemischen Elemente bei unterschiedlichen Abfallformen seien zudem nicht eindeutig dokumentiert. Generell müsse bei experimentellen Untersuchungen zudem die Problematik der Nachweisgrenze von Messinstrumenten berücksichtigt werden.

Auch bei den Finite-Elemente (FE) Simulationen zur (zeitlich aufgelösten) Temperaturverteilung in Abfallgebänden beständen Unsicherheiten. So seien die thermischen Eigenschaften nicht eindeutig. Unsicherheiten beständen zudem in der Skalierung der thermischen Diffusion der verschiedenen Abfalltypen. Fraglich sei zudem die Übertragbarkeit der Daten auf Abfallarten, für die keine experimentellen Ergebnisse vorliegen und Analogieschlüsse zu anderen Abfallgebändertypen. Variationen bei der Abschirmung und der Mörteldicke hätten großen Einfluss auf die simulierte Temperaturverteilung im Abfallgebäude. Auch ein Einfluss des verwendeten Simulationsgitters sei feststellbar.



## 7 Aktualisierung der Freisetzungsteile

Zielsetzung des Vorhabens war die Überprüfung der in der TSK 09 verwendeten Freisetzungsteile vor dem Hintergrund aktueller Entwicklungen und neuerer Erkenntnisse. Durch die oben dargelegte Problematik hinsichtlich der Übertragbarkeit der experimentellen Daten auf das bisher verwendete System, konnte aufgrund dieser Daten keine Aktualisierung der FA erfolgen. Bei der Überprüfung der Freisetzungsteile nach /GRS 13/ wurden jedoch einige Inkonsistenzen entdeckt und den Ursachen im Detail nachgegangen. Bei den im Folgenden präsentierten Freisetzungsteilen für jede Abfallgebindegruppe (siehe Tab. 1.3) sind diese Inkonsistenzen aufgelöst. Die gegebenenfalls aktualisierten Freisetzungsteile werden den bisher verwendeten gegenübergestellt und die Änderungen begründet. Insbesondere bei der AGG 8 ergeben sich teils gravierende Änderungen, wobei sich die in der TSK 09 dokumentierten FA als deutlich zu niedrig herausgestellt haben.

Bei den AGG 1 und AGG 6 bzw. AGG 5 und AGG 7 handelt es sich jeweils um dasselbe Abfallprodukt (brennbar, unfixiert bzw. zementiert). Sie unterscheiden sich jeweils nur durch die Abfallbehälter, Stahlblechcontainer bei der AGG 1 und AGG 5 bzw. Betonbehälter für die AGG 6 und AGG 7. Da sich die Freisetzungsteile für den Abfall im Betonbehälter auf die FA der Abfälle im Stahlblechcontainer beziehen, werden diese AGG jeweils gemeinsam betrachtet. Dem Betonbehälter wird jeweils eine höhere mechanische Dämpfungseigenschaft, Rückhaltewirkung sowie thermische Isolation im Vergleich zum Stahlblechcontainer unterstellt.

Für die FA von H-3, C-14 und Halogenen ist zu berücksichtigen, dass für H-3 ein Verdampfen ab einer Abfalltemperatur von 100 °C angenommen wird, für C-14 und Halogene wird bereits ab einer Abfalltemperatur von 40 °C Verdampfen bzw. Sublimation angenommen. Wenn durch eine Konditionierung des Abfalls, bei denen der komplette Abfall Temperaturen über 40 °C ausgesetzt ist, wie bei der Zementierung des Abfalls der AGG 5 und AGG 7, davon ausgegangen werden kann, dass nach der Konditionierung im Abfallprodukt vorhandenes C-14 nur noch in einer weniger flüchtigen Form (Karbonat) vorliegt, dann wird C-14 bezüglich der Freisetzung wie sonstige Nuklide behandelt.

Der Freisetzungsteil durch Sublimation bzw. Verdampfen von sonstigen Nukliden wurde in /GRÜ 84/ für eine Csl-Oberflächenkontamination bei einer Temperatur von 250 °C durch einen stationären Stoffübergang abgeschätzt. Dabei wird eine Zeitfunktion

für den Freisetzungsteil ermittelt, die mit  $f(t) = 5,4 \cdot 10^{-7} s^{-1} \cdot t$  angegeben wird. Bei Annahme eines zweistündigen Ausgasungsvorgang wird ein FA von  $4 \cdot 10^{-3}$  ermittelt.

In /GRÜ 87a/ wird eine verfeinerte Analyse vorgestellt, die Aufheizrechnungen für einen Stahlblechcontainer beinhaltet und wiederum die Freisetzung von mittelflüchtigem CsI untersucht. Dabei wird ebenfalls ein Temperaturverlauf über zwei Stunden betrachtet, wobei am Anfang 5 Minuten für die Aufheizung veranschlagt sind, eine Stunde Brand folgt und danach noch 55 Minuten Abkühlung einbezogen werden. Insgesamt wird ein Freisetzungsteil von 0,8 % ermittelt. Da aber nach den ebenfalls in /GRÜ 87a/ präsentierten Abschätzungen in den für Konrad erwarteten Abfällen nur höchstens 27 % der Aktivität in mittelflüchtigen Verbindungen vorliege und der Rest in schwerflüchtigen, deren Freisetzung gegenüber der mittelflüchtigen zu vernachlässigen sei, werde der für das mittelflüchtige CsI berechnete Freisetzungsteil für das insgesamt vorliegende CsI auf 0,2 % reduziert. Zur Abdeckung eventueller Unsicherheiten bei der Berechnung wurde der FA auf den Wert von  $4 \cdot 10^{-3}$  aufgerundet und entspricht damit dem in /GRÜ 84/ hergeleiteten Wert. In /GRÜ 87a/ wird zudem argumentiert, dass der abgeschätzte FA unabhängig von der Aufrundung noch diverse Konservatismen beinhalte. So würde für alle sonstigen Nuklide der für Cs abgeschätzte Anteil mittelflüchtiger Verbindungen angenommen, was für alle Leitnuklide (außer den ohnehin gesondert behandelten leichtflüchtigen Nukliden) eine Überschätzung des mittelflüchtigen Anteils bedeute. Zudem sei die Annahme, dass die komplette Aktivität als Oberflächenkontamination vorliege, sehr konservativ, da radioaktive Stoffe häufig in die kontaminierten Strukturen eindringen (diffundieren) bzw. chemische Verbindungen eingehen würden oder sogar als Aktivierungsprodukte fest in Strukturen eingebunden seien.

Beim Freisetzungsprozess durch Mitriss beim Verdampfen von Wasser, besonders relevant für zementierte Abfälle und Konzentrate, wird eine Schwellentemperatur von 100 °C, der Siedetemperatur von Wasser unter Normaldruck, angenommen. Für Bereiche des Abfallproduktes, bei denen diese Temperatur überschritten wird, wird in /GRÜ 87a/, Anhang I, Kapitel 2.3 ein Freisetzungsteil von  $5 \cdot 10^{-4}$  angegeben.

Insgesamt wird für zementfixierten Abfall angenommen, dass 50 % des Wassers verdampfbar ist (/GRS 91b/, Anhang 4, Kapitel 2.2, Abfallgebindegruppe 5).

Für brennbaren, unfixierten Abfall bzw. brennbare, unfixierte Anteile des Abfalls wird angenommen, dass, sobald eine Sauerstoffzufuhr während einer thermischen Belastung möglich ist, der Abfall bzw. der brennbare Anteil abbrennt. Der FA für sonstige Nuklide,

kleine Aerosole (AED < 10 µm) für diesen verbrennenden Abfall bzw. Anteil des Abfalls wird mit 0,1 angenommen. Ist kein Sauerstoffzutritt möglich, wird Pyrolyse ab einer Temperatur von 300 °C angenommen. Für den Abfall bzw. Anteil des Abfalls, der über diese Schwellentemperatur erhitzt wird, wird für die sonstigen Nuklide ein FA von  $4 \cdot 10^{-3}$  angesetzt /GRÜ 84/.

## **7.1 Abfallgebindegruppe 1 und Abfallgebindegruppe 6**

Bei der AGG 1 (brennbare, unfixierte Abfälle in Stahlblechcontainern) wurden keine Aktualisierungen vorgenommen. Die Freisetzungssanteile entsprechen nach wie vor denen aus der TSK 09 bzw. /GRS 13/ und sind in Tab. 7.1 dokumentiert.

