

KfK 2076  
März 1978

**Berechnungen zur  
Radiolysegasbildung und  
Wärmeentwicklung bei der  
Einlagerung von radioaktiven  
Bitumen- und  
Zementprodukten in  
unterirdischen Lagerräumen**

**E. Smailos, W. Diefenbacher, E. Korthaus, W. Comper**  
Abteilung Behandlung radioaktiver Abfälle  
Abteilung Reaktorbetrieb und Technik  
Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**

Als Manuskript vervielfältigt  
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE GMBH

K E R N F O R S C H U N G S Z E N T R U M   K A R L S R U H E

Abteilung Behandlung radioaktiver Abfälle

Abteilung Reaktorbetrieb und Technik

Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung

KFK 2076

PWA-Nr. 37/77

Berechnungen zur Radiolysegasbildung und Wärmeentwicklung bei  
der Einlagerung von radioaktiven Bitumen- und Zementprodukten  
in unterirdischen Lagerräumen

von

E.Smailos, W.Diefenbacher, E.Korthaus, W.Comper

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe



## Kurzfassung

Es wurden Berechnungen zur Radiolysegasbildung und Wärmeentwicklung bei der Einlagerung von radioaktiven spaltprodukthaltigen Bitumen- und Zementprodukten in unterirdischen Lagerräumen durchgeführt.

Die Berechnungen zur Radiolysegasbildung aus Bitumen- und Zementprodukten (ohne Plutonium) zeigen, daß die Radiolysegas Mengen mit steigendem Füllungsgrad des Lagerraumes und wachsendem Alter der Spaltprodukte (bei gleicher spezifischer Anfangsaktivität der Produkte) zunehmen. Ferner ergab sich, daß die beim Lagern von Zementprodukten auftretenden Radiolysegas Mengen in einem Lagerraum etwa um den Faktor 17 niedriger liegen als diejenigen beim Lagern von Bitumenprodukten. Aus den berechneten Radiolysegas Mengen wurden Werte für die spezifische Anfangsaktivität in den Bitumen- und Zementprodukten ermittelt, bei denen in einem unbelüfteten Lagerraum nach einer angenommenen Betriebsdauer von 10 Jahren ein zündfähiges Radiolysegas/Luft-Gemisch gerade erreicht wird.

Bezüglich der Wärmeentwicklung in zylindrischen Lagerräumen zeigen die Berechnungen an Produkten mit und ohne Plutonium, daß die Temperatur mit wachsendem Alter der Spaltprodukte (bei gleicher spezifischer Anfangsaktivität) zunimmt. Der maximale Temperaturwert wird jeweils bei einem Durchmesser/Höhe-Verhältnis (D/H) des Lagerraumes von etwa 1 erreicht. Ferner ergab sich, daß die beim Lagern von Zementprodukten auftretenden Temperaturen kleiner sind als diejenigen beim Lagern von Bitumenprodukten. Aus den berechneten Temperaturen wurden für einen zylindrischen Lagerraum (D/H = 0,63) Werte für die spezifische Anfangsaktivität in spaltprodukthaltigen Bitumen- und Zementprodukten mit und ohne Plutonium ermittelt, bei denen die für diese Untersuchungen angenommenen maximal zulässigen Temperaturen von 70°C für Bitumenprodukte bzw. 90°C für Zementprodukte gerade erreicht werden.

Studies on the Formation of Radiolytic Gases and on Heat Generation during Storage of Radioactive Bitumen and Concrete Products in Underground Storage Spaces

Abstract

Studies were performed on the formation of radiolytic gases and on the generation of heat during storage of fission product bearing radioactive bitumen and concrete products in underground storage spaces.

The investigations relating to the formation of radiolytic gases from bitumen and concrete products (without plutonium) show that the amounts of radiolytic gases increase with the storage space becoming more and more filled and with the growing age of the fission products (assuming the same specific initial activity of the products). It was further evident that the amounts of radiolytic gases formed while storing concrete products are lower by about the factor 17 in a storage space as compared to that calculated for bitumen products stored. From the amounts calculated of radiolytic gases those values of the specific initial activity in the bitumen and concrete products were determined for which in a non-ventilated storage space an ignitable mixture of radiolytic gas/air is just attained after an assumed 10 years period of operation.

As to the heat generation in cylindrical storage spaces, investigations relating to products with and without plutonium content have shown that the temperature rises with growing age of the fission products (for the same specific initial activity of the products). The maximum temperature value is attained for a diameter to height ratio (D/H) approximately unity of the storage space. It was further found that the temperatures are lower for concrete products stored than for bitumen products stored. The temperatures calculated are used to determine for a cylindrical storage space (D/H = 0.63) those values of the specific initial activity in fission product bearing bitumen and concrete products with and without plutonium for which the maximum tolerable temperatures of 70°C for bitumen products and 90°C for concrete products assumed in this investigation are just attained.

## Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Einleitung und Problemstellung	1
2. <u>Bildung von Radiolysegasen bei der Einlagerung von radioaktiven spaltprodukthaltigen Bitumen- und Zementprodukten ohne Plutonium in unterirdischen Lagerräumen</u>	3
2.1 Literaturübersicht	3
2.1.1 Radiolysegasausbeute aus Bitumenprodukten	3
2.1.2 Radiolysegasausbeute aus Zementprodukten	4
2.2 Berechnung der H <sub>2</sub> -Bildungsraten und der kumulierten H <sub>2</sub> -Mengen in Lagerräumen für verschiedene Füllungsgrade und verschiedenes Alter der Spaltprodukte in den Bitumen- und Zementprodukten	4
2.2.1 Modellannahmen	5
2.2.2 Ergebnisse	11
2.3 Diskussion	19
3. <u>Wärmeentwicklung aus radioaktiven spaltprodukthaltigen Bitumen- und Zementprodukten mit und ohne Plutonium bei der Einlagerung in unterirdischen Lagerräumen</u>	22
3.1 Berechnung der auftretenden Maximaltemperaturen in zylindrischen Lagerräumen	22
3.1.1 Modellannahmen	22
3.1.2 Ergebnisse	28
3.1.2.1 Abhängigkeit der Maximaltemperatur von der Dimensionierung des Lager-raumes beim Lagern von Abfallprodukten <u>ohne Plutonium</u>	28

	Seite	
3.1.2.2	Abhängigkeit der Maximaltemperatur von der Dimensionierung des Lager- raumes beim Lagern von <u>plutonium-</u> <u>haltigen</u> Abfallprodukten	29
3.1.2.3	Einfluß des Alters der Spaltprodukte und der Einlagerungsart auf die Maxi- maltemperatur im Lagerraum beim Lagern von Abfallprodukten <u>ohne Plutonium</u>	34
3.1.2.4	Einfluß der Einlagerungsart auf die Maximaltemperatur im Lagerraum beim Lagern von <u>plutoniumhaltigen</u> Abfall- produkten	42
3.2	Diskussion	51
4.	Zusammenfassung	54
4.1	Bildung von Radiolysegasen bei der Einlagerung von Bitumen- und Zementprodukten in unterirdischen Lager- räumen	54
4.2	Wärmeentwicklung aus Bitumen- und Zementprodukten bei der Einlagerung in unterirdischen Lagerräumen	55
5.	Schlußfolgerungen	57
6.	Literaturverzeichnis	58
A n h a n g	- Rechenverfahren und Rechenprogramme -	60
A.1	Berechnung der H <sub>2</sub> -Bildungsraten und der kumulierten H <sub>2</sub> -Mengen im Lagerraum	60
A.1.1	Rechenverfahren	60
A.1.2	Rechenprogramme	62
A.2	Berechnung der Temperaturen in zylindrischen Lagerräumen	66



## 1. Einleitung und Problemstellung

Radioaktive Abfälle erfordern eine endgültige Lagerung, die auch langfristig eine Gefährdung der Umwelt des Menschen mit hoher Sicherheitsgarantie ausschließt und wirtschaftlich tragbar ist. Eine gute Lösung des Problems für die zur Zeit in Bitumen und Zement fixierten schwach- und mittelaktiven Abfälle bietet die Einlagerung in Salzformationen an.

Vor der Einlagerung von solchen Abfällen ist u.a. zu untersuchen, ob die radiolytische Zersetzung der Fixiermaterialien Bitumen bzw. Zement und die durch radioaktiven Zerfall freigesetzte Wärme zu einer Gefährdung der Sicherheit führen können.

Die Radiolyse könnte dadurch eine Gefahr für die Sicherheit bilden, daß die gasförmigen Radiolyseprodukte während der Lagerzeit mit der Luft des Lagerraumes zündfähige Gemische bilden. Die Bildung von solchen Gemischen muß verhindert werden, da während des Einlagerungsbetriebes Zündquellen nicht auszuschließen sind.

Die Zerfallswärme der fixierten Abfälle könnte zu einer solchen Erwärmung der Produkte führen, daß im Falle der Bitumenprodukte der Erweichungspunkt des Bitumens überschritten wird. Dadurch könnte eine geringfügige Freisetzung von leicht flüchtigen Bestandteilen und eventuell eine Entmischung der Abfallprodukte erfolgen. Um auf der sicheren Seite zu liegen, wurden für diese Untersuchungen als maximal zulässige Temperatur für die Bitumenprodukte  $70^{\circ}\text{C}$  angenommen, d.h.  $20^{\circ}\text{C}$  unterhalb des Erweichungspunktes der untersuchten Bitumen/ $\text{NaNO}_3$ -Gemische. Bei den Zement/Salz-Gemischen existieren keine Untersuchungen bei hohen Temperaturen. Da sich bei starker Erwärmung einzelne Produkteigenschaften, wie Druckfestigkeit und Wärmedehnzahl ändern können, wurden für diese Untersuchungen aus konservativen Gründen als maximal zulässige Temperatur für die Zementprodukte  $90^{\circ}\text{C}$  zugrunde gelegt, d.h. eine Temperatur etwas unterhalb des Siedepunktes des im Zement vorhandenen freien Wassers.

