

**Modellierung der
brandbedingten
Nuklidfreisetzung aus
Abfallgebinden**

Modellierung der brandbedingten Nuklidfreisetzung aus Abfallgebinden

Untersuchungen zum aktuellen Stand von Wissenschaft und Technik zur Bewertung des Sicherheitsniveaus bei der Beförderung radioaktiver Stoffe, sowie Weiterentwicklung von Modellsystemen zu grundlegenden Sicherheitsparametern der Transportvorschriften

Abschlussbericht zu Arbeitspaket 8

Burkhard Forell
Walter Klein-Hessling
Cornelia Richter

Juni 2023

Anmerkung:

Das diesem Bericht zugrunde liegende Forschungsvorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz, nukleare Sicherheit und Verbraucherschutz (BMUV) unter dem Förderkennzeichen 4720E03300 durchgeführt.

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

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

Deskriptoren

Abfallgebinde, Belastungsklassen, Brandwirkung, Freisetzungsanteile, thermische Freisetzung

Kurzfassung

Dieser Bericht dokumentiert die über mehrere Jahrzehnte reichenden Arbeiten der GRS zur Bestimmung von Freisetzungsteilen aus Abfallgebinden und stellt aktuelle Methoden für Temperaturfeldberechnungen in Gebinden vor.

Im Jahr 1984 wurden von Gründler et al. in der Systemanalyse Konrad vier charakteristische Freisetzungsmechanismen (Verbrennung, Pyrolyse, Sublimation und Wasserverdampfung/Mitris) und deren spezifische Freisetzungsteile definiert. Diese wurden später in der Systemanalyse Konrad des Jahres 1987 teilweise korrigiert. Sie decken die Freisetzung radioaktiver Aerosole bei einem spezifizierten Brand von 60 min Dauer bei 800 °C („PTB-Kurve“) ab. Die Abschätzung dieser Freisetzungsteile geht auf experimentelle Untersuchungen zwischen 1973 und 1984 zurück. Sie erfolgte unter der Prämisse, alle Unsicherheiten in den Annahmen eines Brandes konservativ abzudecken.

Zu Beginn der Recherche wurden die Freisetzungsteile anhand der Zuordnung zu Behälterklassen und Abfallproduktgruppen aus dem Jahr 1984 rekonstruiert. Ab 1987 wurden Behälterklassen und Abfallproduktgruppen in Abfallgebindegruppen zusammengefasst und Freisetzungsteile für jede Abfallgebindegruppe betrachtet. Aufgrund dieser Neuordnung liegen der Freisetzungseigenschaft einer Abfallgebindegruppe Kombinationen der Freisetzungsmechanismen und -anteile aus dem Jahr 1987 zugrunde.

Mit der Transportstudie Konrad im Jahr 1991 wurden sechs Belastungsklassen eingeführt. Sie kombinieren zwei thermische Belastungsdauern von 30 und 60 min bei 800 °C mit drei mechanischen Belastungsstufen. Durch die mechanische Beaufschlagung ergibt sich für einige Abfallgebindegruppen eine erhöhte Freisetzung im Brandfall. Insbesondere für die Abfallgebindegruppe 8 ist die mechanische Beaufschlagung bei Brand die Voraussetzung für ein Dichtungsleck und die Freisetzung thermischer Freisetzungsteile.

Die thermische Freisetzung resultiert aus berechneten Temperaturfeldern im Abfallgebinde. Dafür wurde ein definierter repräsentativer Abfallbehältertyp des Endlagers Konrad berücksichtigt. Er liefert durch seine hohe Wärmeübertragung einen zusätzlichen Beitrag zur Konservativität der Freisetzungsteile. In der Abfallgebindegruppe 8 mit einem Stahlguss-Abfallbehälter hoher mechanischer Integrität berücksichtigte Gründler die Leckrate des Behälters als maßgeblichen Freisetzungsteil bis zur

Systemanalyse Konrad 1987. Dieses Konzept der Freisetzung über eine Leckrate wurde jedoch mit der Transportstudie Konrad 1991 fallengelassen und auf die Abfallproduktgruppen charakteristischen Freisetzungsmechanismen und -anteile analog der Abfallgebindegruppen 1 bis 7 zurückgegriffen.

Die Freisetzung von radioaktiven Nukliden basiert seit 1987 auf vier Nuklidgruppen (Sonstige Nuklide, H-3, C-14 und Halogene). Sie wurden seitdem, bis auf Korrekturen durch Brücher et al. im Jahr 2013 und Richter et al. im Jahr 2017, nicht verändert. Lediglich die mechanischen Freisetzungsteile wurden zu einem späteren Zeitpunkt um einen erheblichen Beitrag auf Basis neuerer Untersuchungsergebnisse reduziert.

Da die damaligen Temperaturfeldberechnungen nur teilweise dokumentiert sind und heutige Methoden weitaus flexibler einsetzbar sind, wurde zudem die Brandeinwirkung auf Abfallgebinde betrachtet und mit früheren Ergebnissen verglichen und bewertet.

Nach der ursprünglichen Planung sollte das Programm Fire Dynamics Simulator (FDS) verwendet werden. Allerdings zeigte sich, dass mit der aktuell zur Verfügung stehenden Beta-Version nur eingeschränkt dreidimensionale Temperaturverteilung in Gebinden berechnet werden können. Daher wurde alternativ die von der GRS entwickelten und gekoppelten Programme CoPool und COCOSYS, als Bestandteil des Programmsystems AC² verwendet.

Um auch die Verdampfung von Wasser aus Beton zu berücksichtigen, wurden entsprechende Wärmekapazitäten und temperaturabhängigen Wärmeleitfähigkeiten vorgegeben. Die Effekte aufgrund der Verdampfung konnten reproduziert werden, allerdings wird der Effekt bei einer Abkühlung des Gebindes nicht richtig berücksichtigt. Die Abkühlphase spielt für die Berechnung von Freisetzungsteilen aber nur eine untergeordnete Rolle.

Der Transport von Wärmestrahlung über einen angenommenen Spalt wurde anhand einer Vorausrechnung mit COCOSYS abgeschätzt. Der Spalt wird als Material mit einer entsprechenden Wärmeleitfähigkeit simuliert.

Im ersten Schritt wurden frühere Fälle nachgerechnet. Als Randbedingung wird die sogenannte PTB-Kurve angenommen, bei der von einer Brandtemperatur von 800 °C über eine Stunde ausgegangen wird. Gerechnet wurden ein 400 l Betonfass, der Stahlblechcontainer I sowie der Gussbehälter II. Anzumerken ist, dass die verwendeten Gitter in

den früheren Rechnungen insbesondere für den Gussbehälter zu grob sind. In den aktuellen Rechnungen wurden deutlich feinere Gitter (z. T. ca. Faktor 3) verwendet. Die Übereinstimmung der Rechnungen für das 400 l Betonfass sowie den Container I sind relativ gut. Größere Abweichungen werden für den Gussbehälter festgestellt. Hier ist das Gitter in den TAC2D-Rechnungen zu grob. Zu beachten ist, dass nun alle Objekte in der vollen 3D-Geometrie simuliert werden.

Mit Hilfe des Programms Paraview® wurde der Zeitverlauf der Volumina entlang vorgegebener Temperaturgrenzen berechnet. Ausgewertet wird auch die Volumenverteilung der maximal erreichten Temperatur. Diese Daten werden für die Freisetzungsmodelle verwendet. Grundsätzlich können nun FDS-Ergebnisse von Brandverläufen, d. h. lokale Temperaturrandbedingungen an den Gebinden an COCOSYS/CoPool übergeben werden, so dass inhomogene Temperaturrandbedingungen vorgegeben und sich daraus ergebende Temperaturverteilungen im Gebinde berechnet werden.

Für künftige Arbeiten wird die Abschätzung der thermischen Freisetzung auf Basis von Freisetzunganteilen, die aus aktuellen Experimenten gewonnen wurden, für sinnvoll gehalten. Daneben ist die Flexibilisierung der Temperaturfeldberechnungen möglich und zum Abbau weiterer Konservativitäten sinnvoll.

Abstract

This report describes the work of GRS over several decades on the determination of release fractions from waste packages and presents current methods for temperature field calculations in packages.

In 1984, Gründler et al. defined four characteristic release mechanisms (combustion, pyrolysis, sublimation and water evaporation including entrainment of nuclides) and their specific release fractions in the Konrad System Analysis. They were partially corrected later in the 1987 Konrad System Analysis. They cover the release of radioactive aerosols during a specified fire of 60 min duration at 800 °C ("PTB curve"). The estimation of these release fractions goes back to experimental investigations between 1973 and 1984. It was carried out under the premise of conservatively covering all uncertainties in the assumptions of a fire.

At the beginning of the research, the release fractions were reconstructed with the allocation between product classes and waste product groups in 1984. From 1987 onwards, they can be reconstructed using the waste product groups and today's waste package groups. Due to this reallocation, the release characteristics of a waste package group are based on combinations of the characteristic release mechanisms and proportions from 1987.

Six load classes were introduced with the Konrad Transport Study in 1991. They combine two thermal load durations of 30 and 60 min at 800 °C with three mechanical load levels. The mechanical loading results in an increased release in case of fire for some waste package groups. Especially for waste package group 8, the mechanical impact in case of fire is the prerequisite for a seal leakage and the release of thermal release components.

The thermal release results from calculated temperature fields in the waste package. For this purpose, a defined representative waste container type of the Konrad repository has been considered. Due to its high heat transfer, it provides an additional contribution to the conservativeness of the release fractions. In waste package group 8 with a cast steel waste container of high mechanical integrity, Gründler took the leakage rate of the container into account as a decisive release contribution until the Konrad System Analysis 1987. However, this concept of release via a leakage rate was dropped with the Konrad Transport Study 1991 and recourse was made to the waste product groups characteristic

release mechanisms and release fractions analogous to the waste package groups 1 to 7.

The release of radioactive nuclides has been based on four nuclide groups (other nuclides, H-3, C-14 and halogens) since 1987. They have remained unchanged since then, except for corrections by Brücher et al. in 2013 and Richter et al. in 2017. Only the mechanical release fractions were reduced by a considerable contribution at a later time on the basis of more recent investigation results.

Since the temperature field calculations at that time are only partially documented and today's methods can be used much more flexibly, the fire effect on waste containers was also considered and compared and evaluated with earlier results.

According to the original planning, the programme Fire Dynamics Simulator (FDS) was to be used. However, it turned out that the currently available beta version can only calculate three-dimensional temperature distribution in containers to a limited extent. Therefore, the coupled programmes CoPool and COCOSYS, developed by GRS, were used as an alternative as part of the AC² programme system.

In order to take into account the evaporation of water from concrete, corresponding heat capacities and temperature-dependent thermal conductivities were specified. The effects due to evaporation could be reproduced, but they are not correctly considered when the container cools down. However, the cooling phase only plays a minor role in the calculation of release fractions.

The transport of thermal radiation across an assumed gap was estimated using a preliminary calculation with COCOSYS. The gap is simulated as a material with a corresponding thermal conductivity.

In the first step, previous cases were recalculated. The temperature profile (PTB curve) is assumed as a boundary condition, where a fire temperature of 800 °C over one hour is assumed. A 400 l concrete barrel, the sheet steel container I and the cast iron container II were calculated. It should be noted that the grids used in the earlier calculations are too coarse, especially for the cast iron container. In the current calculations, significantly finer grids (partly by a factor of approx. 3) were used. The agreement of the calculations for the 400 l concrete barrel and the container I is relatively good. Larger

deviations are found for the cast iron container. Here the grid in the TAC2D calculations is too coarse. It should be noted that all objects are now simulated in full 3D geometry.

With the help of the Paraview© programme, the time course of the volumes along pre-defined temperature limits was calculated. The volume distribution of the maximum temperature reached is also evaluated. These data are used for the release models. In principle, FDS results of fire developments, i.e. local temperature boundary conditions at the containers, can now be transferred to COCOSYS/CoPool so that inhomogeneous temperature boundary conditions are specified and resulting temperature distributions in the container are calculated.

For future work, it is considered useful to estimate the thermal release on the basis of release fractions obtained from current experiments. In addition, flexibilization of the temperature field calculations is possible and makes sense to reduce further conservatism.

Inhaltsverzeichnis

	Kurzfassung.....	I
	Abstract.....	IV
1	Einleitung	1
2	Grundlagen	3
2.1	Ausgangslage.....	3
2.2	Zuordnung von Abfallbehälterklassen und Abfallproduktgruppen zu Abfallgebindegruppen.....	3
3	Mechanismen der thermischen Freisetzung.....	7
3.1	Grundannahmen.....	7
3.2	Freisetzung durch Pyrolyse	9
3.3	Freisetzung durch Verbrennen von Abfällen	11
3.4	Freisetzung durch Mitrisss oder Co-Verdampfen von Wasserdampf	12
3.5	Freisetzung durch Sublimation.....	13
4	Thermische Freisetzungssanteile aus Behältern der Abfallbehälterklasse I.....	15
4.1	Vorbemerkungen	15
4.2	Annahmen zum Verhalten der Stahl- bzw. Betongebinde	18
4.3	AGG 1 – Brennbare, unfixierte Abfälle in Stahlblech-Containern	19
4.4	AGG 6 – Brennbare, unfixierte Abfälle in Betonbehältern	20
4.5	AGG 2 – Unfixierte, nicht kompaktierbare metallische und nichtmetallische Abfälle in Stahlblech- oder Betonbehältern	21
4.6	AGG 3 – Metallische Abfälle in Stahlblech-Containern oder Betonbehältern	24
4.7	AGG 4 – Kompaktierte Abfälle in Stahlblechcontainern oder Betonbehältern	26
4.8	AGG 5 – Zementfixierte Abfälle in Stahlblechcontainern.....	29
4.9	AGG 7 – Zementfixierte Abfälle in Betonbehältern.....	32

5	Thermische Freisetzungsanteile aus Behältern der Abfallbehälterklasse II in AGG 8.....	35
5.1	Vorbemerkungen	35
5.2	Freisetzung innerhalb des Behälters.....	36
5.3	Freisetzung aus der Behälteratmosphäre über eine Leckrate in die Umgebung.....	37
5.4	AGG 8 – Abfälle in Gussbehältern der ABK II	38
6	Simulation der thermischen Belastung in Gebinden aufgrund von Brandeinwirkungen	41
6.1	Ausgangslage.....	41
6.2	Aufbau einer neuen Simulationskette.....	43
6.2.1	Kurzbeschreibung der verwendeten Programme	43
6.2.2	Spezifische Modellierungen	47
6.2.3	Simulation der Temperaturen im Gebinde bei vorgegebenen Raumtemperaturen (PTB-Kurve)	50
6.3	Brandsimulationsrechnungen mit FDS.....	67
6.4	Verwendung spezifischer Brandverläufe in CoPool/COCOSYS	74
7	Zusammenfassung	77
	Literaturverzeichnis.....	79
	Abbildungsverzeichnis.....	83
	Tabellenverzeichnis.....	85
	Abkürzungsverzeichnis.....	87
A	Anhang: Die Freisetzung über eine Leckrate in der Systemanalyse 1987	89

1 Einleitung

Die Beförderung radioaktiver Abfälle und die damit verbundenen Risiken durch mögliche Unfälle mit mechanischen und thermischen Einwirkungen stehen immer wieder im Fokus der Öffentlichkeit. Radioaktive Stoffe sind im verkehrsrechtlichen Sinne Gefahrgüter, für die nationale und internationale Regelwerke gelten, bei deren Einhaltung ein im ausreichenden Maße sicherer Transport und Schutz vor den evtl. vom Transportgut ausgehenden Gefahren (hier: ionisierende Strahlung) grundsätzlich gewährleistet ist.

Unabhängig davon werden die Methoden zur Bestimmung der Folgen von Unfallereignissen fortwährend überprüft und aktualisiert. Die Grundlagen und Annahmen der Methode zur Bestimmung von Freisetzungsteilen aus Abfallgebinden nach thermischer bzw. kombiniert thermisch-mechanischer Beanspruchung wurden schon zur „Systemanalyse Konrad“ Mitte der 1980er Jahre entwickelt und zur ersten Transportstudie Konrad 1991 an die Transportbedingungen angepasst. Im Bereich der thermischen Freisetzungsteile hat es danach keine signifikante Weiterentwicklung mehr gegeben. Es sind kaum Zwischenrechnungen dokumentiert und es existieren keine Simulationsmodelle zur Reproduktion der Ergebnisse.

Ziel des hier dokumentierten Arbeitspunkts ist die Reaktivierung der Simulationskette von den Grundannahmen zum Freisetzungsverhalten repräsentativer Nuklide über die verschiedenen Abfallarten und Gebinde bis zur Modellierung der thermischen Einwirkungen bei Brandbeanspruchung. Dabei wird berücksichtigt, dass heutige Modelle leistungsfähiger sind und mehr Möglichkeiten zur Verknüpfung mit Annahmen zum Schadensereignis bieten.

Im vorderen Teil des Arbeitsberichts (Kap. 2) werden zunächst die Grundlagen der Einteilung von Abfallgebinden nach Abfallgebindegruppen (AGG) sowie die mechanischen und thermischen Belastungsklassen (BK) erläutert. Danach (Kap. 3) werden die Grundlagen zur Abschätzung von Freisetzungsteilen aus unverpackten Stoffen auf Basis vier verschiedener thermischer Freisetzungsmechanismen dargestellt. In den folgenden Kapiteln wird die Übertragung der Grundlagen auf Abfallgebinde angewendet, deren Schutzfunktion nach unterschiedlicher mechanisch/thermischer Belastung beeinträchtigt wurde. Dabei wird zwischen Gebinden der Abfallbehälterklasse I (ABK I) (Kapitel 4) und Abfallbehälterklasse II (ABK II) (Kapitel 5) unterschieden. Verschiedene Herangehensweisen zur Simulation der thermischen Einwirkung werden anhand von Modellen nach

dem heutigen Stand der Technik ab Kapitel 6 erläutert und verglichen. Der Bericht schließt mit einer Zusammenfassung (Kap. 7).

2 Grundlagen

2.1 Ausgangslage

In den Jahren 1984 bis 1987 schätzten Gründler et al. Freisetzungsteile für die Abfallbehälterklassen I und II ab. Sie sind mit den heutigen Abfallproduktgruppen APG 01 bis 06 verknüpft. Im Jahr 1991 wurden diese Werte für die Transportstudie Konrad für ein definiertes Szenario mit 30 min Branddauer sowie in Kombination mit mechanischen Einwirkungen bestimmt. In dieser Studie erfolgte auch die Zuordnung in acht Abfallgebindegruppen AGG. In den Jahren 2013 und 2017 wurden einzelne Freisetzungsteile durch Brücher /BRÜ 13/ und Richter et al. /RIC 17/ diskutiert. Insbesondere die Auswertung von Richter et al. zielte auf eine realistischere Abschätzung der Freisetzungsteile ab und führte zur Korrektur einzelner Freisetzungsteile.

2.2 Zuordnung von Abfallbehälterklassen und Abfallproduktgruppen zu Abfallgebindegruppen

Die Freisetzung von radioaktiven Nukliden wird für acht Abfallgebindegruppen (AGG) betrachtet (vgl. Tab. 2.1). Die Abfallgebindegruppe wird durch den Abfallbehälter aus Stahlblech, Beton oder Stahlguss und der Abfallproduktgruppe (APG) festgelegt. Die Unterteilung in AGG erfolgte in der Transportstudie Konrad (TSK) 1991 von Gründler /GRÜ 91/. Sie wurde mit dem Ziel eingeführt, die zahlreichen Kombinationen aus Behältertypen und Abfallarten mit gleicher Freisetzungseigenschaft zusammenzufassen. Die Einteilung von Abfällen in Abfallproduktgruppen und Abfallklassen bzw. Abfallbehälterklassen I und II, wurde von der Physikalisch Technischen Bundesanstalt Braunschweig eingeführt /PTB 86/. Die Zuordnung der Abfallbehälterklassen und Abfallproduktgruppen zu Abfallgebindegruppen ist in Tab. 2.1 dargestellt. Diese Zuordnung erlaubt es, die Herkunft der Freisetzungsmechanismen eines Abfallgebundes auf die Abfallbehälterklasse und Abfallproduktgruppe von Gründler auf die Jahre 1987 und 1984 zurückzuführen.

Tab. 2.1 Verknüpfung zwischen Abfallgebindegruppen AGG, Abfallbehälterklasse ABK und Abfallproduktgruppe APG nach Richter et al. /RIC 17/

AGG	Behältertyp	ABK	Abfallart	APG
1	Stahlblechcontainer	I	Brennbare, unfixierte Abfälle	1
2	Stahlblechcontainer oder Betonbehälter	I	Unfixierte und nicht kompaktierbare metallische und nicht metallische Abfälle (einschließlich Verdampferkonzentraten)	2, 6
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 – 6

Einer Abfallgebindegruppe werden in Tab. 2.1 definierte Behältertypen zugeordnet. Sie bestehen aus unterschiedlichen Materialien wie Stahlblechcontainer, Betonbehälter oder Gussbehälter und werden in verschiedenen Geometrien (Rundgebinde, Container) und Abmessungen verwendet. Insbesondere werden sie aufgrund ihrer sicherheitstechnischen Anforderungen, wie der Dichtheit und Gefahr der Freisetzung, in zwei Abfallbehälterklassen ABK I und II eingeteilt, wobei lediglich Abfallbehälter der Abfallbehälterklasse ABK II (Gussbehälter) der AGG 8 zugeordnet werden. Für alle anderen Abfallgebinde werden Abfallbehälter (Stahlblechcontainer, Betonbehälter) der Abfallbehälterklasse I verwendet. Die Einstufung in eine Abfallbehälterklasse beeinflusst die Freisetzung von radioaktiven Nukliden aus dem Behälter. Sie müssen je nach Abfallbehälterklasse spezifizierte Anforderungen an die Barrierewirkung nach einer mechanischen und thermischen Einwirkung erfüllen. Diese Anforderungen definierte die PTB in /PTB 86/, /BRE 87/ und wurden in Berichten der GRS ausführlich diskutiert /SEN 09/, /BRÜ 13/, /RIC 17/.

Wesentliche Anforderungen /STE 10/ für Abfallbehälter der ABK I sind, dass bis zu einer Aufprallgeschwindigkeit von 4 m/s die Integrität soweit erhalten bleibt, dass bei einer thermischen Belastung 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 /RIC 17/. Die geringste mechanische Belastungskategorie BK 1 bis 3 deckt allerdings eine Aufprallgeschwindigkeit bis 9,7 m/s ab, so dass die Integrität nicht gewährleistet ist.

Für Behälter der ABK II wird zusätzlich zu den Grundanforderungen verlangt /STE 10/, dass die Verpackung bei einem Fall aus 5 m Höhe (vgl. max. Fallhöhe nach BK 1 bis BK 3 $\leq 4,8$ m) entsprechend auf ein für das Endlager Konrad repräsentativen Fundament derart standhält, dass die Gesamt-Leckrate $1 \times 10^{-4} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3/\text{s}$ nicht überschreitet. Zudem muss bei einem Schadensfeuer entsprechend der PTB-Kurve (ohne mechanische Vorbelastung) die Gesamt-Leckrate eines ABK II-Behälters kleiner als $1 \times 10^{-5} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3/\text{s}$ sein. Die Stoffmenge, die während des Brands und in den darauffolgenden 24 Stunden der Abkühlphase austritt, darf 1 Mol (bzw. die im Rahmen der Störfallanalyse unterstellte Freisetzung radioaktiver Stoffe) nicht überschreiten.

Aus den unterschiedlichen Behälter-Anforderungen resultieren zwei Einflussfaktoren auf die Freisetzung bei thermischen und mechanischen Lastfällen. Die Leckrate für Behälter der ABK II bestimmt einen Beitrag der Freisetzung in die Umgebungsatmosphäre. Der andere Beitrag berücksichtigt die Freisetzungsmechanismen der Abfallproduktgruppe APG. Dieser Beitrag ist für beide Behälterklassen zu berücksichtigen. Auf beide Abfallbehälterklassen und Freisetzungsbeträge wird in den Kapiteln 4 und 5 eingegangen.

3 Mechanismen der thermischen Freisetzung

3.1 Grundannahmen

Grundsätzlich werden für die thermische Freisetzung von radioaktiven Nukliden nach /GRÜ 87a/ vier chemische Verbindungen in zwei Gruppen berücksichtigt. Sie decken alle spezifizierten Abfallprodukte ab.

Für die Gruppe der flüchtigen Verbindungen gilt:

- Halogene liegen organisch gebunden vor (z. B. Methyliodid).
- C-14 wird bezüglich der Flüchtigkeit wie ein Halogen behandelt. Falls C-14 zementfixiert als Karbonat vorkommt, wird es wie die Sonstigen Nuklide behandelt).
- Tritium (H-3) liegt wässrig vor (HTO).

Die Sonstigen Nuklide:

- Sonstige Nuklide werden konservativ durch Cäsiumiodid (CsI) abgedeckt.

Gründler /GRÜ 84/ fasste zunächst radioaktive Abfälle in sechs Produktklassen PK mit jeweils ähnlichen thermodynamischen Stoffeigenschaften zusammen. Jede Produktklasse ist durch Abfälle charakterisiert, bei denen ein spezifischer thermischer Freisetzungsmechanismus FM zum Tragen kommt bzw. dominiert (vgl. Tab. 3.1).

Tab. 3.1 Einordnung von Produktklassen PK mit spezifischen Freisetzungsmechanismen FM nach Gründler /GRÜ 84/, Anh. II, S. 10

PK	Unspezifizierte Feststoffe	Metallische Feststoffe	Zementprodukte	Bitumenprodukte	Presslinge	Konzentrate
FM	Nur < 1 % sind brennbar mit $T_M < 300^\circ\text{C}$, daher wird Ausfließen von max. 1% erwartet und kein Verbrennen sonst alle FM	Sublimation	Pyrolyse in Volumenanteilen mit $T > 300^\circ\text{C}$ und Mitriss für $T > 100^\circ\text{C}$	Für $T < T_M$: nur Sublimation für Flüchtige, für $T > T_M$: Verbrennen	Wie Unspezifizierte Feststoffe	Mitriss

Mit einer Neudefinierung von Behältern durch die PTB, wurden die Produktklassen 1987 in Abfallproduktgruppen (APG) umbenannt. Sie dienen ab diesem Zeitraum der Einhaltung der in den Endlagerungsbedingungen festgelegten Anforderungen für radioaktive Abfälle und werden vor der Anlieferung zum Endlager im Rahmen der Produktkontrolle überprüft. Die entsprechenden Freisetzungsmechanismen werden ab diesem Zeitraum den Abfallproduktgruppen nach Tab. 3.2 zugeordnet. Gegenüber den Bezeichnungen für Behälter radioaktiven Abfalls im Jahr 1984 änderte sich im Jahr 1987 die Bezeichnung der Behälter-Einstufung von „Behälterklasse“ in „Abfallgebinde der Abfallklasse“, in die heutige „Abfallbehälterklasse ABK“. Im Zuge dieser Umbenennung kehrt sich die Behälterklassen bezogene Nummerierung in den Publikationen von Gründler 1984, ab 1987 in die heutige Benennung ABK I und ABK II um.

Tab. 3.2 Definition von Abfallproduktgruppen APG und Zuordnung der definierten Freisetzungsmechanismen (FM) nach /GRÜ 87a/, Anh. A I, S.16 und /GRÜ 91/

APG	01 Bitumen und Kunst- stoffpro- dukte	02 Feststoffe	03 Metall. Feststoffe	04 Press- linge	05 Zement/Beto- nierte Abfälle	06 Konzentrate
FM /GRÜ 87a/	Verbrennen des 100 % geschmolzenen Abfallproduktes	Verbrennen von 1% + Sublimation	Sublimation	Pyrolyse	Pyrolyse in Volumina > 300°C + Mitrisss in Volumina 100°C < T < 300°C	Mitrisss
FM /GRÜ 91/						

Die Freisetzungsmechanismen charakterisieren die Freisetzung aus den Abfallproduktgruppen. Bei thermischer Einwirkung kommen sie einzeln oder in Kombination in einer Abfallproduktgruppe zum Tragen. Um die Freisetzung zu quantifizieren, schätzte Gründler 1987 in /GRÜ 87a/, Anh. I, S. 3, Freisetzungsteile der Freisetzungsmechanismen ab. Sie sind als Abschätzung das Ergebnis von Experimenten und Literaturlauswertungen und werden in Tab. 3.3 zusammengefasst. Im Folgenden werden die Freisetzungsmechanismen kurz beschrieben.

Tab. 3.3 Freisetzungsmechanismen und maximale Freisetzungsanteile nach /GRÜ 87a/, Anh. I, S. 4 bis 16

Freisetzungsmechanismus und Bedingungen (Temperaturkriterium des Teilvolumens)	Freisetzungsanteile a) Sonstiger Nuklide b) Flüchtige Nuklide
<u>Pyrolyse</u> T > 573 K, Luftabschluss	a) 5×10^{-3} für das Teilvolumen b) 1
<u>Verbrennung</u> Sauerstoffzufuhr, 100 % Schmelzen und Ausfließen	a) 5×10^{-1} (40 % Verbrennung, 10 % Resublimation) * b) 1
<u>Verdampfen von Wasser einschl. Mittriss</u> T > 373 K	a) 5×10^{-4} für das Teilvolumen b) 1
<u>Sublimation</u> Sonstige (Oberflächenkontamination, mittelflüchtige): T > 673 K und Dampfdruck > 1 Pa Flüchtige: T > 315 K (CH ₃ I), T > 373 K (HTO)	a) max. 4×10^{-3} deckt alle mittelflüchtigen Nuklide in Konradabfällen ab b) gemäß Temperaturfeldabschätzungen
* in /GRÜ 91a/, Anh. IV, S. 8 wurde der abdeckende Wert für die Freisetzung durch Verbrennung auf 1×10^{-1} reduziert	

Eine weitere Grundannahme ist, dass die Freisetzung durch thermisch bedingte Prozesse immer im Größenintervall 0 – 10 µm erfolgt und somit die Nuklide lungengängig sind. Diese Annahme ist auf Grund der beschriebenen Prozesse und der Kenntnisse zu Partikelgrößenverteilungen von Brandruß /MUL 08/ nachvollziehbar. Mechanisch bedingte Freisetzung findet dagegen auch in größeren Durchmessern statt.

3.2 Freisetzung durch Pyrolyse

Pyrolyse ist die thermo-chemische Spaltung einer organischen Verbindung, häufig in einer sauerstofffreien Atmosphäre. In Abfallgebinden findet dieser Prozess statt, wenn die Temperatur des Produktes einen bestimmten Schwellenwert, z. B. ca. 300 °C, bei begrenztem Luftzutritt überschreitet und das Abfallprodukt thermisch instabile Bestandteile enthält. Die Pyrolysegase entweichen aus dem Abfallgebinde und können außerhalb des Abfallgebindes verbrennen. Mit den Pyrolysegasen wird ein gewisser Prozentsatz an Aktivität freigesetzt.

Gründler verwendete zurückgehend auf /FHG 75/ eine Abfalltemperatur über 300 °C als Starttemperatur für die Freisetzung aus Pyrolyse. Die von einem Pyrolysegas getragene Aktivität wurde dann freigesetzt. Der Mechanismus wurde in einem Experiment mit Sägespänen in einem Pressling der NUKEM /NUK 84/ in einer 10 cm starken Randschicht beobachtet, bei dem die Verfärbung des Materials die Pyrolyse anzeigte. Mit diesem Experiment wurden die Freisetzungsanteile von Cs mit $1,6 \times 10^{-3}$ und für Sr mit $1,2 \times 10^{-4}$ ermittelt. Bei dieser Untersuchung wurden 40 Vol-% des Gebindes pyrolysiert. Daher schlussfolgert Gründler /GRÜ 84/ in Anh. II, S. 4, dass bei einer 100 %igen Pyrolyse ein Freisetzungsanteil von 4×10^{-3} für Cs und 3×10^{-4} für die Sr-Freisetzung zu erwarten sind. In /GRÜ 87a/ (S. AI-4) berichtet Gründler für die Abfallproduktgruppe APG 05 ebenfalls über ein realitätsnahes Experiment der NUKEM mit einem 200 l Fass, in das fünf Presslinge mit brennbarem Abfallsimulat eingebracht wurden, die jeweils mit 60 g CsNO_3 dotiert wurden. Der Spalt zur Wandung des Stahlblechbehälters wurde mit Zementleim wärmeüberbrückend vergossen. In diesem Fall waren 30 Vol-% des Gebindes der APG05 von der Pyrolyse betroffen. Ermittelt wurde ein Freisetzungsanteil für Cs von $1,6 \times 10^{-3}$ und von Sr von $1,2 \times 10^{-4}$. Für eine vollständige Pyrolyse sind daher maximale Freisetzungsanteile von 5×10^{-3} für Cs und 4×10^{-4} für Sr angesetzt worden. Dieser Freisetzungsanteil von 5×10^{-3} wird bei Pyrolyse in allen folgenden Publikationen Gründlers /GRÜ 91/, /GRÜ 91a/ auf ein Gebindevolumen von 100 Vol-% bezogen, das über die Temperatur von 300 °C erwärmt wurde.