Bei der AGG 6 (brennbare, unfixierte Abfälle in Betonbehältern) wurden die Freisetzungssanteile für C-14 und Halogene bei der Belastungsklasse von 1 auf 0,5 reduziert. Laut /GRS 91b/ bleibt bei den mechanischen Belastungen entsprechend der BK 1-3 der Betonbehälter weitestgehend intakt. Lediglich an der Außenhülle des Behälters sei mit leichten Beschädigungen (Abplatzungen) zu rechnen. Die wärmeisolierende Wirkung des Betonbehälters sei durch die Abplatzungen nicht beeinträchtigt. Es werde kein Abfall freigelegt bzw. es tritt auch kein schmelzendes Abfallprodukt aus.

Aufgrund der noch intakten Isolierung wird in /GRS 91b/ für H-3 keine Freisetzung bis einschließlich BK 3 angenommen. Es wird hier also unterstellt, dass sich das Abfallprodukt bei einem einstündigen Brand und der anschließenden Abkühlphase innerhalb des Betonbehälters an keiner Stelle auf mindestens 100 °C (angenommene Schwellentemperatur für das Verdampfen von Wasser) erhitzt. Konservativ wird in /GRS 91b/ aber angenommen, dass sich das komplette Abfallprodukt auf über 40 °C erhitzt und somit C-14 und Halogene komplett freigesetzt werden. Bezüglich H-3 wird bei der AGG 6 also eine Isolierung unterstellt, die im Vergleich zum Stahlblechcontainer der AGG 1 eine für die thermische Freisetzung relevante Temperatursteigerung im Abfallprodukt auf über 100 °C komplett verhindert. Bezüglich C-14 und Halogenen wird die bessere isolierende Eigenschaft des Betonbehälters im Vergleich mit dem Stahlblechcontainer aber komplett außer Acht gelassen. Einerseits eine Erhöhung der Abfallprodukt-Temperatur auf über 100 °C komplett auszuschließen und andererseits eine Erhöhung auf über 40 °C für das komplette Abfallprodukt anzunehmen, erscheint als unnötig konservativ, da zumindest Randbereiche des Abfallproduktes dann deutlich höhere Temperaturen als 100 °C aufweisen müssten, um während der Brand- und anschließenden Abkühlphase eine entsprechende Erwärmung des kompletten Abfallproduktes auf über 40 °C zu verursachen.

Um der besseren Isolierwirkung des Betonbehälters auch bei C-14 und Halogenen Rechnung zu tragen, werden die Freisetzungsanteile dieser Nuklide um den Faktor 2 auf 0,5 für die BK 3 reduziert. Dabei wird zur realistischen Abbildung der Verhältnisse unterstellt, dass höchstens die Hälfte des Abfallproduktes auf über 40 °C erwärmt wird.

**Tab. 7.1** Freisetzungsanteile der AGG 1  
(keine Aktualisierungen verglichen mit der TSK 09)

<b>AGG1</b>									
BK	sonstige Aerosole				H-3				
	0-10µm		10µm-100µm		0-10µm		10µm-100µm		
	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09
1	5,0E-06		1,0E-05		5,0E-06		1,00E-05		
2	0,1		1,0E-05		1		0		
3	0,1		1,0E-05		1		0		
4	5,0E-05		1,0E-04		5,0E-05		1,0E-04		
5	0,1		1,0E-04		1		0		
6	0,1		1,0E-04		1		0		
7	3,0E-04		6,0E-04		3,0E-04		6,00E-04		
8	0,1		6,0E-04		1		0		
9	0,1		6,0E-04		1		0		
	C-14				Halogene				
	0-10µm		10µm-100µm		0-10µm		10µm-100µm		
	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09
1	5,0E-06		1,0E-05		5,0E-06		1,0E-05		
2	1		0		1		0		
3	1		0		1		0		
4	5,0E-05		1,0E-04		5,0E-05		1,0E-04		
5	1		0		1		0		
6	1		0		1		0		
7	3,0E-04		6,0E-04		3,0E-04		6,0E-04		
8	1		0		1		0		
9	1		0		1		0		

Tab. 7.2 Aktualisierte Freisetzungsanteile der AGG 6

<b>AGG6</b>								
BK	sonstige Aerosole				H-3			
	0-10µm		10µm-100µm		0-10µm		10µm-100µm	
	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu
1	0		0		0		0	
2	0		0		0		0	
3	0		0		0		0	
4	2,5E-05		5,0E-05		2,5E-05		5,0E-05	
5	0,1		5,0E-05		1		0	
6	0,1		5,0E-05		1		0	
7	1,5E-04		3,0E-04		1,5E-04		3,00E-04	
8	0,1		3,0E-04		1		0	
9	0,1		3,0E-04		1		0	
	C-14				Halogene			
	0-10µm		10µm-100µm		0-10µm		10µm-100µm	
	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu
1	0		0		0		0	
2	0		0		0		0	
3	<b>1</b>	<b>0,5</b>	0		<b>1</b>	<b>0,5</b>	0	
4	2,5E-05		5,0E-05		2,5E-05		5,0E-05	
5	1		0		1		0	
6	1		0		1		0	
7	1,5E-04		3,00E-04		1,5E-04		3,00E-04	
8	1		0		1		0	
9	1		0		1		0	

## 7.2 Abfallgebindegruppe 2

Bei den Abfällen der AGG 2 (unfixierte und nicht kompaktierbare metallische und nicht-metallische Abfälle einschließlich Verdampferkonzentraten in Stahlblechcontainern oder Betonbehältern) ist gemäß Abfallspezifikation höchstens 1 % des Abfalls brennbar. Ausschließlich für diesen brennbaren Anteil, nicht für den kompletten Abfall, sollten in /GRS 91b/ die Freisetzungsteile der AGG 1 von 0,1 für die sonstigen Nuklide (kleine Aerosole, AED < 10µm) bei den Belastungsklassen mit Brandeinwirkung übernommen werden. Für den restlichen, nicht brennbaren Abfall werden Sublimation bzw. Verdampfen als Freisetzungsprozesse angenommen. Für diesen Freisetzungsprozess können, wie eingangs von Kapitel 7 erwähnt, als maximale Freisetzung  $4 \cdot 10^{-3}$  veranschlagt werden. Die präsentierten Werte für die Freisetzungsteile der sonstigen Nuklide in /GRS 91b/, die in der TSK 09 /GRS 10/ übernommen wurden, stimmen allerdings nicht mit diesen Grundannahmen überein. Statt nur von 1 % brennbarem Abfallanteil auszugehen, scheint ab der BK 5 bei thermischen Belastungen der komplette Abfall als brennbar angenommen worden zu sein, wodurch die Freisetzungsteile für die BK 5, 6, 8 und 9 überschätzt werden. Ab BK 5 wird angenommen, dass der Behälter derart beschädigt wird, dass brennbarer Abfall offen abbrennen kann. Da es sich dabei aber nur um 1 % des Abfalls handelt, kann somit durch den Prozess „Verbrennen“ maximal  $1 \cdot 10^{-3}$  bezogen auf das Gesamtabfallprodukt als Freisetzung veranschlagt werden. Da der Behälter bei BK 5 und BK 6 aber noch weitestgehend seine isolierenden Eigenschaften (lediglich „Verlust des Deckels“ /GRS 91b/, Anhang IV, Seite 13) besitzt, wird bei der BK 5 noch kein vollständiges Durchheizen des Abfalls unterstellt, sondern der FA der BK 2 für die sonstigen Nuklide übernommen. Bei der höheren mechanischen Beaufschlagung der BK 5 und 6 bezogen auf die BK 2 und 3 ist nicht mit einer Erhöhung der FA im thermischen Lastfall zu rechnen, da die Annahmen für die BK 2 und 3 hier bereits ausreichend konservativ sind. Ab dem einstündigen Brand bzw. bei einer vollständigen Zerstörung des Behälters wie für BK 7 bis 9 angenommen, wird eine komplette Erwärmung des Abfalls über die Schwellentemperaturen für Sublimation / Verdampfen unterstellt. Zusammen mit dem FA des brennbaren Abfalls ergibt sich somit insgesamt ein FA von  $5 \cdot 10^{-3}$  für die sonstigen Nuklide bei kleinen Aerosolen (AED < 10 µm).