Ziel dieser Arbeit ist es, den Einfluß verschiedener Größen, wie Einlagerungsart der Produkte, Füllungsgrad und Dimensionierung des Lagerraumes sowie Alter der Spaltprodukte <sup>†</sup>) auf die Radiolysegasbildung und Wärmeentwicklung bei der Einlagerung von radioaktiven spaltprodukt-haltigen Bitumen- und Zementprodukten zu bestimmen. Die Berechnungen beziehen sich nur auf unbelüftete unterirdische Lagerräume und auf Abfälle aus der Wiederaufarbeitung. Abfälle aus Reaktoren werden hier nicht betrachtet. Für die Behandlung des Radiolyseproblems werden die Bildungs-raten der Radiolysegase und die kumulierten Radiolysegasmengen in einem Lagerraum beim Lagern von Abfallprodukten ohne Plutonium mit verschiedenen spezifischen Anfangsaktivitäten <sup>††</sup>) (0,1 - 1 Ci/l) und verschiedenem Alter der Spaltprodukte (0,5 a, 1 a, 2 a) berechnet. Die Füllungsgrade des Lagerraumes werden dabei zu 25 Vol.% und 50 Vol.% angenommen. Produkte mit Plutonium konnten nicht einbezogen werden, da es zur Zeit noch keine Angaben über die Radiolysegasausbeute aus Bitumen- und Zementprodukten nach  $\alpha$ -Bestrahlung gibt. Für die Abfallprodukte werden Werte für die spezifische Anfangsaktivität berechnet, bei denen in einem unbelüfteten Lagerraum die untere Zündgrenze des Radiolysegas/Luft-Gemisches gerade erreicht wird.

Bezüglich des Wärmeproblems werden die auftretenden Maximaltemperaturen in zylindrischen Lagerräumen in Abhängigkeit vom Verhältnis Durchmesser/Höhe (D/H) bei instantaner Einlagerung von spaltprodukt-haltigen Bitumen- und Zementprodukten mit verschiedenen spezifischen Anfangsaktivitäten und unterschiedlichem Alter der Spaltprodukte berechnet. Ferner wird am Beispiel eines zylindrischen Lagerraumes, dessen D/H-Verhältnis der im Bau befindlichen Prototyp-Kaverne /1/ entspricht, der Einfluß des Alters der Spaltprodukte und der Einlagerungsart auf die Temperaturentwicklung in einem Lagerraum bestimmt. Darüber hinaus werden für diesen Lagerraum Werte für die spezifische Anfangsaktivität in Bitumen- und Zementprodukten ermittelt, bei denen angenommene Maximaltemperaturen von 70°C für Bitumenprodukte bzw. 90°C für Zementprodukte erreicht werden.

Für die Berechnungen zur Wärmeentwicklung werden Abfallprodukte mit und ohne Plutonium betrachtet.

-3-

---

<sup>†</sup>) Mit Alter der Spaltprodukte wird die Zeit von der Reaktorentnahme bis zur Einlagerung bezeichnet.

<sup>††</sup>) Mit spezifischer Anfangsaktivität wird die spezifische Aktivität der Produkte zum Zeitpunkt der Einlagerung bezeichnet.

## 2. Zur Bildung von Radiolysegasen bei der Einlagerung von radioaktiven spaltproduktartigen Bitumen- und Zementprodukten ohne Plutonium in unterirdischen Lagerräumen

### 2.1 Literaturübersicht

#### 2.1.1 Radiolysegasausbeute aus Bitumenprodukten

Die strahlenchemische Stabilität von Bitumen und Bitumen/Salz-Gemischen war Gegenstand zahlreicher Untersuchungen, da das Bitumen zu den wichtigsten Fixierungsmaterialien für radioaktive Abfälle zählt. Eine Übersicht über die bis zum Jahre 1969 durchgeführten Bestrahlungsuntersuchungen findet sich in /2/. Bei allen bisherigen, meist mit äußeren  $\gamma$ -Quellen, in einigen Fällen durch Elektronenstrahlen durchgeführten Untersuchungen, wurde nachgewiesen, daß bei der Bestrahlung von Bitumen und Bitumen/ $\text{NaNO}_3$ -Gemischen als gasförmiges Radiolyseprodukt hauptsächlich Wasserstoff entsteht. Neuere Untersuchungen /3/ zeigen, daß neben Wasserstoff ca. 15%  $\text{CH}_4$  und  $\text{C}_2\text{H}_x$ <sup>+</sup> sowie ca. 1%  $\text{C}_3\text{H}_x$  und  $\text{C}_4\text{H}_x$  im Vergleich zu den Wasserstoffvolumina als Radiolyseprodukte auftreten. Kluger /4/ berichtet, daß nach der Bestrahlung mit 10 MeV-Elektronen die Wasserstoffausbeute von Bitumen Mexphalt  $5,6 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^3/\text{Mrad} \cdot \text{g}$  und von Bitumen/ $\text{NaNO}_3$ -Gemischen (50 Gew.% Salze)  $3 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^3/\text{Mrad} \cdot \text{g}$  beträgt. Vergleichbare Werte für den Wasserstoff wurden auch nach  $\gamma$ -Bestrahlung erhalten. Eine Abhängigkeit der Wasserstoffausbeute aus Bitumenprodukten vom Bitumentyp, von der Art der Strahlenquelle, von der Dosisleistung und von der Bestrahlungsatmosphäre (Luft, Argon) konnte in den bisherigen Bestrahlungen nicht bzw. nicht eindeutig nachgewiesen werden /3, 5, 6, 7, 8/. Kluger /3/ stellte fest, daß bei der Bestrahlung von Bitumen/ $\text{NaNO}_3$ -Gemischen mit  $\gamma$ -Strahlen und 10 MeV-Elektronen bis  $10^8$  rad die Wasserstoffausbeute proportional der absorbierten Dosis ist.

---

<sup>+</sup>)  $\text{CH}_4$  und  $\text{C}_2\text{H}_x$  liegen in etwa gleichen volumenanteilen vor

### 2.1.2 Radiolysegasausbeute aus Zementprodukten

Über die Strahlenbeständigkeit von Zement und Zementprodukten liegt bisher nur eine Arbeit von Kluger /9/ vor. Dort wird berichtet, daß nach der Bestrahlung von Zement und Zement/Nitrat-Gemischen mit Elektronen einer Energie von 10 MeV als gasförmige Radiolyseprodukte Wasserstoff, Sauerstoff und Stickstoff nachgewiesen wurden. Für Zement/Nitrat-Gemische wird eine Ausbeute für Wasserstoff von  $2 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^3/\text{Mrad} \cdot \text{g}$ , für Sauerstoff von  $6,6 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^3/\text{Mrad} \cdot \text{g}$  und für Stickstoff von  $6 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^3/\text{Mrad} \cdot \text{g}$  angegeben.

### 2.2 Berechnung der H<sub>2</sub>-Bildungsraten und der kumulierten H<sub>2</sub>-Mengen in Lagerräumen für verschiedene Füllungsgrade und verschiedenes Alter der Spaltprodukte in den Bitumen- und Zementprodukten

Maßgebend für die Berechnung der Radiolysegasmengen bei der Lagerung von Bitumen- und Zementprodukten ist nur der Wasserstoff, da er den weitaus größten Anteil der brennbaren Radiolysegase ausmacht. Bei dem in der Literatur angegebenen Wasserstoff/ $\Sigma$  Kohlenwasserstoffe-Verhältnis von etwa 6,7:1 in den Radiolysegasen aus Bitumen/ $\text{NaNO}_3$ -Gemischen ist die hier interessierende untere Zündgrenze der Radiolysegase praktisch identisch mit der des Wasserstoffs (4 Vol.% in Luft) /10/. Deshalb wurde im Falle der Bitumenprodukte für die Bestimmung der Radiolysegasmengen nur die Wasserstoffmenge errechnet und zu ihr der Anteil der brennbaren Radiolysegase  $\text{CH}_4$  und  $\text{C}_2\text{H}_X$  addiert. Die Gase  $\text{C}_3\text{H}_X$  und  $\text{C}_4\text{H}_X$  wurden bei den Berechnungen nicht berücksichtigt, da sie mit etwa 1% der  $\text{H}_2$ -Volumina in vernachlässigbaren Anteilen vorliegen. Auf eine Berechnung der Sauer-

stoffmengen, die bei der radiolytischen Zersetzung von Zement entstehen, wurde verzichtet, da der Sauerstoff auf die untere Zündgrenze des Gasgemisches keinen Einfluß hat /10/.

Um den Einfluß des Alters der Spaltprodukte und des Füllungsgrades des Lagerraumes auf die Wasserstoffbildungsrate und die kumulierten Wasserstoffmengen zu erfassen, wurden Berechnungen für unterschiedliches Alter der Spaltprodukte (0,5 a, 1 a, 2 a) und verschiedene Füllungsgrade des Lagerraumes (25 Vol.%, 50 Vol.%) durchgeführt.

### 2.2.1 Modellannahmen

Zur rechnerischen Ermittlung der Radiolysegasmengen im Lagerraum beim Lagern von Abfallprodukten ist die Kenntnis der Luftaustauschverhältnisse zwischen dem Lagerraum und seiner Umgebung von Wichtigkeit. In dieser Arbeit wurden Berechnungen für unbelüftete Lagerräume durchgeführt. Es wurden dabei folgende Annahmen gemacht :

- Der Lagerraum ist ein völlig abgeschlossenes System, d.h. es finden keinerlei Luftaustausch- bzw. Verdünnungsvorgänge zwischen dem Lagerraum und seiner Umgebung statt.
- Die entstehenden Radiolysegase werden vollständig aus den Abfallprodukten und ihren Verpackungen in die Lagerraumatmosphäre freigesetzt.

Bezüglich der Art der Abfallprodukte und des Einlagerungsvorganges wurden folgende Annahmen gemacht :

#### a) Art der Abfallprodukte

Die für die Berechnungen betrachteten Abfallprodukte sowie die zu Grunde gelegten Daten für die  $H_2$ -Ausbeute, die spezifischen Anfangsaktivitäten der Produkte und das Alter der Spaltprodukte sind in Tab. 1 angegeben. Sowohl für die Bitumen- als auch für die Zementprodukte wurde angenommen, daß sie kein Plutonium enthalten. Zur Radiolyse tragen

in diesem Fall nur die Spaltprodukte bei.