Der bei Verwendung von Presslingen resultierende Luftspalt zwischen Pressling und Behälterinnenwand bildet einen höheren Wärmewiderstand als der im NUKEM-Experiment im Spalt verwendete überbrückende Zementleim /BRE 87/, /GRÜ 87/, /GRÜ 87a/. Folglich liegen die an die Innengebinde-Temperatur geknüpften Freisetzungsanteile höher als für Presslinge mit Luftspalt in APG04. Der FA deckt deshalb auch ein Gebinde mit unfixierten Presslingen der APG 04 ab.

Gründler /GRÜ 87a/ vergleicht auch die experimentell gewonnenen Ergebnisse der NUKEM mit einer rechnerischen Abschätzung durch Piefke et al. /PIE 84/. Es zeigte sich, dass die experimentellen Temperaturen im Gebinde erheblich niedriger lagen. Dies sei auf die Ausbildung des wärmeisolierenden Spaltes zwischen Stahl-Behälterwand und Abfallgebinde nach der Konditionierung und Schrumpfung des Abfalls im Behälter zurückzuführen /GRÜ 87/. Der Spalt wurde zwar mit Zementleim vergossen, wirkte aber dennoch im Vergleich zu den Rechnungen von Piefke wärmeisolierend. Da das NUKEM-Experiment realitätsnah im Maßstabe 1:1 mit 70 min Branddauer den Temperatur-

Zeitverlauf des thermischen Lastfalles konservativ abbildet, wird der ermittelte FA gegenüber der Piefke-Abschätzung vorgezogen.

3.3 Freisetzung durch Verbrennen von Abfällen

Der Ermittlung dieser Freisetzungsteile aus offenen Verbrennungsprozessen liegen nach /GRÜ 87a/ relativ frühe experimentelle Untersuchungen aus den 1970er und 80er Jahren zugrunde. Als geeignete experimentelle Untersuchungen stuft Gründler zunächst in /GRÜ 87a/ die Ergebnisse aus den Publikationen /MIS 73/ und /MIS 74/ ein. In diesen Studien schwanken die Messwerte jedoch um einen Freisetzungsteil von 24,4 %. Gründler stellt fest, dass das zu untersuchende Freisetzungsszenario jedoch nicht repräsentativ ist, da bei zu hohen Windgeschwindigkeiten von ca. 10 m/s gemessen wurde. Außerdem wurden die Auswirkungen eines voran gegangenen Brandes nicht berücksichtigt, der nach /MIS 73a/ eine freisetzungsmindernde Wirkung ausübte. Gründler berücksichtigt zudem die Re-Suspension, das heißt die Freisetzung nach dem Brand durch Dispersion der Verbrennungsrückstände in die Atmosphäre /GRÜ 87a/. Sie hängt von den aerodynamischen Eigenschaften der Verbrennungsrückstände, von der Art der Oberfläche, auf der sie sich befinden, der Windgeschwindigkeit, dem Grad der Umschließung und sonstigen Parametern ab. Gründler schließt daraus in /GRÜ 87a/, dass für ein realistisches Szenario der FA für die Re-Suspension von 1 % abdeckend sei und erhöht diesen Wert aufgrund bestehender Unsicherheiten durch aerodynamische Verhältnisse auf 10 %. Er schlussfolgert in /GRÜ 87a/ mit der Aussage: „*Mit dem maximalen Freisetzungsteil durch Verbrennen von 40 % ergibt sich ein Freisetzungsteil von 50 %*“. In den Ausführungen der TSK /GRÜ 91a/ zur BK2 AGG 1 diskutiert Gründler neben Mishima weitere Veröffentlichungen, unter anderem Mishima und Schwendiman /MIS 73/ oder Seehars und Hochrainer /SEE 82/. In diesen Publikationen werden Experimente diskutiert, die unter sehr unterschiedlichen Bedingungen durchgeführt wurden. Zum Beispiel wurde in /SEE 82/ über FA zwischen 5×10^{-5} und $1,2 \times 10^{-3}$ berichtet. Gründler et al. ermittelten auf Grundlage dieser und anderer Befunde thermische Freisetzungsteile zwischen 1×10^{-2} und 4×10^{-1} und begründeten die Schwankungen der Werte mit den unterschiedlichen Experiment-Bedingungen.

Zusammenfassend wird in den recherchierten Publikationen von Gründler et al. der ersten Jahre 1986 bis 1987 eine sehr große Streuung der FA Sonstiger Nuklide durch Verbrennung diskutiert und bis 1987 eine Freisetzung von 50 % angenommen /GRÜ 87a/, S. 6. (vgl. Tab. 3.3). Später wurde jedoch von Gründler in /GRÜ 91a/, Anh. IV, S. 8 der

abdeckende Wert für die Freisetzung durch Verbrennung auf 10 % reduziert. Eine Erklärung für diese Reduzierung zwischen 1987 und 1991 konnte nicht recherchiert werden.

3.4 Freisetzung durch Mitriss oder Co-Verdampfen von Wasserdampf

Dieser Freisetzungsmechanismus ist besonders relevant für zementierte bzw. betonierte Abfälle und Konzentrate mit großen Mengen an verdampfbarem Wasser, wie Flüssigkeit in Poren, Kristallwasser (Hydratationswasser) bei Temperaturen über 373 K /GRÜ 87a/. Frühe maßstabsgetreue Experimente von /VEJ 83/ mit 70-minütiger Beflammung eines 200-l-Fasses resultierten in eine Verdampfung von 10 % des gesamten Wasseranteils des Testgebindes. Von diesem Wasserdampf wurde ein Freisetzunganteil von 1×10^{-5} des Cs-Nuklides mitgerissen, wobei die Wasserverdampfung und Nuklidfreisetzung immer in einem nahezu konstanten Verhältnis standen. Bei der unrealistischen Annahme einer 100 %igen Wasserverdampfung würden 1×10^{-4} radioaktive Nuklide durch Mitriss freigesetzt. Im Sinne einer konservativen Abschätzung wurde von Gründler /GRÜ 87a/ (Anh. I, S. 7) ein Freisetzunganteil von 5×10^{-4} für Sonstige Nuklide für das Teilvolumen, welches mehr als > 373 K erreicht, angesetzt (vgl. Tab. 3.3). Dieser Freisetzungsmechanismus liegt den Abschätzungen den AGG 5 und 7 zugrunde. Auf Grund der Behälterzerstörung bei mechanischer Belastung wurde ab BK 4 davon aufgegangen, dass 50 % des Volumens, unabhängig von der Branddauer, diesem Freisetzungsprozess unterliegen.

Die Gruppe der flüchtigen Nuklide (Tritium, C 14 in leichtflüchtiger Form und Halogene) sublimieren für die angenommenen thermischen Lastfälle und werden unter diesem Mechanismus behandelt (Abschnitt 3.5).

Für die AGG 8 der ABK II (Gussbehälter) muss ebenfalls die Freisetzung in die Behälteratmosphäre durch Mitriss berücksichtigt werden, denn die AGG 8 kann unter anderem die zementbasierte Abfallproduktgruppe APG 05 und APG 06 enthalten. Für Zementprodukte der APG 05 und 06 wird der FA für Sonstige Nuklide anteilig mit dem Freisetzunganteil f ermittelt.

Im Jahr 1987 definierte Gründler einen Freisetzunganteil mit 4×10^{-3} für Sonstige Nuklide, der auch die Pyrolyse von 80 Vol-% des Inventars abdeckt /GRÜ 87a/ (Anh. I, S. 33). Maßstäbliche Brandversuche an verschiedenen Abfallgebinden ergeben, dass die von Pyrolyse betroffene Volumenanteile erheblich geringer sind. Der Freisetzunganteil

durch Pyrolyse ist hierbei abdeckend für die Freisetzung durch Verdampfen bzw. Sublimation.

Bei der Abfallbehälterklasse II, AGG 8, wird der Behälter als Barriere berücksichtigt, so dass der Mitriss bei der Freisetzung von Nukliden in die Behälteratmosphäre relevant ist. Gründler nimmt für den Mitriss von Sonstigen Nukliden einen linearen Zusammenhang mit dem Anteil X des als Wasserdampf in der Behälteratmosphäre vorliegenden Gesamtwassergehaltes des Gebindes an /GRÜ 87a/. Es resultiert ein Freisetzungsanteil f (zunächst in die Behälteratmosphäre):

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

Der Wasserdampfanteil X entspricht dem Anteil des in wässriger Form vorliegenden Tritiums des Gebindes.

Das Jahr 1991 stellt insofern eine Zäsur für die Abschätzung der Freisetzungsanteile dar, da Gründler neue Temperaturfeldberechnungen zur Abschätzung der Freisetzung durchführte. Diese Berechnungen stammen aus dem Jahr 1990 und wurden gemäß /GRÜ 91a/ (Anh. I, S. 10) nicht veröffentlicht.

3.5 Freisetzung durch Sublimation

Bei Sublimation verdampfen Nuklide, ohne einen Phasenübergang zu durchlaufen. Dieser Prozess herrscht für die Freisetzung der flüchtigen Nuklide vor, tritt aber auch bei der Freisetzung Sonstiger Nuklide bei einer Oberflächenkontamination an metallischen Oberflächen auf. Dies tritt ein, wenn die Sonstigen Radionuklide in einer chemischen Verbindung vorkommen, die ab ca. 400 °C (673 K) einen nennenswerten Dampfdruck in der Größenordnung von ab 1 Pa über ihrer festen bzw. flüssigen Phase aufweisen. Diese Verbindungen werden als mittelflüchtige Verbindungen eingestuft. Schwerflüchtige Substanzen mit einem Dampfdruck unter 10^{-4} Pa werden dabei nicht freigesetzt und sind nach Gründler /GRÜ 87a/ zu vernachlässigen. Für einen realistischen Ansatz wird der Anteil des Radionuklids in mittelflüchtiger Form ermittelt, der im Hinblick auf das zu erwartende Abfallvolumen abdeckend ist.

Als Stellvertreter der mittelflüchtigen Nuklide gilt wie berichtet Cäsiumjodid CsI. Diese Verbindung wurde ausgewählt, da sie im Vergleich zu anderen flüchtigen Verbindungen den höchsten Dampfdruck im Abfallprodukt aufweist. Für die Sublimation wird

konservativ angenommen, dass die gesamte Abfallprodukt-Oberfläche mit CsI kontaminiert und in die Behälteratmosphäre freigesetzt wird /GRÜ 87a/. Gründler leitete in Berechnungen zur Sublimationskinetik von CsI mit dem zeitlichen Hergang des Stoffübergangs und der instationären Temperaturverteilung im Abfallgebinde einen Gesamt-FA von 4×10^{-3} her, siehe Tab. 3.3. Außer für das Abbrennen, ist dieser Wert nach Gründler ein alle anderen Freisetzungsmechanismen der Sonstigen Nuklide abdeckender Basiswert. Er liegt allen Abfallgebindegruppen der Freisetzung durch Sublimation zugrunde. Da dieser Freisetzungsmechanismus eine Temperatur von mindestens $400 \text{ }^\circ\text{C}$ voraussetzt, deckt er gleichzeitig die Pyrolyse von geschätzt 80 Vol-% des Gebindes ab. Dies ist in Bezug auf den in Tab. 3.3 von Gründler ermittelten FA von 5×10^{-3} der Pyrolyse des Teilvolumens $T > 573 \text{ K}$ zu verstehen ($4 \times 10^{-3} / 5 \times 10^{-3} = 0,8$). Auf diesen Bezug wird auch in Abschnitt 5.2 für AGG 8 eingegangen.

Für die Gruppe der flüchtigen Nuklide nimmt Gründler an, dass deren FA aus den Temperaturfeldberechnungen abgeschätzt werden können. Für diese Simulationen setzt er für CH_3I einen Siedepunkt von 42°C und für das wässrig vorliegende Tritium einen Siedepunkt von 100°C voraus. Bei Sublimationstemperaturen von über $100 \text{ }^\circ\text{C}$ ist daher eine Freisetzung für Flüchtige Nuklide von 100 % anzunehmen.

In /GRÜ 91/, S. 61, schlussfolgert Gründler ebenfalls, dass: „...für die Belastungsklassen mit Brandeinwirkung (2, 3, 5, 6, 8, 9) meistens eine vollständige Freisetzung aus dem Abfallbehälter unterstellt wird (Freisetzunganteil =1)“.

Zudem zeigte Gründler in einer Analyse, dass der FA von schwerflüchtigen Nukliden vernachlässigbar ist /GRÜ 87a/.

4 Thermische Freisetzungsteile aus Behältern der Abfallbehälterklasse I

4.1 Vorbemerkungen

Die Freisetzung durch die spezifischen Freisetzungsmechanismen einer Abfallproduktgruppe erfolgt innerhalb des Abfallbehälters entweder der Abfallbehälterklasse I oder II. Während für die ABK I im Allgemeinen nur die thermische Behälterwirkung berücksichtigt wird und die Abschätzung der Freisetzung auf den Temperaturverlauf innerhalb der Abfallproduktgruppe zurückzuführen ist, wird die Integrität des Behälters in ABK II als Barriere berücksichtigt und die Freisetzung durch eine Leckrate der Behälter-Deckeldichtung modelliert. Daraus resultieren zwei unterschiedliche Herangehensweisen zur Modellierung des Freisetzungsverhaltens:

Die Modellierung der Freisetzung aus Behältern der Abfallbehälterklasse ABK I erfolgt in einem Schritt:

- Für Behälter der ABK I wird davon ausgegangen, dass die Aktivität, die aus dem Abfallprodukt in die umgebende Atmosphäre übergeht, auch freigesetzt wird. Das Behältnis wird nur insofern berücksichtigt, als es einen Wärmewiderstand darstellt, der das Temperaturfeld im Abfallprodukt beeinflusst.

Die Freisetzungsteile der ABK I resultieren aus thermischen Lastannahmen und daraus berechneten, instationären Temperaturfeldern des Abfallgebundes. Der Behältertyp als äußere Barriere beeinflusst die Temperaturübertragung auf das Abfallprodukt. Für das unterschiedliche Temperaturübertragungs-Verhalten der Behältertypen sind unterschiedliche Temperaturfelder und Freisetzungsteile der Abfallproduktgruppen zu erwarten. Gröndler vereinfacht diesen Einfluss. Er führt den Behältereinfluss auf einen einzigen Behältertyp, den Stahlblechcontainer Typ 1 (Länge: 1,6 m, Breite: 1,70 m, Höhe: 1,45 m) zur Berechnung der instationären Temperaturfelder in den Abfallproduktgruppen der ABK I /GRÜ 87/, /GRÜ 87a/ zurück.

Gröndler diskutierte zunächst in /GRÜ 87a/ die Freisetzungsmodelle per Abfallproduktgruppe und ermittelte aus der Kombination der Freisetzungsmechanismen resultierende Freisetzungsteile. In einem weiteren Schritt überträgt er die Freisetzung auf die Abfallgebunde. Dabei beeinflusst das Behältnis nur durch seine Geometrie, thermodynamischen Eigenschaften und Annahmen zum Zerstörungsgrad nach einer mechanischen

Beanspruchung des Temperaturfeldes des Abfallproduktes. Die Berechnung der Temperaturfelder im Abfallgebäude erfolgte mit einem zweidimensionalen instationären Wärmeübergangsprogramm auf Grundlage des kleinsten, dünnwandigen Stahlblechcontainers vom Typ I, der zur Einlagerung in Konrad vorgesehen war /GRÜ 87/. Zudem werden metallische Abfälle der APG 2 und 3 mit hoher Wärmeleitung angenommen. Daher sind unter diesen Bedingungen, die höchsten Inventartemperaturen zu erwarten. Die Ergebnisse dieser Temperaturfeldberechnungen wurden in /GRÜ 87/ dokumentiert. Im Folgenden werden in Tab. 4.1 die aus den Temperaturfeldern resultierenden Freisetzungsteile den Freisetzungsteilen aus den Abfallproduktgruppen ohne den Temperaturfeldberechnungen des Behältereinflusses gegenübergestellt. Es zeigte sich lediglich für APG 2 eine Differenz von 1×10^{-3} des Freisetzungsteils, bei der der Behältereinfluss anders als erwartet zu einem erhöhten Freisetzungsteil führt. Für alle anderen Abfallproduktgruppen ist keine Änderung ermittelt worden. Es ist davon auszugehen, dass der Behälter in ABK I keinerlei Barrierewirkung auf die Freisetzung ausübt. Dies kann auf sehr konservative Voraussetzungen und Annahmen zurückzuführen sein, wie die Verwendung eines kleinen, dünnwandigen Stahlblechbehälters mit maximaler Erwärmung des Gebindes im Brandfall.

Tab. 4.1 Thermische Freisetzungsteile FA von Sonstigen Nukliden und Freisetzungsteile unter Berücksichtigung der Temperaturfeldberechnung des spezifizierten Stahlblech-Behälters.

	FM und FA pro APG nach /GRÜ 87a/, Anh. I, S. 16 bis 21	FA aus Abfallgebänden nach /GRÜ 87a/, Anh. I, S. 21 bis 31 in Kombination mit Temperaturfeldberechnungen /GRÜ 87/
APG 1	Verbrennung 5×10^{-1}	5×10^{-1}
APG 2	1% Austritt: Verbrennung + Rest: Sublimation/Verdampfung (4×10^{-3}) sowie Pyrolyse ($1,6 \times 10^{-3}$)	$5 \times 10^{-3} + 4 \times 10^{-3} \approx 1 \times 10^{-2}$
APG 3	Sublimation 4×10^{-3}	4×10^{-3}
APG 4	Pyrolyse $1,6 \times 10^{-3}$	$1,6 \times 10^{-3}$
APG 5	Mitriss (50%) + Pyrolyse 5×10^{-4}	5×10^{-4}
APG 6	Mitriss 5×10^{-4}	5×10^{-4}

Für die TSK /GRÜ 91/ gilt dies auch konservativ durch die Gleichbehandlung der Abfallgebündegruppen AGG 5 und AGG 7. Obwohl beide Abfallgebündegruppen die Abfallproduktgruppe APG 5 als Inventar enthalten, deckt die Berücksichtigung des

Stahlblechcontainers (AGG 5) den Beitrag des Betonbehälters von AGG 7 bei der Berechnung der Temperaturfelder konservativ ab. In gleicher Weise berichten Richter et al. /RIC 17/ auch über die Gleichsetzung des Freisetzungsverhaltens der Abfallgebindergruppen AGG 1 und AGG 6. Die AGG 6 enthält im Vergleich zur AGG 1 zusätzlich die Abfallproduktgruppen APG 2 bis 4. Sie sind durch die Freisetzungsmechanismen Sublimation und Pyrolyse definiert (s. a. Tab. 3.2) und werden mit dem Freisetzungsmechanismus Verbrennung der APG 1 konservativ abgedeckt.

Mit der Transportstudie Konrad des Jahres 1991 /GRÜ 91a/ führte Gründler erstmals die Belastungsklassen BK 1 bis 9 ein. Sie definieren neben der Temperatureinwirkung von 800 °C für 60 Minuten auch eine Temperatureinwirkung bei 800 °C für 30 Minuten. Außerdem zitiert Gründler nicht mehr die Temperaturfeldberechnungen auf Basis des TAC-2D-Programmes aus /GRÜ 87a/, sondern Temperaturfeldberechnungen aus dem Jahr 1990, die nicht veröffentlicht wurden /GRÜ 91a/. Aus den Abschätzungen zu den Freisetzungsanteilen Gründlers in der TSK 91 geht zudem hervor, dass der kleinste Stahlblechbehälter mit metallischen Abfallprodukten in den Studien des Jahres 1987 für die APG 2 und 3 in /GRÜ 87/, S.2, /GRÜ 87a/, Anh. I, S. 25 für andere Behältertypen abdeckend angenommen wurde. In der TSK 1991 dagegen wurde auch das Wärmeübertragungsverhalten des Betonbehälters in die Überlegungen zur Ableitung der Temperaturfelder in /GRÜ 91a/, Anh. IV, S. 1 bis 28 einbezogen. Dadurch können die thermischen Freisetzungsanteile der TSK 1991 nicht unmittelbar mit den Studien Gründlers der Jahre 1984 bis 1987 verglichen werden. Dennoch nutzte Gründler in der TSK 1991 die Zuordnung zwischen Abfallgebindergruppe, Abfallproduktgruppe und den Freisetzungsmechanismen der Abfallproduktgruppe wie in Tab. 4.1., linke Spalte, und Tab. 4.2. Die Freisetzungsmechanismen sind mit den Freisetzungsanteilen in Tab. 3.3 verknüpft. In der TSK 91 werden diese seit 1984 – 1987 definierten Freisetzungsanteile mit den neueren Temperaturfeldberechnungen aus dem Jahr 1990 und den Parametern der eingeführten Belastungsklassen verwendet. Sie werden im Folgenden einzeln erläutert und in Tab. 4.3 bis Tab. 4.8 den dem Abfallprodukt spezifischen Freisetzungsanteilen gegenübergestellt. Der mechanische Anteil in den Abfallgebinden geht ebenfalls auf die TSK91 zurück. Er wurde mit der aktuellen Transportstudie 2009 TSK09 /SEN 09/ korrigiert. Hier zeigte sich, dass die Abschätzungen zu Freisetzungsanteilen bei mechanischen Einwirkungen die tatsächliche Freisetzungsanteile überschätzten. Dadurch liegen die mit mechanischen Anteilen kombinierten Gesamtfreisetzungsanteile der TSK91 höher. Jedoch blieben die rein thermischen Anteile in der TSK09 gegenüber der TSK91 unverändert /SEN 09/.

Tab. 4.2 Zuordnung von Freisetzungsteilen Sonstiger Nuklide der Abfallgebindergruppen der Belastungsklasse 9 aus der TSK 91 (linke Spalte), zu den kombinierten Freisetzungsteilen der Abfallproduktgruppen aus Tab. 4.1 (rechte Spalte)

AGG bei BK9	APG	thermische FA Sonstiger Nuklide aus den pro AGG enthaltenen APGs nach /GRÜ 87a/
AGG 1 (Stahlblechbehälter) 1x10⁻¹	APG 1	Verbrennung max. 100% Schmelzen und Ausfließen 5x10⁻¹
AGG 2 (Stahlblech- oder Betonbehälter) 1,1x10⁻¹	APG 2 APG 6	Sublimation/1%Verbrennung/Mitriss $4x10^{-3} + 5x10^{-3} + 5x10^{-4} \approx 1x10^{-2}$
AGG 3 (Stahlblech- oder Betonbehälter) 4x10⁻³	APG 3	Sublimation 4x10⁻³
AGG 4 (Stahlblech- oder Betonbehälter) 1,6x10⁻³	APG 4	Pyrolyse (30%) 1,6x10⁻³
AGG 5 (Stahlblechbehälter) 3,1x10⁻³	APG 5	Mitriss/Pyrolyse $1x10^{-4} + 4x10^{-4} = 5x10^{-4}$
AGG 6 (Betonbehälter) 1x10⁻¹	APG 1 bis APG 4	Verbrennung/Pyrolyse/Sublimation $5x10^{-3} + 4x10^{-3} + 4x10^{-3} \approx 5,1x10^{-1}$
AGG 7 (Betonbehälter) 1,6x10⁻³	APG 5	Mitriss (max.) 5x10⁻⁴

4.2 Annahmen zum Verhalten der Stahl- bzw. Betongebinde

Die thermische Schutzwirkung der Behälter hängt auch davon ab, ob die Behälter nach der mechanischen Beanspruchung entsprechend der drei Belastungsstufen (BK 1 bis 3, BK 4 bis 6, BK 7 bis 9) noch intakt sind. Hierzu gehen folgende Annahmen in die Bewertung ein:

Grundsätzlich wird die mechanische Festigkeit von Betonbehältern höher als die von Stahlbehältern eingeschätzt. Für die geringen mechanischen BK 1 bis 3 wird davon ausgegangen, dass Betonbehälter weitgehend intakt bleiben. Für die AGG 6 und 7 (immer Betonbehälter) wird beispielsweise auch von keiner mechanisch bedingten Freisetzung ausgegangen. Für die übrigen BKs wird für AGG 6 bzw. AGG 7 eine gegenüber AGG 1 bzw. AGG 5 (immer Stahlbehälter) halbierte mechanische Freisetzung angesetzt.

Für geringe mechanische Einwirkungen (BK 2 und 3) wird für Stahl- und Betongebinde unterstellt, dass die Behälterbeschädigungen nicht so groß sind, dass der Sauerstoffzutritt ein offenes Abbrennen der Abfälle zulässt. Stattdessen wird die Pyrolyse angenommen (vgl. /GRÜ 91a/ (Anh. IV, S. 8)). Diese Annahme gilt nicht für die AGG 1, da für die brennbaren, potenziell bitumösen Abfälle davon ausgegangen wird, dass die Abfälle schmelzen und außerhalb der geschädigten Behälter mit offener Flamme verbrennen (vgl. /GRÜ 91a/ (Anh. IV, S. 8)).

Ab BK 4 zitieren Gründler et al. /GRÜ 91a/ (Anh. IV, S. 13) Fallversuche mit Stahlblechfässern /SAN 83/, die ergaben, dass bei mechanischen Belastungen entsprechend der Belastungsklasse 4 mit einem Verlust des Deckels zu rechnen ist.

Bei der AGG 4 geht Gründler /GRÜ 91a/ (Anh. IV) davon aus, dass Gebinde mit innenliegenden Presslingen trotz der mechanischen Beanspruchungen in den hohen Belastungsklassen soweit die Form behalten, dass die Temperaturfeldberechnungen auch für höhere BKs gültig sind. Insofern unterscheiden sich die FA nur von der Dauer der thermischen Belastung.

4.3 AGG 1 – Brennbare, unfixierte Abfälle in Stahlblech-Containern

Für die Sonstigen Nuklide sind die Freisetzungssanteile für jede Belastungsklasse und die Freisetzungssanteile der Abfallgebindegruppen 1 und 6 in Tab. 4.3 zu finden. Es ist zu berücksichtigen, dass den spezifischen Freisetzungssanteilen der APGs nach /GRÜ 87a/ eine Brandbeanspruchung von 800 °C/60 min zugrunde liegt.

Für die AGG 1 wird angenommen, dass der Abfall brennbar ist. Sobald mit den Belastungsklassen BK 2, 3, 4, 6, 8 und 9 der Brandfall eintritt, wird davon ausgegangen, dass dieser brennbare Abfall auch brennt. Diese Annahme ist unabhängig von der mechanischen oder thermischen Belastungsklasse, so dass die Belastungsklasse keinen Einfluss auf die Freisetzung durch Verbrennung ausübt. Für die Sonstigen Nuklide sind die Freisetzungssanteile in Tab. 4.3 zu finden. Der maximale Freisetzungssanteil von 0,5 für die Verbrennung wurde von Gründler auf 0,1 reduziert (/GRÜ 91a/, Anh. IV, S. 8).

AGG 1, BK 2, 3, 5, 6, 8 und 9

Nach der TSK 91 /GRÜ 91a/ ist für die Sonstigen Nuklide mit einem FA von 0,1 zu rechnen. Für die Flüchtigen Nuklide (Tritium, C-14 und Halogene) ergibt sich nach Gründler eine 100 %ige Freisetzung.

Diese FA wurden von Brücher et al. /BRÜ 13/ und Richter /RIC 17/ übernommen. Nach /GRÜ 91a/ wird unterstellt, dass das Abfallprodukt im Brandfall schmilzt, infolge der mechanischen Beaufschlagung aus dem vorgeschädigten Behälter fließt und außerhalb des Behälters mit offener Flamme abbrennt. Brücher et al. und Richter et al. schließen sich dieser Argumentation von /GRÜ 91a/ an. Sie gehen davon aus, dass beim Verbrennen ein oberer, für Transportunfallszenarien als abdeckend betrachteter Freisetzunganteil von 10 % für Sonstige Nuklide angesetzt werden kann.

4.4 AGG 6 – Brennbare, unfixierte Abfälle in Betonbehältern

Die AGG 6 unterscheidet sich von der AGG 1 durch den Betonbehälter an Stelle des Stahlbehälters.

AGG 6, BK 2 und 3

Für die geringe mechanische Belastung der BK 2 und BK 3 wird davon ausgegangen, dass der Behälter weitestgehend intakt bleibt /RIC 17/. Auf Grund des gegenüber dem Stahlbehälter besseren thermischen Schutzes durch den Betonbehälter werden mit Ausnahme der flüchtigen C-14 und Halogene bei BK 3 alle FA zu 0 angenommen (Sonstige Nuklide und Tritium der BK 2 und BK 3, C-14 und Halogene der BK 2). Für Halogene und C-14 (angesetzter Siedepunkt 40 °C) gingen Richter et al. /RIC 17/ davon aus, dass beim einstündigen Brand der BK 3 eine gewisse Durchwärmung des Gebindes auftritt, die zu einem FA von 0,5 (C-14 und Halogene) führt.

Nach /RIC 17/ wie vor /GRÜ 91a/ wird unterstellt, dass sich das Abfallprodukt bei einem einstündigen Brand in BK 3 und der anschließenden Abkühlphase innerhalb des Betonbehälters an keiner Stelle auf mindestens 100 °C erhitzt und kein Verdampfen des wässrigen Tritiums eintritt (FA = 0). Gründler geht jedoch davon aus, dass ab BK 3 das Abfallgebilde auf über 40 °C im gesamten Volumen durchwärmt würde (C-14, Halogene: FA = 1). Dadurch würden in BK 3 die flüchtigen Nuklide C-14 und Halogene komplett

freigesetzt werden. Dies erscheint nach Richter et al. unwahrscheinlich. Daher werden von ihr in BK 3 die FA für C-14 und Halogene von 1 auf 0,5 reduziert.

AGG 6, BK 5, BK 6, BK 8 und BK 9

Ab BK 5 wird auf Grund der höheren mechanischen Beanspruchung auf den Betonbehälter davon ausgegangen, dass dieser so weit beschädigt wird, dass der Inhalt austritt bzw. nicht mehr vor Brandeinwirkung geschützt ist. Alle FA entsprechen deshalb den FA der AGG 1. Nach der TSK 91 /GRÜ 91a/ ist für die Sonstigen Nuklide mit einem FA von 0,1 zu rechnen. Für die Flüchtigen Nuklide (Tritium, C-14 und Halogene) ergibt sich nach Gröndler eine 100 %ige Freisetzung. Diese Werte wurden auch später in /RIC 17/ beibehalten.

Tab. 4.3 AGG 1 und AGG 6, thermische Freisetzungsanteile Sonstiger Nuklide für jede Belastungsklasse

	AGG 1: APG 1	AGG 6: APG 1 bis 4
BK 2	1×10^{-1}	0
BK 3		
BK 5		1×10^{-1}
BK 6		
BK 8		
BK 9		1×10^{-1}

4.5 AGG 2 – Unfixierte, nicht kompaktierbare metallische und nichtmetallische Abfälle in Stahlblech- oder Betonbehältern

Für die Sonstigen Nuklide sind die Freisetzungsanteile für jede Belastungsklasse in Tab. 4.4 zu finden. Es ist zu berücksichtigen, dass den spezifischen Freisetzungsanteilen nach /GRÜ 87a/ eine Brandbeanspruchung von 800 °C/60 min zugrunde liegt.

In der AGG 2 sind nach Tab. 2.1 die Abfallprodukte der APG 2 und APG 6 enthalten. Sie sind nach /GRÜ 91a/ durch die Freisetzungsanteile Sublimation und Pyrolyse und kein offenes Abbrennen charakterisiert. Faktisch sind gemäß Abfallspezifikation für die AGG 2 höchstens 1 % des Abfalls brenn- bzw. pyrolysierbar. Es wird davon ausgegangen, dass die Nuklide homogen im Abfall verteilt sind.

Der Restanteil des Abfalls unterliegt demnach anderen Mechanismen wie Sublimation oder Verdampfen (Hinweis: in /GRÜ 91a/ (Anh. IV, S. 8) wird fälschlicherweise von Sublimation und Pyrolyse geschrieben). Der zusätzliche Anteil resultiert nach Gründler aus den Ergebnissen der nicht veröffentlichten Temperaturfeldberechnungen aus dem Jahr 1990 und ist nicht weiter aufgeschlüsselt. Sublimation liefert aber insbesondere für höhere Temperaturen einen deutlich höheren Teilbeitrag als Verdampfen. Für die Sonstigen Nuklide wird er auf $2,0 \times 10^{-4}$ für BK 2 (S. 8) und $4,0 \times 10^{-3}$ für BK 3 (S. 11) bestimmt. Ohne dass die Temperaturfeldberechnungen vorliegen, sagt der letztere Wert von 4×10^{-3} aus, dass bei BK 3 praktisch das gesamte Gebinde auf Sublimationstemperatur gebracht wurde (vgl. Tab. 3.3).

Für Flüchtige Nuklide (Tritium, C-14 und Halogene) wird für alle thermischen Belastungsklassen eine 100 %ige Freisetzung angenommen /GRÜ 91a/ (Anh. IV, S. 8).