Tab. 7.3 Aktualisierte Freisetzunganteile der AGG 2

<b>AGG2</b>								
BK	sonstige Aerosole				H-3			
	0-10µm		10µm-100µm		0-10µm		10µm-100µm	
	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu
1	5,0E-06		1,0E-05		5,0E-06		1,0E-05	
2	1,2E-03		1,0E-05		1		0	
3	5,0E-03		1,0E-05		1		0	
4	5,0E-05		1,0E-04		5,0E-05		1,0E-04	
5	1,0E-01	5,0E-03	1,0E-04		1		0	
6	1,0E-01	5,0E-03	1,0E-04		1		0	
7	3,0E-04		6,0E-04		3,0E-04		6,0E-04	
8	1,0E-01	5,0E-03	6,0E-04		1		0	
9	1,0E-01	5,0E-03	6,0E-04		1		0	
	C-14				Halogene			
	0-10µm		10µm-100µm		0-10µm		10µm-100µm	
	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu
1	5,0E-06		1,0E-05		5,0E-06		1,0E-05	
2	1		0		1		0	
3	1		0		1		0	
4	5,0E-05		1,0E-04		5,0E-05		1,0E-04	
5	1		0		1		0	
6	1		0		1		0	
7	3,0E-04		6,0E-04		3,0E-04		6,0E-04	
8	1		0		1		0	
9	1		0		1		0	

### 7.3 Abfallgebindegruppe 3

Bei der Abfallgebindegruppe 3 (metallische Abfälle in Stahlblechcontainern oder Betonbehältern) wurden keine Aktualisierungen vorgenommen. Die Freisetzungsteile für diese AGG sind in Tab. 7.4 dokumentiert.

**Tab. 7.4** Freisetzungsteile der AGG 3  
(keine Aktualisierungen verglichen mit der TSK 09)

<b>AGG3</b>									
BK	sonstige Aerosole				H-3				
	0-10µm		10µm-100µm		0-10µm		10µm-100µm		
	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09
1	5,0E-08		1,0E-07		5,0E-08				1,0E-07
2	2,0E-04		1,0E-07		1				0
3	4,0E-03		1,0E-07		1				0
4	5,0E-07		1,0E-06		5,0E-07				1,0E-06
5	2,0E-04		1,0E-06		1				0
6	4,0E-03		1,0E-06		1				0
7	3,0E-06		6,0E-06		3,0E-06				6,0E-06
8	2,0E-04		6,0E-06		1				0
9	4,0E-03		6,0E-06		1				0
BK	C-14				Halogene				
	0-10µm		10µm-100µm		0-10µm		10µm-100µm		
	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09
1	5,0E-08		1,0E-07		5,0E-08				1,0E-07
2	1		0		1				0
3	1		0		1				0
4	5,0E-07		1,0E-06		5,0E-07				1,0E-06
5	1		0		1				0
6	1		0		1				0
7	3,0E-06		6,0E-06		3,0E-06				6,0E-06
8	1		0		1				0
9	1		0		1				0

## 7.4 Abfallgebindegruppe 4

Bei der Abfallgebindegruppe 4 (kompaktierte Abfälle in Stahlblechcontainern oder Betonbehältern) wurden keine Aktualisierungen vorgenommen. Die Freisetzungsteile für diese AGG sind in Tab. 7.5 dokumentiert.

**Tab. 7.5** Freisetzungsteile der AGG 4  
(keine Aktualisierungen verglichen mit der TSK 09)

<b>AGG 4</b>									
BK	sonstige Aerosole				H-3				
	0-10µm		10µm-100µm		0-10µm		10µm-100µm		
	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09
1	5,0E-08		1,0E-07		5,0E-08		1,0E-07		
2	4,0E-04		1,0E-07		1		0		
3	1,6E-03		1,0E-07		1		0		
4	5,0E-07		1,0E-06		5,0E-07		1,0E-06		
5	4,0E-04		1,0E-06		1		0		
6	1,6E-03		1,0E-06		1		0		
7	3,0E-06		6,0E-06		3,0E-06		6,0E-06		
8	4,0E-04		6,0E-06		1		0		
9	1,6E-03		6,0E-06		1		0		
BK	C-14				Halogene				
	0-10µm		10µm-100µm		0-10µm		10µm-100µm		
	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09
1	5,0E-08		1,0E-07		5,0E-08		1,0E-07		
2	1		0		1		0		
3	1		0		1		0		
4	5,0E-07		1,0E-06		5,0E-07		1,0E-06		
5	1		0		1		0		
6	1		0		1		0		
7	3,0E-06		6,0E-06		3,0E-06		6,0E-06		
8	1		0		1		0		
9	1		0		1		0		

## 7.5 Abfallgebindegruppe 5 und Abfallgebindegruppe 7

Bei den AGG 5 und AGG 7 handelt es sich jeweils um zementfixierte Abfälle, die sich lediglich anhand ihrer Verpackung (Stahlblechcontainer bei AGG 5, Betonbehälter bei AGG 7) unterscheiden. Bei der Herleitung der FA der AGG 7 wird in /GRS 91b/ häufig auf die AGG 5 verwiesen.

Bei der AGG 5 hat sich bei der Übertragung der im Rahmen der TSK 09 angepassten mechanischen Freisetzungssanteile, dokumentiert in /GRS 13/, ein Übertragungsfehler für die großen Aerosole der BK 7 bis BK 9 ereignet. Bei sprödbrechenden Materialien wird demnach eine linear anwachsende kumulative Massengrößenverteilung für diese Art Abfall angenommen. Für den Größenbereich von 10 µm bis 100 µm ist der FA bei der rein mechanischen Belastung demnach 9mal größer als im Bereich von 0 bis 10 µm. Laut Tabelle 4.3 aus /GRS 13/ ist für den Größenbereich 10 µm bis 100 µm in der BK 7 bis BK 9 durch eine rein mechanische Belastung ein Freisetzungssanteil von  $2,7 \cdot 10^{-5}$  anzusetzen. In Tabelle 3.8 von /GRS 13/ bzw. in Tabelle 8.2 von /GRS 10/ wurde dann aber fälschlicherweise  $1,4 \cdot 10^{-5}$  angegeben.

Bei der BK 2 wird in /GRS 91b/, Anhang IV, Kapitel 2.2, für die AGG 5 folgendermaßen argumentiert: *„Bei Abfällen der Abfallgebindegruppe 5 sind die Freisetzungsmechanismen Pyrolyse und Verdampfen von Wasser relevant. Für Freisetzung durch Pyrolyse ergibt sich wie bei Abfallgebindegruppe 4 ein Volumenanteil von 4 % und für die Freisetzung durch Verdampfen von Wasser 12 % (100 °C Isotherme liegt ca. 3 cm von der Oberfläche). Mit den vom Freisetzungsmechanismus abhängigen Daten in /GRÜ 86/“* (entspricht /GRÜ 87c/) *„erhält man einen Freisetzungssanteil durch thermische Beaufschlagung von  $2,1E4$ .“* (Offensichtlicher Tippfehler, hier war von den Autoren  $2,1E-4$  gemeint) *„Die Freisetzung erfolgt im Größenintervall  $< 10 \mu\text{m}$ , so daß sich mit dem Freisetzungssanteil von  $6,5E-6$  durch die mechanische Vorbelastung in diesem Größenintervall von  $2,2E-4$  ergibt. ... Der Freisetzungssanteil für Halogene wird auf  $5E-1$  abgeschätzt, für C-14 ergibt sich bei der Abfallgebindegruppe 5 der gleiche Wert wie für sonstige Radionuklide (liegt als Karbonat vor), und für die H-3 Freisetzung erhält man unter Berücksichtigung der 100 °C – Isotherme bei einem verdampfbaren Wasseranteil von 50 % einen Freisetzungssanteil von  $6E-2$ . Für die Halogene und H-3 wird unterstellt, daß die Freisetzung im Größenintervall  $< 10 \mu\text{m}$  erfolgt.“*