Die Spaltproduktzusammensetzung wurde entsprechend der in bestrahlten LWR<sup>+</sup>) -Brennelementen angenommen. Die Ausgangsdaten für den Referenzreaktor sind in Tab. 2 angegeben. Tab. 3 und 4 geben die mit Hilfe des im Anhang beschriebenen Rechenprogramms SPALT berechneten Anteile der wichtigsten 22 Nuklide an der gesamten Aktivität und Wärmeleistung 90 Tage nach Reaktorentnahme an. Sie liefern etwa 99% der gesamten Aktivität bzw. Wärmeleistung des LWR-Spaltproduktgemisches. Die zur Berechnung der Aktivität und der Wärmeleistung benötigten Spaltproduktausbeuten wurden von Meek und Rider /11, 12/, die  $\beta$ - und  $\gamma$ -Energien der Isotope von Lederer et al. /13/, die Aktivierungsquerschnitte von BNL /14/ und die Halbwertszeiten von Seelmann-Eggebert et al. /15/ entnommen.

Berechnungen mit einer Spaltproduktzusammensetzung, wie sie für mittelaktive Abfälle aus der Wiederaufarbeitung typisch ist, sind zur Zeit noch nicht sinnvoll, da die wenigen vorliegenden Analysen stark wechselnde relative Anteile einzelner Nuklide zeigen und somit noch keine repräsentative Aussage erlauben.

#### b) Einlagerungsvorgang

Es wurde angenommen, daß die Einlagerung der Abfälle kontinuierlich erfolgt, und zwar in der Weise, daß in gleichen Zeiträumen gleiche Abfallmengen mit jeweils dem gleichen Alter der Spaltprodukte eingelagert werden. Die jährliche Einlagerungsrate soll 5 Vol.% und die Einlagerungsdauer 5 bzw. 10 Jahre betragen. Somit ergibt sich nach Beendigung der Einlagerung ein Füllungsgrad des Lagerraumes von 25 Vol.% (nach 5 Jahren) bzw. 50 Vol.% (nach 10 Jahren).

---

<sup>+</sup>) LWR = Leichtwasser Reaktor

Tab. 1

## Untersuchte Abfallprodukte

Art der Produkte	Zusammensetzung der Produkte	Zusammensetzung der Spaltprodukte	Dichte der Produkte [kg/l]	H <sub>2</sub> -Ausbeute aus den Produkten [cm <sup>3</sup> /Mrad·g]	Spezifische Anfangsaktivität der Produkte [Ci/l]	Alter der Spaltprodukte [a]
Bitumen/NaNO <sub>3</sub> -Gemische	50 Gew.% Bitumen Mexphalt 15, 50 Gew.% Salze	entsprechend den Abfällen	1,5	3·10 <sup>-3</sup> [4]	0,1 bis 1	0,5, 1, 2
Zement/Nitrat Gemische	66 Gew.% Portland Zement 275, 24,5 Gew.% H <sub>2</sub> O, 9,5 Gew.% Salze	aus LWR-Brennelementen (33.000 MWd/t, 30 MW/t)	2,0	2·10 <sup>-4</sup> [9]	0,1 bis 1	0,5, 1, 2

Tab. 2 Ausgangsdaten für den Referenz Reaktor (LWR)

Spez. Leistung therm.	30 MW/tSM
Bestrahlungszeit	1100 Tage
Abbrand	33.000 MWd/tSM
Mittlerer Neutronen- fluß	$3,5 \cdot 10^{13}$ n/cm <sup>2</sup> sec
Anreicherung an Uran-235	3%
Mittlerer Konversionsfaktor C	0,45



Tab. 3 Berechnete Anteile der wichtigsten Nuklide an der gesamten Aktivität des LWR-Spaltproduktgemisches 90 Tage nach Reaktor-entnahme

Nuklid	Anteil an der gesamten Aktivität [ % ]
Sr 89	4,60
Sr 90	1,40
Y 90	1,40
Y 91	6,80
Zr 95	9,40
Nb 95 m	0,20
Nb 95	15,90
Ru 103	3,30
Rh 103 m	3,30
Ru 106	4,80
Rh 106	4,80
Sb 125	0,14
Cs 134	3,90
Cs 137	1,70
Ba 137 m	1,60
Ba 140	0,20
La 140	0,20
Ce 141	3,50
Ce 144	15,20
Pr 144	15,20
Pm 147	1,60
Eu 154	0,10

Tab. 4      Anteile der wichtigsten Nuklide an der gesamten  
Wärmeleistung des LWR-Spaltproduktgemisches 90 Tage  
nach Reaktorentnahme

Nuklid	Anteil an der gesamten Wärmeleistung [%]
Sr 89	3,50
Sr 90	0,36
Y 90	1,74
Y 91	5,49
Zr 95	11,00
Nb 95 m	0,11
Nb 95	17,30
Ru 103	2,46
Rh 103 m	0,20
Ru 106	0,08
Rh 106	14,90
Sb 125	0,11
Cs 134	9,40
Cs 137	0,44
Ba 137 m	1,37
Ba 140	0,12
La 140	0,86
Ce 141	1,34
Ce 144	2,27
Pr 144	25,40
Pm 147	0,30
Eu 154	0,25

### 2.2.2 Ergebnisse

Zur Bestimmung der  $H_2$ -Bildungsraten und der kumulierten  $H_2$ -Mengen im Lagerraum wurde das Abklingen der spezifischen Aktivität der Bitumen- und Zementprodukte berechnet und in Abb. 1 für eine spezifische Anfangsaktivität der Produkte von 1 Ci/l und für verschiedenes Alter der Spaltprodukte dargestellt. Man erkennt daraus, daß mit wachsendem Alter der Spaltprodukte die spezifische Aktivität der Produkte mit der Lagerzeit langsamer abklingt. Dies erklärt sich dadurch, daß mit zunehmendem Alter der Spaltprodukte der relative Anteil der langlebigen Nuklide im Spaltproduktgemisch zunimmt. Infolgedessen nehmen die  $H_2$ -Bildungsraten und die kumulierten  $H_2$ -Mengen im Lager mit wachsendem Alter der Spaltprodukte (bei gleicher spezifischer Anfangsaktivität) zu.

Die Zuwachsrate der  $H_2$ -Konzentration im Lagerraum läßt sich aus dem Verhältnis  $H_2$ -Bildungsrate/Luftvolumen berechnen. Den Einfluß des Alters der Spaltprodukte und des Füllungsgrades des Lagerraumes auf diese Zuwachsrate zeigen Abb. 2 und 3 am Beispiel der Lagerung von Bitumen- und Zementprodukten mit einer spezifischen Anfangsaktivität von 0,1 Ci/l. Aus den Abbildungen geht hervor, daß am Ende des Einlagerungsvorganges (5 a bzw. 10 a), zu dem Zeitpunkt also, an dem die maximale Zuwachsrate der  $H_2$ -Konzentration auftritt, sie bei Produkten mit 2 a alten Spaltprodukten etwa um den Faktor 2 höher liegt als die der Abfallprodukte mit 0,5 a alten Spaltprodukten. Nach Beendigung der Einlagerung nimmt die Zuwachsrate der  $H_2$ -Konzentration ab. Nach etwa 300 Jahren ist sie für alle Abfallprodukte trotz unterschiedlichem Spaltproduktalter praktisch gleich. Ein Vergleich der Abb. 2 und 3 zeigt, daß die Zuwachsraten der  $H_2$ -Konzentration der Zementprodukte etwa um den Faktor 15 niedriger liegen als die der Bitumenprodukte bei gleicher spezifischer Anfangsaktivität und gleichem Alter der Spaltprodukte.

Abb. 4 und 5 zeigen den Einfluß des Alters der Spaltprodukte und des Füllungsgrades des Lagerraumes auf die auftretende  $H_2$ -Konzentration beim Lagern von Bitumen- und Zementprodukten mit einer spezifischen Anfangsaktivität von 0,1 Ci/l.