AGG 2, BK 2

Für Sonstige radioaktive Nuklide berechnet sich der thermische FA wie folgt:

- Abbrennen von 1 % des Abfalls mit 10 % Freisetzung: $0,01 \times 0,1 = 1 \times 10^{-3}$,
- Rest (praktisch 100 % restliche Mechanismen) 2×10^{-4} ,

so dass die Summe $1,2 \times 10^{-3}$ beträgt.

Diese thermischen FA wurden auch in /RIC 17/ von Richter beibehalten.

AGG 2, BK 3

Für Sonstige radioaktive Nuklide berechnet sich der thermische FA wie folgt:

- Abbrennen von 1 % des Abfalls mit 10 % Freisetzung: $0,01 \times 0,1 = 1 \times 10^{-3}$,
- Rest (praktisch 100 % restliche Mechanismen (v. a. Sublimation)) 4×10^{-3} ,

so dass die Summe 5×10^{-3} beträgt.

Diese FA wurde auch in /RIC 17/ von Richter beibehalten.

AGG 2, BK 5, BK 6, BK 8 und BK 9

Bei der thermischen BK 5 gehen Gründler et al. In /GRÜ 87a/ und /GRÜ 91a/ von einer großen mechanischen Schädigung aus, so dass alle brennbaren Abfallbestandteile offen abbrennen. Im Vergleich dazu wird in /GRÜ 91a/ (Anh. IV, S. 13) die Annahme getroffen, dass mit dem Verlust des Deckels zu rechnen ist (vgl. Abschnitt 4.2).

Durch die große mechanische Schädigung wurde wie für die AGG 1 eine Freisetzung von 1×10^{-1} angenommen. Richter et al. /RIC 17/ korrigierten diesen Wert um zwei Größenordnungen nach unten auf 1×10^{-3} . Ihre Argumentation ist, dass in AGG 2 nur 1 % brennbarer Abfall vorliegt und dieser Faktor offensichtlich vergessen wurde.

Bezüglich des Beitrags aus Sublimation und Verdampfen erläutert Richter in einer gegenüber /RIC 17/ korrigierten und an die Tabelle 7.2 aus /RIC 17/ angepassten Textversion:

Bei BK 5 und BK 6 kann theoretisch noch von einer verbleibenden isolierenden Eigenschaft des Behälters ausgegangen werden (lediglich „Verlust des Deckels“ /GRÜ 91a/, Anh. IV, Seite 13). Konservativ wird aber bereits bei der BK 5 ein vollständiges Durchheizen des Abfalls unterstellt und damit eine komplette Erwärmung des Abfalls über die Schwellentemperaturen für Sublimation/Verdampfen. 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 ($AED < 10 \mu\text{m}$). Höhere thermische Belastungen (BK 6) sowie höhere mechanische Belastungen (BK 8) und sowohl höhere mechanische als auch thermische Belastungen (BK 9) bezogen auf die BK 5 führen also nicht mehr zu höheren Freisetzungen kleine Aerosole.

Praktisch entsprechen für Sonstige Nuklide die Freisetzungsanteile ab BK 5 dem Anteil von BK 4:

- Abbrennen von 1 % des Abfalls mit 10 % Freisetzung: $0,01 \times 0,1 = 1 \times 10^{-3}$,
- Rest (praktisch 100 % restliche Mechanismen (v.a. Sublimation)) 4×10^{-3} ,

so dass die Summe 5×10^{-3} beträgt.

Tab. 4.4 AGG 2, thermische Freisetzungsanteile Sonstiger Nuklide für jede Belastungsklasse

AGG 2	APG2 + APG6: 1% Verbrennung + Sublimation/Mitriss $5 \times 10^{-3} + 5 \times 10^{-3} + 5 \times 10^{-4} \approx 1 \times 10^{-2}$ nach Tab. 4.2 /GRÜ 87a/
BK 2	Abbrennen von 1 % des Abfalls mit 10 % Freisetzung: $0,01 \times 0,1 = 1 \times 10^{-3}$ Rest (praktisch 100 % restliche Mechanismen) 2×10^{-4} Summe $1,2 \times 10^{-3}$
BK 3	Abbrennen von 1 % des Abfalls mit 10 % Freisetzung: $0,01 \times 0,1 = 1 \times 10^{-3}$ Rest (praktisch 100 % restliche Mechanismen (v.a. Sublimation)) 4×10^{-3} Summe 5×10^{-3}
BK 5	Wie BK 3
BK 6	Wie BK 5
BK 8	Wie BK 5
BK 9	Wie BK 5

4.6 AGG 3 – Metallische Abfälle in Stahlblech-Containern oder Betonbehältern

Für die Sonstigen Nuklide sind die Freisetzungsanteile für jede Belastungsklasse in Tab. 4.5 zu finden. Auch hier übernehmen /GRÜ 91a/ (Anh. IV, S. 28) und /RIC 17/ für die Sonstigen Nuklide die thermischen Freisetzungsanteile BK 6 von 4×10^{-3} . Die flüchtigen Nuklide wurden mit 100 % Freisetzung angenommen.

Es ist zu berücksichtigen, dass den spezifischen Freisetzungsanteilen nach /GRÜ 87a/ eine Brandbeanspruchung von 800 °C/60 min zugrunde liegt.

Bei Abfällen der AGG 3 ist nach /GRÜ 91a/, Anh. IV, S. 9, infolge thermischer Beaufschlagung nur die Freisetzung durch Sublimation bzw. Verdampfen relevant. Dadurch besteht hier bzgl. der FA eine Analogie zur AGG 2, wobei der Anteil aus dem brennbaren Anteil von 1 % bei AGG 3 wegfällt.

Für beide AGG 2 und 3 können sowohl Stahl- als auch Betonbehälter eingesetzt werden. Für die AGG 2 ging man ab der mittleren mechanischen Beanspruchung von einer deutlichen Zerstörung des Behälters aus, so dass der Abfall auch bei 30 min Branddauer

(BK 5) so exponiert war, dass für Sublimation und Verdampfen der Endwert eines FA von 4×10^{-3} angenommen wurde. Insofern werden für AGG 2 für BK 3, BK 5, BK 6, BK 8 und BK 9 jeweils die Endwerte erreicht. Im Gegensatz dazu wurden für AGG 3 jeweils für die kurzen Branddauern von 30 min (BK 2, BK 5, BK 8) gleichartige Werte von 2×10^{-4} verwendet, ohne dass der mechanische Zerstörungsgrad einen Einfluss hätte.

Alle thermischen Freisetzungsteile der AGG 3 wurden in /RIC 17/ beibehalten.

AGG 3, BK 2

Bei Abfällen der AGG 3 ist nach /GRÜ 91a/, Anh. IV, S. 9, infolge thermischer Beaufschlagung nur die Freisetzung durch Sublimation bzw. Verdampfen relevant. Dadurch wird für Sonstige Nuklide der FA zu 2×10^{-4} abgeschätzt (analog zur AGG 2 für diese Prozesse). Teilbeiträge zur Ableitung dieses Wertes liegen der GRS nicht vor.

Für Flüchtige Nuklide (Tritium, C-14 und Halogene) wurde ebenfalls analog zu AGG 2 für alle thermischen Belastungsklassen eine 100 %ige Freisetzung angenommen.

AGG 3, BK 3

Analog zur AGG 2 ergibt sich nach /GRÜ 91a/ (Anh. IV, S. 11) für Sonstige Nuklide ein FA von 4×10^{-3} und für Flüchtige Nuklide ein FA von 1.

AGG 3, BK 5

Gründler et al. /GRÜ 91a/ (Anh. IV, S. 16) übernehmen für Sonstige Nuklide den thermischen FA von 2×10^{-4} aus BK 2 der AGG 3, da die Branddauer jeweils 30 min beträgt und für die Mechanismen Sublimation und Verdampfen keine vollständige Durchwärmung angenommen wurde. Dieser Wert wurde auch in /RIC 17/ beibehalten.

Die Flüchtigen Nuklide wurden mit 100 % Freisetzung angenommen.

AGG 3, BK 6

In BK 6 verwenden Gründler et al. /GRÜ 91a/ (Anh. IV, S. 19) wieder den Endwert von 4×10^{-3} für die Freisetzung Sonstiger Nuklide aufgrund von Sublimation und Verdampfen.

Die Flüchtigen Nuklide wurden mit 100 % Freisetzung angenommen.

AGG 3, BK 8

Es werden in /GRÜ 91a/ (Anh. IV, S. 25) und in /RIC 17/ für die Sonstigen Nuklide die thermischen Freisetzungsanteile aus den geringeren mechanischen Belastungsklassen BK 2 und BK 5 von 2×10^{-4} übernommen.

Die Flüchtigen Nuklide wurden mit 100 % Freisetzung angenommen.

AGG 3, BK 9

Auch hier übernehmen /GRÜ 91a/ (Anh. IV, S. 28) und /RIC 17/ für die Sonstigen Nuklide die thermischen Freisetzungsanteile BK 6 von 4×10^{-3} .

Die Flüchtigen Nuklide wurden mit 100 % Freisetzung angenommen.

Tab. 4.5 AGG 3, thermische Freisetzungsanteile Sonstiger Nuklide für jede Belastungsklasse

AGG 3	APG3 Sublimation 4×10^{-3} nach Tab. 4.2 /GRÜ 87a/
BK 2	Sublimation 2×10^{-4}
BK 3	Sublimation 4×10^{-3}
BK 5	Wie BK 2: Sublimation 2×10^{-4}
BK 6	Wie BK 3: Sublimation 4×10^{-3}
BK 8	Wie BK 2: Sublimation 2×10^{-4}
BK 9	Wie BK 3: Sublimation 4×10^{-3}

4.7 AGG 4 – Kompaktierte Abfälle in Stahlblechcontainern oder Betonbehältern

Für die Sonstigen Nuklide sind die Freisetzungsanteile für jede Belastungsklasse in Tab. 4.6 zu finden. Es ist zu berücksichtigen, dass den spezifischen Freisetzungsanteilen nach /GRÜ 87a/ eine Brandbeanspruchung von 800 °C/60 min zugrunde liegt.

In den Überlegungen zum mechanischen Verhalten der Gebinde geht Gröndler /GRÜ 91a/ (Anh. IV) davon aus, dass trotz mechanischer Beanspruchung insbesondere aus der hohen Belastungsklasse, BK 7-9 die Gebinde mit den innenliegenden

Presslingen soweit die Form behalten, dass die Temperaturfeldberechnungen jeweils auch für höhere BK gültig sind. Insofern unterscheiden sich die FA nur von der Dauer der thermischen Belastung.

Für Flüchtige Nuklide (Tritium, C-14 und Halogene) wurde analog zu AGG 2 und 3 für alle thermischen Belastungsklassen eine 100 %ige Freisetzung angenommen.

In /RIC 17/ wurden alle thermischen FA übernommen.

AGG 4, BK 2, gilt auch für BK 5 und BK 8

Für die Abfallgebindegruppe 4 sind nach /GRÜ 91a/ (Anh. IV, S. 9), die Freisetzungsmechanismen Pyrolyse, Sublimation und Verdampfen relevant. Bei Brücher /BRÜ 13/ wurde für diese AGG nur Pyrolyse als Freisetzungsmechanismus angegeben. Gründer bezieht sich auf instationäre Temperaturfeldberechnungen und auf Experimente der NUKEM GmbH, bei der die Pyrolysevorgänge in der ca. 10 mm dicken Außenschicht des Gebindes ablaufen. Dies entspräche bei Stahlblechbehältern ca. 4 Vol-% der Abfallmenge. Für den bedingten Freisetzunganteil der Pyrolyse ergibt sich nach /GRÜ 86/ ein Wert von 5×10^{-3} für Sonstige Radionuklide (vgl. Abschnitt 0). Auf die 4 Vol-% des Behälters bezogen, resultiert daraus ein FA von $0,04 \times 5 \times 10^{-3} = 2 \times 10^{-4}$ nach /GRÜ 91a/ (Anh. IV, S. 9).

Im nächsten Satz berichtet Gründer: *„Daneben ist ggf. wie bei der Abfallgebindegruppe 3 die Freisetzung durch Pyrolyse mit einem Freisetzunganteil von 2×10^{-4} zu berücksichtigen. Damit betragen die Freisetzungsteile für Sonstige Radionuklide 4×10^{-4} , wobei eine Freisetzung im Größenintervall $< 10 \mu\text{m}$ unterstellt wird.“* Gründer berücksichtigt den FA der Pyrolyse zweimal. Es kann nur gemutmaßt werden, dass er den Freisetzunganteil von 2×10^{-4} der Sublimation aus AGG 3 meinte.

Der FA für Sonstige Nuklide beträgt entsprechend 4×10^{-4} mit Beiträgen aus Pyrolyse ($0,04 \times 5 \times 10^{-3} = 2 \times 10^{-4}$) und nicht weiter aufgeschlüsselten Beiträgen (vgl. AGG 3) aus Sublimation und Verdampfen (2×10^{-4}).

Für BK 5 geht Gründer davon aus, dass die Integrität der Behälter gemindert ist, aber die Struktur der Presslinge nicht beeinträchtigt wurde. Deshalb übernimmt Gründer nach /GRÜ 91a/ Anh. IV, S. 17 den FA aus der BK 2.

Für BK 8 übernimmt Gründer /GRÜ 91a/ (Anh. IV, S. 26) ebenfalls den FA von $4,0 \times 10^{-4}$ aus BK 2 aufgrund der angenommenen intakten Presslinge.

AGG 4, BK 3, gilt auch für BK 6 und BK 9

Es wurde die Freisetzung aufgrund der Temperaturverläufe aus den nicht veröffentlichten Unterlagen zugrunde gelegt. Gründer diskutiert in /GRÜ 91a/ (Anh. IV, S. 12) auch einen erhöhten FA durch Pyrolyse und Sublimation aufgrund der längeren Brandeinwirkung gegenüber BK 2. So ergibt sich ein thermischer Freisetzunganteil für Sonstige Nuklide von $1,6 \times 10^{-3}$ /GRÜ 91a/ (Anh. IV, S. 12). Die Einzelbeträge sind nicht aufgeschlüsselt.

In aktuelleren Arbeiten der GRS /BRÜ 13/, /RIC 17/ finden sich ebenfalls keine Hinweise zur Berechnung des gegebenen FA.

Wenn davon ausgegangen wird, dass der FA sich analog zur BK 2 aus einem Sublimationsanteil von 2×10^{-4} und einem restlichen Pyrolyseanteil zusammensetzt, beträgt der Pyrolyseanteil noch $1,4 \times 10^{-3}$. Bei einem bedingten FA für Pyrolyse von 5×10^{-3} müssen entsprechend ca. $1,4 \times 10^{-3} / 5 \times 10^{-3} \approx 28\%$ des Gebindevolumens die Temperaturschwelle von 300 °C erreicht haben (zum Vergleich 4% bei BK 2 mit 30-minütiger Brandbelastung.).

Für BK 6 und BK 9 argumentiert Gründer in /GRÜ 91a/ Anh. IV, S. 20 bzw. S 28, dass die Integrität nicht mehr gegeben sei, die Presslinge jedoch nahezu unbeschädigt geblieben seien. Damit übernimmt er den FA von $1,6 \times 10^{-3}$ in dieser BK.

Tab. 4.6 AGG 4, thermische Freisetzunganteile Sonstiger Nuklide für jede Belastungsklasse

AGG 4	APG4 Pyrolyse (100%) 5×10^{-3} nach Tab. 4.2 /GRÜ 87a/
BK 2	Pyrolyse: $4\% * 5 \times 10^{-3} = 2 \times 10^{-4}$ + Sublimation: $2 \times 10^{-4} = 4 \times 10^{-4}$
BK 3	Pyrolyse: $28\% * 5 \times 10^{-3} = 1,4 \times 10^{-3}$ + Sublimation: $2 \times 10^{-4} = 1,6 \times 10^{-3}$
BK 5	Wie BK 2
BK 6	Wie BK 3
BK 8	Wie BK 2
BK 9	Wie BK 3

4.8 AGG 5 – Zementfixierte Abfälle in Stahlblechcontainern

Für die Sonstigen Nuklide sind die Freisetzungsteile für jede Belastungsklasse in Tab. 4.7 zu finden. Es ist zu berücksichtigen, dass den Abfallproduktgruppen spezifischen Freisetzungsteilen nach /GRÜ 87a/ eine Brandbeanspruchung von 800°C/60 min zugrunde liegt.

AGG 5, BK 2

Die thermischen Freisetzungsteile der AGG 5 basieren auf Pyrolyse und Verdampfen von Wasser/Mitriss. Als Ergebnis der Temperaturfeldberechnungen wird dargestellt, dass sich für Freisetzung durch Pyrolyse wie bei Abfallgebindegruppe 4 ein Volumenanteil von 4 % (300 °C Isotherme bei maximal 10 mm Tiefe) und für die Freisetzung durch Verdampfen von Wasser von 12 % (100 °C Isotherme liegt ca. 3 cm von der Oberfläche) ergibt (/GRÜ 91a/, Anh. IV, S. 9).

Ohne weitere Zwischenrechnungen gibt Gründler als thermischen FA für Sonstige Nuklide den Wert $2,1 \times 10^{-4}$ an (/GRÜ 91a/, Anh. IV, S. 9). Dieser Wert kann nicht nachvollzogen werden, denn es ergeben sich für die beiden Prozesse mit den bedingten Freisetzungsteilen (vgl. Tab. 3.3) die Anteile

- Pyrolyse: $4 \% \times 5 \times 10^{-3} = 2 \times 10^{-4}$ und
- Verdampfen/Mitriss: $12 \% \times 5 \times 10^{-4} = 6 \times 10^{-5}$,

so dass die Summe $2,6 \cdot 10^{-4}$ beträgt.

Richter /RIC 17/ hatte eine entsprechende Erhöhung des dokumentierten FA von $2,1 \times 10^{-4}$ auf den Wert $2,6 \times 10^{-4}$ bereits vorgenommen. Richter hat zudem diskutiert, dass möglicherweise 16 % des Abfallvolumens auf über 100 °C erwärmt wurden, da ja 4 % auf über 300 °C erwärmt wurden und dieses Volumen sonst von zwei Prozessen betroffen wäre.

Wenn allerdings für das Referenzgebäude, den Stahlblechcontainer Typ I (Länge: 1,60 m, Breite: 1,70 m, Höhe: 1,45 m) die jeweiligen dokumentierten Eindringtiefen von 0,03 m bzw. 0,01 m der 100 °C bzw. 300 °C Isothermen eingesetzt werden, lassen sich die dokumentierten Volumina mit 11,0 % und 3,8 % im Rahmen der dokumentierten Genauigkeit bestätigen.

Selbst wenn Gründer in seinen Zwischenrechnungen davon ausgegangen wäre, dass Verdampfen/Mittriss nur in 8 % des Abfalls stattfinden kann, weil die Pyrolyse bzgl. der Freisetzung effektiver ist, ergäbe sich

- Pyrolyse: $4 \% \times 5 \times 10^{-3} = 2 \times 10^{-4}$ und
- Verdampfen/Mittriss: $(12 \% - 4 \%) \times 5 \times 10^{-4} = 4 \times 10^{-5}$,

so dass die Summe $2,4 \cdot 10^{-4}$ beträgt.

Der von Gründer genannte Wert von $2,1 \times 10^{-4}$ lässt sich auch dadurch nicht bestätigen, so dass die Korrektur von Richter hier für sinnvoll gehalten wird. Die Annahmen von Richter zu den betroffenen Teilvolumina können allerdings nicht bestätigt werden.

Der Freisetzunganteil für Halogene wird auf 5×10^{-1} abgeschätzt, für C-14 ergibt sich bei der Abfallgebindegruppe 5 der gleiche Wert wie für Sonstige Radionuklide, da das Nuklid C-14 als Karbonat vorliegt. Die Tritiumfreisetzung von 6×10^{-2} ergibt sich unter Berücksichtigung der 100 °C-Isotherme bei einem verdampfbaren Wasseranteil von 50 %.

AGG 5, BK 3

Für die BK 3 legt Gründer /GRÜ 91a/, Anh. IV, S.12 die Temperaturfeldberechnungen des Jahres 1990 zugrunde. Demnach ergeben sich die thermischen Freisetzunganteile für C-14 zu 5×10^{-4} , für Tritium zu 5×10^{-1} und für Sonstige Nuklide zu 5×10^{-4} . Die jeweiligen Volumenanteile der Isothermen sind nicht genannt.

AGG 5, BK 5

Für diese BK nimmt Gründer /GRÜ 91a/, Anh. IV, S.17 für Sonstige Nuklide an, dass *„bezüglich thermischer Beaufschlagung ... bei Belastungsklasse 5 unterstellt (wird), 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 Mitverdampfung (Freisetzunganteil $5E-4$) freigesetzt werden.“*

Es ergibt sich rechnerisch

- Pyrolyse: $50 \% \times 5 \times 10^{-3} = 2,5 \times 10^{-3}$ und

- Verdampfen/Mitriss: $50 \% \times 5 \times 10^{-4} = 2,5 \times 10^{-4}$,

so dass die Summe $2,8 \times 10^{-3}$ beträgt.

Trotz obiger Textaussage wurde für die BK 5 ein Wert von $1,1 \times 10^{-3}$ verwendet, der von Richter /RIC 17/ auf $2,8 \times 10^{-3}$ korrigiert wurde.

Beim Verdampfen/Mitriss sind die „50 %“ so zu verstehen, dass zwar 100 % des Abfalls auf mindestens 100 °C Temperatur erwärmt werden, aber nur 50 % des gebundenen Wassers auch verdampfen. Diese Annahme ist analog der Annahme für BK 2 für Tritium, allerdings nicht analog der Annahme für das Verdampfen/Mitriss Sonstiger Nuklide. Insofern besteht hier keine Konsistenz.

Der FA von Tritium wird entsprechend auch mit 0,5 (aus Verdampfen) angenommen. Für die flüchtigen Halogene beträgt der FA 1. Die Freisetzung für C-14 wird wie für die Sonstigen Nuklide mit $2,8 \times 10^{-3}$ abgeschätzt.

AGG 5, BK6, BK 8 und BK 9

Für die BK 6 werden die gleichen Annahmen getroffen wie für die BK 5. Entsprechend werden für alle Nuklide die gleichen Werte wie für die BK 5 abgeschätzt.

Tab. 4.7 AGG 5, thermische Freisetzungsanteile Sonstiger Nuklide für jede Belastungsklasse

AGG 5	APG5 Mitriss/Pyrolyse $1 \times 10^{-4} + 4 \times 10^{-4} = 5 \times 10^{-4}$ nach Tab. 4.2 /GRÜ 87a/
BK 2	Pyrolyse: $4 \% \times 5 \times 10^{-3} = 2,0 \times 10^{-4}$ Mitriss: $12 \% \times 5 \times 10^{-4} = 6,0 \times 10^{-5}$ Summe: $2,6 \times 10^{-4}$
BK 3	Pyrolyse: $? \% \times 5 \times 10^{-3} = ?$ Mitriss: $? \% \times 5 \times 10^{-4} = ?$ Summe: $5,0 \times 10^{-4}$
BK 5	Pyrolyse: $50 \% \times 5 \times 10^{-3} = 2,5 \times 10^{-3}$ Mitriss: $50 \% \times 5 \times 10^{-4} = 2,5 \times 10^{-4}$ Summe: $2,8 \times 10^{-3}$
BK 6	Wie BK 5
BK 8	Wie BK 5
BK 9	Wie BK 5

4.9 AGG 7 – Zementfixierte Abfälle in Betonbehältern

Für die Sonstigen Nuklide sind die Freisetzungsteile für jede Belastungsklasse in Tab. 4.8 zu finden. Es ist zu berücksichtigen, dass den spezifischen Freisetzungsteilen nach /GRÜ 87a/ eine Brandbeanspruchung von 800°C/60 min zugrunde liegt.

AGG 7, BK 2 und BK 3

Die AGG 7 wird in /GRÜ 91a/, Anh. IV, S. 12, für die BK 2 und 3 wie die AGG 6 behandelt, d. h. es wird von unwesentlichen Beschädigungen der Betonbehälter ausgegangen, so dass ein hoher thermischer Schutz bestehen bleibt. Für die BK 2 betragen die FA aller Nuklide den Wert 0.

Für die BK 3 gab Richter /RIC 17/ 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 schien in den in der TSK 09 dokumentierten Werten nicht berücksichtigt worden zu sein. Die FA für C-14 der BK 3 waren hier also zu hoch und konnten auf den Wert 0 entsprechend der FA der Sonstigen Nuklide korrigiert werden.

Für die leichtflüchtigen Halogene nahm Richter /RIC 17/ in BK 3 eine Reduktion von 1 auf 0,5 vor.

AGG 7, BK 5 und BK 6

Für die BK 5 wurde für die AGG 7 in /GRÜ 91a/, Anh. IV, S. 18f, 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 Freisetzungsteile der Abfallbindegruppe 5 angesetzt. ... Für Halogene und H-3 wird ein Freisetzungsteil von 1 unterstellt, jeweils im Größenintervall < 10 µm. Für C-14 werden die Freisetzungsteile der sonstigen radioaktiven Stoffe übernommen.“*

Diese Argumentation, nur die FA von Sonstigen Nukliden und C-14 gegenüber AGG 5 zu halbieren, die FAs von H-3 und Halogenen aber bei 1 zu belassen, fand Richter /RIC 17/ nicht konsequent. Sie nahm konsequent eine Halbierung der FA der AGG 7

gegenüber der AGG 5 vor, wobei die Bezugswerte der AGG 5 für Sonstige Nuklide und C-14 ebenfalls von ihr geändert wurden.

Die Freisetzungsanteile der BK 5 und 6 betragen entsprechend für Sonstige Nuklide und C-14 je $1,4 \times 10^{-3}$ sowie für H-3 nun 0,25 (Bezüglich H-3 wurde für die AGG 5 argumentiert, dass lediglich 50 % des Wassers als verdampfbar angenommen würden, wie unter BK 2 in /GRÜ 91a/, Anh. IV, S. 10 erwähnt) und für Halogene entsprechend 0,5.

AGG 7, BK 8 und BK 9

Gleichermaßen wurden die FA der BK 8 und 9 durch Richter /RIC 17/ überarbeitet:

Wie für die BK 5 und 6, wurden hier C-14 wie die Sonstigen Nuklide behandelt und H-3 sowie Halogene mit der Hälfte der entsprechenden Werte der AGG 5 veranschlagt.

Es ergeben sich die gleichen Werte wie für BK 5 und 6.

Tab. 4.8 AGG 7, thermische Freisetzungsanteile Sonstiger Nuklide für jede Belastungsklasse

AGG 7	APG5 Mitriss (max) 5×10^{-4} nach Tab. 4.2 /GRÜ 87a/
BK 2	Wie AGG 6: 0
BK 3	Wie AGG 6: 0
BK 5	50% von AGG 5: $1,4 \times 10^{-3}$
BK 6	50% von AGG 5: $1,4 \times 10^{-3}$
BK 8	50% von AGG 5: $1,4 \times 10^{-3}$
BK 9	50% von AGG 5: $1,4 \times 10^{-3}$

5 Thermische Freisetzungsteile aus Behältern der Abfallbehälterklasse II in AGG 8

5.1 Vorbemerkungen

Der Beitrag zur Freisetzung von Behältern der ABK II betrifft die Abfallgebindegruppe 8. Sie enthält jedoch Abfallprodukte der Gruppen APG 1 bis APG 6. Als Referenzbehälter wird der Gussbehälter Typ II 16 seit der Studie 1984 /GRÜ 84/ herangezogen. Er zeichnet sich im Vergleich mit dem definierten Stahlblechbehälter der Abfallbehälterklasse I, durch eine erhöhte mechanische Integrität und insbesondere Dichtheit aus, wie in Abschnitt 2.2 erläutert wurde. Die Freisetzung aus dem Behälter erfolgt über ein Leck der Deckeldichtung aufgrund der Vorschädigung durch einen mechanischen Aufprall. Dadurch wird in Belastungsklasse 3 und 6 in erhöhtem Maße Aktivität freigesetzt. Es wird angenommen, dass durch das Leck keine Luft in den Behälter eindringt und das Abfallprodukt nicht offen abbrennen kann /GRÜ 91a/. Die Vorgehensweise zur Abschätzung der Freisetzung erfolgt in zwei Schritten:

- Zunächst wird in Abhängigkeit von der berechneten instationären Innentemperatur die Freisetzung aus dem Abfallprodukt in die Behälteratmosphäre bestimmt. Die Freisetzung in die Behälteratmosphäre wird durch Korrelation der Freisetzungsmechanismen der Produktklasse mit rechnerisch ermittelten Temperaturfeldern im Behälter ermittelt. Hierbei werden unterschiedliche Freisetzungsmechanismen der jeweiligen Abfallproduktgruppe berücksichtigt. Überschreitet das Abfallprodukt die Schmelztemperatur bzw. werden Temperaturen $> 373 \text{ K}$ erreicht, so ist für Tritium, C-14 in leichtflüchtiger Verbindung und Halogene Nuklide als Freisetzungsmechanismus Sublimation zu unterstellen. Für Sonstige Radionuklide wird eine Freisetzung durch Mitriss durch Verdampfen von Wasser im Abfallprodukt angenommen.
- Im zweiten Schritt wird der ausströmende Anteil der Behälteratmosphäre in die Umgebung durch Integration der berechneten Temperatur und Druckwerte und daraus resultierenden Leckrate bzw. resultierenden ausströmenden Volumenstroms ermittelt. Dafür wird aus den thermodynamischen Zustandsgrößen der Leckratenverlauf berechnet und hiermit die Menge des integral ausgeströmten Gases bestimmt. Unter der konservativen Annahme, dass die Aktivitätskonzentration des freigesetzten Gases in Bq/Mol mit der Konzentration im Behälter übereinstimmt, ergibt sich die freigesetzte Aktivität als Produkt der Molzahl des ausgeströmten Gases mit der

Aktivitätskonzentration. Die ermittelte Aktivitätskonzentration im Volumenstrom des ausströmenden Gases ergibt den Freisetzungsanteil.

Die treibende Kraft für die Freisetzung ist der Überdruck infolge der Temperaturerhöhung eines Brandes. Aufgrund der guten Wärmeleitung des Behälterwerkstoffes Gusseisen erwärmt sich das Abfallprodukt verbunden mit einem Anstieg des Innendruckes.

5.2 Freisetzung innerhalb des Behälters

Für die Freisetzung in die Behälteratmosphäre werden die gleichen Freisetzungsmechanismen wie die der Abfallproduktgruppe APG 1-6 für die ABK I berücksichtigt. Jedoch wird ein alle Freisetzungsmechanismen abdeckender Freisetzungsanteil durch Sublimation für Sonstige Radionuklide mit 4×10^{-3} abgeschätzt. Mit diesem FA ist die Pyrolyse von 80 Vol-% des Inventars abgedeckt, wie bereits in Abschnitt 3.5 für die Sublimationskinetik diskutiert wurde. Dies setzt eine Temperatur der Abfallprodukte im Inneren des Behälters von über 573 K gemäß Tab. 3.3 voraus. Sie wurde nach /GRÜ 84/, Anh. II, S. 16, für einen Stahlblechbehälter mit Wandinnentemperaturen von 800 °C ermittelt. Er ergibt sich aus den Temperaturfeldrechnungen von Gründler und Peiffer /GRÜ 87/. In Bezug auf die Konservativität ist der ungewöhnlich hohe Pyrolyse-Volumenanteil von 80 % mit Anteilen aus Brandversuchen der Literatur an verschiedenen Abfallgebinden verglichen worden. Diese ergaben einen erheblich geringeren Anteil des von Pyrolyse betroffenen Volumenanteils als die angenommenen und simulierten 80 Vol-% /GES 85/, /TRA 85/.

Für die APG 05 und 06 in AGG 8 ist zudem mit einer Freisetzung durch Mitrisis durch den Wasserdampf zu rechnen. Eine Abschätzung der Freisetzung von Abfallproduktgruppen in AGG 8 ergibt sich in Tab. 5.1. Der letztlich resultierende FA für die Abfallproduktgruppen APG 05 und 06 resultiert aus dem Wasserdampfanteil X in der Behälteratmosphäre zusammen mit dem diskutierten Sublimationsanteil 4×10^{-3} in einem linearen Verhältnis gemäß $FA = X * 4 \times 10^{-3}$ (vgl. Abschnitt 3.5). Gründler unterstellt, dass das Tritium in ABK II-Behältern in wässriger Form vorliegt. Es verdampft durch den Temperaturanstieg. Es gilt, dass der Tritiumanteil in der Behälteratmosphäre dem Dampfanteil der Gesamtwassermasse X entspricht.