Unklar bleibt bei dieser Formulierung, ob in den 12 % Volumenanteil über 100 °C auch die 4 % Volumenanteil über 300 °C enthalten sind. Für die folgenden Überlegungen wird

angenommen, dass dies nicht der Fall ist. Demnach wären insgesamt 16 % des Abfallproduktes einer Temperatur von mindestens 100 °C ausgesetzt. Für die 4 % des Abfallproduktes, in dem Pyrolyse stattfindet, kann laut /GRÜ 87a/, Anhang I, Kapitel 2.1 ein Freisetzunganteil von  $5 \cdot 10^{-3}$  für die sonstigen Nuklide angenommen werden. Bezogen auf den gesamten Abfall ergibt sich für die Freisetzung durch Pyrolyse somit ein FA von  $2 \cdot 10^{-4}$ . Die in /GRS 91b/ zitierte Literatur /GRÜ 87c/ liegt dem Auftragnehmer nicht vor. In /GRÜ 87a/, Anhang I, Kapitel 2.3 wird für die Freisetzung durch Verdampfung von Wasser im Abfallprodukt, der besonders relevant für zementierte Abfälle sei, „im Sinne einer konservativen Abschätzung“ ein FA der sonstigen Nuklide von  $5 \cdot 10^{-4}$  für Bereiche im Abfallprodukt über 100 °C angegeben. Mit den Zahlenwerten 12 % und  $5 \cdot 10^{-4}$  errechnet sich bezogen auf das Gesamt-Abfallgebände ein FA von  $6 \cdot 10^{-5}$  durch Mitverdampfen (auch als Mitrisss beim Verdampfen von Wasser bezeichnet). Durch die thermische Belastung ergibt sich somit für die BK 2 insgesamt ein FA von  $2,6 \cdot 10^{-4}$  ( $2 \cdot 10^{-4}$  durch Pyrolyse plus  $0,6 \cdot 10^{-4}$  durch Mitverdampfen) für die sonstigen Nuklide (kleine Aerosole) und damit ein leicht höherer Wert als in der TSK 09 dokumentiert. Dieser Beitrag wird auch durch den FA durch die mechanische Belastung für die kleinen Aerosole nicht geändert (mit  $3 \cdot 10^{-8}$  ist dieser um Größenordnungen niedriger).

Ab der BK 5 wird bei thermischer Belastung in /GRS 91b/, Anhang IV, für die sonstigen Nuklide der AGG 5 argumentiert, dass „das Abfallgebände so zerstört ist, daß alle organischen Bestandteile des Abfallproduktes ggf. pyrolysieren können. Es wird unterstellt, daß 50 % der Aktivität über Pyrolyse (Freisetzunganteil  $5E-3$ ) und 50 % über Mitverdampfen (Freisetzunganteil  $5E-4$ ) freigesetzt werden.“ Mit den angegebenen Zahlenwerten ergibt sich für die kleinen Aerosole ein FA von  $2,8 \cdot 10^{-3}$ : Dieser Wert ist also schon für die BK 5 und BK 6 für sonstige Nuklide und C-14 anzusetzen und nicht erst, wie in der TSK 09 dokumentiert, für die BK 8 und BK 9. Alle aktualisierten Werte für die AGG 5 sind in Tab. 7.6 dokumentiert.

Die AGG 7 wird in /GRS 91b/, Anhang IV, für die BK 1 bis 3 wie die AGG 6 behandelt. Dabei ist allerdings zu bedenken, dass sich die Abfälle zwar jeweils in Betonbehältern befinden, es sich aber bei der AGG 7 um zementierte Abfälle handelt, bei denen für C-14 angenommen wird, dass es als Karbonat vorliegt und dieses bezüglich des Freisetzungsverhaltens wie die sonstigen Nuklide behandelt werden kann. Dies scheint in den in der TSK 09 dokumentierten Werten nicht berücksichtigt worden zu sein. Die FA für C-14 der BK 3 sind hier also zu hoch und können auf den Wert 0 entsprechend der FA der sonstigen Nuklide gesetzt werden.

Tab. 7.6 Aktualisierte Freisetzungsanteile der AGG 5

<b>AGG 5</b>								
BK	sonstige Aerosole				H-3			
	0-10µm		10µm-100µm		0-10µm		10µm-100µm	
	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu
1	3,0E-08		2,7E-07		3,0E-08		2,7E-07	
2	<b>2,1E-04</b>	<b>2,6E-04</b>	2,7E-07		6,0E-02		2,7E-07	
3	5,0E-04		2,7E-07		5,0E-01		2,7E-07	
4	4,0E-07		3,6E-06		4,0E-07		3,6E-06	
5	<b>1,1E-03</b>	<b>2,8E-03</b>	3,6E-06		5,0E-01		3,6E-06	
6	<b>1,1E-03</b>	<b>2,8E-03</b>	3,6E-06		5,0E-01		3,6E-06	
7	3,0E-06		<b>1,4E-05</b>	<b>2,7E-05</b>	3,0E-06		<b>1,4E-05</b>	<b>2,7E-05</b>
8	2,8E-03		<b>1,4E-05</b>	<b>2,7E-05</b>	5,0E-01		<b>1,4E-05</b>	<b>2,7E-05</b>
9	2,8E-03		<b>1,4E-05</b>	<b>2,7E-05</b>	5,0E-01		<b>1,4E-05</b>	<b>2,7E-05</b>
	C-14				Halogene			
	0-10µm		10µm-100µm		0-10µm		10µm-100µm	
	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu
1	3,0E-08		2,7E-07		3,0E-08		2,7E-07	
2	<b>2,1E-04</b>	<b>2,6E-04</b>	2,7E-07		0,5		2,7E-07	
3	5,0E-04		2,7E-07		1		0	
4	4,0E-07		3,6E-06		4,0E-07		3,6E-06	
5	<b>1,1E-03</b>	<b>2,8E-03</b>	3,6E-06		1		0	
6	<b>1,1E-03</b>	<b>2,8E-03</b>	3,6E-06		1		0	
7	3,0E-06		<b>1,4E-05</b>	<b>2,7E-05</b>	3,0E-06		<b>1,4E-05</b>	<b>2,7E-05</b>
8	2,8E-03		<b>1,4E-05</b>	<b>2,7E-05</b>	1		0	
9	2,8E-03		<b>1,4E-05</b>	<b>2,7E-05</b>	1		0	

Für die BK 5 wird für die AGG 7 in /GRS 91b/, Anhang IV argumentiert: „Da sowohl bei mechanischer als auch bei thermischer Beaufschlagung vornehmlich der Behälterwerkstoff betroffen wird, wird für sonstige radioaktive Stoffe für alle Größenintervalle 50 % der Freisetzungsanteile der Abfallgebindegruppe 5 angesetzt.... Für Halogene und H 3 wird ein Freisetzungsanteil von 1 unterstellt, jeweils im Größenintervall < 10 µm. Für C 14 werden die Freisetzungsanteile der sonstigen radioaktiven Stoffe übernommen.“ Folgt man dieser Argumentation, dann ergeben sich mit den angepassten Werten der AGG 5 für sonstige Nuklide für die AGG 7 leicht höhere Werte für die FA der BK 5 für sonstige Nuklide und C-14. Es erscheint zudem nicht plausibel, einerseits für die sonstigen Nuklide die Freisetzungen bezogen auf die der AGG 5 zu halbieren, da ein besserer mechanischer und thermischer Schutz durch den Behältertyp vorausgesetzt werden

kann, und andererseits diesen Faktor auf die Freisetzungsteile von H-3 und Halogene nicht anzuwenden, sondern für diese Nuklide sogar höhere FA anzusetzen. Wendet man die Halbierung konsequent auf alle FA an, dann reduzieren sich die FA der AGG 7 bei der BK 5 für H-3 und Halogene für die kleinen Aerosole. Sobald durch die Aktualisierung im Bereich 0 bis 10 µm nicht mehr ein FA von 1 angenommen wird, müssen gegebenenfalls auch die FA für die großen Aerosole durch die mechanische Belastung berücksichtigt werden. Diese Werte wurden entsprechend angepasst.

Für die Belastungsklasse 6 wird in /GRS 91b/, Anhang IV dieselbe Argumentation wie für die BK 5 bei den sonstigen Nukliden angeführt, wonach die halben FA der AGG 5 Verwendung finden können. Des Weiteren wird angegeben, für Halogene, C-14 und H-3 werde ein FA von 1 unterstellt. Da es sich aber um zementierte Abfälle handelt, ist an dieser Stelle nicht nachvollziehbar, warum C-14 nicht nach wie vor als Karbonat und damit bezüglich des Freisetzungsverhaltens wie die sonstigen Nuklide behandelt werden sollte. Bezüglich H-3 wurde zudem für AGG 5 argumentiert, dass lediglich 50 % des Wassers als verdampfbar angenommen würden (unter BK 2 in /GRS 91b/, Anhang IV erwähnt), weswegen der FA für H-3 maximal mit 0,5 selbst bei BK 9 angegeben wurde. Da es sich bei der AGG 7 um das gleiche Abfallprodukt wie bei der AGG 5 handelt, können diese Annahmen auch zur Bestimmung der FA der AGG 7 herangezogen werden. Somit ergeben sich Anpassungen bei der BK 6 hin zu höheren Werten bei den sonstigen Nukliden (wegen Korrekturen bei der AGG 5) sowie hin zu kleineren Werten bei H-3, C-14 und Halogenen (bei kleinen Aerosolen, die Erhöhung bei den großen Aerosolen ist im Vergleich zu den Änderungen bei den kleinen Aerosolen vernachlässigbar).