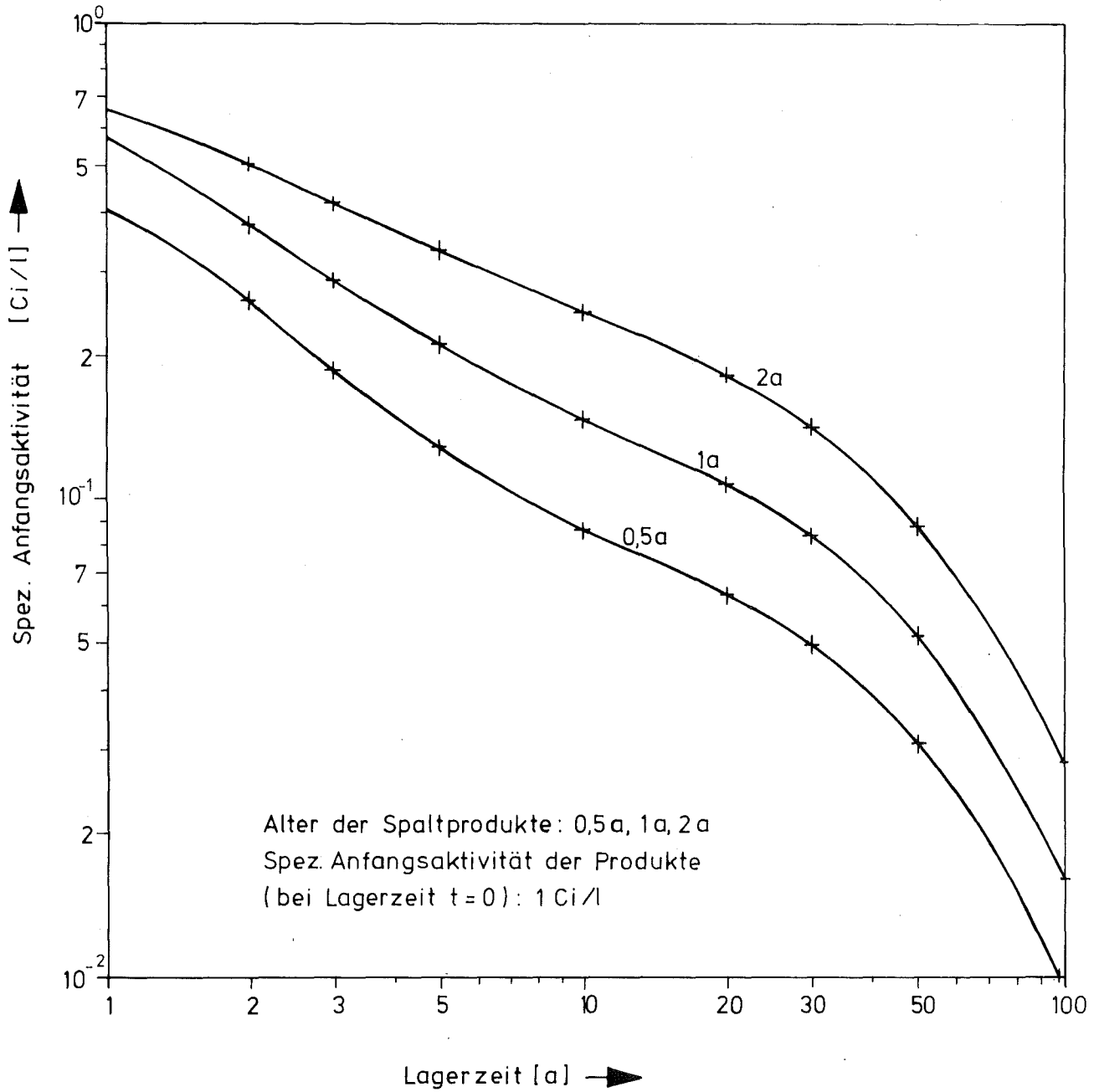


Abb. 1; Abklingen der spezifischen Anfangsaktivität der spaltprodukt-haltigen Bitumen- und Zementprodukte mit der Lagerzeit für verschiedenes Alter der Spaltprodukte.

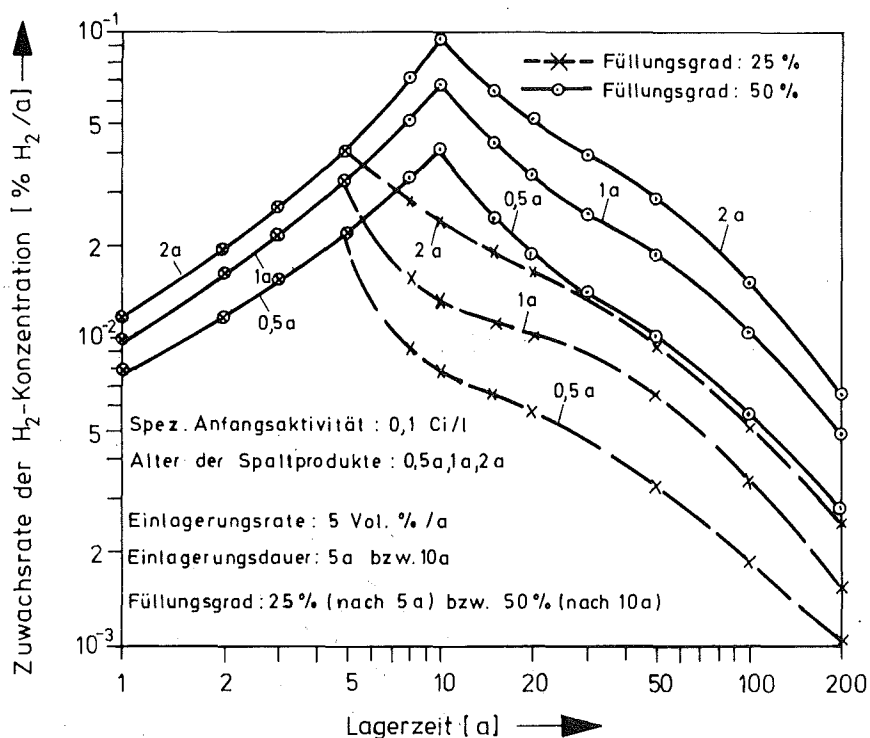


Abb. 2; Einfluß des Spaltproduktalters und des Füllungsgrades auf die Zuwachsrates der  $H_2$ -Konzentration im Lagerraum beim Lagern von spaltproduktthaltigen Bitumenprodukten.

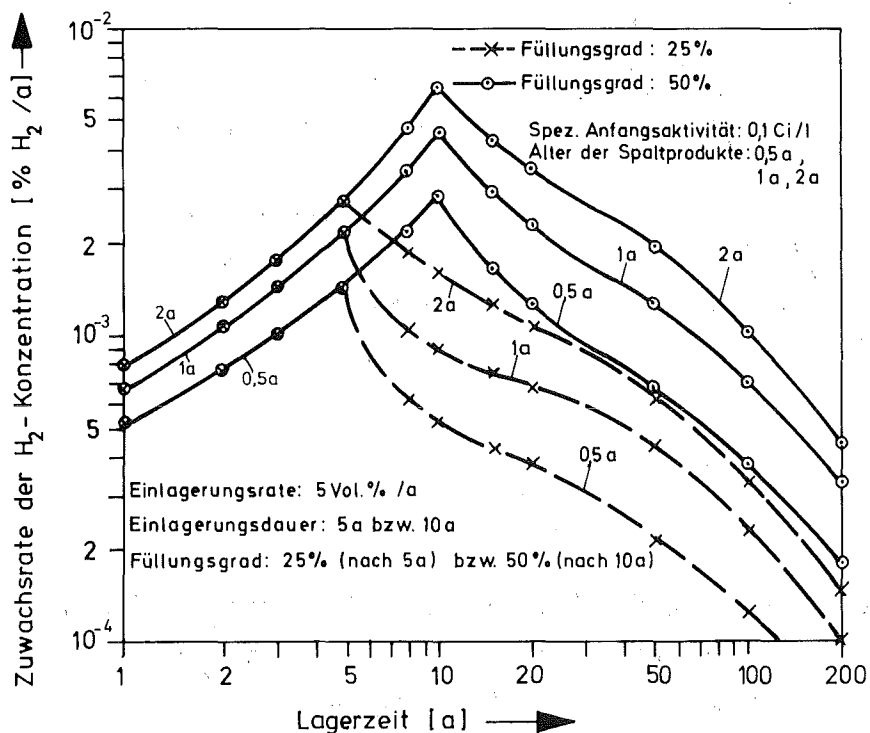


Abb. 3; Einfluß des Spaltproduktalters und des Füllungsgrades auf die Zuwachsrates der  $H_2$ -Konzentration im Lagerraum beim Lagern von spaltproduktthaltigen Zementprodukten

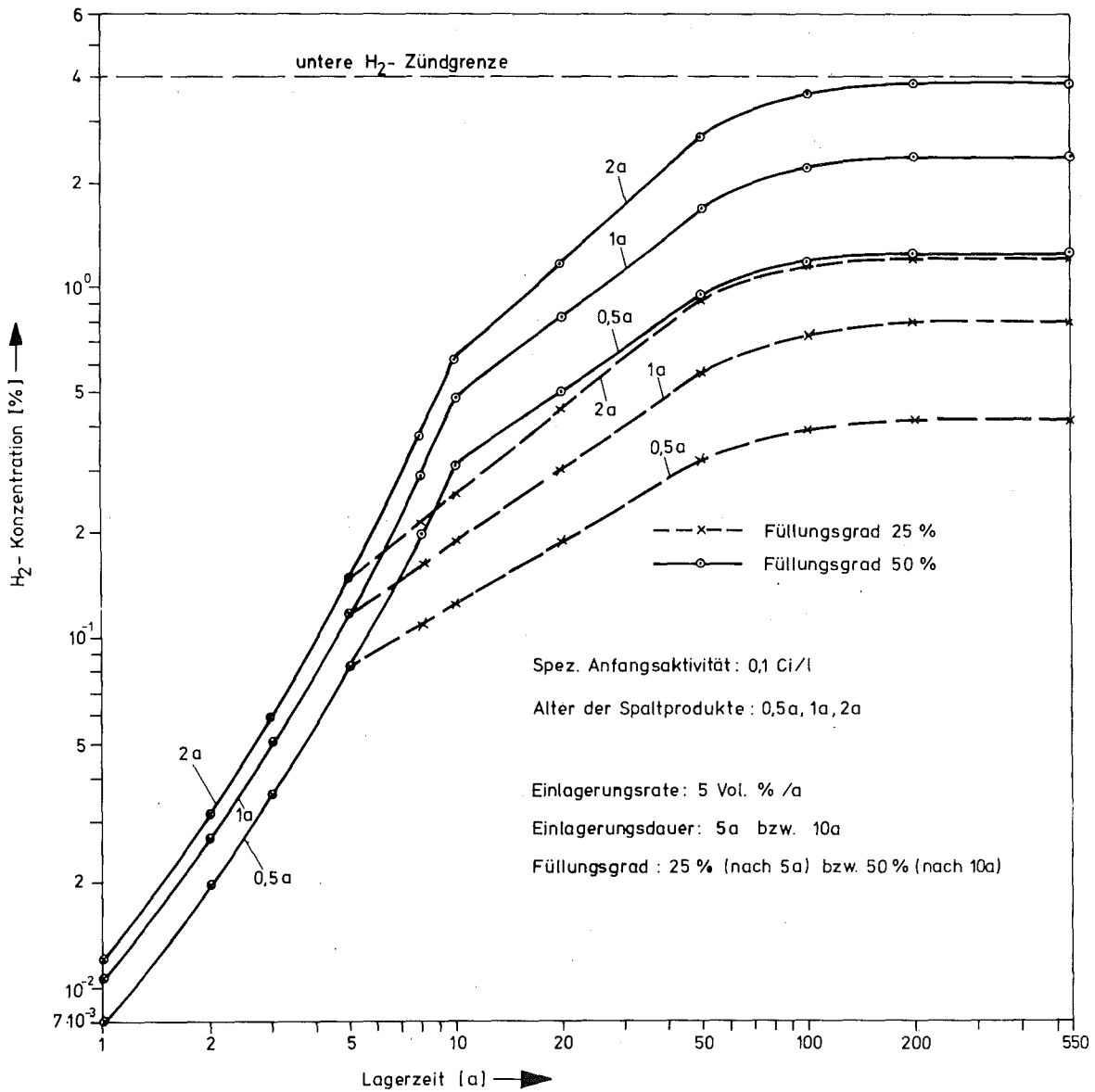


Abb. 4; Einfluß des Spaltproduktalters und des Füllungsgrades auf die H<sub>2</sub>-Konzentration im Lagerraum beim Lagern von spaltproduktthaltigen Bitumenprodukten.