Tab. 5.1 Freisetzungsanteile in die Behälteratmosphäre für die Abfallproduktgruppe APG 1-6 in der AGG 8 in Abhängigkeit des Wasserdampfanteils X für die thermischen Lastfallbedingungen 800 °C und 60 min gemäß /GRÜ 87a/

	Halogen	C-14	Tritium	Sonstige Radionuklide
APG 01	1	1	X	$4 \cdot 10^{-3}$
APG 02	1	1	X	$4 \cdot 10^{-3}$
APG 03	1	1	X	$4 \cdot 10^{-3}$
APG 04	1	1	X	$4 \cdot 10^{-3}$
APG 05	1	$X \cdot 4 \cdot 10^{-3}$	X	$X \cdot 4 \cdot 10^{-3}$
APG 06	1	$X \cdot 4 \cdot 10^{-3}$	X	$X \cdot 4 \cdot 10^{-3}$

Die Wassermasse im Behälter wird im Zusammenhang mit den Parametern der Eingabeparameter einer Ausströmrechnung in /GRÜ 84/ diskutiert.

Gemäß Tab. 5.1 kann unabhängig vom Mischungsverhältnis der Abfallproduktgruppen ein Freisetzungsanteil in die Behälteratmosphäre von maximal $4 \cdot 10^{-3}$ vorausgesetzt werden. Dies gilt für die 1987 geltende Brandbeanspruchung von 800 °C über 60 Minuten und entspricht der thermischen Belastung von BK 9.

5.3 Freisetzung aus der Behälteratmosphäre über eine Leckrate in die Umgebung

Aus der Freisetzung in die Behälteratmosphäre ergibt sich durch den temperaturbedingten Druckaufbau eine Gesamt-Leckrate und die Freisetzung in die Umgebungsatmosphäre. Gründler führt dazu aus, dass die verdampfbare Wassermasse im Hinblick auf den Druckaufbau von erheblicher Bedeutung ist. Mit steigender Temperatur verdampft ein Teil des Wassers und bewirkt so einen Behälterinnendruck, der in etwa dem Sättigungsdampfdruck entspricht. Wird die Masse des verdampfenden Wassers so gewählt, dass während des Aufheizvorgangs die gesamte Wassermasse verdampft, dann fällt die Drucksteigerung im Behältnis und damit der freigesetzte Aktivitätsanteil zu klein aus. Andererseits bewirkt eine zu große Wassermasse, abhängig von maximaler Behälterinnenwandtemperatur und Behälterleervolumen, keine weitere Drucksteigerung. Sie führt jedoch zu einem kleineren Tritiumanteil in der Behälteratmosphäre /GRÜ 87a/. Neben der im Behälter vorliegenden Wassermasse ist für den Druckaufbau im Behälter das

Leervolumen ähnlich sensitiv /GRÜ 84/. Die von Gründler gemachten Annahmen für diese Parameter sind pro APG in Tab. A1 (Anhang) zusammen mit den ermittelten Freisetzungsteilen aus der Leckrate zu finden.

5.4 AGG 8 – Abfälle in Gussbehältern der ABK II

Mit der Einführung von Belastungsklassen in der TSK 91 publizierte Gründler et al. auch für die AGG 8 /GRÜ 91a/ Freisetzungsteile auf Basis der nicht veröffentlichten Temperaturfeldrechnungen 1990. Die zweistufige Herangehensweise für die Abfallbehälterklasse II aus der Systemstudie von 1987 wird in der TSK 91 nicht diskutiert. Eine Unterscheidung zwischen der Freisetzung in und aus der Behälteratmosphäre wurde jedoch von Brücher et al. 2013 gemacht. Hieraus wurden die Freisetzungsteile der TSK 91 als Freisetzung in die Behälteratmosphäre übernommen. Die aus dem Behälter freigesetzten Anteile sind nicht benannt worden /BRÜ 13/, S. 76.

Im Folgenden sind die Freisetzungsteile pro Belastungsklasse, wie in der TSK 91 diskutiert, wiedergegeben:

AGG 8, BK 2 und BK 5

Bei Abfällen der Abfallgebindegruppe 8 kommt es aufgrund der guten Wärmeleitung des Behälterwerkstoffes zu Erwärmung des Abfallproduktes verbunden mit einem Anstieg des Innendruckes. Auf der Basis instationärer Temperaturfeldrechnungen aus dem Jahr 1990 für einen 40-min Brand ergeben sich daraus nach /GRÜ 91a/ (Anh. IV, S. 10) die Freisetzungsteile:

- Halogene $1,6 \times 10^{-4}$
- C-14 $1,6 \times 10^{-4}$
- H-3 $7,3 \times 10^{-7}$
- Sonstige Nuklide $1,1 \times 10^{-7}$

Das Schadensbild bei Belastungsklasse 5 unterscheidet sich nur unwesentlich von dem der Belastungsklasse 2. Daher übernimmt Gründler die Freisetzungsteile der Belastungsklasse 2.

AGG 8, BK 8

Gründler /GRÜ 91a/ (Anh. IV, S. 27) schreibt hierzu:

„Bei Abfällen der Abfallgebindegruppe 8 ist bei Belastungsklasse 8 zu erwarten, daß die bei thermischer Beaufschlagung aus dem Abfallprodukt austretenden radioaktiven Stoffe infolge des unterstellten Lecks im Deckelbereich aus dem Abfallgebilde 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 Belastungsklasse 2 entspricht.“

Die Freisetzungsanteile der AGG 5, BK 2 (vgl. Abschnitt 4.8) setzen sich aus Pyrolyse und Verdampfen/Mitriss zusammen, wobei die Berechnung von Gründler nicht nachvollziehbar war und von Richter /RIC 17/ die Werte korrigiert wurden. Für die Sonstigen Nuklide ergibt sich entsprechend ein FA von $2,6 \times 10^{-4}$.

Nach Richter ist bei der Übertragung der FA der AGG 5, BK 2 zudem zu beachten, dass es sich bei der AGG 5 um zementfixierte Abfälle handelt. Bei der AGG 8 kann diese Konditionierung aber nicht vorausgesetzt werden, so dass C-14 nicht als Karbonat, sondern organisch gebunden vorliegt. Für C-14 ist daher nicht der FA der Sonstigen Nuklide zu verwenden, sondern der FA der Halogene mit einem Wert von 0,5.

Für H-3 wurde der FA der AGG 5, BK 2 mit 6×10^{-2} abgeschätzt und entsprechend für die AGG 8, BK 8 übernommen.

AGG 8, BK 9

In BK 9 wird durch die mechanische Beaufschlagung ein Leck im Behälter unterstellt. Dadurch wird gegenüber Belastungsklasse 3 und 6 ein erhöhtes Maß an Aktivität freigesetzt. Das Abfallprodukt kann nicht offen abbrennen. Als Freisetzungsmechanismen sind daher nur Pyrolyse, Sublimation und Freisetzung durch Mitriss relevant. Sublimation stellt nach dem unveröffentlichten Bericht des Jahres 1990 den ungünstigsten Freisetzungsmechanismus für Belastungsklasse 9 dar. Als Freisetzungsanteil wird hierfür der für die AGG 3 in Belastungsklasse 3 abgeleitete Wert von 4×10^{-3} für Sonstige Nuklide verwendet /GRÜ 91a/ (Anh. IV, S. 30)

Gründler übernahm für Tritium, C-14 und Halogene die Freisetzungsteile der Belastungsklasse 6, wobei der Bezug zur AGG 5 sinnvoll ist (vgl. Richter /RIC 17/).

Es ergeben sich die Freisetzungsteile:

- Halogene 1,0
- C-14 1,0
- H-3 0,5
- Sonstige Nuklide $4,0 \times 10^{-3}$

Tab. 5.2 AGG 8, thermische Freisetzungsteile Sonstiger Nuklide für jede Belastungsklasse

AGG 8	APG 1 bis 6 Pyrolyse/Mitriss/Sublimation 4×10^{-3}
BK 2	$1,1 \times 10^{-7}$
BK 3	2×10^{-5}
BK 5	Wie BK 2
BK 6	Wie BK 3
BK 8	$2,6 \times 10^{-4}$ (wie AGG 5/BK 2)
BK 9	4×10^{-3} (wie AGG 3/BK 3)

6 Simulation der thermischen Belastung in Gebinden aufgrund von Brandeinwirkungen

6.1 Ausgangslage

In diesem Abschnitt wird auf die damals verwendeten Methoden zur Bestimmung der thermischen Belastung in Gebinden aufgrund von Brandeinwirkungen eingegangen. Die Vorgänge hinsichtlich der thermischen Freisetzung im jeweiligen Gebinde wurden damals mit 2D-Wärmeleitungsprogrammen modelliert und die Ergebnisse im weiteren Post-Processing für die Bestimmung von Freisetzunganteilen von radioaktiven Spaltprodukten verwendet. Spätere Rechentools wurden bei ISTec entwickelt und stehen der GRS nicht zur Verfügung.

Die Beschreibung der zur Verfügung stehenden Ausgangslage basiert im Wesentlichen auf den Berichten von Piefke und Kriegel //PIE 84// sowie Gründler /GRÜ 87/. In beiden Berichten werden 2D-Wärmeleitungsrechnungen mit dem damaligen Modell TAC2D //PET 69// für verschiedene Gebinde berechnet und die Temperaturverteilung zu einzelnen Zeiten angegeben. Weitere Daten stehen nicht zur Verfügung. Als Randbedingung wird der Verlauf der sogenannten PTB-Kurve vorgegeben.

Aus Vergleichsgründen wurden in diesem Vorhaben entsprechende Rechnungen durchgeführt mit dem Ziel, die Ergebnisse beider Simulationsketten zu vergleichen und vorhandene Unterschiede zu bewerten. Folgende Gebinde wurden betrachtet:

- Gebinde 1: 400 l Betonzylinder (Radius: 0,355 m, Höhe: 0,54 m)
- Gebinde 2: Stahlblechcontainer Typ I (Länge: 1,60 m, Breite: 1,70 m, Höhe: 1,45 m)
- Gebinde 3: Gussbehälter Typ II (Durchmesser: 1,06 m, Höhe 1,50 m)

In allen Fällen wurde in //PET 69// zur Einsparung der Rechenzeit ein Viertelsegment betrachtet. Bei zylindrischen Behältern ist dieses aus Symmetriegründen möglich. Für den Container wurde ein Viertel der xz-Ebene simuliert und somit Randeffekte beim 2-D-Modell in y-Richtung nur vereinfacht abgebildet.

Im Vergleich zu heutigen Simulationsprogrammen ist die Gitterauflösung in den TAC2D Rechnungen sehr grob. Dies gilt einerseits für die Simulation eines Luftspalts zwischen Behälterinnenwand und Abfallaußenseite sowie der Wärmeleitung in das Gebinde.

Durch die gröbere Gitterstruktur wird die Wärmeleitung in das Gebinde aufgrund der numerischen Diffusion überschätzt.

In den hier betrachteten Fällen wurden die in Tab. 6.1 dargestellten Stoffwerte angenommen. Für das 400 l Betongebinde werden die veränderten Stoffwerte nach dem Austrocknen des Betons berücksichtigt. In dem verwendeten Modell erfolgt das Austrocknen sprunghaft bei Überschreiten des Siedepunkts von 100 °C. Tatsächlich finden im Beton eine Reihe chemischer Prozesse /MAN 75/ statt, so dass weit höhere Temperaturen (ca. 400 °C) notwendig sind, um den Beton auszutrocknen. Insofern ist dieses Modell eine starke Vereinfachung und führt zu konservativen Ergebnissen, da der Verdampfungsprozess überschätzt wird. Berücksichtigt wird ebenfalls die notwendige Energie zum Verdampfen des Wassers. Da der Beton im Modell bei 100 °C austrocknet, führt dies zu phasenweisen konstanten Temperaturen, da die zugeführte Energie vollständig für das Verdunsten des Wassers verwendet wird.

Beim Stahlblechcontainer wird das Gebinde (Füllung) durch ein 3 mm dickes Stahlblech umfasst, wobei ein 3 mm Luftspalt zwischen Abfallprodukt und Stahlblech angenommen wird. Der Gussbehälter Typ II hat eine Wandstärke von 0,16 m. Auch hier wird ein Luftspalt zwischen der Ummantelung und dem Füllinhalt von 3 mm angenommen.

In TAC2D wird als Eingabegröße $\rho \cdot c_p$ vorgegeben. Insofern werden in der Tab. 6.1 Werte für die Dichte aus anderen Quellen genommen und dann c_p berechnet. Als Füllung werden metallische Feststoffe angenommen und eine Füllichte von 50 %, so dass sich die Dichte halbiert.

Tab. 6.1 Verwendete Stoffwerte der Materialien im Gebinde //PIE 84//, /GRÜ 87/

Material	λ [W/mK]	ρ [kg/m ³]	c_p [J/kgK]	ε_G
Normalbeton (5 % Wasseranteil)	2,3	2 400	1 090	0,6 – 0,8
Normalbeton (trocken)	1,2	2 280	930	0,6 – 0,8
Stahlblech	58,88	7 700	469 ¹	0,8
Gusseisen	42,22	7 200	501,53	0,8
Füllung	50	3 850	469	0,8

¹ In TAC2D wird $\rho \cdot c_p$ als Eingabegröße verwendet. In der Tabelle wird $\rho = 7 770 \text{ kg/m}^3$ gesetzt.

Hinsichtlich des Wärmeübergangs an der Gebindeoberfläche steht für das 400-l-Betongebinde nur die Beschreibung aus //PIE 84// zur Verfügung. Danach wird während des Brands ein konvektiver Wärmeübergang von $\alpha = 37 \text{ W/m}^2\text{K}$ und nach dem Brand ein Wert von $\alpha = 6 \text{ W/m}^2\text{K}$ angenommen. Vermutlich wird auch der Emissionskoeffizient des Gebindes von 0,6 während des Brands auf 0,8 nach dem Brand erhöht. In /GRÜ 87/ sind die Programmstatements dargestellt. Danach werden entsprechende Werte wie in //PIE 84// angenommen. Für den Emissions-/Absorptionskoeffizient von Luft wird $\varepsilon_L = 0,9$ und für den Behälter ein Wert von $\varepsilon_G = 0,6$ genommen.

Das Programm TAC2D berücksichtigt bezüglich des Wärmedurchgangs durch den Luftspalt sowohl die Wärmeleitung λ in $[\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})]$ als auch den Strahlungsaustausch. Bezüglich der Wärmeleitung wird in /GRÜ 87/ folgende Korrelation verwendet (mit T in $[\text{K}]$):

$$\lambda = 0.0308 + 5.286 \cdot 10^{-5} T \quad (6.1)$$

Eine direkte Wärmeleitung von der Containerwand auf das Abfallprodukt über Berührungspunkte wird wegen der zu unterstellenden geringen Gesamtberührungsfläche nicht betrachtet /GRÜ 87a/. Der Wärmetransport in Spalten inklusive des Wärmetransports durch konvektive Strömungen lässt sich durch Einführung einer scheinbaren Wärmeleitfähigkeit λ_s beschreiben. Allerdings treten konvektive Effekte erst bei einer Spaltdicke von ca. 1 cm auf, so dass sie hier nicht relevant sind.

6.2 Aufbau einer neuen Simulationskette

Aufgrund der noch vorhandenen Einschränkungen, den Brandverlauf und die Behälterdurchwärmung mit dem Programm FDS zu simulieren, wurde eine alternative Vorgehensweise mit dem gekoppelten Programmen COCOSYS und CoPool implementiert.

6.2.1 Kurzbeschreibung der verwendeten Programme

6.2.1.1 Fire Dynamics Simulator (FDS)

Die Brandsimulationen wurden mit dem CFD-Brandsimulationsmodell („Feldmodell“) Fire Dynamics Simulator (FDS) in der Version 6.8.0 /MCG 23/ durchgeführt. Das Modell wurde vom US-amerikanischen National Institute of Standards and Technology (NIST) entwickelt und steht der internationalen Fachgemeinschaft zur Verfügung. Die

graphische Darstellung der Geometrie und der Simulationsergebnisse von FDS erfolgt mit dem Programm Smokeview®.

Bei der Anwendung von CFD-Brandsimulationsmodellen (in Abgrenzung zu den einfachen Zonenmodellen auch Feldmodelle genannt) wie dem Modell FDS wird das zu berechnende Gebiet (die Rechendomain) vom Anwender in definierte Kontrollvolumina eingeteilt. Für diese Kontrollvolumina berechnet das Programm in kleinen Zeitschritten die Erhaltungsgleichungen für Energie, Impuls, Masse und chemische Spezies.

FDS wird in den Standardeinstellungen mit einem einstufigen Verbrennungsmodell verwendet, bei dem der vom Anwender spezifizierte Massenstrom an Pyrolysegasen mit Luftsauerstoff umgesetzt wird. Dabei wird durch den Anwender überprüft, dass die vorgegebene Wärmefreisetzungsrate in der Domain erreicht wird.

Das in FDS 6.8.0 enthaltende Modell HT3D zur Berechnung einer dreidimensionalen Wärmeleitung ist aktuell noch eine Beta-Version. Zudem sind noch einige relevante Einschränkungen vorhanden:

- Bisher können keine geschichteten Materialien mit der Option HT3D (3D-Wärmeleitung) simuliert werden. Eine Vorgabe der Schichtdicken, z. B. für den Luftspalt, ist nicht möglich
- Die Simulation ist nur eingeschränkt dreidimensional. So wird wechselseitig die Wärmeleitung jeweils eindimensional in x-, y- und z-Richtung durchgeführt. Die Zellengröße kann nur rudimentär vorgegeben werden. Eine adaptive Gittereinteilung, wie für die eindimensionale Wärmeleitung, wird nicht durchgeführt.
- Eine Zylindergeometrie kann mittels der neuen Option &GEOM definiert werden und es wird ein entsprechendes unstrukturiertes Gitter erzeugt. Allerdings ist diese Option nicht mit HT3D kombinierbar.

6.2.1.2 CoPool/COCOSYS Programmsystem

Um die oben gelisteten Einschränkungen zu umgehen wurde entschieden, das Programmsystem CoPool/COCOSYS zur Berechnung der Temperaturverteilung im Gebäude verwenden.

COCOSYS

COCOSYS (Containment-Code-System) wird von der GRS für die umfassende Simulation von (schweren) Störfällen im Sicherheitsbehälter (Containment) von Leichtwasserreaktoren entwickelt und validiert /AC² 19/, /AC² 20/, /ARN 20/, /REN 19/. Das Programmsystem wird sowohl von der GRS als auch externen Organisationen in nationalen und internationalen Projekten eingesetzt. Zielsetzung bei seiner Anwendung auf Containments ist die Simulation aller wesentlichen Phänomene, Prozesse und Zustände, die während Stör- und Unfällen auftreten können. Neben der Verwendung möglichst mechanistischer Modelle ist ein Schwerpunkt in COCOSYS die weitgehende Berücksichtigung von Wechselwirkungen zwischen den verschiedenen Phänomenen, wie z. B. zwischen Phänomenen der Thermohydraulik, der Wasserstoffverbrennung und dem Aerosol- und Nuklidverhalten.

Seit 2018 ist die Entwicklung von COCOSYS in das GRS Programmpaket AC² eingebunden (Abb. 6.1), zu dem auch die Codes ATHLET und ATHLET-CD zur detaillierten Simulation der Vorgänge im Reaktorkreislauf gehören /AC² 19/, /AC² 20/.

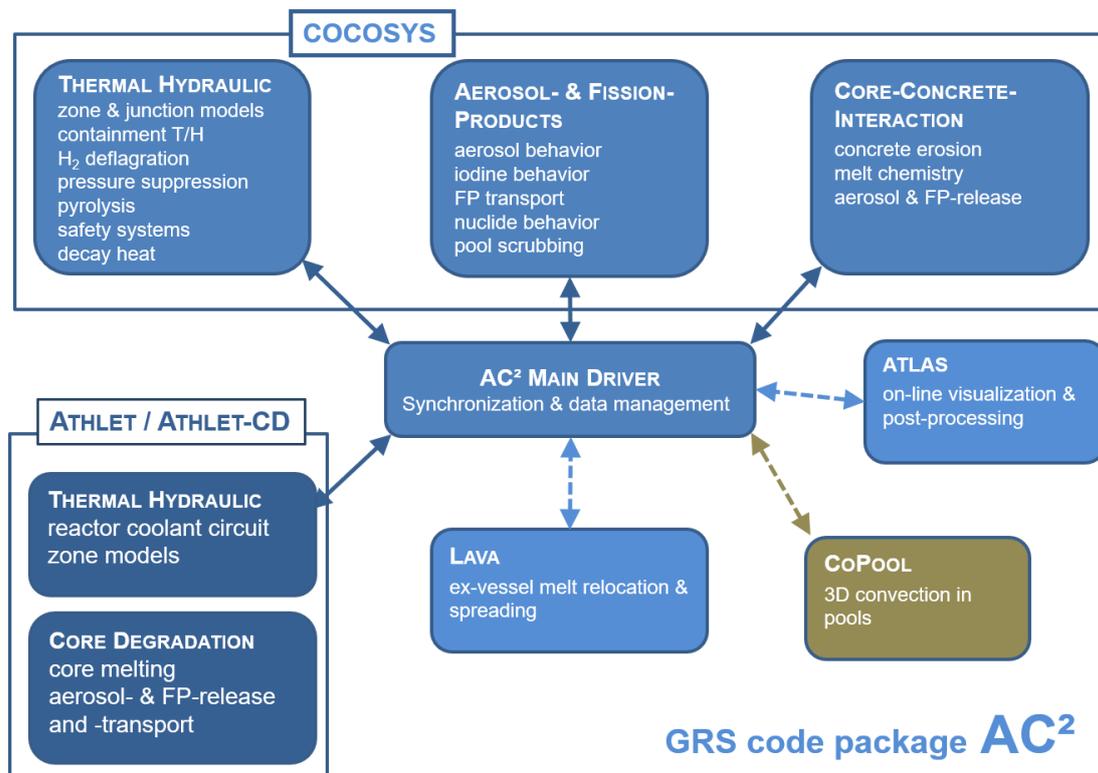


Abb. 6.1 Bestandteile des Programmpaketes AC² mit Struktur von COCOSYS

COCOSYS beruht auf einem Punktzonen-Modell („lumped parameter“-Konzept), d. h. die verschiedenartigen physikalischen Prozesse in komplexen Raumanordnungen und -geometrien werden durch Kontrollvolumina (Zonen) simuliert und hier die unter Stör- und Unfallbedingungen ablaufenden Prozesse berechnet. Im Folgenden wird nur das für diese Analysen relevante Thermohydraulik-Hauptmodul „THY“ näher erläutert.

Der Brandraum und das Gebinde werden in Zonen unterteilt, deren thermodynamischer Zustand durch die Temperatur und die Massen der betrachteten Gaskomponenten definiert ist. Für die Simulation komplexer Prozesse können die Zonen in mehrere Zonenteile unterteilt werden. In einer Zone werden im Gleichgewichtsmodell alle Komponenten (flüssiges Wasser, Dampf, nichtkondensierbare Gase) als homogen gemischt angenommen. Dahingegen können im Nichtgleichgewichtsmodell Gasatmosphäre und Wasser durch zwei Zonenteile mit jeweils separaten Temperaturen und Komponentenmassen abgebildet werden [AC² 19/, [AC² 20/, [ARN 20/]. Das Gebinde wird durch seine feste Oberfläche modelliert.

Für die Verknüpfung der Zonen (Masse- und Energieaustausch über Verbindungen) stehen verschiedene Modelle zur Verfügung. In COCOSYS wird grundsätzlich zwischen Atmosphären- und Drainageverbindungen (Wassertransport) unterschieden. Neben Druckdifferenz-getriebenen Gasströmungen kann auch freie Konvektion auf Grund von Temperatur- und damit Dichteunterschieden in verbundenen Zonen berechnet werden. Für die Simulation der technischen Systeme (z. B. Lüftungssysteme) stehen spezielle Modelle/Optionen zur Verfügung. COCOSYS enthält spezifische Modelle zur Simulation von Berstscheiben sowie der Bewegung von Türen und Klappen.

Wände, Böden, Decken und Einbauten werden durch Strukturobjekte abgebildet. Hierbei wird ein eindimensionales Wärmeleitungsmodell verwendet. Platten- oder zylinderförmige Strukturen können beliebig in Schichten (inklusive Luftspalten) eingeteilt werden. Für die Wechselwirkung mit der umgebenden Atmosphäre oder dem Sumpfwasser stehen verschiedene Wärmeübergangsmodelle zur Verfügung: freie und erzwungene Konvektion, Kondensation sowie Strahlung mit der Atmosphäre und zwischen verschiedenen Wandoberflächen.

CoPool

CoPool wird auf der Grundlage von 3D-Navier-Stokes-Gleichungen mit Boussinesq-Ansatz für die flüssige Phase und 3D-Wärmeleitungsgleichungen für Wandstrukturen

erstellt /ILI 14/, /ILI 20/. Die Navier-Stokes-Gleichungen und die Wärmeleitungsgleichungen werden auf separaten Gittern diskretisiert, die an überlappenden Grenzen durch Interpolation gekoppelt sind. Wesentliche Eigenschaften von CoPool sind:

- Verwendung eines groben Gitters für die Strömungssimulation
- Verwendung eines Präprozessors zur Erzeugung von Geometrie als Ergebnis boolescher Operationen auf einfachen Objekten (Kugeln, Quader, Zylinder)
- Nutzung der Vorteile einer separaten Vernetzung jeder festen Struktur unter Verwendung eines geeigneten lokalen orthogonalen Koordinatensystems
- Verwendung eines Algorithmus zur Bereichszerlegung für die Lösung der Wärmeleitungsgleichung in Wänden

Innerhalb des AC²-Programmsystems ist CoPool mit COCOSYS gekoppelt. Hierbei wird der konvektive Wärmeübergang sowie die Wärmestrahlung in COCOSYS berechnet, worauf auf Basis der lokalen Wandoberflächentemperaturen die Wärmeströme berechnet werden. Der Gasraum (in CoPool) kann mittels eines COCOSYS-Gitters verschiedenen Zonen in COCOSYS zugeordnet werden, so dass eine Vorgabe unterschiedlicher Gastemperaturen um das Wandobjekt möglich ist. Wände können aus verschiedenen Wandmaterialien zusammengesetzt werden.

6.2.2 Spezifische Modellierungen

Wie in Abschnitt 6.1 dargestellt, wird in TAC2D die Verdampfung des Wassers aus Beton sowie der Austausch der Wärmestrahlung über den Luftspalt simuliert. Beides kann mit dem verwendeten Programm CoPool nur eingeschränkt simuliert werden.

6.2.2.1 Modellierung der Wasserverdunstung

Die Verdunstung des Wassers kann in COCOSYS und CoPool nur indirekt über eine spezifische c_p -Funktion simuliert werden. Durch den Einbau einer näherungsweisen Deltafunktion kann ein Sprung in der Funktion der spezifischen Enthalpie generiert werden. Der Sprung in der spezifischen Enthalpie entspricht dabei der benötigten latenten Wärme zur Verdunstung des Wassers. Für Temperaturen oberhalb von 100 °C wird dann der c_p -Wert auf den Wert des trockenen Betons gesetzt. Wesentlicher Nachteil dieser Vorgehensweise ist, dass diese Energie bei der Abkühlung bzw. Kondensation „zurückgewonnen“ wird. Da die Freisetzung anhand der maximalen Temperatur an einer

Stelle im Gebinde bestimmt wird, ist dieser Effekt während der Abkühlungsphase für die Berechnung der Freisetzungsteile nur von untergeordneter Bedeutung.

Im Fall des betrachteten Gebäudes 1 aus Normalbeton mit einem Wasseranteil von 5 % und einer Dichte von 2.400 kg/m^3 werden pro Kubikmeter 120 kg Wasser freigesetzt. Mit einer latenten Wärme von $2.257.000 \text{ J/kg}$ werden insgesamt $270.840.000 \text{ J}$ benötigt. Mit einer über 4 K gedehnten Dreiecksfunktion als Näherung der Deltafunktion ergibt sich ein Spitzenwert von $c_{pmax} = 56.425 \text{ J/kgK}$. Die resultierende modifizierte spezifische Wärmekapazität des Normalbetons ist in Abb. 6.2 dargestellt. Diese Funktion wird in COCOSYS, CoPool und in den FDS-Rechnungen verwendet.

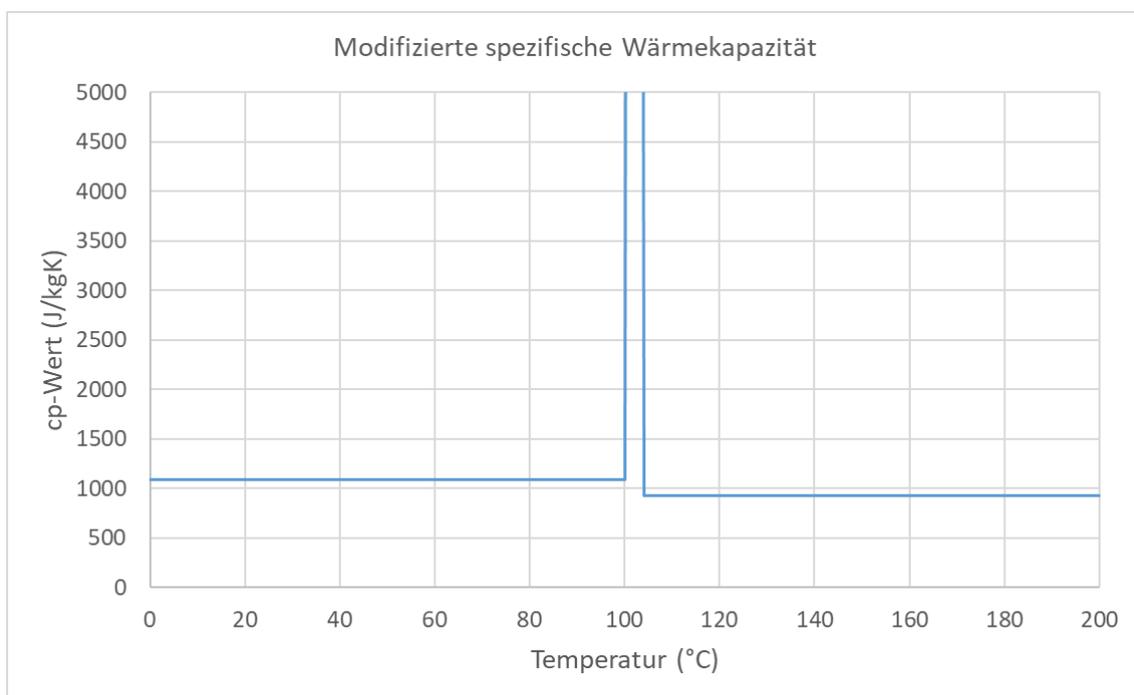


Abb. 6.2 Modifizierte spezifische Wärmekapazität des Normalbetons

6.2.2.2 Simulation des Luftspalts

In den 3D-Wärmeleitungsrechnungen mit CoPool wird der Luftspalt als Festkörper mit den entsprechenden Stoffeigenschaften simuliert. Da die Spaltdicke weit unterhalb von 1 cm liegt, spielen konvektive Strömungen keine Rolle. Aufgrund der hohen Temperaturdifferenzen über den Luftspalt (wegen der geringen Wärmeleitfähigkeit) ist der Strahlungswärmeaustausch zu berücksichtigen. Hierzu wird in den Rechnungen die Wärmeleitung entsprechend modifiziert.

Zur Bestimmung des Effekts wurde eine separate COCOSYS-Rechnung durchgeführt. Hierbei wurde der Luftspalt als separates Kontrollvolumen (Zone) simuliert und die Wärmestrahlung von der Stahlblechinnenwand zur Außenwand der Füllung berücksichtigt. Dabei wurde der Container als Platte angenähert und eine 1D-Wärmeleitung simuliert. Der Wärmeübergangskoeffizient (bzw. die Wärmeleitung) wurde dann über die aktuelle Temperaturdifferenz aufgetragen.

Die Ergebnisse der separaten COCOSYS-Rechnung sind in Abb. 6.3 und Abb. 6.4 dargestellt. Die Wärmeübertragung aufgrund der Wärmestrahlung ist hier ungefähr viermal so hoch wie die aufgrund des konvektiven Wärmeübergangs. Während der konvektive Wärmeübergang relativ konstant ist, ist aufgrund der T^4 -Abhängigkeit der Wärmestrahlung eine zeitliche Abhängigkeit zu erkennen. Trotz der unterschiedlichen Phasen (Aufheizung und Abkühlung) zeigen sich in Abb. 6.4 nur geringe Hysterese-Effekte. Somit lässt sich das Gesamtverhalten gut durch eine effektive Wärmeleitfähigkeit simulieren. Diese Abhängigkeit ist aber fallspezifisch und nicht unbedingt allgemein gültig. Einfachheit halber wird aber diese Abhängigkeit sowohl für Gebinde 2 als auch im Gebinde 3 verwendet.