Auch für die BK 8 und BK 9 wird in /GRS 91b/, Anhang IV bei der AGG 7 dieselbe Argumentation für die sonstigen Nuklide herangeführt, wie bei den BK 5 und BK 6. Die FA für H-3, C-14 und Halogene, kleine Aerosole werden jeweils wieder auf 1 gesetzt. Wie im vorherigen Abschnitt bereits erwähnt, können hier aber wieder C-14 wie die sonstigen Nuklide behandelt und H-3 sowie Halogene mit der Hälfte der entsprechenden Werte der AGG 5 veranschlagt werden.

Tab. 7.7 Aktualisierte Freisetzungsanteile der AGG 7

**AGG7**

BK	sonstige Aerosole				H-3			
	0-10µm		10µm-100µm		0-10µm		10µm-100µm	
	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu
1	0		0,0E+00		0,0E+00		0,00E+00	
2	0		0,0E+00		0		0	
3	0		0,0E+00		0		0	
4	2,0E-07		1,8E-06		2,0E-07		1,8E-06	
5	<b>5,5E-04</b>	<b>1,4E-03</b>	1,8E-06		<b>1</b>	<b>2,5E-01</b>	<b>0</b>	<b>1,8E-06</b>
6	<b>5,5E-04</b>	<b>1,4E-03</b>	1,8E-06		<b>1</b>	<b>2,5E-01</b>	<b>0</b>	<b>1,8E-06</b>
7	1,5E-06		<b>6,8E-06</b>	<b>1,4E-05</b>	1,5E-06		<b>6,8E-06</b>	<b>1,4E-05</b>
8	1,4E-03		<b>6,8E-06</b>	<b>1,4E-05</b>	1	<b>2,5E-01</b>	<b>0</b>	<b>1,4E-05</b>
9	1,4E-03		<b>6,8E-06</b>	<b>1,4E-05</b>	1	<b>2,5E-01</b>	<b>0</b>	<b>1,4E-05</b>

	C-14				Halogene			
	0-10µm		10µm-100µm		0-10µm		10µm-100µm	
	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu
1	0		0		0		0	
2	0		0		0		0	
3	<b>1</b>	<b>0</b>	0		<b>1</b>	<b>5,0E-01</b>	0	
4	2,0E-07		1,8E-06		2,0E-07		1,8E-06	
5	<b>5,50E-04</b>	<b>1,4E-03</b>	1,8E-06		<b>1</b>	<b>5,0E-01</b>	<b>0</b>	<b>1,8E-06</b>
6	1	<b>1,4E-03</b>	<b>0</b>	<b>1,8E-06</b>	<b>1</b>	<b>5,0E-01</b>	<b>0</b>	<b>1,8E-06</b>
7	1,5E-06		<b>6,8E-06</b>	<b>1,4E-05</b>	1,5E-06		<b>6,8E-06</b>	<b>1,4E-05</b>
8	1	<b>1,4E-03</b>	0	<b>1,4E-05</b>	<b>1</b>	<b>5,0E-01</b>	<b>0</b>	<b>1,4E-05</b>
9	1	<b>1,4E-03</b>	0	<b>1,4E-05</b>	<b>1</b>	<b>5,0E-01</b>	<b>0</b>	<b>1,4E-05</b>

## 7.6 Abfallgebindegruppe 8

Bei der Belastungsklasse 8 wird in /GRS 91b/ für die AGG 8 folgendermaßen argumentiert:

*„... daß die bei thermischer Beaufschlagung aus dem Abfallprodukt austretenden radioaktiven Stoffe infolge des unterstellten Lecks im Deckelbereich aus dem Abfallgebinde ausströmen. Ein Entflammen des Abfallproduktes oder ein Ausfließen geschmolzener Bestandteile ist infolge der angenommenen geringen Leckgröße nicht zu erwarten. Aufgrund der guten Wärmeleitfähigkeit des Behälterwerkstoffs wird sich im Abfallprodukt ein Temperaturfeld ausbilden, daß in etwa dem der Abfallgebindegruppe 5 in der Belastungsklasse 2 entspricht. Da die Freisetzungsmechanismen (Pyrolyse und Freisetzung durch Verdampfen von Wasser) auch in etwa ähnlich sein werden, werden die Freisetzungssanteile der Abfallgebindegruppe 5 in Belastungsklasse 2 übernommen.“* D.h. für den thermischen Anteil der Freisetzungen wird der Wert von AGG 5, BK 2 übernommen, der wie in Kapitel 7.5 erläutert auf  $2,6 \cdot 10^{-4}$  aktualisiert wurde. Bei der Übertragung der FA, AGG 5, BK 2 ist zu beachten, dass es sich bei der AGG 5 um zementfixierte Abfälle handelt, bei der AGG 8 eine solche Konditionierung aber nicht vorausgesetzt werden kann. Für C-14 können daher nicht die FA der sonstigen Nuklide verwendet werden, wie bei der AGG 5, sondern es werden bei der Aktualisierung die der Halogene verwendet. Für die FA der BK 8 wird deshalb der Wert von  $2,2 \cdot 10^{-4}$  auf 0,5 angepasst, entsprechend dem Wert für Halogene der AGG 5, BK 2. Der in der TSK 09 angegebene FA für C-14, BK 8 ist somit um rund 3 Größenordnungen zu niedrig. Für die sonstigen Nuklide folgt die Aktualisierung des BK 8 Wertes der AGG 8 der Aktualisierung des AGG 5 BK 2 Freisetzungssanteils für kleine Aerosole.

Für H-3 scheint es in der TSK 09 wiederum einen Übertragungsfehler gegeben zu haben, da hier für H-3 die FA der AGG 8, BK 2 statt die der AGG 5, BK 2 übernommen wurden.

Für die BK 9 wird in /GRS 91b/ für H-3, C-14 und Halogene angegeben, es *„werden die Freisetzungssanteile der Belastungsklasse 6 übernommen.“* Da es keinen Sinn macht, sich bei der BK 8 auf die FA der AGG 5 zu beziehen, die höher sind als die der BK 6 der AGG 8, kann hier eigentlich auch wieder nur der Bezug zur AGG 5 gemeint gewesen sein. Bei den sonstigen Nukliden, C-14 und Halogenen entsprechen die in der TSK 09 angegebenen Werte der BK 9 der AGG 8 bereits denen der AGG 5, BK 6.

Für H-3 wurde in der TSK 09 bei der BK 9 allerdings der Wert der BK 6 der AGG 8 angegeben. Der unter „neu“ geführte Wert für H-3, BK 9 aus Tab. 7.8 entspricht dem AGG 5 BK 6 Wert für H-3. Die Freisetzungsteile für H-3 bei den Belastungsklassen 8 und 9 wurden in der TSK 09, Tabelle 8.3 also um rund 5 bzw. rund 2 Größenordnungen zu niedrig zur dahinterliegenden Argumentation angegeben.