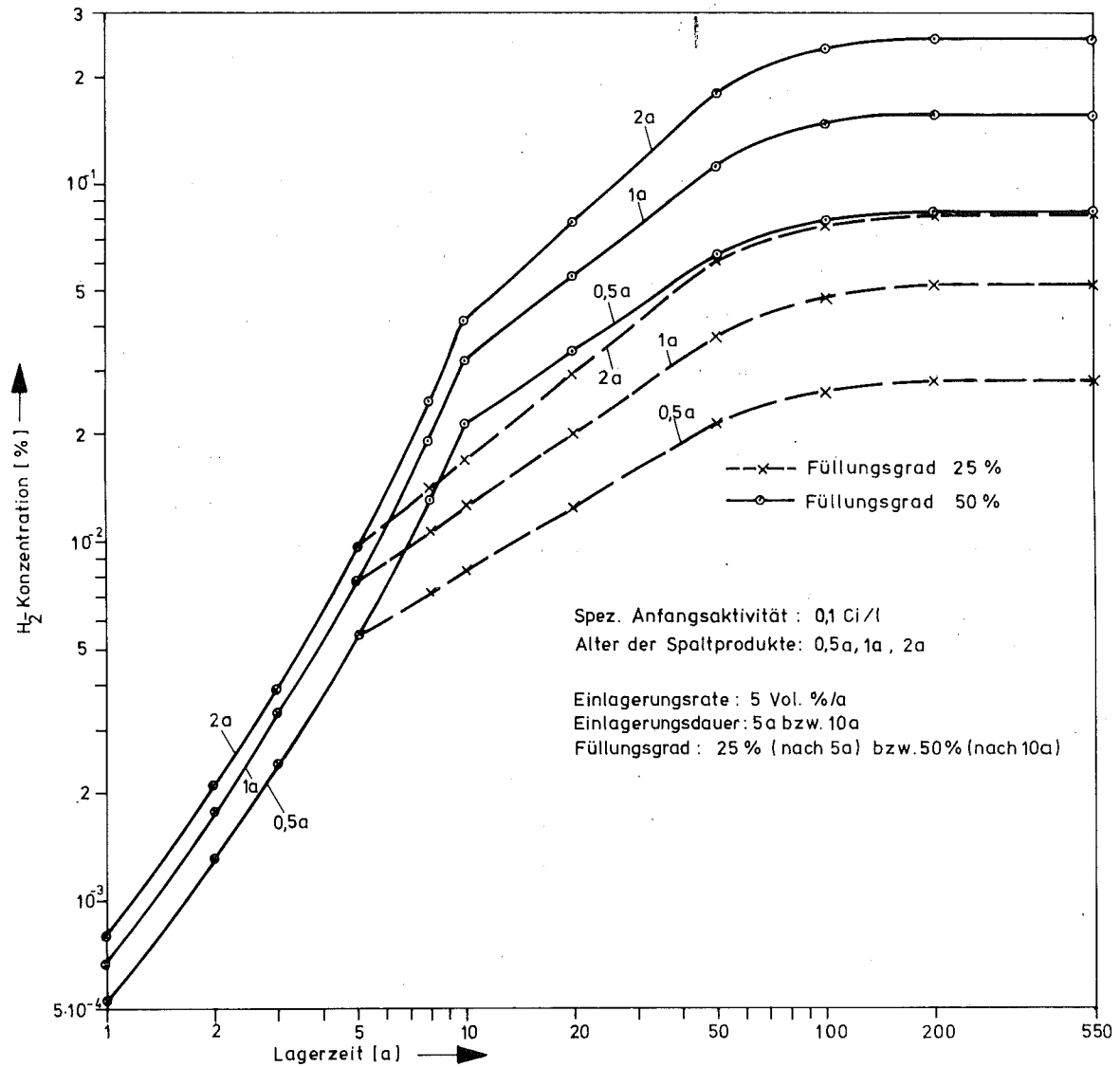


Abb. 5; Einfluß des Spaltproduktalters und des Füllungsgrades auf die H<sub>2</sub>-Konzentration im Lagerraum beim Lagern von spaltproduktthaltigen Zementprodukten.

Aus Abb. 4 und 5 kann man entnehmen, daß bereits nach einem Jahr Lagerzeit die  $H_2$ -Konzentration beim Lagern von Produkten mit 2a alten Spaltprodukten etwa um den Faktor 1,7 höher liegt als die beim Lagern von Produkten mit 0,5a alten Spaltprodukten gleicher spezifischer Anfangsaktivität. Mit zunehmender Lagerzeit nimmt das Verhältnis der  $H_2$ -Konzentration zu, um nach etwa 100a etwa konstant zu bleiben. Während die Einlagerung von Zementprodukten mit 0,1 Ci/l keine Radiolyseprobleme verursacht, führt die Einlagerung von Bitumenprodukten mit 2a alten Spaltprodukten bereits bei einer spezifischen Anfangsaktivität von 0,1 Ci/l bis zum totalen Zerfall der Aktivität zu einer  $H_2$ -Konzentration im Lagerraum von etwa 4 Vol.%, d.h. es wird dabei die untere  $H_2$ -Zündgrenze erreicht. Man erkennt daraus, daß beim Lagern von radioaktiven Bitumenprodukten in unbelüfteten Lagerräumen relativ kleine spezifische Anfangsaktivitäten ausreichen, um bis zum totalen Abklingen der Aktivität der Produkte zündfähige Radiolysegas/Luft-Gemische zu bilden.

In der Praxis interessiert allerdings für die Radiolysebetrachtungen vornehmlich die Betriebsdauer einer Anlage, da nach der Beendigung des Betriebs der Lagerraum verfüllt und versiegelt wird und somit ab diesem Zeitpunkt eine Zündquelle für das Radiolysegas/Luft-Gemisch nicht mehr vorhanden ist.

Nimmt man für ein praxisnahes Beispiel an, daß die Zeitspanne vom Beginn des Einlagerungsvorganges bis zum Versiegeln ca. 10 Jahre beträgt, ergeben sich aus den berechneten  $H_2$ -Werten (Abb. 4 und 5) und unter Berücksichtigung der übrigen Radiolysegase ( $CH_4$ ,  $C_2H_X$ ) für die Radiolysegaskonzentration beim Lagern von Bitumen- und Zementprodukten mit 0,1 Ci/l die in Tab. 5 und 6 angegebenen Werte. Man erkennt aus den Tabellen, daß die auftretenden Radiolysegaskonzentrationen während des Betriebs weit unterhalb der unteren Zündgrenze (4 Vol.%) liegen. Die aus der bestehenden Proportionalität zwischen der spezifischen Anfangsaktivität der Produkte und der kumulierten Radiolysegasmenge in einem Lagerraum abgeleiteten Werte für die spezifische Anfangsaktivität in Bitumen- und Zementprodukten, bei denen eine Radiolysegaskonzentration von 4 Vol.% in einem unbelüfteten Lagerraum nach 10 Jahren Betriebsdauer gerade er-



reicht wird, sind in Tab. 7 und 8 angegeben.

Wie Gespräche mit den Genehmigungsbehörden für die Prototyp-Kaverne gezeigt haben, ist jedoch damit zu rechnen, daß während des Betriebs die maximal zulässige Radiolysegaskonzentration in einem Lagerraum in Analogie zu ähnlichen Bereichen (z.B. Steinkohlebergbau) bei etwa 1 Vol.% festgelegt würde. In diesem Falle wäre die Grenze von 1 Vol.% Radiolysegase bei Werten der spezifischen Anfangsaktivität erreicht, die um den Faktor 4 niedriger liegen als diejenigen in Tab. 7 und 8.

Tab. 5 Radiolysegaskonzentration in einem unbelüfteten Lagerraum nach 10 Jahren Betriebsdauer beim Lagern von Bitumen/NaNO<sub>3</sub>-Gemischen (50 Gew.% Salze) mit einer spezifischen Anfangsaktivität von 0,1 Ci/l

Alter der Spaltprodukte [a]	Füllungsgrad [%]	Radiolysegas-Konzentration [%]
0,5	25	0,15
1		0,21
2		0,29
0,5	50	0,37
1		0,55
2		0,71

Tab. 6 Radiolysegaskonzentration in einem unbelüfteten Lagerraum nach 10 Jahren Betriebsdauer beim Lagern von Zement/Nitrat-Gemischen ( $\approx 9,5$  Gew.% Salze) mit einer spezifischen Anfangsaktivität von 0,1 Ci/l

Alter der Spaltprodukte [a]	Füllungsgrad [%]	Radiolysegaskonzentration [%]
0,5	25	0,008
1		0,012
2		0,017
0,5	50	0,021
1		0,032
2		0,041

Tab. 7 Werte der spezifischen Anfangsaktivität in Bitumen/NaNO<sub>3</sub>-Gemischen entsprechend einer Radiolysegaskonzentration in einem unbelüfteten Lagerraum von 4 Vol.% nach 10 Jahren Betriebsdauer

Alter der Spaltprodukte [a]	Füllungsgrad [%]	Spezifische Anfangsaktivität [Ci/l]
0,5	25	2,65
1		1,9
2		1,4
0,5	50	1,08
1		0,73
2		0,56

Tab. 8 Werte der spezifischen Anfangsaktivität in Zement/Nitrat-Gemischen entsprechend einer Radiolysegaskonzentration in einem unbelüfteten Lagerraum von 4 Vol.% nach 10 Jahren Betriebsdauer

Alter der Spaltprodukte [a]	Füllungsgrad [%]	Spezifische Anfangsaktivität [Ci/l]
0,5	25	50
1		33,3
2		23,5
0,5	50	19
1		12,5
2		9,75

### 2.3 Diskussion

Die Untersuchungen zeigen, daß neben dem Füllungsgrad das Alter der Spaltprodukte einen starken Einfluß auf die Radiolysegaskonzentration im Lagerraum hat. Zu ihrer Ermittlung ist daher die Kenntnis des Alters der Spaltprodukte (zum Zeitpunkt der Einlagerung) erforderlich.