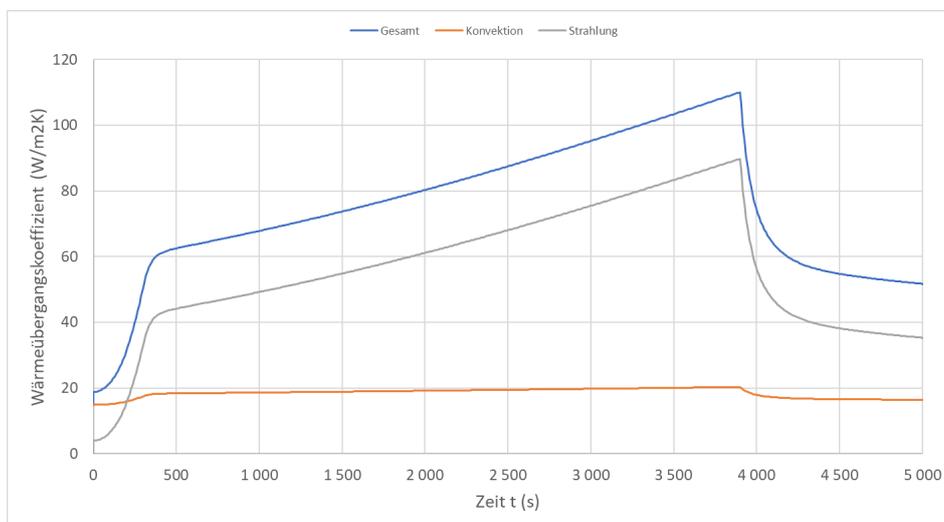


Abb. 6.3 Zeitlicher Verlauf des Wärmeübergangskoeffizienten über den Luftspalt

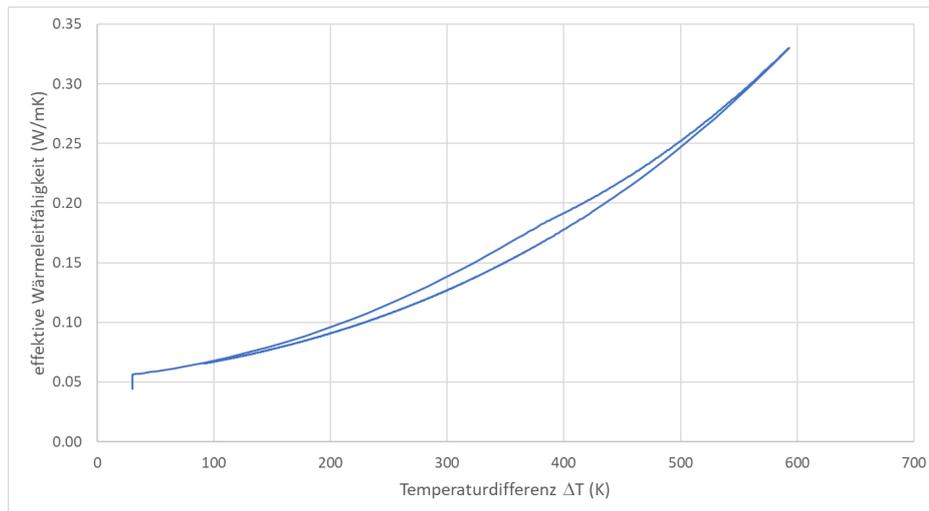


Abb. 6.4 Effektive Wärmeleitfähigkeit im Luftspalt als Funktion der Temperaturdifferenz

6.2.3 Simulation der Temperaturen im Gebinde bei vorgegebenen Raumtemperaturen (PTB-Kurve)

Im ersten Schritt wurden die Temperaturen im Gebinde bei Vorgabe der Raumtemperatur mit Hilfe von COCOSYS/CoPool berechnet. Als Randbedingung wird die sogenannte PTB-Kurve (Abb. 6.5) verwendet. Hiernach steigen die Raumtemperaturen innerhalb von fünf Minuten von 30 °C auf 800 °C an. Diese Temperatur wird für eine Stunde beibehalten. Danach fällt die Temperatur auf 30 °C schlagartig ab.

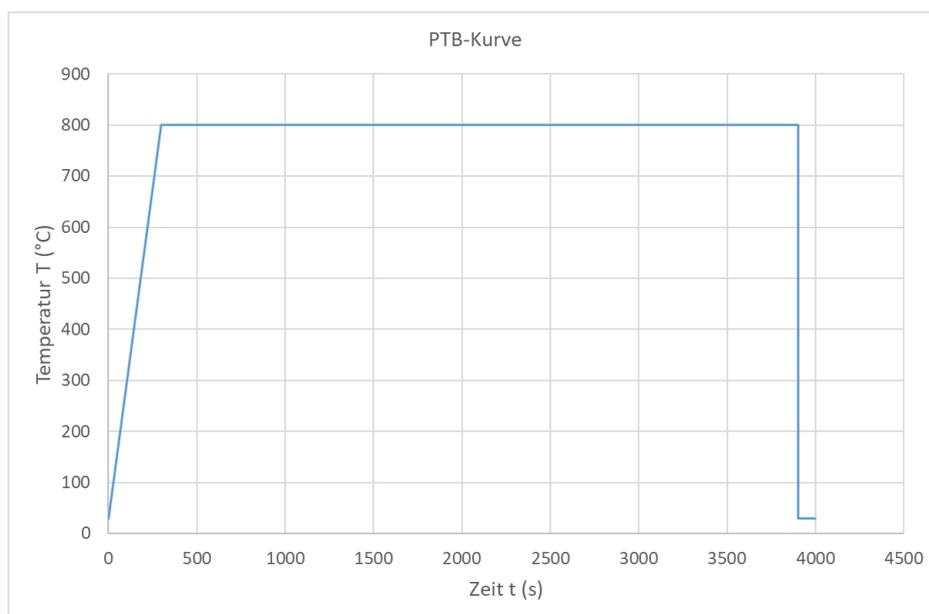


Abb. 6.5 Verlauf der PTB-Kurve

6.2.3.1 Rechenergebnisse

Für die Rechnung wird in COCOSYS ein „Brandraum“ von 7x7x7 m³ definiert. Dies spielt für die Temperaturverteilung im Gebinde allerdings keine Rolle. Damit neben dem konvektiven Wärmeübergang auch Strahlungswärme an das Gebinde übergeben wird, wird angenommen, dass der Raum vollständig mit CO₂² gefüllt ist.

Die durchgeführten Rechnungen sind vollständige 3D-Wärmeleitungsrechnungen. Daraus ergeben sich im Vergleich zu den damaligen Rechnungen insbesondere für den Container Unterschiede. Für die korrekte Simulation der Wärmeleitung ist insbesondere in den Fällen mit Luftspalt eine feine Gittereinteilung notwendig. In Tab. 6.2 ist ein Vergleich der Anzahl der Gitterzellen dargestellt. Zu beachten ist, dass in CoPool die Gittereinteilung teils äquidistant und teils progressiv³ ist. Die in den CoPool-Rechnungen verwendeten Gittereinteilungen sind in Abb. 6.6 dargestellt. Rot dargestellt ist das Stahlblech bzw. das Gusseisen. Im Gebinde 3 wird der Bereich um den Luftspalt feiner eingeteilt.

Tab. 6.2 Vergleich der Anzahl der Gitterpunkte

Gebinde	TAC2D-Gitter ⁴		CoPool-Gitter		
	r/x	z	r/x	φ/y	z
Gebinde 1	30	40	32	40	66
Gebinde 2	40	40	58	58	58
Gebinde 3	15	30	58	40	114

In Abb. 6.7 wird die mit CoPool berechnete Temperaturverteilung in den Gebinden nach einer Stunde dargestellt. Starttemperatur im Gebinde ist 30 °C. Die Temperaturskala reicht jeweils zwischen 0 (blau) und 800 °C (rot). Deutlich zu erkennen ist das unterschiedliche Verhalten. Das Betongebinde hat eine vergleichsweise niedrige Wärmeleitfähigkeit, so dass nach einer Stunde der Innenbereich noch relativ kalt ist. Die höchsten Temperaturen werden aufgrund des höheren Oberflächen-zu-Volumen-Verhältnisses an

² Für den Strahlungswärmeaustausch ist ein dreiatomiges Gas notwendig.

³ Progressiv bedeutet, dass die Länge der Gitterzelle um jeweils einen konstanten Faktor zu- bzw. abnimmt.

⁴ Aus Vergleichsgründen wurden wegen der ausgenutzten Symmetrie in den TAC2D-Rechnungen die Anzahl der Gitterpunkte teilweise mit 2 multipliziert

den jeweiligen Kanten der Gebinde berechnet. Der Luftspalt erzeugt innerhalb der Gebinde 2 und 3 einen deutlichen Temperatursprung aufgrund der niedrigeren Wärmeleitfähigkeit der Luft. Aufgrund der sehr guten Wärmeleitfähigkeit und Dicke des Gusseisens ist die Oberflächentemperatur des Gebindes 3 am niedrigsten.

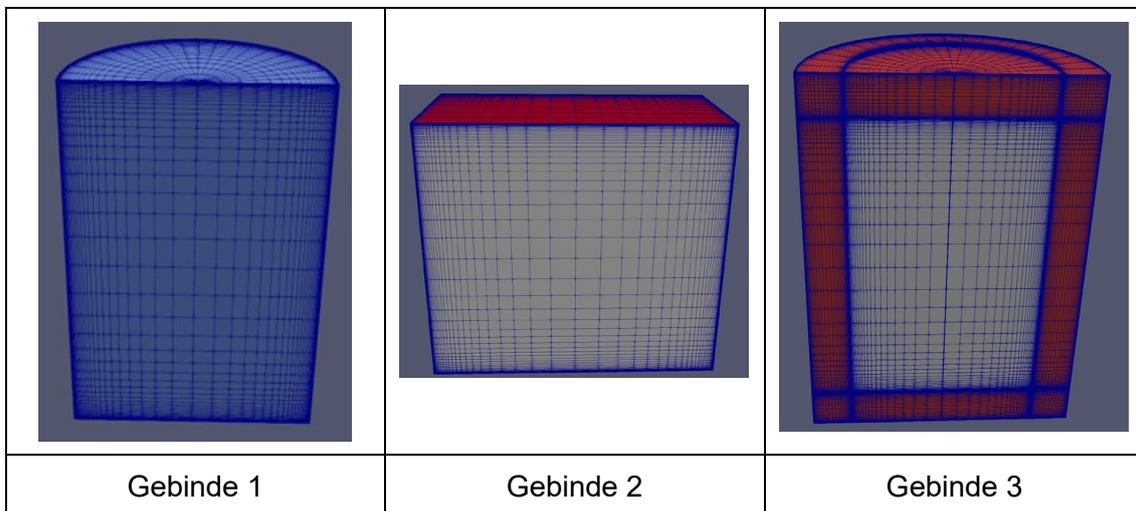


Abb. 6.6 Darstellung der Gittereinteilung in den CoPool-Rechnungen

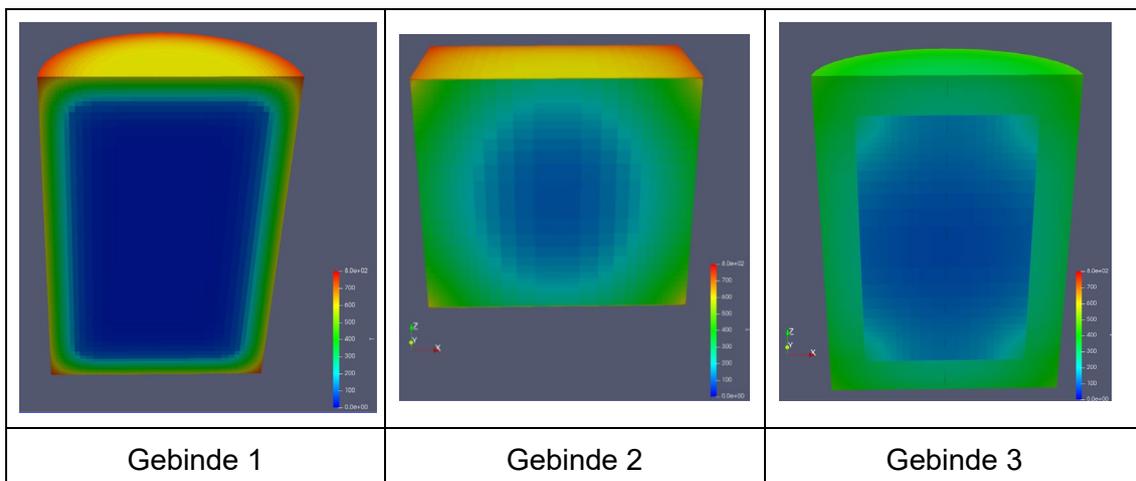


Abb. 6.7 Temperaturverteilung in den Gebinden zum Zeitpunkt 3 600 s

6.2.3.2 Vergleich mit dem Ausgangszustand

Zur qualitativen Bewertung der COCOSYS/CoPool-Ergebnisse werden diese mit den zur Verfügung stehenden früheren Ergebnissen verglichen.

Gebinde 1 – 400 I Betonzylinder

Im Folgenden wird die Temperaturverteilung zum Zeitpunkt 3.600 s verglichen. Hierzu wurden die Ausdrücke der Temperaturen aus //PIE 84// entnommen. Im CoPool-Input wurden zwar an den entsprechenden Stellen sogenannte Monitorpunkte definiert, diese werden allerdings nicht linearisiert und zeigen den Mittelwert an der entsprechenden Gitterzelle. In der Folge entstehen Knicke in den Isolinien. Der Vergleich der Temperaturverteilung ist in Abb. 6.8 dargestellt. Zu beachten ist die äquidistante Darstellung der Gitterzellen. Somit sind die Abbildungen nicht maßstäblich. Insgesamt liegen die Temperaturen der CoPool- und COCOSYS-Rechnungen zu diesem Zeitpunkt unterhalb der TAC2D Ergebnisse. Dies ist u. a. durch das feinere Gitter im Randbereich bedingt.

Die Abb. 6.9 zeigt das Temperaturprofil entlang der radialen Achse durch die Zylindermitte zum Zeitpunkt 3.600 s. Auch hier liegen die von TAC2D berechneten Temperaturen höher als in CoPool und COCOSYS. Da die Mitte des Zylinders betrachtet wird, sind Randeffekte an den Stirnflächen sehr gering und somit die CoPool- und COCOSYS-Ergebnisse praktisch gleich. Deutlich zu erkennen ist der Knick bei 100 °C. Dies ist durch die Änderung der Wärmeleitfähigkeit von 2,1 W/mK (nasser Beton) nach 1,2 W/mK (trockener Beton) bedingt. In CoPool bzw. COCOSYS wurde der Verlauf zwischen 100 °C und 102 °C verschliffen. Daher ist der Knick nicht so ausgeprägt.

Der zeitliche Temperaturverlauf an verschiedenen Punkten im Betongebinde wird in Abb. 6.10 verglichen. Als Hintergrund wird die entsprechende Abbildung aus //PIE 84// verwendet. Die TAC2D-Ergebnisse sind in schwarzen Kurven dargestellt. Blau dargestellt sind die entsprechenden Ergebnisse aus COCOSYS. Gezeigt werden hier nur die Ergebnisse der Punkte, welche auf der mittleren radialen Achse liegen (P_0 , P_1 und P_3). Ergebnisse aus CoPool sind rot (P_0 , P_1 und P_3) bzw. grün (P_2 und P_4) dargestellt. Insgesamt werden in der Anfangsphase höhere Temperaturen in TAC2D berechnet. Dies ist durch das gröbere Gitter bedingt. Entsprechend sinken die Temperaturen während der Abkühlphase auch wieder schneller ab, weil mehr Wärme nach außen abgegeben wird. Sobald im Gebinde Temperaturen von 100 °C überschritten werden, bleiben die Temperaturen eine Zeit lang konstant, da die zugeführte Wärmemenge für den Verdunstungsprozess verwendet wird. Dieses ist in COCOSYS/CoPool ebenfalls modelliert, wobei der Effekt durch das „Verschleifen“ der Delta-Funktion nicht so ausgeprägt ist.



Abb. 6.8 Gebäude 1: Vergleich der Ergebnisse von TAC2D (oben) und CoPool (unten) zur Temperaturverteilung nach 3.600 s

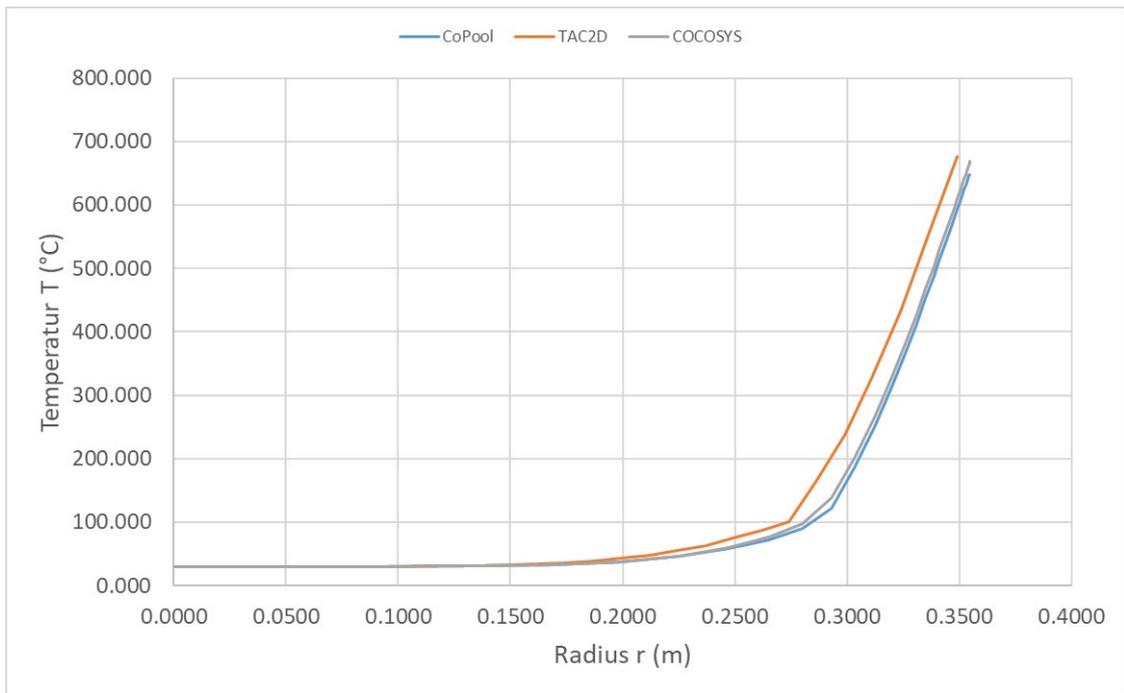


Abb. 6.9 Gebäude 1: Vergleich des Temperaturprofils entlang der mittleren radialen Achse zum Zeitpunkt 3.600 s

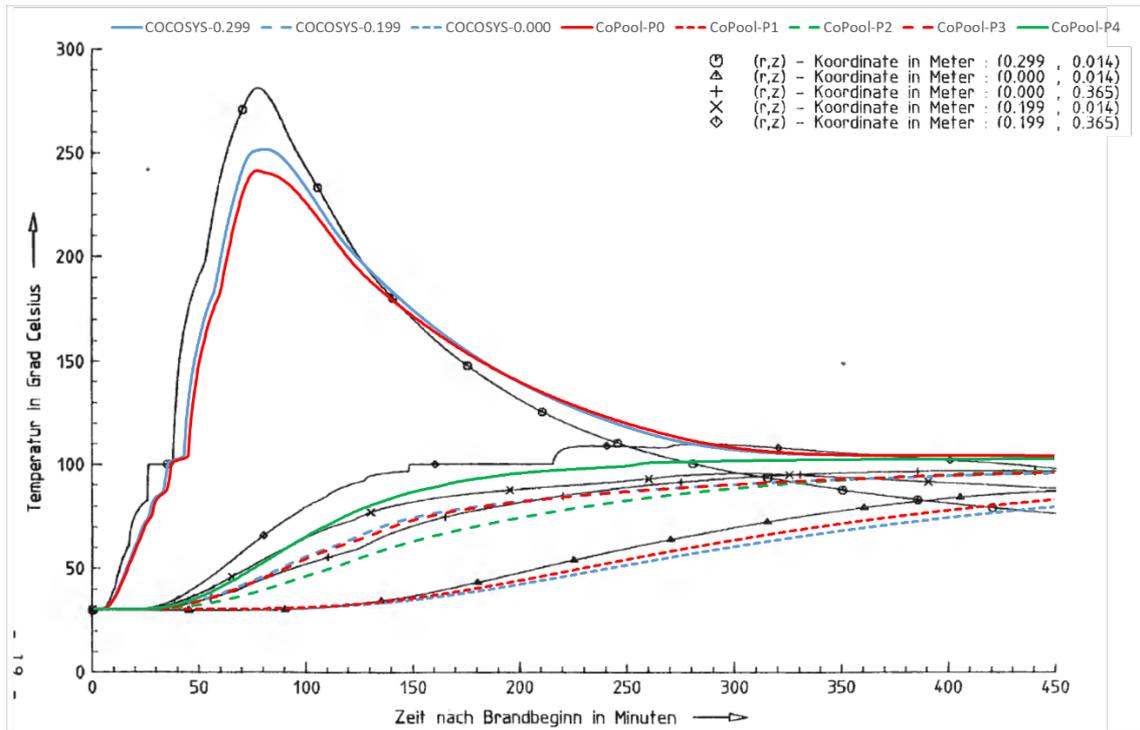


Abb. 6.10 Gebäude 1: Vergleich des zeitlichen Verlaufs an fünf Punkten im Betonzylinder

Gebinde 2: Stahlblechcontainer Typ I

Zum Vergleich der Rechnungen stehen nur die TAC2D-Ausdrucke in /GRÜ 87/ zur Verfügung. Exemplarisch ist in Abb. 6.11 die von TAC2D berechnete Temperaturverteilung in x- und z- Richtung (also eines Viertels in der y-Ebene) dargestellt. Die Gitterpunkte sind äquidistant dargestellt, somit ist das Bild nicht maßstäblich. Ein Vergleich des Temperaturprofils entlang der x-Achse ist in Abb. 6.12 dargestellt. Das untere Bild zeigt dabei eine detaillierte Auflösung. Der Bereich des Luftspalts ist blau hinterlegt. Die Marker zeigen die Mitte der jeweiligen Gitterzellen. In der CoPool-Rechnung ist das Stahlblech sowie der Luftspalt mit jeweils drei Gitterpunkten äquidistant aufgeteilt. In TAC2D wurden extrem feine Einteilungen für die ersten Zellen an der Stahloberfläche verwendet und der Luftspalt nur mit einer Gitterzelle abgebildet. Die Übereinstimmung der Ergebnisse zwischen TAC2D und CoPool ist gut. Lediglich im Inneren des Containers werden mit CoPool etwas höhere Temperaturen berechnet.

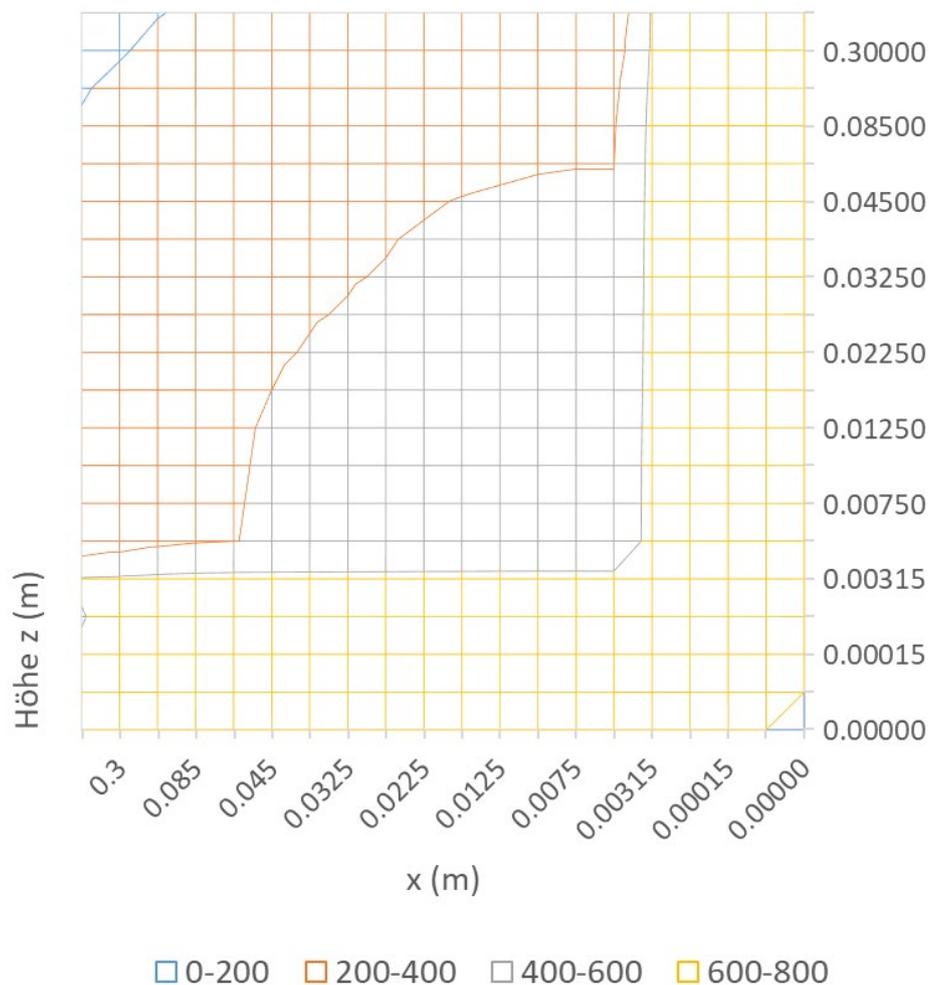


Abb. 6.11 Gebinde 2: Temperaturverteilung in TAC2D bei 3.600 s

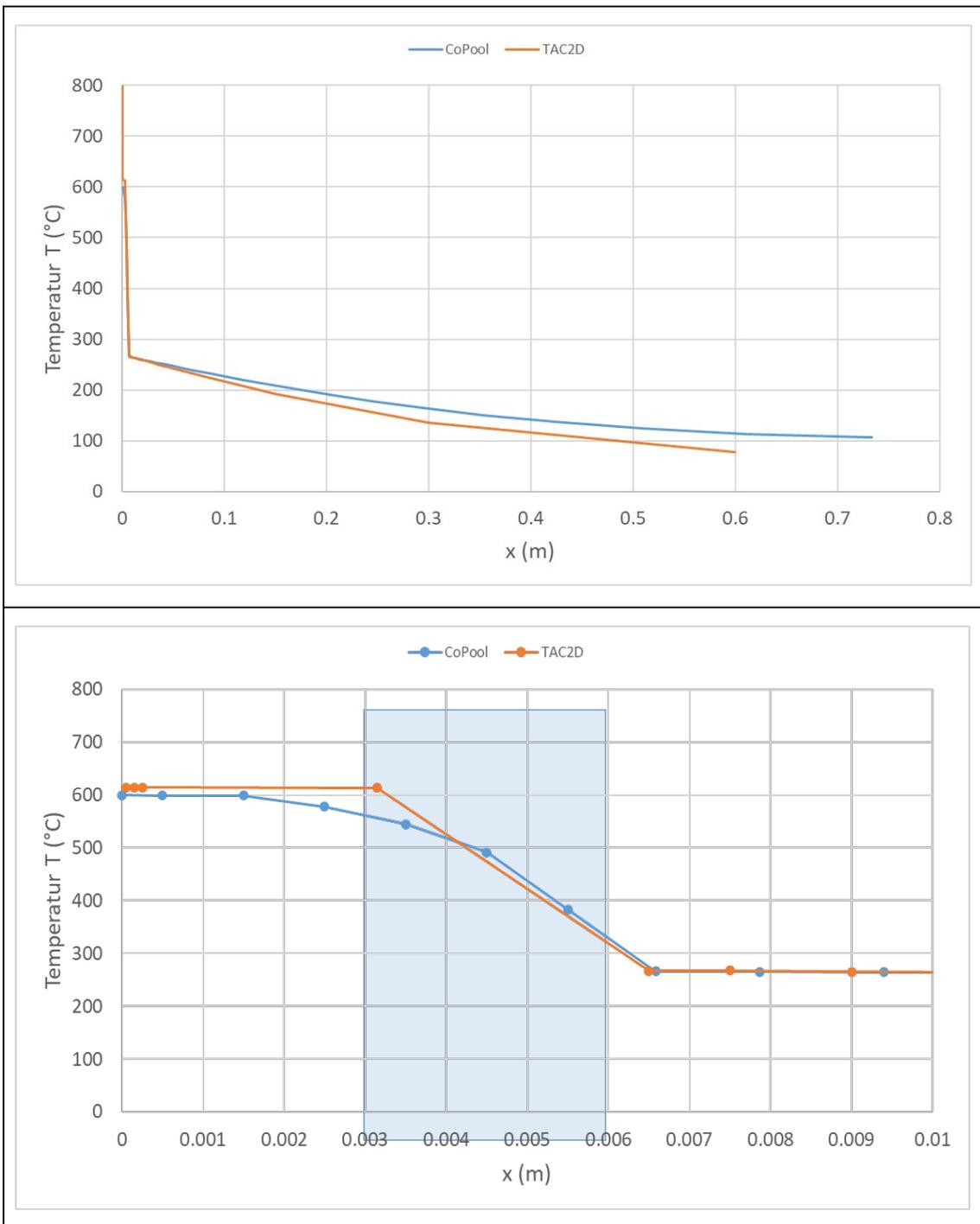


Abb. 6.12 Gebinde 2: Vergleich des Temperaturprofils entlang der x-Achse bei 3.600 s

Aus den Ausdrucken in /GRÜ 87/ wurde der zeitliche Temperaturverlauf für einen Gitterpunkt ausgewertet. Dieser befindet sich auf der x-Achse in einer Tiefe von 0,0075 m, also in der ersten Gitterzelle hinter dem Luftspalt. Nach ca. 10 min zeigt CoPool einen linearen Anstieg der Temperatur. In TAC2D liegen die Temperaturen etwas höher. Beide Programme berechnen die gleiche maximale Temperatur. Im Vergleich zu den TAC2D-Rechnungen zeigt die CoPool-Rechnung einen zwischenzeitlichen Temperaturanstieg

in der Abkühlphase (Abb. 6.13). Die Temperaturen in der TAC2D-Rechnung fallen schneller ab. Der zwischenzeitliche Temperaturanstieg ist vermutlich durch den lateralen Temperatureausgleich bedingt, der in der TAC2D-Rechnung nicht berücksichtigt wird.

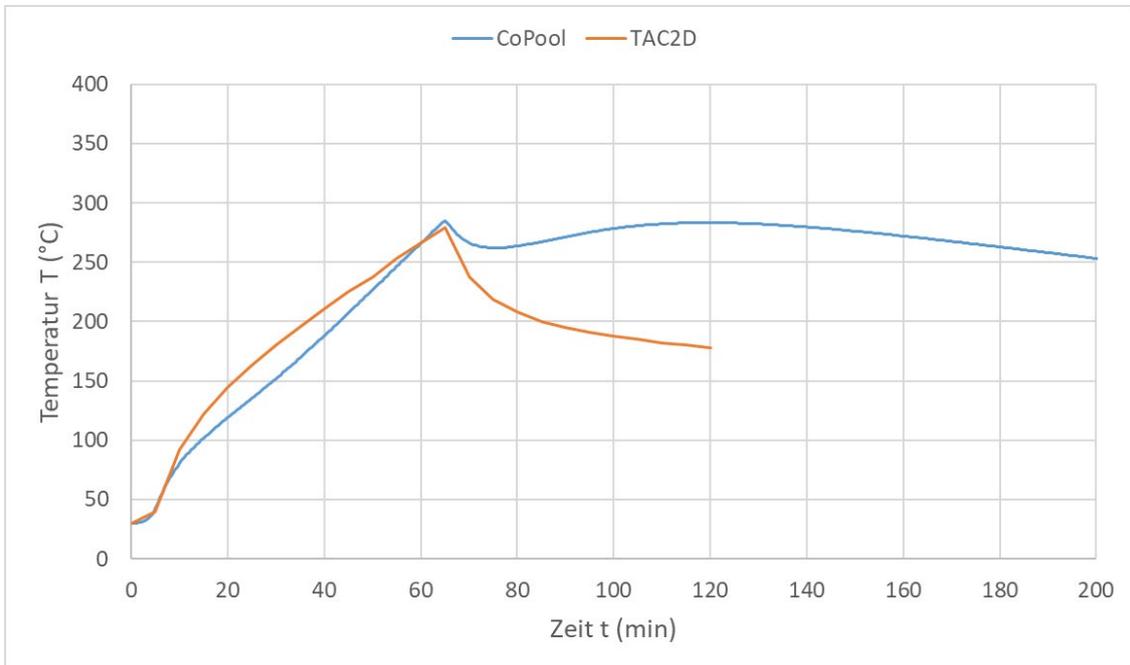


Abb. 6.13 Gebinde 2: Vergleich des zeitlichen Temperaturverlaufs am Punkt (0,0075; 0; 0,725)

Gebinde 3: Gussbehälter Typ II

Auch für dieses Gebinde stehen zum Vergleich der Rechnungen nur die TAC2D-Ausdrucke in /GRÜ 87/ zur Verfügung. Exemplarisch ist in Abb. 6.14 die von TAC2D berechnete Temperaturverteilung in x- und z- Richtung (also eines Viertels in der y-Ebene) dargestellt. Die Gitterpunkte sind äquidistant dargestellt, somit ist das Bild nicht maßstäblich. Aufgrund der 16 cm dicken Ummantelung mit Gusseisen wird die thermische Belastung des Abfallprodukts deutlich reduziert. Hinzu kommt noch der angenommene Luftspalt.