**Tab. 7.8** Aktualisierte Freisetzungsteile der AGG 8

**AGG 8**

BK	sonstige Aerosole				H-3			
	0-10µm		10µm-100µm		0-10µm		10µm-100µm	
	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu
1	0		0		0		0	
2	1,1E-07		0		7,30E-07		0	
3	2,0E-05		0		4,00E-03		0	
4	0		0		0		0	
5	1,1E-07		0		7,30E-07		0	
6	2,0E-05		0		4,00E-03		0	
7	3,0E-08		0		3,00E-08		0	
8	<b>2,2E-04</b>	<b>2,6E-04</b>	0		<b>7,30E-07</b>	<b>6,0E-02</b>	0	
9	4,0E-03		0		<b>4,00E-03</b>	<b>0,5</b>	0	

BK	C-14				Halogene			
	0-10µm		10µm-100µm		0-10µm		10µm-100µm	
	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu	TSK 09	neu
1	0		0		0		0	
2	1,60E-04		0		1,60E-04		0	
3	6,00E-03		0		4,00E-02		0	
4	0		0		0		0	
5	1,60E-04		0		1,60E-04		0	
6	6,00E-03		0		4,00E-02		0	
7	3,0E-08		0		3,0E-08		0	
8	<b>2,20E-04</b>	<b>0,5</b>	0		0,5		0	
9	1		0		1		0	

## 8 Fazit und Ausblick

Für die Simulation der Abfalltemperatur aus Brandbeanspruchung wurden innerhalb der TSK insgesamt auch nach heutigem Stand des Wissens konservative Annahmen getroffen. Allerdings deckt die Maximaltemperatur von 800 °C grundsätzlich Freibrände ab, nicht aber raumbrandähnliche Randbedingungen. Insbesondere Tunnelbrände können auf Grund der nicht auszuschließenden schnellen Temperaturanstiege, hohen Maximaltemperaturen, allseitigen Wärmeeinwirkungen und erschwerten Löschmaßnahmen zu Brandverläufen führen, die die Annahmen der TSK überschreiten. Das Auftreten heftiger Tunnelbrände nach Transportunfällen muss über die Wahl des Verkehrsweges bzw. probabilistischer Betrachtungen hinreichend ausgeschlossen werden. Die Wärmeübergangsbedingungen und thermischen Eigenschaften der Transportbehälter wurden insgesamt konservativ gewählt. Für Behälter aus Beton, insbesondere Schwerbeton, wurde allerdings das Phänomen möglicher Betonabplatzungen bei Brandbeanspruchung nicht berücksichtigt.

Wie sich bei der durchgeführten Literaturrecherche zu Freisetzunganteilen gezeigt hat, ist die (experimentelle) Datenlage zu FA im thermischen Lastfall recht umfassend. Wegen der Vielzahl an unterschiedlichen Nukliden, chemischen Verbindungen, Konditionierungsarten, Abfallgebinden und möglichen thermischen Belastungen decken diese experimentellen Daten dennoch nur einen kleinen Bruchteil der möglichen relevanten Kombinationen ab. Um für diese relevanten Kombinationen thermische Freisetzunganteile zu bestimmen, werden daher Modelle herangezogen, in die zahlreiche Annahmen, insbesondere zu den dominierenden Freisetzungsmechanismen der einzelnen Nuklide, eingehen.

Üblicherweise werden nur abgeleitete (modellierte) Größen publiziert und nur selten die ursprünglichen experimentellen Daten. Da noch dazu unterschiedliche Vorgehensweisen bei der Weiterverarbeitung der experimentellen Daten bis zum Gesamt-FA eines Abfallgebindes verfolgt werden, wird eine Interpretation der Daten im Vergleich zu den bisher in den TSK verwendeten FA erschwert. Wie bereits im Fazit zur Einteilung von Nukliden in Flüchtigkeitsklassen erwähnt, erscheint der TSK Ansatz aber für das in Deutschland vorliegende Abfallspektrum als die belastbarere Gruppierung für die Zuordnung von thermischen Freisetzunganteilen im Vergleich zum NDA-Ansatz.

Eine experimentelle Datenlage für kombiniert mechanische und thermische Belastungen konnte bisher nicht recherchiert werden. Hier stellt der TSK-Ansatz mit den verschiedenen Belastungsklassen nach wie vor den Stand der Technik dar. Im Rahmen dieses Vorhabens wurden jedoch die bei der Überprüfung dieser Freisetzungsteile festgestellten Übertragungsfehler und Inkonsistenzen durch eine Aktualisierung der Tabellenwerte behoben. Dadurch ergeben sich in den meisten Fällen kleinere Änderungen bis hin zu einem Faktor 2, in einigen Ausnahmen jedoch bis zu mehreren Größenordnungen. Bei der Verwendung dieser Freisetzungsteile sollte jedoch beachtet werden, dass die Ableitung der Werte für die nach damaligem Stand vorgesehenen Abfallbehälter vorgenommen wurde. Bei quaderförmigen Gebinden wurde beispielsweise bei hohen mechanischen Belastungen die Zerstörung des Containers angenommen. Zurzeit gehen jedoch die Bestrebungen der Abfallverursacher in Richtung höherer Qualifizierung der Abfallbehälter als störfallfeste Verpackungen. Ein anderes Beispiel ist das Einstellen von MOSAIK-Behältern (AGG 8) in Betoncontainer. Für solche Behälter sollten die hier dokumentierten Tabellenwerte überdacht werden. Den verbesserten Rückhalteeigenschaften dieser Gebindetypen könnte durch die Definition neuer Abfallgebindergruppen Rechnung getragen werden, um unnötige Konservativitäten abzubauen.

## Literaturverzeichnis

- /BAR 00/ Barlow, S. V., Turner, G. E., White, I. F.: Nirex Research on the Performance of Packaged Wasteforms under Fire Conditions 1988-1999. Nirex, Nirex Report, N/020, November 2000.
- /BAR 03/ Barlow, S. V., Turner, G. E., Fry, C. J., White, I. F.: Modelling of unshielded ILW packages under fire conditions. Hrsg.: UK Nirex Ltd, Nirex Report, N/073, 47 S., March 2003.
- /BAU 88/ Baum, H. R., McCaffrey, B. J.: Fire Induced Flow Field - Theory and Experiment. In: International Association for Fire Safety Science (Hrsg.): Fire Safety Science - Proceedings of the Second International Symposium. S. 129–148: New York, 1988.
- /BDG 10/ Bundesverband des Deutschen Gießerei-Industrie, B. (Hrsg.): Gusseisen mit Kugelgraphit, Herstellung - Eigenschaften - Anwendung. 104 S.: Düsseldorf, Juni 2010.
- /BLO 09/ Blofeld, J.: Brandkurven für den baulichen Brandschutz von Strassentunneln. Berichte der BAST, B 67, 85 s, ISBN 978-3-86509-935-8, Wirtschaftsverlag: Bergisch Gladbach, 2009.
- /BMU 12/ Allgemeine Verwaltungsvorschrift zu § 47 der Strahlenschutzverordnung (Ermittlung der Strahlenexposition durch die Ableitung radioaktiver Stoffe aus Anlagen oder Einrichtungen) in der Fassung vom 28. August 2012 (Bundesanzeiger), zuletzt geändert 1. Dezember 2012 (BAnz. 2012 BAnz AT 05.09.2012 B1 S. 1–74).
- /BOE 04/ Boetsch, W. U., Gründler, D., Thiel, J.: RELEASE OF RADIOACTIVITY IN FIRE ACCIDENTS. In: Waste Management Symposium (Hrsg.): Online Proceedings of the Waste Management Symposium 2004, HLW, LLW, mixed, hazardous wastes and environmental restoration - working towards a cleaner environment. Waste Management 2004 Symposium, Tucson, AZ, February 29 - March 4, 2004.

- /BOE 05/ Boetsch, W. U., Gründler, D., Thiel, J.: Thermal Behavior of Radwaste - Experimental Studies. In: Waste Management Symposium (Hrsg.): Online Proceedings of the Waste Management Symposium 2005, Global Accomplishments in Environmental and Radioactive Waste Management: Cost Effectiveness, Risk Reduction and Technology Implementation. 2005 Waste Management Symposium, Tucson, AZ, February 27 - March 3, 2005.
- /BOE 06/ Boetsch, W. U., Gründler, D., Thiel, J.: Identification of release rates as a consequence of thermal impact on RADWASTE - Experimental Studies. In: Waste Management Symposium (Hrsg.): Online Proceedings of the Waste Management Symposium 2006, Global Accomplishments in Environmental and Radioactive Waste Management: Education and Opportunity for the Next Generation of Waste Management Professionals. 2006 Waste Management Symposium, Tucson, AZ, February 26 - March 2, 2006.
- /DIC 04/ Dickinson, S., Mignanelli, M. A., Newland, M. S.: Review of Volatility and Solubility Categorisations, A report produced for United Kingdom Nirex Limited. AEA Technology, AEA/R/NS/0710 Issue 2, 2004.
- /DIN 77/ DIN e.V.: Brandverhalten von Baustoffen und Bauteilen; Bauteile, Begriffe, Anforderungen und Prüfungen. DIN 4102-2:1977-09, Beuth Verlag, 1977.
- /DIN 10a/ DIN: Eurocode 1: Einwirkungen auf Tragwerke - Teil 1-2: Allgemeine Einwirkungen - Brandeinwirkungen auf Tragwerke; Deutsche Fassung EN 1991-1-2:2002 + AC:2009. DIN EN 1991-1-2:2010-12:2010, Beuth, 2010.
- /DIN 10b/ DIN: Eurocode 3: Bemessung und Konstruktion von Stahlbauten - Teil 1-2: Allgemeine Regeln - Tragwerksbemessung für den Brandfall; Deutsche Fassung EN 1993-1-2:2005 + AC:2009. DIN EN 1993-1-2:2010-12:2010, Beuth, 2010.
- /EPP 61/ Epprecht, W.: Werkstoffkunde der Kerntechnik – Eine Einführung in die Eigenschaften und Probleme der Kernreaktorwerkstoffe. Birkhäuser Verlag: Basel und Stuttgart, 1961.