Die berechneten Werte für die Radiolysegaskonzentration gelten nur für Bitumen- und Zementprodukte, in denen die Salze als Nitrate vorliegen und die Spaltproduktzusammensetzung den Abfällen aus LWR-Brennelementen entspricht. Bei Vorliegen anderer Salze können sich andere Werte für die Radiolysegasausbeute und infolgedessen auch für die Radiolysegaskonzentration im Lagerraum ergeben.

Der Vergleich der Werte für die Radiolysegaskonzentration im Lagerraum beim Lagern von Bitumen- und Zementprodukten zeigt, daß bei gleichem Füllungsgrad des Lagerraumes, gleicher spezifischer Anfangsaktivität der Produkte und gleichem Alter der Spaltprodukte die Lagerung von Bitumenprodukten zu einer Radiolysegaskonzentration führt, die etwa um den Faktor 17 höher liegt als diejenige beim Lagern von Zementprodukten. Als Folge der großen Radiolysegasausbeute aus den Bitumenprodukten ergab sich im Falle der Befüllung eines unbelüfteten Lagerraumes (10 Jahre Betriebsdauer) zu 50 Vol.% mit 1a und 2a alten Bitumenprodukten, daß die untere Radiolysegaszündgrenze bei spezifischen Anfangsaktivitätswerten der Produkte erreicht wird, die unter dem Wert von 1 Ci/l liegen. Sie liegen somit unter jenem Wert, der vom Standpunkt der Strahlenbeständigkeit der Bitumenprodukte her noch zulässig wäre. Im Gegensatz dazu würde die Befüllung eines Lagerraumes zu 50 Vol.% mit Zementprodukten, die eine spezifische Anfangsaktivität bis ca. 10 Ci/l haben und Spaltprodukte bis 2a alt enthalten, zu keinem zündfähigen Radiolysegas/Luft-Gemisch während der gleichen Betriebsdauer (10 Jahre) führen.

Der Vorteil der Zementprodukte hinsichtlich der Bildung von Radiolysegasen gegenüber den Bitumenprodukten ist jedoch bei den gegenwärtig aus der Verfestigung von MAW-Konzentraten aus der Wiederaufarbeitung anfallenden Abfallprodukten nicht zu realisieren. Um in den Zementprodukten die gleiche spezifische Aktivität wie in den Bitumenprodukten fixieren zu können, müßte auch der gleiche Gehalt an Salzen in ihnen erreicht werden können. Das bedeutet, daß Zementprodukte mit ca. 40 Gew.% Salze hergestellt werden müßten, d.h. mit einem um den Faktor 4 höheren Salzgehalt als die heute üblichen. Da solche Zementprodukte schlechte mechanische und chemische Eigenschaften aufweisen, ist es jedoch zweifelhaft, ob sie den heutigen Anforderungen der Endlagerung genügen.

Die berechneten Werte für die spezifische Anfangsaktivität in Bitumen- und Zementprodukten, bei denen die untere Radiolysegaszündgrenze (4 Vol.% Radiolysegase in Luft) in einem unbelüfteten Lagerraum nach 10 Jahren Betriebsdauer erreicht wird, sind konservativ, da angenommen wurde, daß der Lagerraum ein völlig abgeschlossenes System ist und die

entstehenden Radiolysegase vollständig aus der Fixiermatrix freigesetzt werden. In der Praxis ist jedoch damit zu rechnen, wie Untersuchungen des Gasinstituts der Universität Karlsruhe am Beispiel der Prototyp-Kaverne /10/ gezeigt haben, daß allein aufgrund von atmosphärischen Druckschwankungen merkliche Luftaustauschvorgänge zwischen einem Lagerraum und seiner Umgebung stattfinden werden. Dadurch würde eine starke Verdünnung der Radiolysegaskonzentration im Lagerraum auftreten. Ferner wird erwartet, daß ein Teil der entstehenden Radiolysegase in der Fixiermatrix absorbiert bleibt. Als Folge dieser Vorgänge würden die tatsächlichen Werte für die spezifische Anfangsaktivität in Bitumen- und Zementprodukten, bei denen die untere Radiolysegaszündgrenze erreicht wird, höher liegen als die in diesen Untersuchungen für einen abgeschlossenen Lagerraum berechneten Werte.

3. Wärmeentwicklung aus radioaktiven spaltproduktthaltigen Bitumen- und Zementprodukten mit und ohne Plutonium bei der Einlagerung in unterirdischen Lagerräumen

3.1 Berechnung der auftretenden Maximaltemperaturen in zylindrischen Lagerräumen

Im Gegensatz zur Radiolysegaskonzentration in einem Lagerraum, die unabhängig von der Geometrie des Lagerraumes ist, hängt die Temperaturentwicklung beim Lagern von Abfallprodukten auch von der Form und Dimensionierung des Lagerraumes ab. Um den Einfluß der Dimensionierung auf die auftretende Temperatur im Lagerraum zu bestimmen, wurden Temperaturberechnungen für Lagerräume gleichen Volumens mit verschiedenen Verhältnissen Durchmesser/Höhe (D/H) durchgeführt. Die Form der Lagerräume wurde dabei zylindrisch, die Einlagerungsart instantan angenommen. Ferner wurde am Beispiel eines zylindrischen Lagerraumes ( $D/H = 0,63$ ) im Falle der Einlagerung von Abfallprodukten ohne Plutonium der Einfluß des Alters der Spaltprodukte und der Einlagerungsart auf die Temperaturentwicklung untersucht. Im Falle der Einlagerung von spaltproduktthaltigen Bitumen- und Zementprodukten mit Plutonium wurde nur der Einfluß der Einlagerungsart untersucht. Auf eine Untersuchung des Einflusses des Alters der Spaltprodukte und des Plutoniums auf die Temperatur wurde verzichtet, da in diesem Fall das Temperaturmaximum hauptsächlich vom Plutonium bestimmt wird, dessen Alter wiederum bei den hier betrachteten Zeiten (0,5a bis 2a) keinen Einfluß auf die Temperaturentwicklung hat.

3.1.1 Modellannahmen

a) Art der Abfallprodukte

Die für die Berechnungen betrachteten Abfallprodukte sowie die zugrunde

gelegten Werte für die spezifische Anfangsaktivität und das Alter der Spaltprodukte bzw. des Plutoniums sind in Tab. 9 angegeben. Die dabei angenommenen Werte für die spezifische Aktivität an Spaltprodukten und Plutonium in den plutoniumhaltigen Bitumen- und Zementprodukten wurden aus den zur Zeit im Kernforschungszentrum Karlsruhe aus der Wiederaufarbeitung (WAK) anfallenden mittelaktiven Abfällen ermittelt. Daraus ergibt sich für die Bitumen- und Zementprodukte ein Aktivitätsverhältnis Spaltprodukte/Plutonium von etwa 17:1. Die Dichte der Produkte wurde wie für die Radiolyseberechnungen zu 1,5 kg/l für die Bitumenprodukte und 2,0 kg/l für die Zementprodukte angenommen.

Für die Untersuchungen wurden aus dem LWR-Spaltproduktgemisch die wichtigsten 22 Nuklide berücksichtigt. Sie sind mit ihren Anteilen an der gesamten Wärmeleistung des LWR-Spaltproduktgemisches 90 Tage nach Reaktorentnahme in Tab. 4 angegeben.

Die nach Literaturangaben /16/ berechnete mittlere Zusammensetzung der Plutoniumisotope und ihre Halbwertszeiten zeigt Tab. 10. Die aus der Isotopenzusammensetzung und Ergebnissen von chemischen Analysen an verschiedenen Verdampferkonzentraten /17/ ermittelten Werte der Plutoniumkonzentration für Bitumen/ $\text{NaNO}_3$ -Gemische (50 Gew.% Salze) und Zement/Nitrat-Gemische (ca. 9,5 Gew.% Salze) sowie die berechnete spezifische Aktivität und spezifische Wärmeleistung der einzelnen Isotope (0,5a alt) gibt Tab. 11 an. In dieser Tabelle sind außerdem die berechneten Werte für die spezifische Aktivität und die spezifische Wärmeleistung für die Menge von Am-241, die anfällt, wenn 50% des Pu-241 zerfallen sind, d.h. nach 14,9 Jahren, aufgeführt. Für die Berechnungen wurde angenommen, daß diese Menge Am-241 schon zu Beginn der Einlagerung der Produkte vorhanden ist, da mit den verfügbaren Wärmeleitungsprogrammen (siehe Anhang) nur der Zerfall, nicht jedoch der Aufbau von Aktivitäten berücksichtigt werden kann.

Tab. 9

## Untersuchte Abfallprodukte

Art der Produkte	Zusammensetzung der Produkte	Zusammensetzung der Spaltprodukte und des Plutoniums	Spezifische Anfangsaktivität [Ci/l]		Alter [a]	
			Spaltprodukte	Plutonium	Spaltprodukte	Plutonium
Bitumen/ $\text{NaNO}_3$ -Gemische spaltprodukt- haltig ohne Plutonium	50 Gew.% Bitumen Mex- phalt 15, 50 Gew.% Salze	entsprechend den Abfällen aus LWR-Brenn- elementen (33.000 MWd/t, 30 MW/t)	0,1 bis 1	---	0,5, 1, 2	---
Bitumen/ $\text{NaNO}_3$ -Gemische spaltprodukt- und plutonium- haltig			0,1	$5,8 \cdot 10^{-3}$ ( $\cong 2,2$ g Pu/175 l- Faß)	0,5	0,5
Zement/Nitrat- Gemische spaltprodukt- haltig ohne Plutonium	66 Gew.% Portlandzement 275, 24,5 Gew.% $\text{H}_2\text{O}$ , 9,5 Gew.% Salze		0,1 bis 1	---	0,5, 1, 2	---
Zement/Nitrat- Gemische spaltprodukt- und plutonium- haltig			$2,6 \cdot 10^{-2}$	$1,5 \cdot 10^{-3}$ ( $\cong 0,57$ g Pu/175 l- Faß)	0,5	0,5



Tab. 10 Berechnete mittlere Isotopenzusammensetzung von LWR-Plutonium nach Angaben von ORNL-4451 /16/