Ein Vergleich des Temperaturprofils entlang der radialen Mittelachse ist in Abb. 6.15 dargestellt. Das untere Bild zeigt dabei eine detaillierte Auflösung. Der Bereich des Luftspalts ist blau hinterlegt. Die Marker zeigen die Mitte der jeweiligen Gitterzellen. Hier ist die Anzahl der Gitterzellen in der CoPool- und in der COCOSYS-Rechnung deutlich höher. So ist der Luftspalt jeweils mit sechs Zellen abgebildet. Der Temperaturverlauf in TAC2D erscheint teilweise unrealistisch. So zeigt das Profil ein eher lineares Verhalten.

Dabei sollte das Profil eher potenziell sein. In CoPool werden im Vergleich zu COCOSYS niedrigere Temperaturen in der Umhüllung aus Gusseisen berechnet. Ursache ist vermutlich, dass in der COCOSYS-Rechnung die Stirnseiten aus Gusseisen nicht berücksichtigt werden.

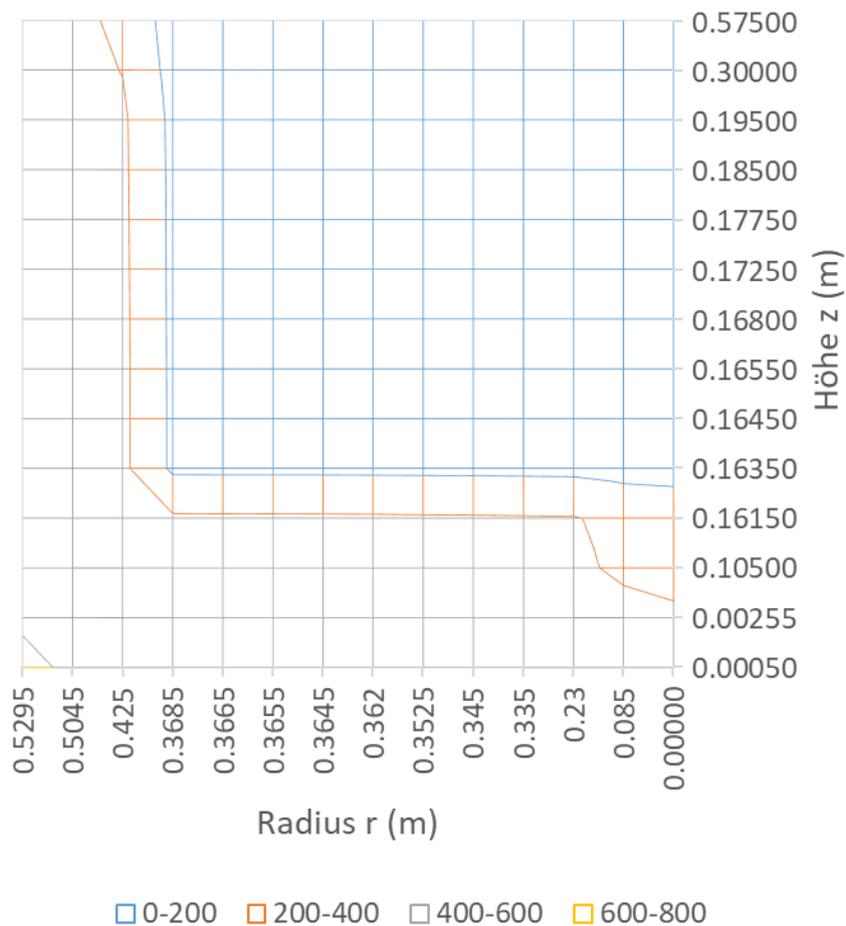


Abb. 6.14 Gebinde 3: Temperaturverteilung in TAC2D bei 3.600 s

Der zeitliche Verlauf der Temperaturen im Gebinde an den Punkten P1 (0,3665; 0,575) und P2 (0,3665; 0,1635) jeweils im Randbereich des Abfallprodukts (siehe weiße Punkte) wird in Abb. 6.16 verglichen. Die berechneten Temperaturunterschiede zwischen P1 und P2 sind in CoPool deutlich höher. Eine Ursache ist das zu grobe Gitter in den TAC2D-Rechnungen, was zu einer höheren numerischen Diffusion und damit zum Temperatenausgleich führt.

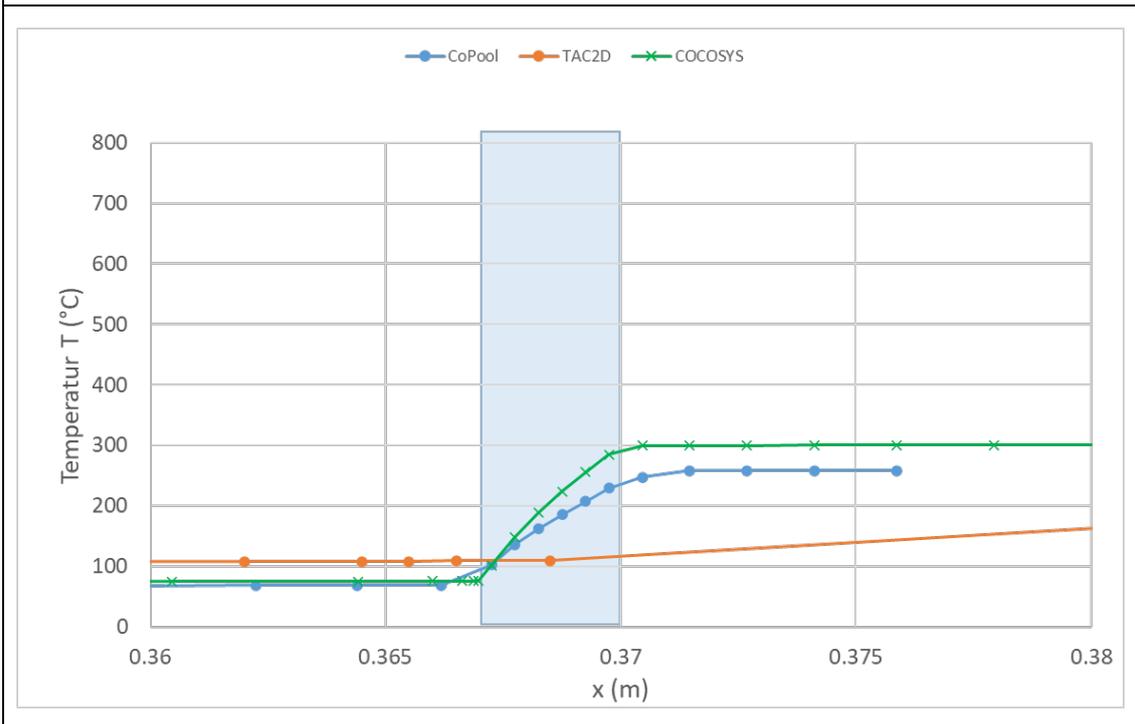
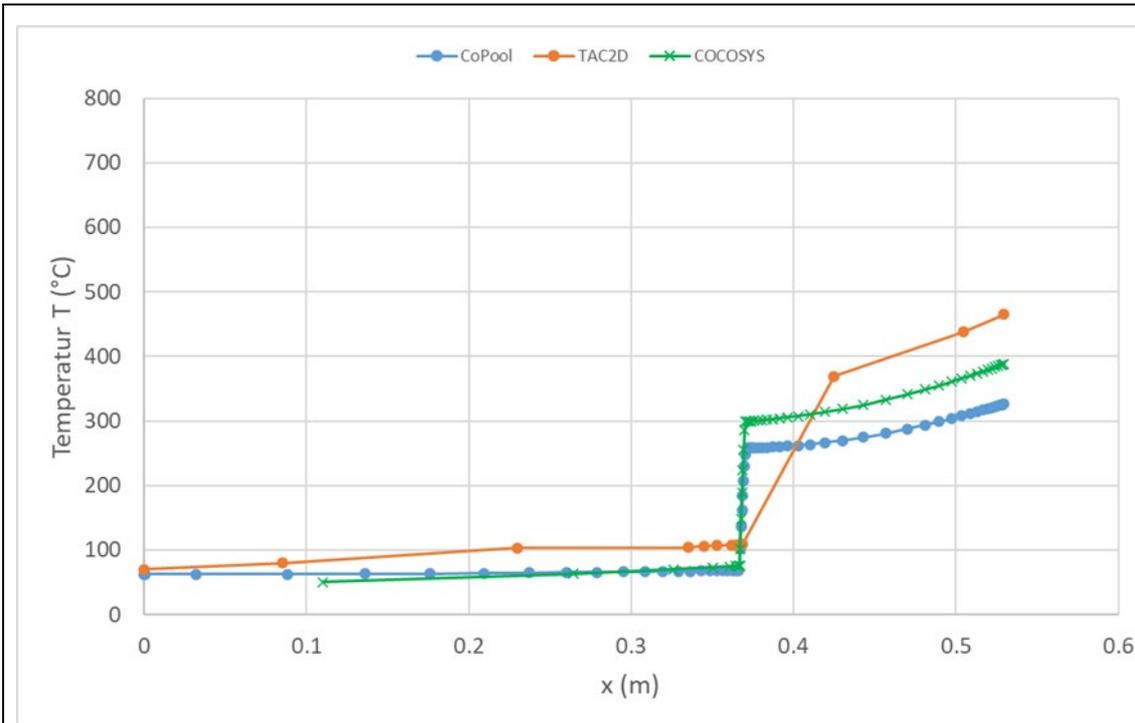


Abb. 6.15 Gebäude 3: Vergleich des Temperaturprofils entlang der mittleren radialen Achse zum Zeitpunkt 3.600 s

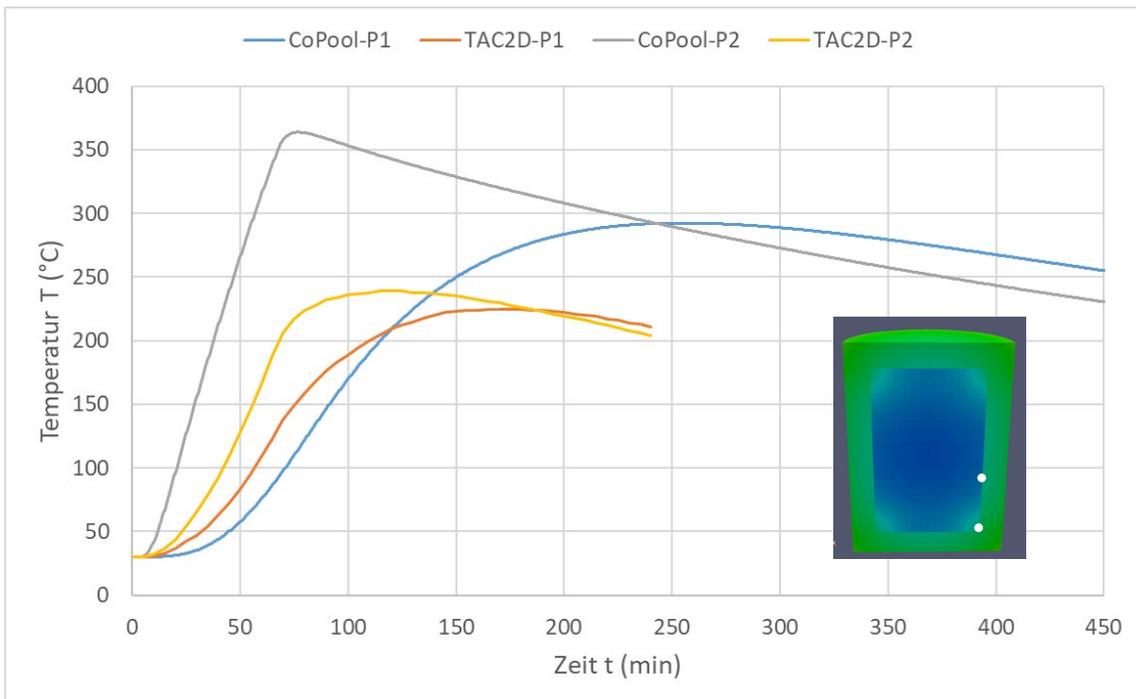


Abb. 6.16 Gebinde 3: Vergleich des zeitlichen Temperaturverlaufs an den Punkten P1 (0,3665; 0,575) und P2 (0,3665; 0,1635)

6.2.3.3 Zusätzliche Auswertungen

Im Folgenden werden zusätzliche Auswertungen dargestellt. Da die Freisetzungsmo-
delle teilweise Temperaturkriterien enthalten, sind vor allem die Volumenanteile inner-
halb bestimmter Temperaturgrenzen von besonderem Interesse.

Gebinde 1 – 400 I Betongebinde

In Abb. 6.17 sind die jeweiligen Volumina dargestellt, die maximale Temperaturen von
100 °C bzw. 300 °C im Zeitverlauf nicht überschritten haben. Da das Gitter im Inneren
des Zylinders immer größer wird, ist auf der linken Seite des Bildes die Gitterstruktur
deutlich zu erkennen. Für die Freisetzung sind die „inversen“ Werte, also Volumina, wel-
che die vorgegebenen Temperaturen überschreiten, von Interesse. Der Zeitverlauf die-
ser Temperaturen ist in Abb. 6.18 dargestellt. Links ist die Summe aller Volumenele-
mente dargestellt, die über den gesamten Zeitverlauf über 10 h das jeweilige
Temperaturkriterium erreicht haben. Da sich einzelne Elemente schon wieder unterhalb
des Temperaturkriteriums befinden können, kann das Maximum im Verlauf etwas unter-
halb der Summe liegen (vgl. auch Abb. 6.21). In //PIE 84// werden in den Bilanzen die
Volumenanteile innerhalb bestimmter Temperaturintervalle ausgegeben. Der Vergleich

zwischen CoPool und TAC2D wird in Abb. 6.19 gezeigt. Hierbei ist zu beachten, dass die CoPool-Rechnung bis 10 h durchgeführt wurde, die TAC2D-Rechnung dagegen nur bis 7,5 h. Aufgrund des langzeitigen Temperatúrausgleichs nach Innen können sich Unterschiede ergeben. Im oberen Temperaturbereich berechnet TAC2D höhere Volumenanteile. Ursache ist hier wohl wieder die gröbere Gitterstruktur im Randbereich.

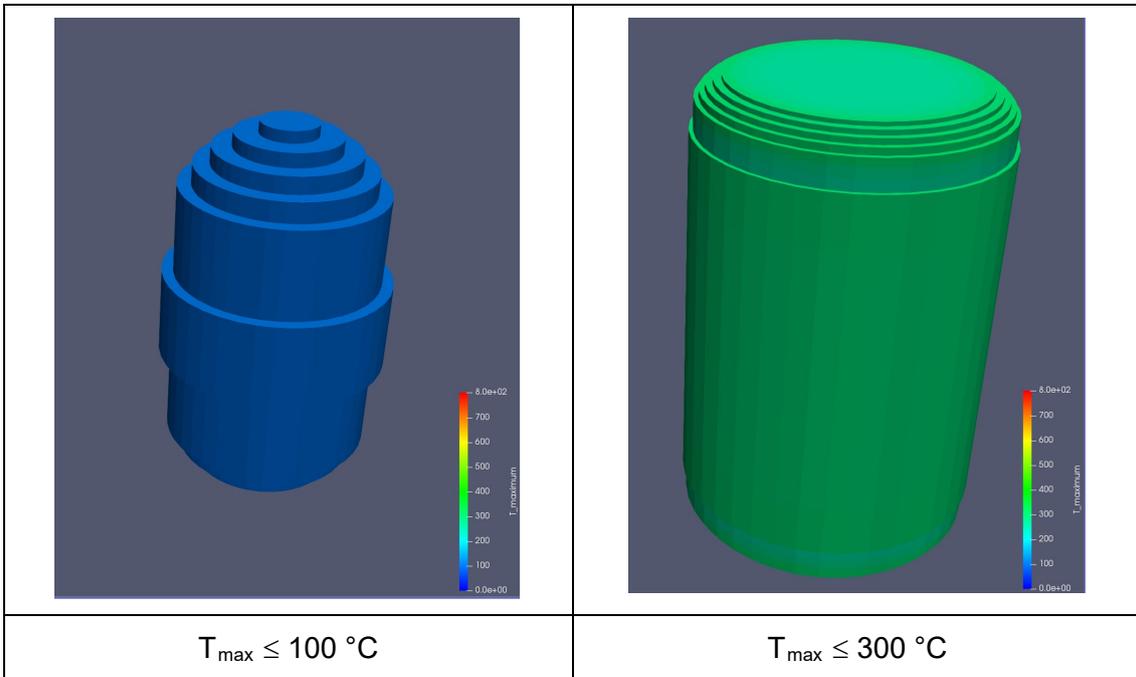


Abb. 6.17 Gebinde 1: 3D Darstellung der Volumina mit maximalen Temperaturen unterhalb 100 °C bzw. 300 °C

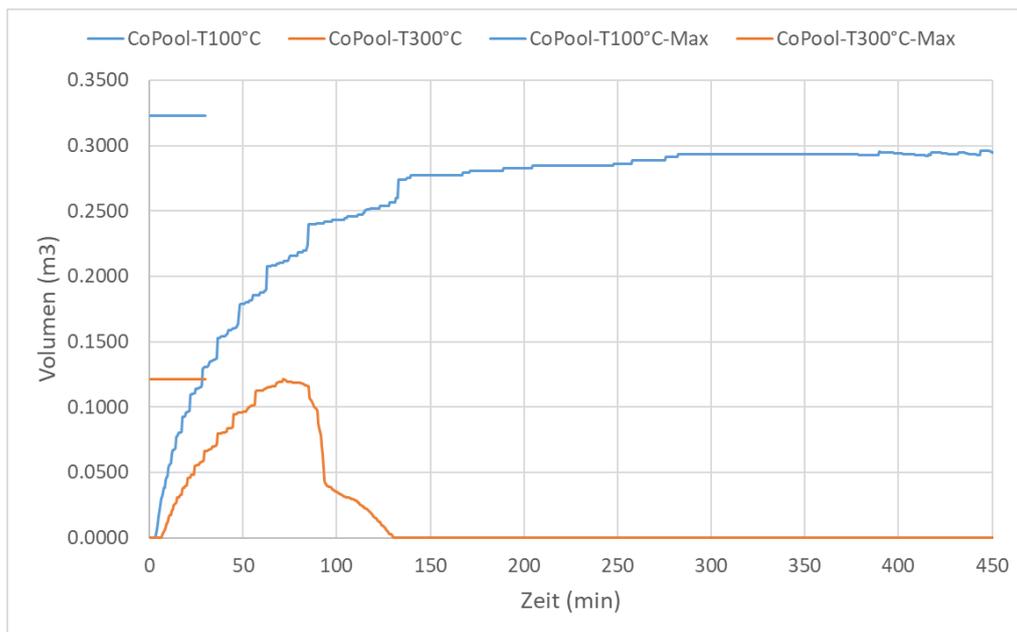


Abb. 6.18 Gebinde 1: Zeitverlauf der Volumina mit $T > 100 \text{ °C}$ bzw. 300 °C

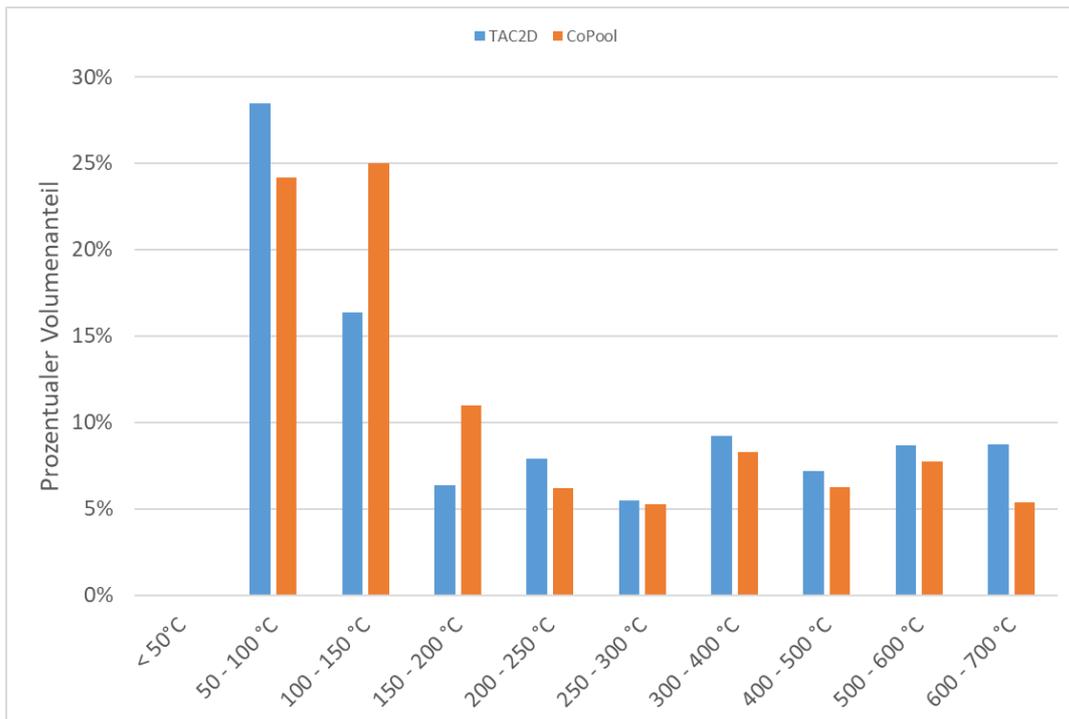


Abb. 6.19 Gebinde 1: Vergleich des prozentualen Volumenanteils innerhalb bestimmter Temperaturintervalle

Gebinde 2: Stahlblechcontainer Typ I

Abb. 6.20 zeigt das Volumen mit einer Temperatur unterhalb von 300 °C nach einer Stunde. Diese sphärische Form kann mit einem 2D-Programm wie TAC2D nicht simuliert werden. Analog zum Gebinde 1 werden in Abb. 6.21 die zeitlichen Verläufe der Volumina oberhalb 100 °C bzw. 300 °C dargestellt. Der Zeitverlauf zeigt die Aufheizphase bzw. bei der 100 °C-Linie den Bereich bis zum maximalen Volumen. Werden die Volumina auf Basis der maximalen Temperatur einer jeden Gitterzelle berechnet, zeigt sich, dass die 300 °C in 65 % des Containervolumens erreicht werden. Die Temperaturverteilung anhand der maximalen Temperatur ist in Abb. 6.22 dargestellt. Jeweils ca. 35 % des Containers erreichen Temperaturen zwischen 250 °C und 300 °C bzw. 300 °C und 400 °C.

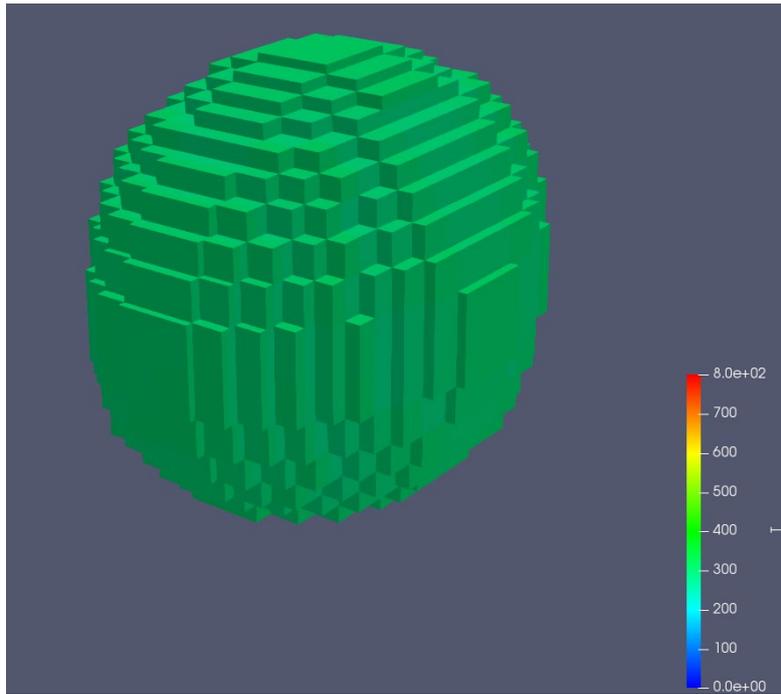


Abb. 6.20 Gebinde 2: 3D Darstellung der Volumina mit maximalen Temperaturen unterhalb 300 °C

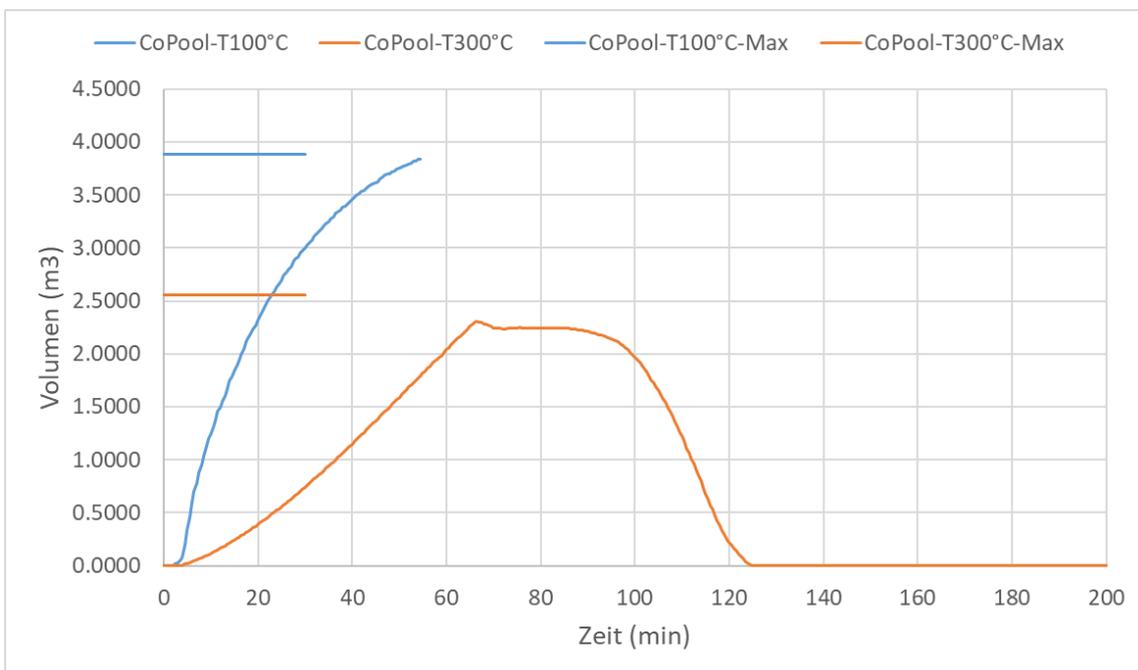


Abb. 6.21 Gebinde 2: Zeitverlauf der Volumina mit $T > 100$ °C bzw. 300 °C

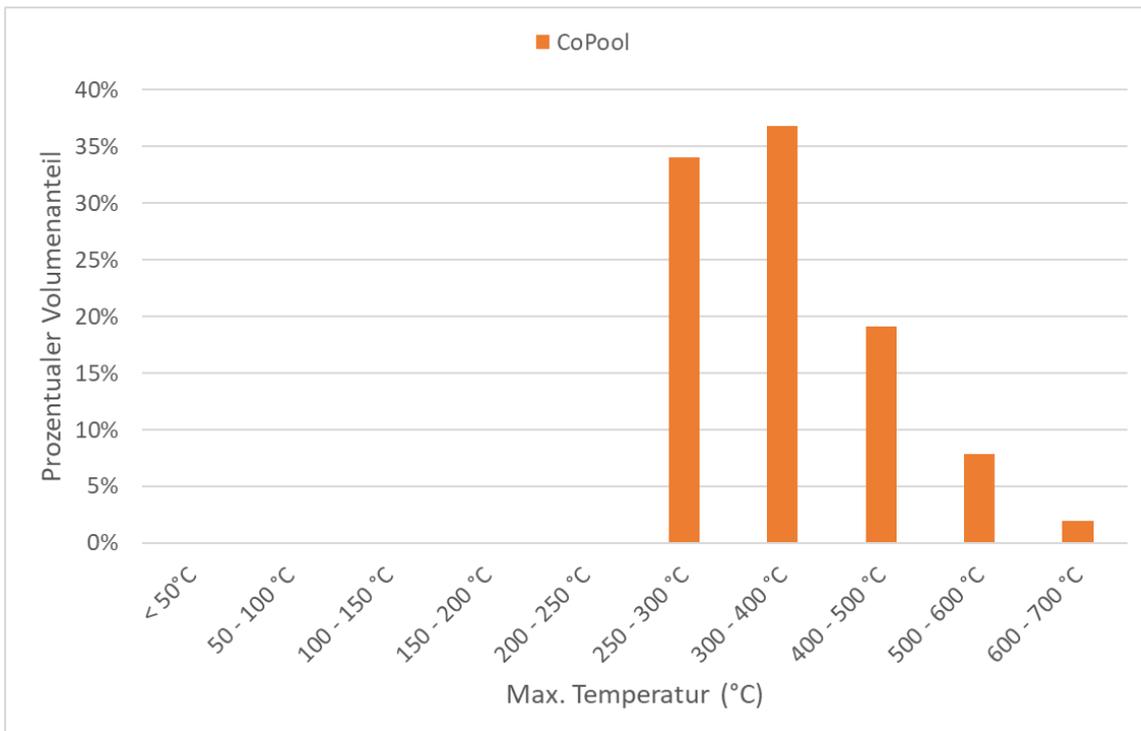


Abb. 6.22 Gebinde 2: Prozentualer Volumenanteil innerhalb bestimmter Temperaturintervalle

Gebinde 3: Gussbehälter Typ II

Analog zu den beiden Fällen werden im Folgenden die zeitlichen Verläufe der Volumina mit $T > 100\text{ °C}$ bzw. 300 °C dargestellt. Abb. 6.23 zeigt das Volumen unterhalb einer Temperaturgrenze von 300 °C . Die Ummantelung aus 16 cm dickem Gusseisen führt in der Anfangsphase zu einer starken Reduktion der thermischen Belastung. Nach dem Brand wird die gespeicherte Energie im Gusseisen nach außen aber auch nach innen abgegeben. Somit steigen auch nach dem Ende des Brandes die Temperaturen im Randbereich des Abfallprodukts weiter an (Abb. 6.16).

Analog zu den vorherigen Fällen werden in Abb. 6.24 die zeitlichen Verläufe der Volumina oberhalb 100 °C bzw. 300 °C dargestellt. Die 100 °C werden im gesamten Gebinde nach ca. 75 min erreicht. Hinsichtlich der 300 °C -Grenze erhöht sich das Volumen bis ca. 170 min. Nach ca. 205 min kühlt das Gebinde dann rapide ab. Die Temperaturverteilung anhand der maximalen Temperatur ist in Abb. 6.25 dargestellt. Langfristig ist die Verteilung der maximalen Temperatur im Gebinde weitgehend ausgeglichen und erreicht Werte zwischen 250 °C und 400 °C .