- /FRY 10/ Fry, C. J.: Release Fractions from Waste Packages Exposed to Fire, Prepared for NDA. Serco, SERCO/TCS/6663/01 Issue 1, 39 S., November 2010.
- /GRS 91a/ Lange, F., Gründler, D., Schwarz, G.: Transportstudie Konrad: Sicherheitsanalyse des Transports radioaktive Abfälle zum Endlager Konrad. GRS-84, 164 S., ISBN 3-923875-34-7, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, Juli 1991.
- /GRS 91b/ Schwarz, G., Fett, H.-J., Lange, F., Philipps, F., Nitsche, F., Gründler, D., Philip, G.: Transportstudie Konrad: Sicherheitsanalyse des Transports radioaktiver Abfälle zum Endlager Konrad, (Ergänzungsband), Auftragsnummer 84 845. Gesellschaft für Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-A-1755/II, 299 S., Juni 1991.
- /GRS 10/ Sentuc, F.-N., Brücher, W., Büttner, U., Fett, H.-J., Lange, F., Martens, R., Schmitz, B. M., Schwarz, G.: Transportstudie Konrad 2009, Sicherheitsanalyse zur Beförderung radioaktiver Abfälle zum Endlager Konrad. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-256, 190 S., ISBN 978-3-939355-31-1: Köln, 2010.
- /GRS 13/ Brücher, W., Büttner, U., Eich, P., Martens, R., Richter, C., Schrödl, E., Sentuc, F.-N., Thielen, H.: Vertiefung und Ergänzung ausgewählter Aspekte der Abfalltransportrisikoanalyse für die Standortregion der Schachtanlage Konrad, Abschlussbericht zum Vorhaben 3607R02600 Arbeitspaket 1 Teilaufgaben 11-14. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-A-3684, 162 S.: Köln, Februar 2013.
- /GRÜ 84/ Gründler, D.: Systemanalyse Konrad, Teil 2, Bestimmung störfallbedingter Aktivitätsfreisetzung auf der Basis von Abfalldaten, Auftragsnummer 41 333. Hrsg.: Gesellschaft für Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-A-1159, 123 S., November 1984.
- /GRÜ 87a/ Gründler, D.: Systemanalyse Konrad, Teil 3, Bestimmung störfallbedingter Aktivitätsfreisetzung, Auftragsnummer 41372. Hrsg.: Gesellschaft für Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-A-1389, 138 S., November 1987.

- /GRÜ 87b/ Gründler, D., Peiffer, F.: Systemanalyse Konrad, Teil 3, Temperaturfelder in ausgewählten Konrad Abfallgebänden, TAC2D Output, Auftragsnummer 41373. Gesellschaft für Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-A-1348, 73 S., Juni 1987.
- /GRÜ 87c/ Gründler, D., Brenig, H. W., Wurtinger, W.: Release of radioactivity out of waste packages under thermal stress. In: First, M. W. (Hrsg.): Proceedings of the 19th DOE/NRC nuclear air cleaning conference, Seattle, WA (USA); 18-21 Aug 1986. USDOE Assistant Secretary for Environment, Safety, and Health, Washington, DC, Nuclear Regulatory Commission, Washington, DC (USA), Harvard Univ., Boston, MA (USA). Harvard Air Cleaning Lab, NUREG/CP--0086-VOL.1, 1987.
- /GRÜ 96/ Gründler, D., Linden, J.: Dreidimensionale Aufheizrechnungen zur Ableitung von Wärmeübertragungsparametern im Rahmen der Behälterqualifizierung. Hrsg.: Institut für Sicherheitstechnologie (ISTec) GmbH, ISTec-A-198, 80 S., November 1996.
- /HAR 01/ Harris, A. W., Bush, R. P.: Recommended Release Fractions for Intermediate and Low Level Waste Packages, A report produced for United Kingdom Nirex Limited. AEA Technology, AEAT/R/NT/0288, 2001.
- /HOW 12/ Howarth, A.: Estimation of Uncertainty in Release Fractions for Accident Performance, A report prepared for and on behalf of NDA. National Nuclear Laboratory, NNL (12) 12011 Issue 2, 195 S., 2012.
- /IAEA 90/ International Atomic Energy Agency (IAEA) (Hrsg.): Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material, 1985 Edition, As Amended 1990. IAEA Safety Series, Nr. 6, 128 S.: Vienna, Austria, November 1990.
- /IAEA 12/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material 2012 Edition, Specific Safety Requirements. IAEA Safety Standards Series, No. SSR-6, 168 S., ISBN 978-92-0-133310-0: Vienna, 2012.
- /ISO 02/ International Organization for Standardization: Fire-resistance tests - Elements of building construction. ISO 834:2002:2002-10, 2002.

- /KUG 17/ Kugel, K., Möller, K. (Hrsg.): Anforderungen an endzulagernde radioaktive Abfälle (Endlagerungsbedingungen, Stand Februar 2017), Endlager Konrad. Bundesamt für Strahlenschutz (BfS), 102 S.: Salzgitter, 10. Februar 2017.
- /LAN 03/ Lange, F., Martens, R., Hörmann, E., Koch, W., Nolte, O., Gray, I., Ringot, C., Carr, N., van Velzen, L., Hughes, J. S.: Improvement of the Radiological and Experimental Basis to Further Develop the Requirements of the IAEA Transport Regulations for LSA/SCO Materials, Final Report. Commission of the European Communities, Customer's Contract No: 4.1020/D/01-001, March 2003.
- /LAN 05/ Lange, F., Martens, R., Hörmann, E., Koch, W., Nolte, O.: Analyse der Sicherheit bei der Beförderung und Lagerung radioaktiver Stoffe, Quantifizierung der Freisetzung bei Transport- und Handhabungsunfällen, Auftragsnummer 854600. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-A-3265: Köln, Juli 2005.
- /LAN 07/ Lange, F., Fett, H.-J., Hörmann, E., Koch, W., Martens, R., Nolte, O.: Assessment, Evaluation and further Development of the Safe Transport of Radioactive Material, Final Report of the Research Project SR 2479 (Working Area 4), Methods and Tools Applied for Radioactive Material Transport Risk Analysis Purposes. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-A-3378/IV, 347 S.: Köln, June 2007.
- /MIG 00a/ Mignanelli, M. A.: Categorisation of radionuclides into solubility groups for release calculations. AEA Technology, AEA Technology Report, AEAT/R/NT/307 Issue 1, Dezember 2000.
- /MIG 00b/ Mignanelli, M. A.: Categorisation of radionuclides into volatility groups for release calculations. AEA Technology, AEA Technology Report, AEAT/R/NT/306 Issue 1, Dezember 2000.
- /NDA 10/ Nuclear Decommissioning Authority (Hrsg.): Geological Disposal, Waste package accident performance. NDA Report, NDA/RWMD/032, 105 S., December 2010.