Nuklid	Halbwertszeit	Anteil des Isotops am gesamten Plutonium
	[ a ]	[ % ]
Pu-238	87,75	1,85
Pu-239	$2,44 \cdot 10^4$	59,50
Pu-240	$6,54 \cdot 10^3$	24,00
Pu-241	14,9	10,80
Pu-242	$3,9 \cdot 10^5$	3,85

Tab. 11 Berechnete Konzentration, spezifische Aktivität und spezifische Wärmeleistung der Plutoniumisotope (0,5a alt) in Bitumen- und Zementprodukten

Nuklid	Konzentration [g/l <sub>Prod.</sub> ]		spez. Aktivität [Ci/l <sub>Prod.</sub> ]		spez. Wärmeleistung [W/l <sub>Prod.</sub> ]	
	Bitumen- produkte	Zement- produkte	Bitumen- produkte	Zement- produkte	Bitumen- produkte	Zement- produkte
Pu-238	$2,7 \cdot 10^{-4}$	$7,0 \cdot 10^{-5}$	$4,5 \cdot 10^{-3}$	$1,17 \cdot 10^{-3}$	$1,49 \cdot 10^{-4}$	$3,86 \cdot 10^{-5}$
Pu-239	$8,7 \cdot 10^{-3}$	$2,26 \cdot 10^{-3}$	$5,3 \cdot 10^{-4}$	$1,38 \cdot 10^{-4}$	$1,65 \cdot 10^{-5}$	$4,3 \cdot 10^{-6}$
Pu-240	$3,5 \cdot 10^{-3}$	$9,1 \cdot 10^{-4}$	$8,0 \cdot 10^{-4}$	$2,08 \cdot 10^{-4}$	$2,41 \cdot 10^{-5}$	$6,2 \cdot 10^{-6}$
Pu-241	$1,6 \cdot 10^{-3}$	$4,15 \cdot 10^{-4}$	$1,85 \cdot 10^{-1}$	$4,8 \cdot 10^{-2}$	$7,65 \cdot 10^{-6}$	$1,98 \cdot 10^{-6}$
Pu-242	$5,6 \cdot 10^{-4}$	$1,45 \cdot 10^{-4}$	$2,2 \cdot 10^{-6}$	$5,7 \cdot 10^{-7}$	$6,44 \cdot 10^{-8}$	$1,67 \cdot 10^{-8}$
Am-241 <sup>+) )</sup>	$8,0 \cdot 10^{-4}$	$2,07 \cdot 10^{-4}$	$2,7 \cdot 10^{-3}$	$7,0 \cdot 10^{-4}$	$9,1 \cdot 10^{-5}$	$2,36 \cdot 10^{-5}$

<sup>+) )</sup> aus angenommenem Zerfall von 50% des Pu-241 zu Beginn der Einlagerung

Die für die Temperaturberechnungen zugrunde gelegte Wärmeleitfähigkeit  $\lambda$  des Lagerrauminhalts wurde, um auf der sicheren Seite zu liegen, gleich derjenigen der Bitumen- bzw. Zementprodukte gesetzt, d.h. es wurde der Einfluß des gut wärmeleitenden miteingelagerten Faßwerkstoffs auf die Wärmeleitfähigkeit der Füllung nicht berücksichtigt. Die spezifische Wärme  $c_p$  der Bitumen- und Zementprodukte wurde in Ermangelung von Literaturdaten aus den  $c_p$ -Werten für die reinen Stoffe Bitumen /5/, Zement /19/ und  $\text{NaNO}_3$  /19/ abgeschätzt. Die Temperatur des Salzgebirges wurde zu  $37^\circ\text{C}$  entsprechend einer Tiefe von 1000 m gesetzt. Die für die Berechnungen verwendeten  $\lambda$ - und  $c_p$ -Werte für die Abfallprodukte und das Lagermedium Salz sind in Tab. 12 angegeben.

Tab. 12 Stoffwerte für die Abfallprodukte und das Lagermedium Salz

Wärmeleitfähigkeit $\lambda$ [W/m <sup>0</sup> C]			Spezifische Wärme $c_p$ [cal/g <sup>0</sup> C]		
Bitumen- produkte	Zement- produkte	Salz	Bitumen- produkte	Zement- produkte	Salz
0,31 /5/	1,02 (bei $90^\circ\text{C}$ ) /18/	5,0 (bei $40^\circ\text{C}$ ) /20/	0,4	0,23	0,21 /21/

b) Lagerraumgeometrie und Einlagerungsart

Für die Berechnung der Abhängigkeit der Maximaltemperatur von der Dimensionierung des Lagerraumes wurde angenommen, daß die zylindrischen Lageräume ein Volumen von  $15.000 \text{ m}^3$  haben. Das Verhältnis Durchmesser/Höhe (D/H) wurde dabei zwischen 0,1 und 1,5 variiert. Die bei diesen verschiedenen D/H-Werten sich ergebenden Durchmesser und Höhen für die Lagerräume sind in Tab. 13 angegeben. Die Einlagerungsart der Abfallprodukte wurde instantan gewählt, d.h. es wurde angenommen, daß die Lagerräume in vernachlässigbar kurzer Zeit befüllt werden.

Der zur Berechnung des Einflusses des Alters der Spaltprodukte und der Einlagerungsart der Abfallprodukte auf die Temperaturentwicklung gewählte zylindrische Lagerraum hatte ebenfalls ein Volumen von  $15.000 \text{ m}^3$ . Seine Abmessungen ( $D = 22,8 \text{ m}$ ,  $H = 36 \text{ m}$ ,  $D/H = 0,63$ ) entsprechen den maximalen Abmessungen der im Bau befindlichen Prototyp-Kaverne /1/. Die Einlagerungsart wurde dabei auf zweierlei Arten idealisiert: Einmal wurde der Fall der instantanen Einlagerung untersucht; zum anderen wurde eine stufenweise Einlagerung in zeitlich und mengenmäßig konstanten Einzelschritten während eines Zeitraumes von 10 Jahren angenommen.

### c) Befüllung

Für die Befüllung wurde angenommen, daß der Inhalt der Lagerräume kompakt und homogen ist und an der Lagerraumwand dicht anliegt. Ferner wurde angenommen, daß die Lagerräume vollständig gefüllt sind.

### d) Wärmefreisetzung

Der überwiegende Teil der in den Lagerräumen aus den Abfallprodukten freigesetzten Strahlung wird unweit (im Vergleich zu den Lagerraumabmessungen) vom Emissionsort absorbiert und in Wärme umgewandelt. Da außerdem der Inhalt des Lagerraumes als homogen angenommen wurde, konnte die lokale spezifische Wärmeleistung  $W$  näherungsweise gleich der Strahlungsleistung pro Volumeneinheit gesetzt werden. Es gilt:

$$W(\vec{r}, t) = \sum_i A_i(\vec{r}, t) E_{\text{eff}}^i$$

wobei  $\vec{r}$  den Ort im Lagerraum,  $A_i$  den Beitrag des Nuklids  $i$  zur Aktivität der Abfallprodukte und  $E_{\text{eff}}^i$  die effektive Zerfallsenergie des Nuklids  $i$  bedeuten.

Tab. 13 Dimensionierung der betrachteten zylindrischen Lagerräume ( $V = 15.000 \text{ m}^3$ )

Verhältnis D/H	Durchmesser D [m]	Höhe H [m]
0,1	12,4	124
0,3	17,9	59,7
0,5	21,2	42,4
0,8	24,8	31
1,0	26,7	26,7
1,5	30,6	20,4

### 3.1.2 Ergebnisse

#### 3.1.2.1 Abhängigkeit der Maximaltemperatur von der Dimensionierung des Lagerraumes bei instantaner Einlagerung von spaltprodukt-haltigen Bitumen- und Zementprodukten ohne Plutonium

Das zur Berechnung der Maximaltemperaturen in einem Lagerraum errechnete zeitliche Abklingen der spezifischen Wärmeleistung der Abfallprodukte ist in Abb. 6 für verschiedenes Alter der Spaltprodukte für die spezifische Anfangsaktivität von 1 Ci/l dargestellt. Man erkennt daraus, wie mit wachsendem Alter der Spaltprodukte die spezifische Wärmeleistung der Produkte mit der Lagerzeit langsamer abklingt. Infolgedessen nimmt die Temperaturerhöhung ( $\Delta T$ ) in einem Lagerraum, die proportional mit der spezifischen Anfangsaktivität der Produkte steigt, mit wachsendem

Alter der Spaltprodukte (bei gleicher spezifischer Anfangsaktivität) zu. Für die Maximaltemperatur  $T_{\max.}$  gilt:

$$T_{\max.} = \Delta T_{\max.} + T_{\text{Salz}}$$

Abb. 7 bis 12 zeigen die Abhängigkeit der Maximaltemperatur vom Verhältnis Durchmesser/Höhe (D/H) bei instantaner Einlagerung von Bitumen- und Zementprodukten mit verschiedenen spezifischen Anfangsaktivitäten und unterschiedlichem Alter der Spaltprodukte. Man erkennt aus den Abbildungen, daß mit wachsendem D/H die Temperatur zunächst zunimmt. Die höchste Temperatur, und somit der ungünstigste Fall, tritt bei etwa  $D/H = 1,0$  auf. Bei  $D/H > 1$  nimmt die Temperatur wieder ab, da dann die Wärmeableitung in axialer Richtung stärker zum Tragen kommt. Ferner zeigen Abb. 10 bis 12, daß bei gleicher spezifischer Anfangsaktivität der Produkte sowie gleichem Alter der Spaltprodukte und D/H die Temperaturen beim Lagern von Zementprodukten niedriger liegen als diejenigen beim Lagern von Bitumenprodukten.