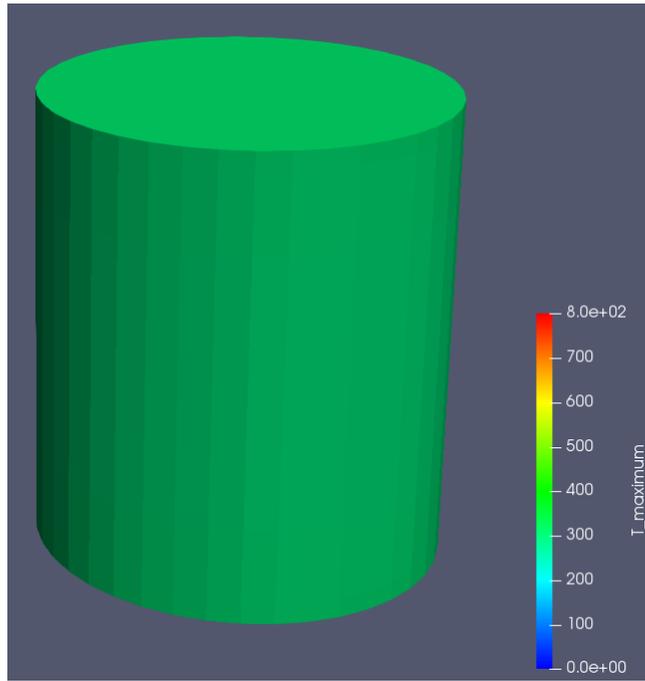


Abb. 6.23 Gebinde 3: 3D Darstellung der Volumina mit maximalen Temperaturen unterhalb 300 °C

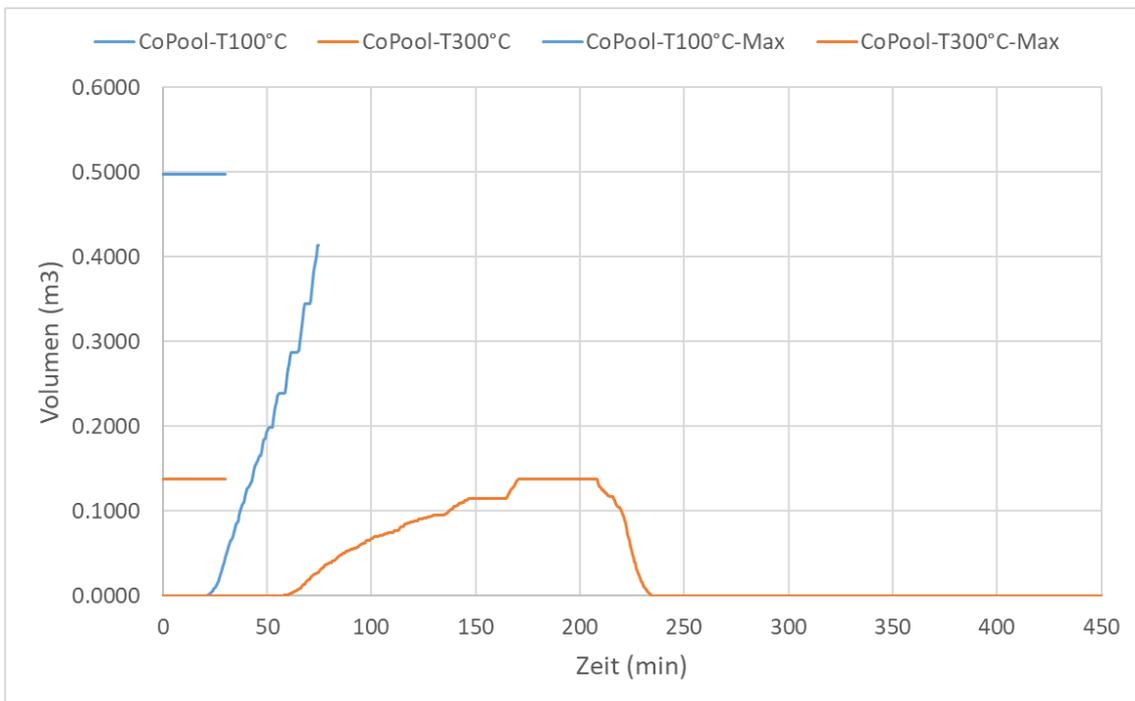


Abb. 6.24 Gebinde 3: Zeitverlauf der Volumina mit $T > 100$ °C bzw. 300 °C

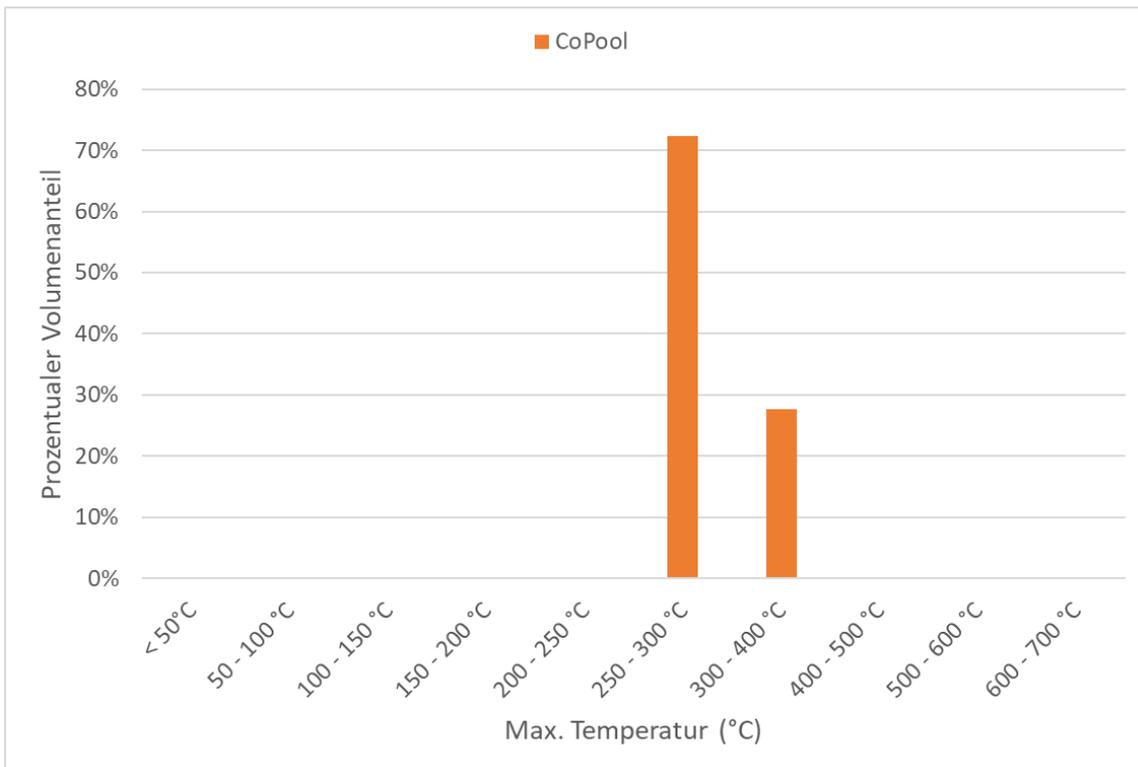


Abb. 6.25 Gebäude 3: Prozentualer Volumenanteil innerhalb bestimmter Temperaturintervalle

6.3 Brandsimulationsrechnungen mit FDS

Die erstellte Simulationskette soll laut Aufgabenstellung auch verschiedene Brandverläufe berücksichtigen können. Damit ist es möglich, die thermische Belastung im Gebäude bei räumlich und zeitlich unterschiedlichen (Rand-)Temperaturen zu berücksichtigen. Hierzu wird das Programm Fire Dynamics Simulator verwendet. Die Ergebnisse werden dann als Randbedingung an CoPool/COCOSYS weitergegeben.

Im Folgenden werden FDS-Rechenergebnisse für Gebäude 1 und Gebäude 2 dargestellt. Dabei wird der Stand der FDS-Version 6.8.0 in Bezug auf eine realistische dreidimensionale Wärmeverteilung erläutert.

Für die FDS-Rechnungen wird ein $7 \times 7 \times 7 \text{ m}^3$ großer Brandraum angenommen. Die Luftzufuhr erfolgt über eine umfassende Öffnung mit einer Höhe von 0,5 m. Die Brandfläche in der Mitte des Brandraums beträgt 16 m^2 . Der Brandraum ist nach oben offen. Am Rand des Rechengebiets werden offene Randbedingungen angenommen. Durch die untere Öffnung des Brandraums zentriert sich der Plume im Bereich des Gebäudes. Die

berechneten adiabaten Oberflächentemperaturen liegen im Bereich der PTB-Kurve von 800 °C. Die angenommene Wärmefreisetzungsrate beträgt nach einer Anstiegsphase von 300 s konstant 15 MW.

Gebinde 1 – 400 I Betongebinde

In FDS besteht ab Version 6.8.0 die Möglichkeit, Objekte mit einem unstrukturierten Gitter abzubilden („GEOM-Option“). Somit ist eine korrekte Darstellung der Zylindergeometrie möglich (Abb. 6.26, linke Seite). Auf der rechten Seite der Abbildung ist die bisher übliche Darstellung mit Hilfe von quaderförmigen Objekten dargestellt. Gezeigt wird die adiabate Oberflächentemperatur des Zylinders sowie das 2D-Temperaturprofil zum Zeitpunkt 580 s.

Laut Beschreibung des FDS /MCG 23/ ist bei Verwendung der GEOM-Option eine Simulation der 3D-Wärmeleitung nicht möglich. Dies führt zu charakteristischen Unterschieden an den Stirnflächen des Zylinders, wie sie in Abb. 6.27 dargestellt sind. In den realistischen 3D-Wärmeleitungsrechnungen sind an den Kanten des Objekts höhere Temperaturen zu beobachten.

In der Abb. 6.28 wird der Vergleich der vorgegebenen und berechneten Wärmefreisetzungsrate (HRR) dargestellt. Ab 300 s wird die maximale Rate von 15 MW vorgegeben. Die 15 MW Wärmefreisetzungsrate werden nicht vollständig erreicht, da sich offensichtlich ein kleiner Teil der Verbrennungszone (die Flammenspitzen) außerhalb des Berechnungsgebietes befindet. Für das Berechnungsergebnis hat dies aber keine relevanten Auswirkungen, da das Gebinde trotzdem von der Verbrennungszone umschlossen ist.

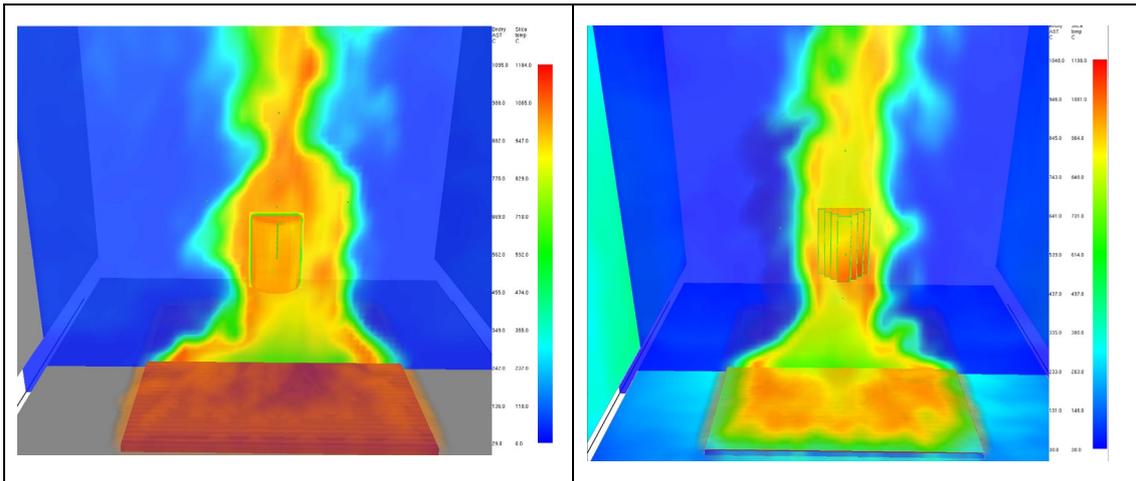


Abb. 6.26 Darstellung des Brandraums und des Betungebindes
 (Links: Verwendung der neuen GEOM-Option, Rechts: Annäherung des Zylinders durch quaderförmige Objekte)

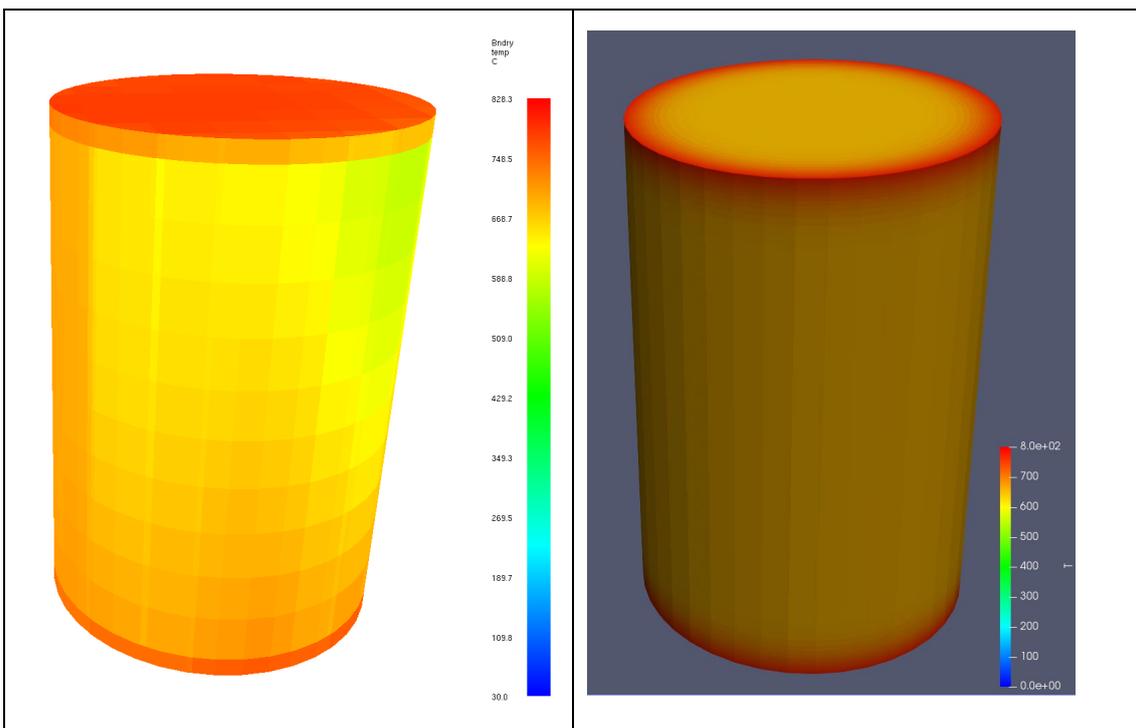


Abb. 6.27 Berechnete Temperaturverteilung in FDS und CoPool

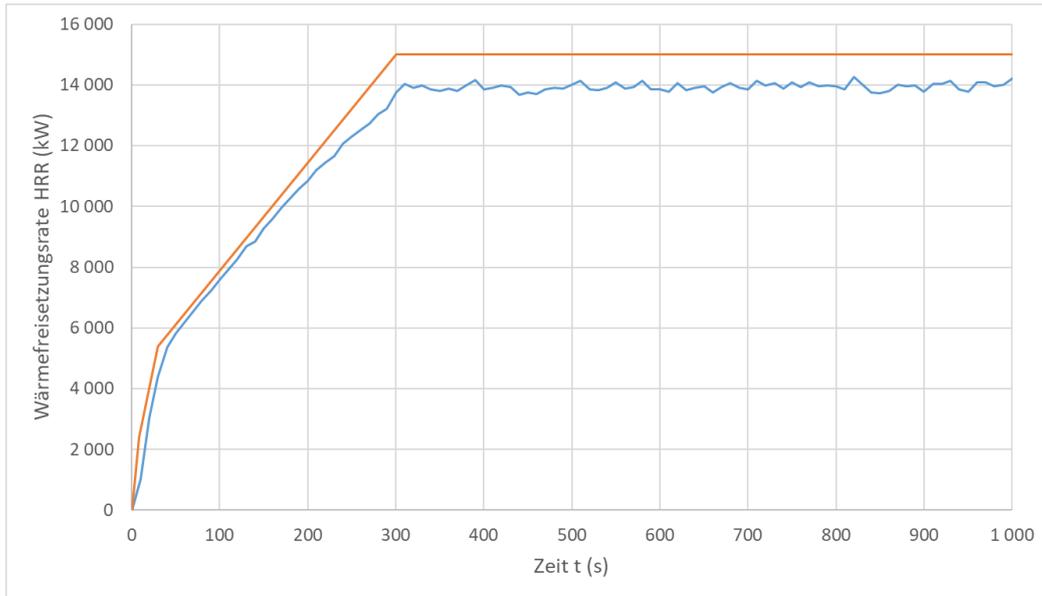


Abb. 6.28 Gebäude 1: Verlauf der vorgegebenen und berechneten Wärmefreisetzungsrates

Für die weitere Auswertung der thermischen Belastung wurde die Zylinderoberfläche in vier Abschnitte aufgeteilt. Für die jeweiligen Abschnitte wird die mittlere adiabate Oberflächentemperatur in FDS berechnet. Der Verlauf für Gebäude 1 wird in Abb. 6.29 dargestellt. Dieser wird dann als Randbedingung in der CoPool/COCOSYS-Rechnung verwendet. Die erreichten Temperaturen liegen im Bereich der PTB-Kurve. Der Temperaturanstieg ist im Vergleich zur PTB-Kurve steiler.

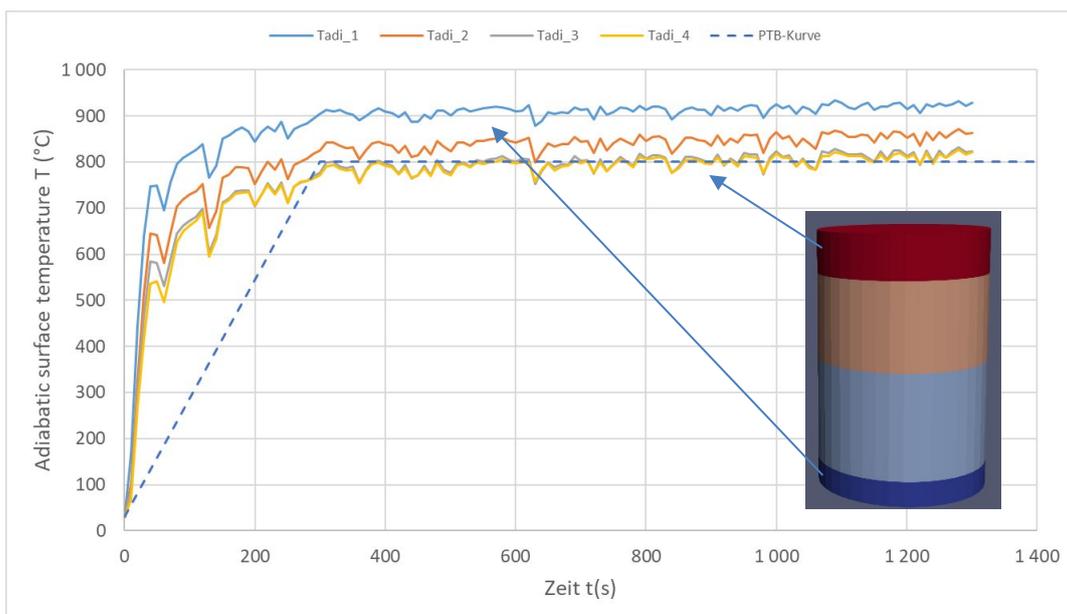


Abb. 6.29 Gebäude 1: Verlauf der mittleren adiabaten Oberflächentemperatur in den vier Abschnitten des Zylinders

Die radialen Temperaturprofile bei $z_1 = 0.527$ (Mitte) und $z_2 = 0.041$ (Stirn) werden in Abb. 6.30 dargestellt. Die Gittereinteilung erfolgte in diesen FDS-Rechnungen automatisch. Diese ist im Vergleich zu der in den CoPool-Rechnungen (gepunktete Kurven) deutlich gröber. Wegen der fehlenden 3D-Simulation in FDS sind die Temperaturen im Zentrum im Gegensatz zu den CoPool-Ergebnissen gleich.

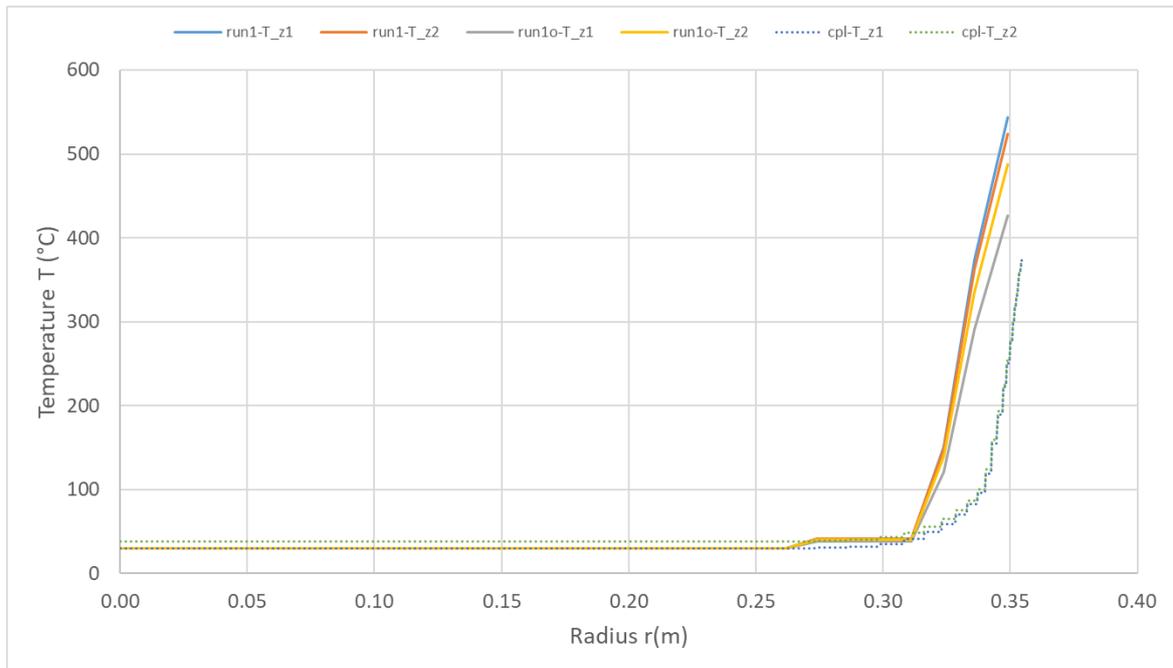


Abb. 6.30 Gebäude 1: Radiales Temperaturprofil zum Zeitpunkt 590 s
(run1: GEOM-Option, run1o: Quaderelemente)

Gebäude 2: Stahlblechcontainer Typ I

Entsprechende FDS-Rechnungen wurden auch für den Stahlblechcontainer Typ I (Gebäude 2) durchgeführt. Hierbei wurden zwei Optionen verwendet:

- *Run2*: Simulation des Containers als Objekt (OBST) mit einer 1D-Wärmeleitung und Berücksichtigung des Spalts als Schicht
- *Run2d*: Simulation des Containers als Objekt (OBST) und Verwendung der HT3D Option für die 3D-Wärmeleitung. Derzeit können mit dieser Option keine Behälterwände und kein Luftspalt berücksichtigt werden, da nur homogenes Material angenommen werden kann. In Bezug auf den Luftspalt, der ein Hindernis für den Wärmestrom darstellt, wirkt sich diese Vereinfachung aus und ist bezogen auf die Ergebnisse konservativ.

In Abb. 6.31 wird die Situation im Brandraum zum Zeitpunkt 360 s dargestellt. Abgebildet sind die 2D Temperaturverteilung im Brandraum sowie die adiabaten Oberflächentemperaturen.

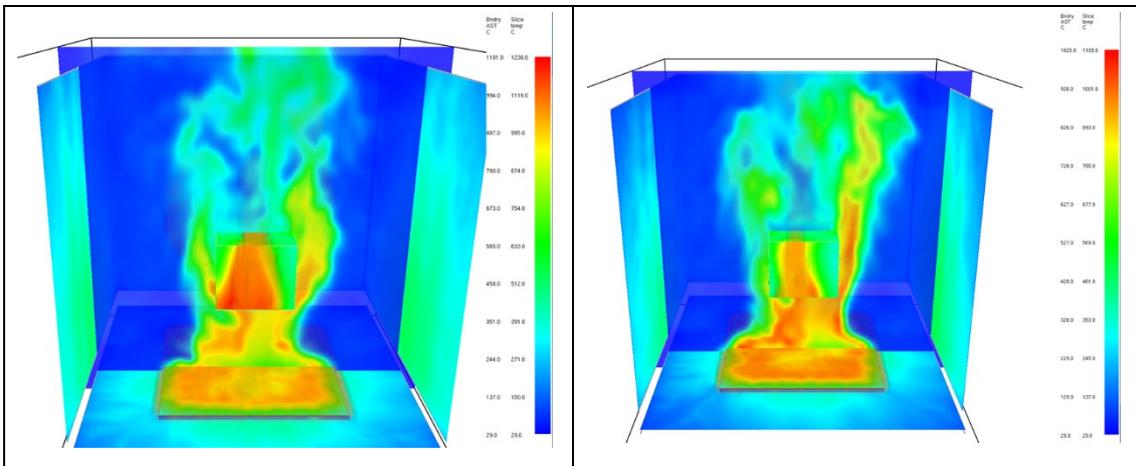


Abb. 6.31 Darstellung des Brandraums und des Stahlblechcontainers
(Links: run2; Rechts: run2d)

Obwohl die gleichen Randbedingungen im Brandraum verwendet werden, ist die Verbrennung im Gegensatz zum Gebinde 1 hier praktisch vollständig (Abb. 6.32), da sich die Umströmung der Flammen um das Gebinde ändert. Analog zum Gebinde 1 wurde die Oberfläche des Stahlblechcontainers in vier Abschnitte aufgeteilt. Der zeitliche Verlauf der adiabaten Oberflächentemperatur ist in Abb. 6.33 dargestellt. Es ist ein deutlicher Temperaturabfall von unten nach oben erkennbar. Allerdings entspricht die Aufteilung mit drei horizontalen Schnitten nicht der tatsächlich beobachteten Temperaturverteilung (siehe Abb. 6.31). So werden im mittleren Bereich der seitlichen Flächen höhere Temperaturen berechnet. Die Aufteilung der Abschnitte kann daher noch weiter optimiert werden.

Das Temperaturprofil parallel zur x-Achse und durch die Punkte $z_1 = 0,725$ m (Mitte) und $z_2 = 0,007$ m (unten) zum Zeitpunkt 360 s wird in Abb. 6.34 gezeigt. Die gepunkteten Kurven zeigen entsprechende CoPool-Ergebnisse, wobei hier die Randbedingungen der PTB-Kurve verwendet werden. In der Mitte entspricht der Verlauf der Rechnung *run2* dem von CoPool. Da in FDS keine 3D-Wärmeleitung simuliert wird, ist der Temperaturverlauf am Punkt z_2 sehr unterschiedlich. In der FDS-Rechnung mit HT3D-Option (*run2d*) wird der Luftspalt vernachlässigt, wodurch höhere Temperaturen berechnet werden. Zusätzlich wird ein relativ grobes äquidistantes Gitter von 1 cm verwendet, wodurch aufgrund der numerischen Diffusion mehr Wärme in das Innere des Gebindes dringt.

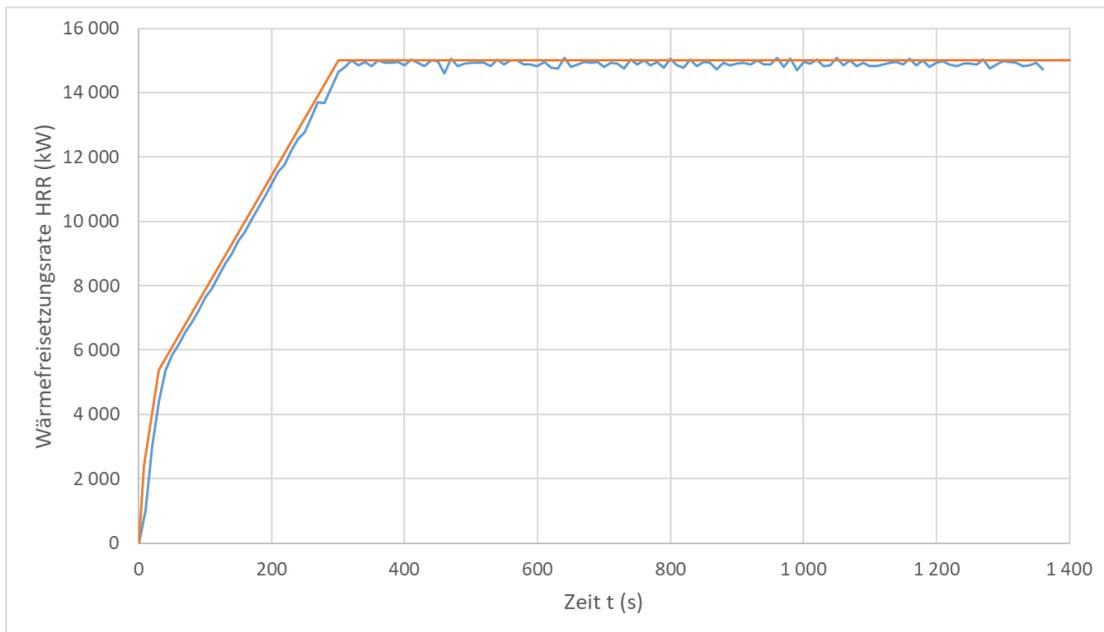


Abb. 6.32 Fall 2: Verlauf der vorgegebenen und berechneten Wärmefreisetzungsrate

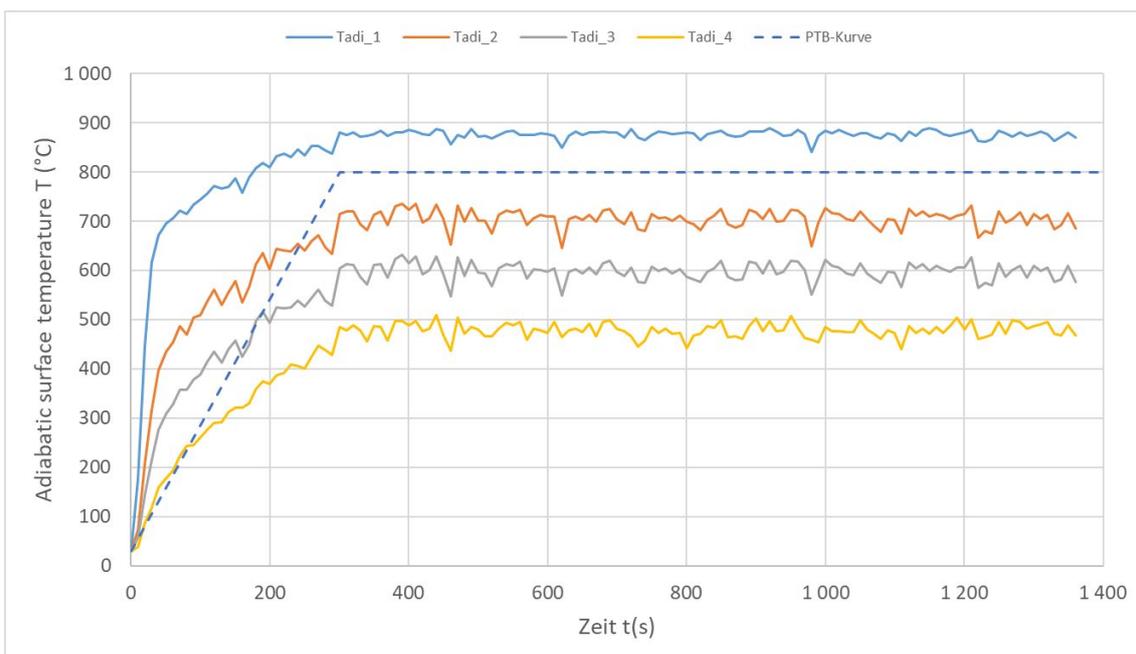


Abb. 6.33 Fall 2: Verlauf der mittleren adiabaten Temperatur in den vier Abschnitten des Containers

Fazit

Mit FDS kann zwar der Brandverlauf berechnet werden, die Einschränkungen hinsichtlich der Berechnung der thermischen Belastung im Gebinde sind allerdings noch

erheblich. Aus diesem Grunde werden abschnittsweise mittlere adiabate Oberflächen-temperaturen berechnet und diese an CoPool/COCOSYS übergeben.