- /OTR 11/ Otremba, F., Balke, C., Butz, M., Zur, M.: Ermittlung von Wärmeübergangszahlen eines sich im Feuer befindlichen Tanks. Technische Sicherheit Band 1, 7/8: Düsseldorf, 2011.
- /PIE 84/ Piefke, F., Kriegel, H.: Rechnungen zur Aufheizung verschiedener Abfallgebinde durch Feuereinwirkung, Bericht im Auftrag der PTB. Braunschweig, September 1984.
- /QUI 06/ Quintiere, J.G.: Fundamentals of fire phenomena. 439 S., ISBN 978-0-470-09113-5, Wiley: Chichester, März 2006.
- /RIC 11/ Richter, E.: Baulicher Brandschutz bei Eisenbahntunneln mit einschaligem Tübbingausbau. In: Deutsche Gesellschaft für Geotechnik (DGGT): Taschenbuch für den Tunnelbau 2011. ISBN 978-3867970877, VGE Verlag: Essen, 2011.
- /RIC 17/ Richter, E.: persönliche Mitteilung. An Forell, B., Juli 2017.
- /SSK 99/ Strahlenschutzkommission (SSK): Wissenschaftliche Begründung zur Anpassung des Kapitels 4 "Berechnung der Strahlenexposition" der Störfallberechnungsgrundlagen für Kernkraftwerke mit Druckwasserreaktor, Stellungnahme der Strahlenschutzkommission, Im Anhang: Neufassung des Kapitels 4 "Berechnung der Strahlenexposition" der Störfallberechnungsgrundlagen für die Leitlinien zur Beurteilung der Auslegung von Kernkraftwerken mit DWR gemäß § 28 Abs. 3 StrlSchV. Berichte der Strahlenschutzkommission (SSK) des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Heft 13, ISBN 3-437-21508-6, Urban und Fischer: München, 1999.
- /STE 10/ Steyer, S. (Hrsg.): Endlager Konrad, Produktkontrolle radioaktiver Abfälle, radiologische Aspekte - Endlager Konrad –, Stand: Oktober 2010. Bundesamt für Strahlenschutz (BfS), SE-IB-30/08-REV-1, 178 S.: Salzgitter, Oktober 2010.
- /TUR 00a/ Turner, G. E., Johnson, L. H., Miller, E., Webb, K. J., Hall, R., Long, S., White, I. F.: Properties and Performance of Intermediate level Wasteforms at Elevated Temperatures. Nirex, Nirex Report, N/021, November 2000.

/TUR 00b/ Turner, F. M.: Recommended Release Fractions for Standard Nirex Packages, Input Data for the Analysis of Fire and Impact Hazards Within Transport and Repository Safety Assessments. UK Nirex Ltd, 23 S., December 2000.

/VFDB 13/ Vereinigung zur Förderung des Deutschen Brandschutzes e.V. (vfdb) (Hrsg.): Leitfaden Ingenieurmethoden im Brandschutz. Technischer Bericht vfdb, TB 04-01, 419 S., November 2013.



## Abkürzungsverzeichnis

AED	Aerodynamischer Equivalentdurchmesser
ABK	Abfallbehälterklasse
AGG	Abfallgebindegruppe
APG	Abfallproduktgruppe
BerQATrans	Programm zur Berechnung von Q- und A-Werten für den Transport
BfS	Bundesamt für Strahlenschutz
BK	Belastungsklasse
BMUB	Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit
BRACSS	Basic Radionuclide vAlue Calculation SyStem
FA	Freisetzunganteil
GRS	Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH
IAEO	Internationale Atomenergieorganisation
IRSN	Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (Frankreich)
JNES	Japan Nuclear Energy Safety Organisation (Japan)
LSA	Low Specific Activity
NDA	National Decommissioning Agency (UK)
NRA	Nuclear Regulation Authority (Japan)
PHE	Public Health England (UK)

SCO	Surface Contaminated Object
SEAL	System for calculating Exemption and $A_1$ and $A_2$ Limits
TSK	Transportstudie Konrad
TRANSSC	Transport Safety Standards Committee der IAEO
WNTI	World Nuclear Transport Institute

## Abbildungsverzeichnis

Abb. 1.1	Bedeutung des Freisetzungsverhaltens für die Konsequenzenanalyse: Der Freisetzungsanteil geht als linearer Faktor in die Berechnung der Strahlenexposition ein (siehe auch /BMU 12/, /SSK 99/). .....	2
Abb. 2.1	Temperaturentwicklung über die Mittelachse der Flamme (ständige Flamme bzw. intermittierende Flamme) und des Rauchgasplumes /VFDB 13/.....	14
Abb. 2.2	Modelltank, der den Gasflammen exponiert ist /OTR 11/.....	14
Abb. 2.3	Zusammenhang zwischen dem Strahlungsverlust $X_r$ von Flammen von Poolbränden und steigendem Pooldurchmesser $D$ (aus /QUI 06/ S. 316).....	16
Abb. 2.4	Vergleich der Flammentemperaturen von großskaligen Bränden mit der aus kleinskaligen Bränden abgeleiteten Korrelation (durchgezogene Linie). Die Höhe der kontinuierlichen Flamme gilt bis zu einem Wert von 0,8 (aus /BAU 88/, S. 141).....	17
Abb. 2.5	Schematischer Vergleich der Lufteinmischung in einer Feuerplume bei einem Freibrand (links) und einem Raumbrand (rechts).....	17
Abb. 2.6	Verschiedene Temperatur-Zeit-Kurven für Tunnelbrände im Vergleich zur Einheitstemperaturzeitkurve (ETK) für Hochbauten /BLO 09/ und den in /GRÜ 87a/ verwendeten Temperatur-Zeit- Verläufen .....	18
Abb. 2.7	In verschiedenen Regelwerken zu Grunde liegende Temperaturleitfähigkeiten für Normalbeton im Vergleich zu den Annahmen aus /PIE 84/.....	25
Abb. 3.1	Elementspezifische Freisetzunganteile für einen Konrad Typ 1 Container. Quelle: /BOE 06/ .....	34
Abb. 4.1	Elementspezifische FA für unterschiedliche Trägermaterialien (Quelle: /BOE 05/) .....	42



## Tabellenverzeichnis

Tab. 1.1	Nummerierung der Belastungsklassen in Abhängigkeit von mechanischer und thermischer Belastung .....	3
Tab. 1.2	Tabelle 1 aus Anhang 1 der Endlagerungsbedingungen Konrad /KUG 17/: Behältergrundtypen für die Verpackung von radioaktiven Abfällen mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung .....	6
Tab. 1.3	Definition der TSK Abfallgebindegruppen .....	8
Tab. 2.1	Temperaturzunahme innerhalb der ersten 5 min bei den verschiedenen Brandkurven /BLO 09/ .....	20
Tab. 2.2	In /PIE 84/ angegebene thermische Parameter der simulierten Materialien .....	24
Tab. 3.1	Einteilung in Flüchtigkeitsklassen nach /NDA 10/. Für die blauen, unterstrichenen Nuklide liegen der NDA experimentell bestimmte Freisetzungssanteile vor.....	35
Tab. 4.1	Temperaturabhängige FA für ‚Encapsulated Floc and Sludge Wasteforms‘ aus /FRY 10/ .....	39
Tab. 4.2	Temperaturabhängige FA für 'Encapsulated Hulls and Similar Wasteforms' aus /FRY 10/ .....	39
Tab. 4.3	Temperaturabhängige FA für 'Compacted Magnox Sludge Wasteform' aus /FRY 10/.....	40
Tab. 4.4	Temperaturabhängige FA für 'Cemented Ion Exchange Wasteform' aus /FRY 10/.....	40
Tab. 4.5	Temperaturabhängige FA für 'Ion Exchanger Wastes in Resin Matrix' aus /FRY 10/.....	40
Tab. 4.6	Temperaturabhängige FA für 'UngROUTED Metal Wastes' aus /FRY 10/ ....	40
Tab. 4.7	Temperaturabhängige FA für 'Compacted LLW' aus /FRY 10/.....	41
Tab. 5.1	Abhängigkeit von Flüchtigkeit sowie Abfall- und Gebindetyp /FRY 10/.....	43
Tab. 7.1	Freisetzungssanteile der AGG 1 (keine Aktualisierungen verglichen mit der TSK 09) .....	50
Tab. 7.2	Aktualisierte Freisetzungssanteile der AGG 6.....	51
Tab. 7.3	Aktualisierte Freisetzungssanteile der AGG 2.....	53

Tab. 7.4	Freisetzungsanteile der AGG 3 (keine Aktualisierungen verglichen mit der TSK 09) .....	54
Tab. 7.5	Freisetzungsanteile der AGG 4 (keine Aktualisierungen verglichen mit der TSK 09) .....	55
Tab. 7.6	Aktualisierte Freisetzungsanteile der AGG 5.....	58
Tab. 7.7	Aktualisierte Freisetzungsanteile der AGG 7.....	60
Tab. 7.8	Aktualisierte Freisetzungsanteile der AGG 8.....	62



**Gesellschaft für Anlagen-  
und 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](http://www.grs.de)