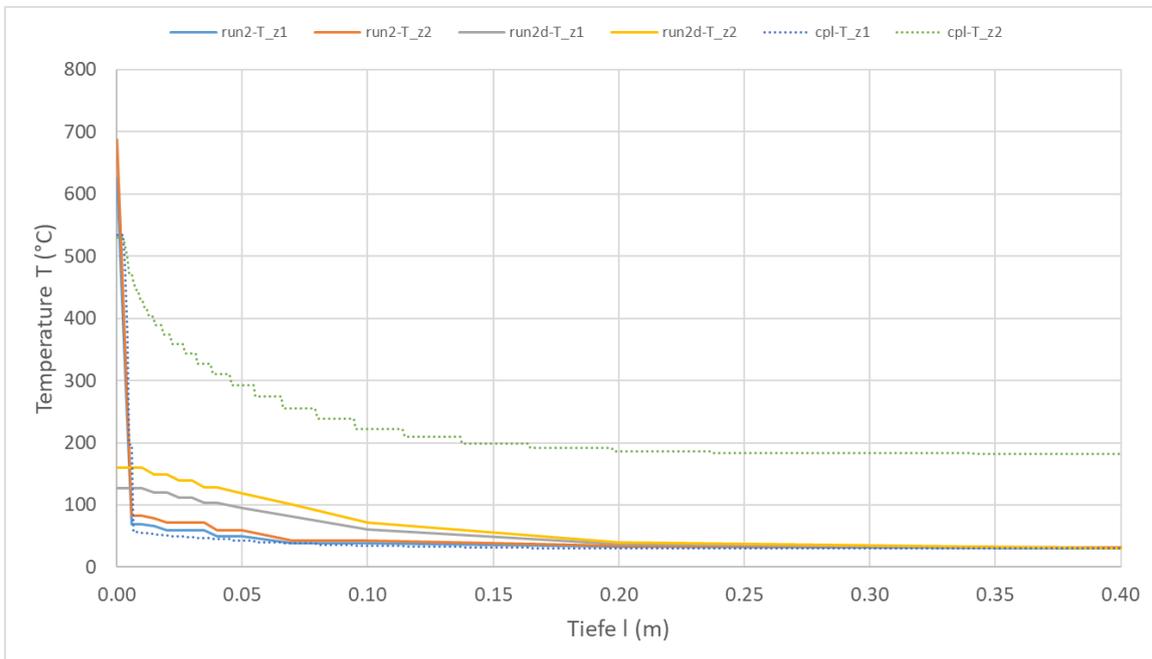


Abb. 6.34 Fall 1: Radiales Temperaturprofil zum Zeitpunkt 360 s (run2: OBST-Option, run2d: OBST mit HT3D-Option)

6.4 Verwendung spezifischer Brandverläufe in CoPool/COCOSYS

Am Beispiel des Gebindes 1 (400-I-Betonzylinder) wurde die Übertragung der FDS-Ergebnisse als Randbedingung für eine Simulation mit CoPool/COCOSYS angewandt. Hierzu wurde im ersten Schritt der COCOSYS Datensatz erweitert und der Brandraum in vier Zonen (R1A bis R1D, siehe Abb. 6.35, links) aufgeteilt, um die entsprechenden Temperaturrandbedingungen aus FDS (siehe Abb. 6.29) zu verwenden. Entsprechend werden auch die Wandstrukturobjekte in COCOSYS aufgeteilt (Abb. 6.35, rechts). Diese Objekte werden mit dem CoPool-Datensatz verbunden.

Exemplarisch wird die 3D-Temperaturverteilung im Betongebinde nach 1.300 s in Abb. 6.36 gezeigt. Zu erkennen sind die etwas unterschiedlichen Oberflächentemperaturen. Aufgrund der thermischen Trägheit im Gebinde, hauptsächlich wegen der geringen Wärmeleitfähigkeit im Beton, wirken sich die Unterschiede der Temperaturrandbedingungen kaum aus. Das ist der Grund, warum zur Auslegung sogenannte Modellkurven, wie die PTB-Kurve, verwendet werden können.

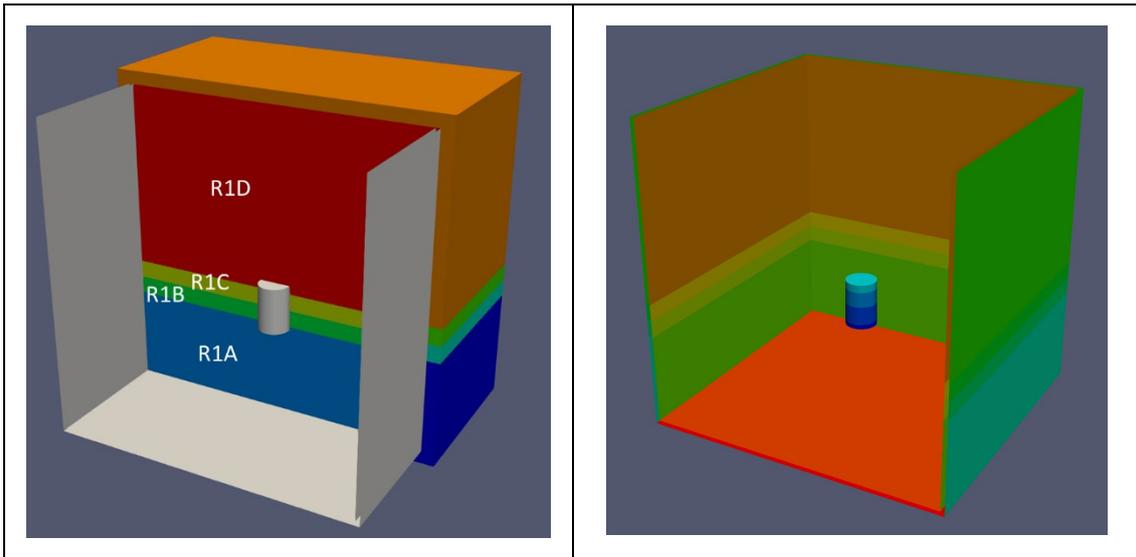


Abb. 6.35 Ergänzung des COCOSYS-Datensatzes
(links: Zonen, rechts: Wandstrukturen)

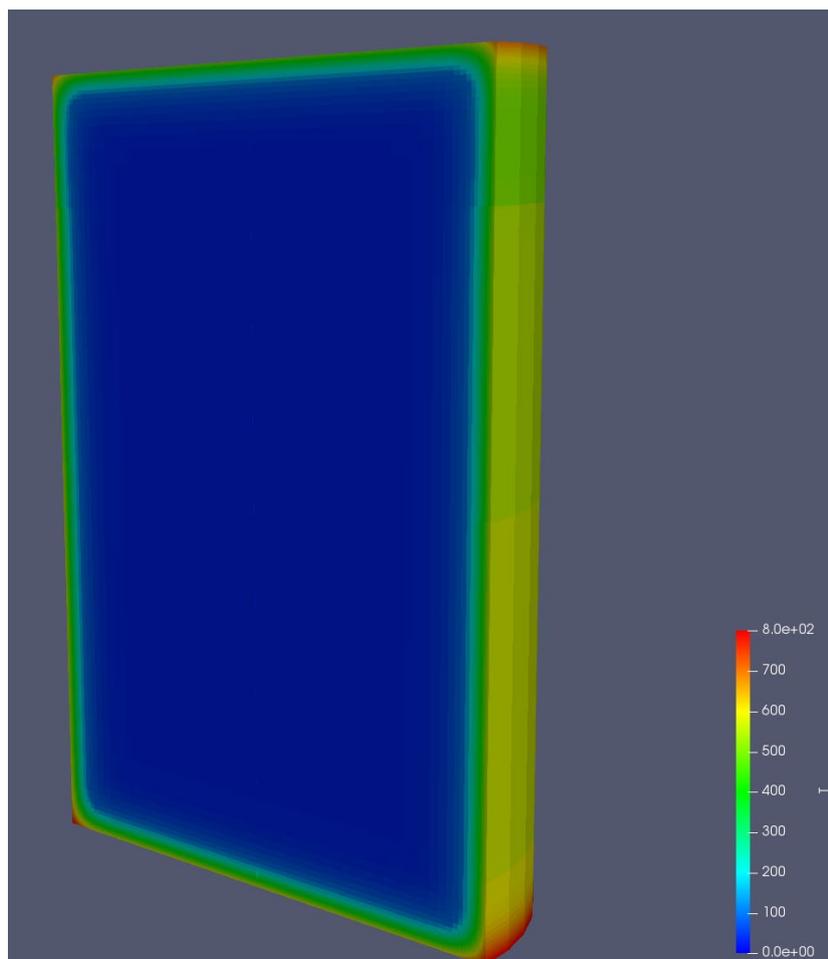


Abb. 6.36 Temperaturverteilung im Betongebinde nach 1.300 s

7 Zusammenfassung

Im ersten Teil dieses Berichts werden die Arbeiten von Gründler beschrieben, der seit den 1980er Jahren die Freisetzungssanteile radioaktiver Nuklide aus Abfallgebinden nach mechanischer bzw. thermischer und kombiniert mechanisch/thermischer Belastung bestimmt hatte. Im zweiten Teil des Berichts werden die für die Abschätzung der thermischen Freisetzungssanteile erforderlichen Temperaturfeldberechnungen exemplarisch durchgeführt.

Zur Systematisierung (vgl. Kap. 2) der Abfallgebinde mit radioaktiven Abfällen werden diese in die Abfallbehälterklasse (ABK) I, die den Grundanforderungen genügt und die Abfallbehälterklasse II, die höheren Belastungen standhält, eingeteilt. Die Abfallgebinde werden je nach Kombination aus Behältertyp und Abfallprodukten, die sechs verschiedenen Abfallproduktgruppen (APG) zugeordnet werden, in acht verschiedene Abfallgebindegruppen (AGG) unterteilt, von denen die AGG 1 bis 7 der ABK I und nur die AGG 8 der ABK II zugeordnet werden.

Als charakteristische Freisetzungsmechanismen bei thermischer Beanspruchung wurden von Gründler et al. in der Systemanalyse Konrad (1984) die Mechanismen Verbrennung, Pyrolyse, Sublimation und Wasserverdampfung/Mitris definiert sowie deren jeweilige Freisetzungssanteile bestimmt. Sie wurden später in der Systemanalyse Konrad des Jahres 1987 teilweise korrigiert. Sie decken die Freisetzung radioaktiver Aerosole bei einem spezifizierten Brand von 60 min Dauer bei 800 °C ab. Die Abschätzung dieser Freisetzungssanteile gehen auf experimentelle Untersuchungen zwischen 1973 bis 1984 zurück. Die Grundannahmen und Basisdaten zur Freisetzung werden in Kapitel 3 dargestellt.

In den Kapiteln 4 und 5 wird die Bestimmung der Freisetzungssanteile der acht verschiedenen Abfallgebindegruppen (AGG) dargelegt. Die AGG 1 bis 7 der Abfallbehälterklasse I werden dabei in Kapitel 4 behandelt, während die Gussgebinde der AGG 8 der Abfallbehälterklasse II im Kapitel 5 behandelt werden. In den jeweiligen Abschnitten werden für die einzelnen AGG die Annahmen zur Abfallzusammensetzung und zum Behälterverhalten in Abhängigkeit der Belastungsklasse dargestellt. Zusammen mit den im Kapitel 3 vorgestellten Freisetzungsmechanismen berechnen sich die jeweiligen Freisetzungssanteile für die vier verschiedenen Nuklidgruppen (Sonstige Nuklide, H-3, C-14 und Halogene). Die insgesamt 192 Einzelwerte für die vier Nuklidgruppen nach Belastung in sechs verschiedenen thermischen Belastungsklassen bei acht verschiedenen AGG

wurden nicht für alle Belastungsklassen und AGG separat berechnet, sondern häufig durch Transferüberlegungen abgeschätzt worden. Alle recherchierbaren Zwischenrechnungen und Überlegungen sind in den jeweiligen Abschnitten wiedergegeben worden. Dies betrifft die ursprünglichen Überlegungen von Gründler, als auch die späteren Plausibilitätsprüfungen von Brücher und insbesondere Richter, die teilweise zu einer Änderung der Freisetzungsteile geführt haben. Nicht alle Werte konnten lückenlos nachvollzogen werden.

Im Rahmen des Arbeitspunkts wurde eine Simulationskette zur Bestimmung von thermischen Freisetzungsteilen aus Abfallgebinden beginnend mit der Brandeinwirkung bis zur Freisetzung erstellt (Kap. 6). Die so entwickelte Simulationskette, die bis zur Temperaturverteilung innerhalb eines Abfallgebundes etabliert wurde, konnte anhand von früheren Rechnungen getestet und bewertet werden. Wichtig dabei sind der zeitliche Verlauf der räumlich aufgelösten Temperatur und der Anteil des Gebindevolumens/Abfallvolumens, die im Verlauf der thermischen Belastung (einschließlich der Abkühlphase nach einem Brand) vorgegebene Schwellentemperaturen überschreiten.

Nach der ursprünglichen Planung sollte das Programm Fire Dynamics Simulator (FDS) verwendet werden. Allerdings zeigte sich, dass mit der aktuell zur Verfügung stehenden Version nur eingeschränkt dreidimensionale Temperaturverteilung in Gebinden berechnet werden können. Daher wurden alternativ die von der GRS entwickelten und gekoppelten Programme CoPool und COCOSYS als Bestandteil des Programmsystems AC² verwendet.

Literaturverzeichnis

- /AC² 19/ Wielenberg A., et al: Recent improvements in the system code package AC²-2019 for the safety analysis of nuclear reactors, Nuclear Engineering and Design, Volume 354, 1 December 2019.
- /AC² 20/ AC² - GRS software package, 2020
<https://user-codes.grs.de/>.
- /ARN 20/ Arndt S., S. Band, S. Beck, D. Eschricht, D. Iliev, W. Klein-Heßling, H. Nowack, N. Reinke, M. Sonnenkalb, C. Spengler, G. Weber, N. Brückner: COCOSYS 3.0 User Manual, GRS-P-3/Vol. 1, Revision 54, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, June 2020.
- /BRE 87/ Brennecke, P., Warnecke, E.: Anforderungen an endzulagernde radioaktive Abfälle (Vorläufige Endlagerungsbedingungen, Stand November 1986), Schachtanlage Konrad, PTB-SE-16. Nr. PTB-SE-16, 1987.
- /BRÜ 13/ Brücher et al.: Vertiefung und Ergänzung ausgewählter Aspekte der Abfalltransportrisikoanalyse für die Standortregion der Schachtanlage Konrad, Abschlussbericht zum Vorhaben 3607R02600 Arbeitspaket 1 Teilaufgaben 11 – 14. Nr. GRS-A-3684, 2013.
- /FHG 75/ FHG: Untersuchungen über die Thermische Beständigkeit von mit Polystyrol verfestigten Ionenaustauschern, Institut für Chemie der Treib- und Explosivstoffe der Fraunhofer Gesellschaft, Zwischenbericht V-Bericht 5/75., Oktober 1975.
- /GES 85/ Gesellschaft für Nuklear-Service mbH: Brandversuch an verschiedenen Abfallgebinden, GNS B 58/84, Januar 1985.
- /GRÜ 84/ Gründler, D.: Systemanalyse Konrad, Teil 2, Bestimmung störfallbedingter Aktivitätsfreisetzung auf der Basis von Abfalldaten, Gesellschaft für Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-A-1159, 123 S., Köln, November 1984.

- /GRÜ 86/ Gründler, D. et al: Systemanalyse Konrad, Teil 3, Ermittlung und Klassifizierung von Störfällen, GRS-A-1216, Gesellschaft für Reaktorsicherheit (GRS) mbH, Köln, April 1986.
- /GRÜ 87/ Gründler, D., Pfeiffer, F.: Systemanalyse Konrad, Teil 3, Temperaturfelder in ausgewählten Konrad Abfallgebinden, GRS-A-1348, Gesellschaft für Reaktorsicherheit (GRS) mbH, Köln, Juni 1987.
- /GRÜ 87a/ Gründler, D.: Systemanalyse Konrad, Teil 3, Bestimmung störfallbedingter Aktivitätsfreisetzung, GRS-A-1389, Gesellschaft für Reaktorsicherheit (GRS) mbH, 138 S., Köln, November 1987.
- /GRÜ 91/ Gründler, D. et al.: Transportstudie Konrad (Hauptband), Sicherheitsanalyse des Transports radioaktiver Abfälle zum Endlager Konrad, (Hauptband), GRS-A-1755/I, Gesellschaft für Reaktorsicherheit (GRS) mbH, Köln, Juni 1991.
- /GRÜ 91a/ Gründler, D. et al.: Transportstudie Konrad (Ergänzungsband), GRS-A-1755/II, Gesellschaft für Reaktorsicherheit (GRS) mbH, Köln, Juni 1991.
- /ILI 14/ Iliev, O. et al.: Towards a Combined CFD/LP Code Approach for Containment Simulations, CFD4NRS, 2014.
- /ILI 20/ Iliev, O. et al.: Genauigkeits- und Effizienzsteigerung bei gekoppelten Berechnungen des Containment-Pool-Modells CoPool mit COCOSYS, Abschlussbericht, Fraunhofer ITWM, Januar 2020.
- /MAN 75/ Manns, W.: Über den Wassergehalt von Beton bei höheren Temperaturen, Düsseldorf, 1975.
- /MCG 23/ McGrattan, K. et al.: Fire Dynamics Simulator User's Guide, Revision: FDS-6.8.0-0-g886e009, NIST, April 2023.
- /MIS 73/ Mishima, J., Schwendiman, L.C.: Some experimental measurements of airborne uranium (representing plutonium) in transportation accidents BNWL-1732 (1973). Battelle, Pacific North West Lab, 20 S., Juni 1973.

- /MIS 73a/ Mishima, J., Schwendiman, L.C.: Fractional airborne release of uranium (representing plutonium) during the burning of contaminated wastes BNWL-1730 (1973)
- /MIS 74/ Mishima, J.: Fractional airborne release of plutonium under shipping accident conditions, Management of radioactive Wastes and non-radioactive Wastes from Nuclear Facilities (F2400). Battelle, Pacific North West Lab, 20 S.: Union Carbide Corp., Oak Ridge, Tenn. (USA). Nuclear Div, p. 1148-1161, 1974, 4. international symposium on packaging and transportation of radioactive materials, Miami Beach, Florida, USA, 22 Sep 1974, September 1974.
- /MUL 08/ Mulholland, G.W.: Smoke Production and Properties. In: DiNenno et al (Hrsg.): The SFPE Handbook of Fire Protection Engineering, 4. Auflage, NFPA, SFPE, Quincy, Massachusetts, 2008.
- /NUK 84/ NUKEM GmbH: Neue Ergebnisse zur Freisetzung aus radioaktiven Abfällen bei mechanischer und thermischer Belastung, Anhang zu FuE 84010. 1984.
- /PET 69/ J. F. Petersen: TAC2D, A General Purpose Two-Dimensional Heat Transfer Computer Code, GA-8868, UC-32, AEC Research and Development Report, Mathematics and Computers, September 1969.
- /PIE 84/ F. Piefke, H. Kriegel: Rechnungen zur Aufheizung verschiedener Abfallgebinde durch Feuereinwirkungen, Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB), September 1984.
- /PTB 84/ PTB Braunschweig: Abmessungen standardisierter Behältertypen (Stand 4/84). April 1984.
- /PTB 86/ PTB Braunschweig: Endlager für radioaktive Stoffe - Schachanlage KONRAD. März 1986.

- /REN 19/ Reinke, N., S. Arndt, I. Bakalov, S. Band, S. Beck, S. Buchholz, D. Eschricht, W. Klein-Heßling, D. Iliev, H. Nowack, C. Spengler, J. Stewering, M. Sonnenkalb: Validierung & Verifikation der Rechenprogramme COCOSYS und ASTEC, Abschlussbericht BMWi Projekt RS1544 GRS – 551, ISBN 978-3-947685-36-3, GRS gGmbH, August 2019.
- /RIC 17/ Richter, C.: Überprüfung des unfallbedingten Freisetzungsverhaltens bei der Beförderung radioaktiver Stoffe, Abschlussbericht zum Abschlussbericht zum Vorhaben 3614R03343, Arbeitspaket 3. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: Köln, 2017.
- /SAN 83/ Huerta, M., Lamoreaux, G. H., Romesberg, L. E., Yoshimura, H. R., Joseph, B. J., May, R. A.: Analysis, scale modeling, and full-scale tests of low-level nuclear-waste-drum response to accident environments. DOI 10.2172/6445812: United States, 1983.
- /SEN 09/ Sentuc, F.: Transportstudie Konrad 2009, Sicherheitsanalyse zur Beförderung radioaktiver Abfälle zum Endlager Konrad - GRS 256. GRS, ISBN 978-3-939355-31-1, Dezember 2009.
- /STE 10/ Steyer, S.: Endlager Konrad, Produktkontrolle radioaktiver Abfälle, radiologische Aspekte. Bundesamt für Strahlenschutz (BfS), - Endlager Konrad -, Stand: Oktober 2010. Hrsg.: BfS, SE-IB-30/08-REV-1, 178 S.: Salzgitter, Oktober 2010., Oktober 2010.
- /TRA 85/ Transnuklear GmbH: Brandlastversuch mit dem Transport- und Lagerbehälter, SAB/G-500 1. TN, Hanau, Februar 1985.
- /VEJ 83/ Vejmelka, P., et. al.: Activity Release from Waste Packages Containing ILLW-Cemented Waste Forms Under Mechanical and Thermal Stresses, CEC-Seminar: Testing, Evaluation and Shallow Land Burial of Low and Medium Radioactive Waste Forms. Hrsg.: CEC-Seminar, Geel, Belgium, KfK INE, Karlsruhe, September 1983.

Abbildungsverzeichnis

Abb. 6.1	Bestandteile des Programmpaketes AC ² mit Struktur von COCOSYS	45
Abb. 6.2	Modifizierte spezifische Wärmekapazität des Normalbetons	48
Abb. 6.3	Zeitlicher Verlauf des Wärmeübergangskoeffizienten über den Luftspalt	49
Abb. 6.4	Effektive Wärmeleitfähigkeit im Luftspalt als Funktion der Temperaturdifferenz	50
Abb. 6.5	Verlauf der PTB-Kurve	50
Abb. 6.6	Darstellung der Gittereinteilung in den CoPool-Rechnungen	52
Abb. 6.7	Temperaturverteilung in den Gebinden zum Zeitpunkt 3 600 s	52
Abb. 6.8	Gebinde 1: Vergleich der Ergebnisse von TAC2D und CoPool zur Temperaturverteilung nach 3.600 s	54
Abb. 6.9	Gebinde 1: Vergleich des Temperaturprofils entlang der mittleren radialen Achse zum Zeitpunkt 3.600 s	55
Abb. 6.10	Gebinde 1: Vergleich des zeitlichen Verlaufs an fünf Punkten im Betonzylinder	55
Abb. 6.11	Gebinde 2: Temperaturverteilung in TAC2D bei 3.600 s	56
Abb. 6.12	Gebinde 2: Vergleich des Temperaturprofils entlang der x-Achse bei 3.600 s	57
Abb. 6.13	Gebinde 2: Vergleich des zeitlichen Temperaturverlaufs am Punkt (0,0075; 0; 0,725)	58
Abb. 6.14	Gebinde 3: Temperaturverteilung in TAC2D bei 3.600 s	59
Abb. 6.15	Gebinde 3: Vergleich des Temperaturprofils entlang der mittleren radialen Achse zum Zeitpunkt 3.600 s	60
Abb. 6.16	Gebinde 3: Vergleich des zeitlichen Temperaturverlaufs an den Punkten P1 (0,3665; 0,575) und P2 (0,3665; 0,1635)	61
Abb. 6.17	Gebinde 1: 3D Darstellung der Volumina mit maximalen Temperaturen unterhalb 100 °C bzw. 300 °C	62
Abb. 6.18	Gebinde 1: Zeitverlauf der Volumina mit T > 100 °C bzw. 300 °C	62
Abb. 6.19	Gebinde 1: Vergleich des prozentualen Volumenanteils innerhalb bestimmter Temperaturintervalle	63

Abb. 6.20	Gebinde 2: 3D Darstellung der Volumina mit maximalen Temperaturen unterhalb 300 °C.....	64
Abb. 6.21	Gebinde 2: Zeitverlauf der Volumina mit $T > 100$ °C bzw. 300 °C	64
Abb. 6.22	Gebinde 2: Prozentualer Volumenanteil innerhalb bestimmter Temperaturintervalle	65
Abb. 6.23	Gebinde 3: 3D Darstellung der Volumina mit maximalen Temperaturen unterhalb 300 °C.....	66
Abb. 6.24	Gebinde 3: Zeitverlauf der Volumina mit $T > 100$ °C bzw. 300 °C	66
Abb. 6.25	Gebinde 3: Prozentualer Volumenanteil innerhalb bestimmter Temperaturintervalle	67
Abb. 6.26	Darstellung des Brandraums und des Betongebindes (Links: Verwendung der neuen GEOM-Option, Rechts: Annäherung des Zylinders durch quaderförmige Objekte)	69
Abb. 6.27	Berechnete Temperaturverteilung in FDS und CoPool.....	69
Abb. 6.28	Gebinde 1: Verlauf der vorgegebenen und berechneten Wärmefreisetzungsrate.....	70
Abb. 6.29	Gebinde 1: Verlauf der mittleren adiabaten Oberflächentemperatur in den vier Abschnitten des Zylinders	70
Abb. 6.30	Gebinde 1: Radiales Temperaturprofil zum Zeitpunkt 590 s (run1: GEOM-Option, run1o: Quaderelemente)	71
Abb. 6.31	Darstellung des Brandraums und des Stahlblechcontainers (Links: run2; Rechts: run2d).....	72
Abb. 6.32	Fall 2: Verlauf der vorgegebenen und berechneten Wärmefreisetzungsrate.....	73
Abb. 6.33	Fall 2: Verlauf der mittleren adiabaten Temperatur in den vier Abschnitten des Containers	73
Abb. 6.34	Fall 1: Radiales Temperaturprofil zum Zeitpunkt 360 s (run2: OBST-Option, run2d: OBST mit HT3D-Option).....	74
Abb. 6.35	Ergänzung des COCOSYS-Datensatzes (links: Zonen, rechts: Wandstrukturen)	75
Abb. 6.36	Temperaturverteilung im Betongebinde nach 1.300 s	75

Tabellenverzeichnis

Tab. 2.1	Verknüpfung zwischen Abfallgebindegruppen AGG, Abfallbehälterklasse ABK und Abfallproduktgruppe APG nach Richter et al. /RIC 17/	4
Tab. 3.1	Einordnung von Produktklassen PK mit spezifischen Freisetzungsmechanismen FM nach Gründler /GRÜ 84/, Anh. II, S. 10	7
Tab. 3.2	Definition von Abfallproduktgruppen APG und Zuordnung der definierten Freisetzungsmechanismen (FM) nach /GRÜ 87a/, Anh. A I, S.16 und /GRÜ 91/	8
Tab. 3.3	Freisetzungsmechanismen und maximale Freisetzungsteile nach /GRÜ 87a/, Anh. I, S. 4 bis 16.....	9
Tab. 4.1	Thermische Freisetzungsteile FA von Sonstigen Nukliden und Freisetzungsteile unter Berücksichtigung der Temperaturfeldberechnung des spezifizierten Stahlblech-Behälters.....	16
Tab. 4.2	Zuordnung von Freisetzungsteilen Sonstiger Nuklide der Abfallgebindegruppen der Belastungsklasse 9 aus der TSK 91 (linke Spalte), zu den kombinierten Freisetzungsteilen der Abfallproduktgruppen aus Tab. 4.1 (rechte Spalte).....	18
Tab. 4.3	AGG 1 und AGG 6, thermische Freisetzungsteile Sonstiger Nuklide für jede Belastungsklasse	21
Tab. 4.4	AGG 2, thermische Freisetzungsteile Sonstiger Nuklide für jede Belastungsklasse.....	24
Tab. 4.5	AGG 3, thermische Freisetzungsteile Sonstiger Nuklide für jede Belastungsklasse.....	26
Tab. 4.6	AGG 4, thermische Freisetzungsteile Sonstiger Nuklide für jede Belastungsklasse.....	28
Tab. 4.7	AGG 5, thermische Freisetzungsteile Sonstiger Nuklide für jede Belastungsklasse.....	31
Tab. 4.8	AGG 7, thermische Freisetzungsteile Sonstiger Nuklide für jede Belastungsklasse.....	33
Tab. 5.1	Freisetzungsteile in die Behälteratmosphäre für jede Abfallproduktgruppe APG in der AGG 8 in Abhängigkeit des Wasserdampfanteils X für die thermischen Lastfallbedingungen 800 °C und 60 min gemäß /GRÜ 87a/	37

Tab. 5.2	AGG 8, thermische Freisetzungsanteile Sonstiger Nuklide für jede Belastungsklasse.....	40
Tab. 6.1	Verwendete Stoffwerte der Materialien im Gebinde /PIE 84/, /GRÜ 87/	42
Tab. 6.2	Vergleich der Anzahl der Gitterpunkte	51

Abkürzungsverzeichnis

ABK	Abfallbehälterklasse
AED	Aerodynamischer Equivalentdurchmesser
AGG	Abfallgebindegruppe
APG	Abfallproduktgruppe
BfS	Bundesamt für Strahlenschutz
BK	Belastungsklasse
BMUV	Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, nukleare Sicherheit und Verbraucherschutz
CFD	Computational Fluid Dynamics
COCOSYS	Containment-Code-System
FA	Freisetzungsanteil
FDS	Fire Dynamics Simulator
FM	Freisetzungsmechanismus
GRS	Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH
IAEO	Internationale Atomenergieorganisation
NIST	National Institute of Standards and Technology
TSK	Transportstudie Konrad

A Anhang: Die Freisetzung über eine Leckrate in der Systemanalyse 1987

Im Folgenden wird die Freisetzungsteile aus der wässrigen Behälteratmosphäre über eine Leckrate für den Gussbehälter Typ II 16 aus /GRÜ 87/ skizziert. Gründler definierte zunächst Temperaturfunktionen für die innere Energie des Gebindes, für den Druckaufbau im Behälter, für den Dampfgehalt im Behälter und für die Leckrate. Mit den Temperaturfunktionen lässt sich berechnen, welche Werte die innere Energie, der Behälterinnendruck und die Leckrate annehmen, wenn die Temperatur unter der Voraussetzung eines homogenen Temperaturfeldes einen bestimmten Wert erreicht. Im nächsten Schritt wird zeitabhängig die Behälterinnentemperatur ermittelt. Durch Korrelation der temperaturabhängigen Leckrate mit der zeitabhängigen Temperatur erhält man den zeitabhängigen Verlauf der Leckrate, mit der sich über eine Zeit integriert eine Gesamt-Leckrate abschätzen lässt.

Für die Bestimmung des zeitlichen Verlaufs der Leckrate muss zunächst die Entwicklung der Temperatur im Behälter ermittelt werden. Gründler diskutiert dazu, dass aufgrund der Komplexität der ablaufenden Vorgänge und mangels geeigneter experimenteller Untersuchungen ein geeignetes realistisches Modell fehlt. Daher wird für die weiteren Berechnungen das folgende konservative Modell verwandt: Es wird angenommen, dass ein genügend großer Anteil des verdampfenden Wassers im Behälter mit der Behälterinnenwand in Kontakt steht. Dieses Wasser heizt sich bis auf Siedetemperatur auf und verdampft. Der Dampf kondensiert an kalten Stellen des Abfallproduktes und heizt diese durch die freiwerdende Kondensationswärme auf. Kann aufgrund des Temperaturgleichgewichtes kein Dampf mehr kondensieren, steigt der Druck im Behälter an, was eine Erhöhung des Siedepunktes zur Folge hat /GRÜ 87a/. Die den Behälterwänden aufgetragenen Temperaturen ergeben sich aus den Rechnungen zur Aufheizung von Abfallgebänden nach /PIE 84/. Ausgewählt wurden die Rechnungen für den Gussbehälter Typ 11, 16/0 mit Polystyrol als Abfallprodukt.

Tab. A.1 Eingangsgrößen zur Berechnung von Druck- und Temperaturentwicklung der Behälteratmosphäre mit den Einflussgrößen der Wassermasse und des Leervolumens für den Gussbehälter Typ II 16/0 gemäß /PTB 84/, /GRÜ 87a/

Abfallproduktgruppe	Produktmasse in kg	Wassermasse in kg	Fläche in m ²	Leervolumen in m ³
APG 01	260	100	3,58	0,2
APG 02	1.800	10	3,58	0,2
APG 03	1.800	10	3,58	0,2
APG 04	1.800	10	3,58	0,15
APG 05	250	250	3,58	0,25
APG 06	Entspricht der Konzentratmasse	500	3,58	0,25

Die Simulation der Gesamt-Leckrate nach Gründler /GRÜ 87a/, liefert für jede Abfallproduktgruppe 1 bis 6 über einen Zeitraum von 600 Minuten die Freisetzungsteile der vier Nuklidgruppen pro Gebinde. Diese Freisetzungsteile sind in /GRÜ 87a/ tabellarisch zu finden. Es wird auf die Zuordnung der Freisetzungsteile zu den einzelnen APGs verzichtet, sondern der jeweils größte Freisetzungsteil einer Nuklidgruppe aus den berechneten Gesamt-Leckraten als relevanter Freisetzungsteil für alle APGs herangezogen. Zum Beispiel wurde in /GRÜ 87a/, Anh. I, S. 50, für alle Abfallproduktgruppen der Freisetzungsteil für Halogene mit 0,036 abgeschätzt, denn dieser Wert wurde in APG 04 als Maximum von allen APG-Werten gefunden. Im Einzelnen ergeben sich folgende Werte:

Halogene

Der maximale Wert von 0,036 für Halogene wurde für die Abfallproduktgruppe 05 gefunden und auf 0,04 aufgerundet.

C-14

Für C-14 beträgt das Maximum der Freisetzung $5,56 \times 10^{-3}$, aufgerundet 6×10^{-3} .

Tritium

Der maximale Wert von $3,46 \times 10^{-3}$, aufgerundet 4×10^{-3} , ergibt sich für die Abfallproduktgruppe 04.

Sonstige Radionuklide

Der maximale Freisetzunganteil ergibt sich nach Gründlers Simulationen aus der AGG 4 mit $2,23 \times 10^{-5}$. Dieser Wert korrespondiert abgerundet auf 2×10^{-5} mit der vorgegebenen Gasleckage von 1 Mol der Abfallklasse 1.

**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