### 3.1.2.2 Abhängigkeit der Maximaltemperatur von der Dimensionierung des Lagerraumes bei instantaner Einlagerung von spaltprodukt- und plutoniumhaltigen Bitumen- und Zementprodukten

Die Maximaltemperatur beim Lagern von spaltprodukt- und plutoniumhaltigen Bitumen- und Zementprodukten setzt sich aus den einzelnen Beiträgen der Spaltprodukte und des Plutoniums sowie der Salztemperatur zusammen. Es gilt:

$$T_{\max.} = \Delta T_{\max.} (\text{Spaltprod.}) + \Delta T_{\max.} (\text{Pu}) + T_{\text{Salz}}$$

Abb. 13 und 14 zeigen die so berechnete Maximaltemperatur in zylindrischen Lagerräumen in Abhängigkeit vom Verhältnis D/H bei instantaner Einlagerung der Abfallprodukte. Das Alter der Spaltprodukte beträgt dabei 0,5 a. Aus dem Vergleich der beiden Abbildungen erkennt man - wie bei den Produkten ohne Plutonium -, daß die Einlagerung von Zementprodukten zu niedrigeren Temperaturen führt als die von Bitumenprodukten.

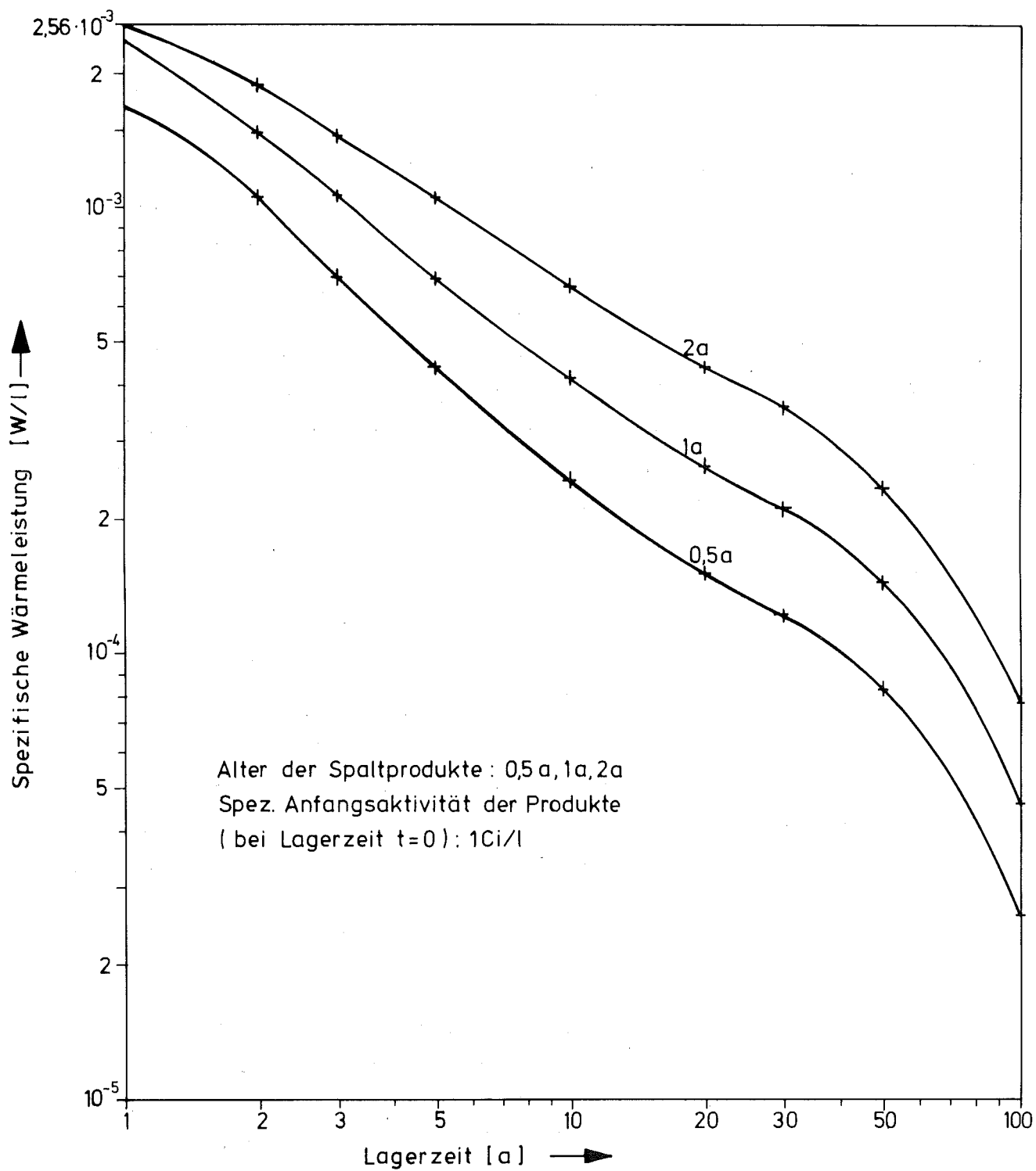


Abb. 6; Abklingen der spezifischen Wärmeleistung der spaltproduktthaltigen Bitumen- und Zementprodukte mit der Lagerzeit für verschiedenes Alter der Spaltprodukte.

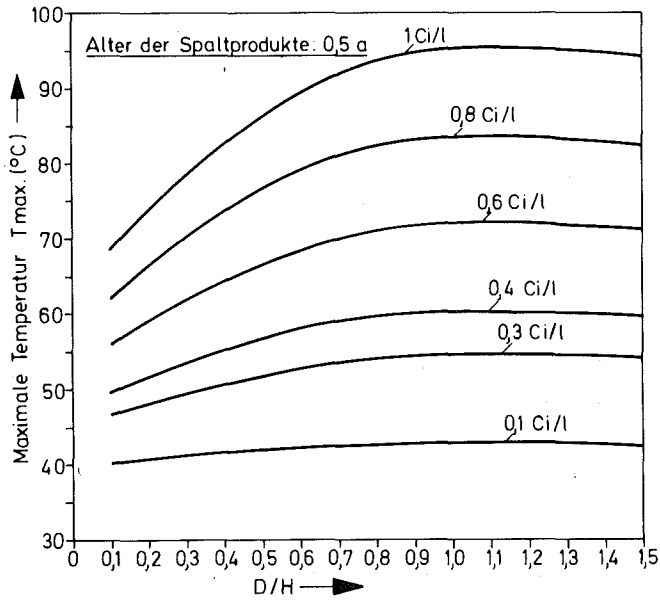


Abb. 7

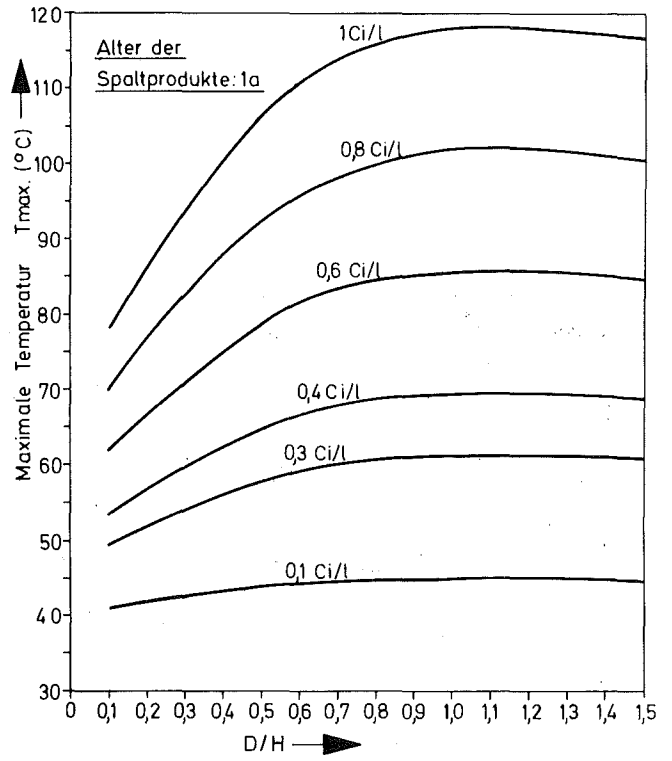


Abb. 8

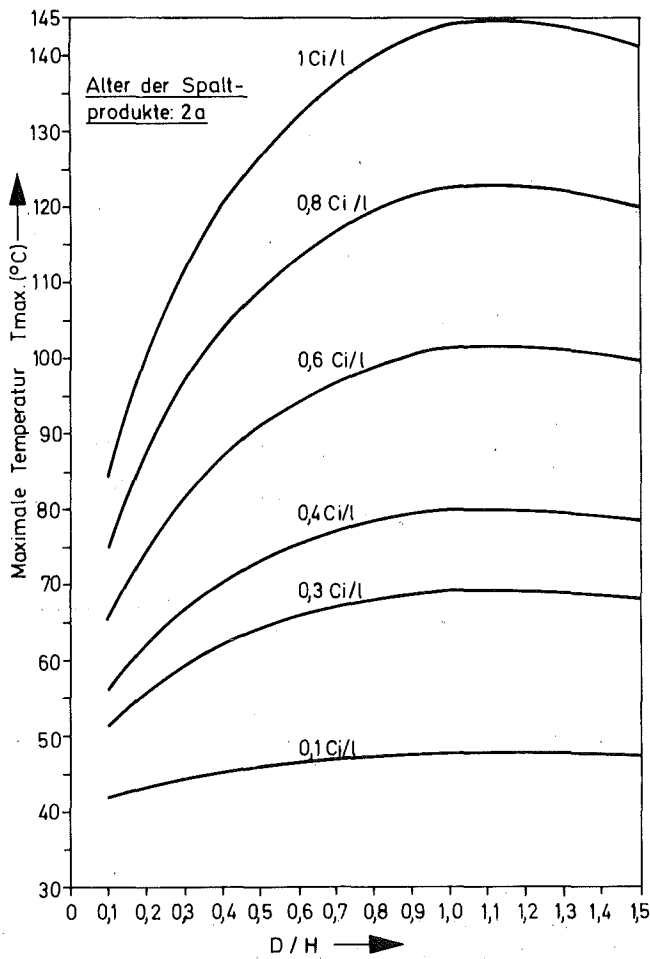


Abb. 9

Abb. 7-9; Maximale Temperatur in zylindrischen Lagerräumen ( $15.000 \text{ m}^3$ ) bei instantaner Einlagerung von Bitumenprodukten ohne Plutonium in Abhängigkeit vom Verhältnis  $D/H$  für verschiedenes Alter der Spaltprodukte.

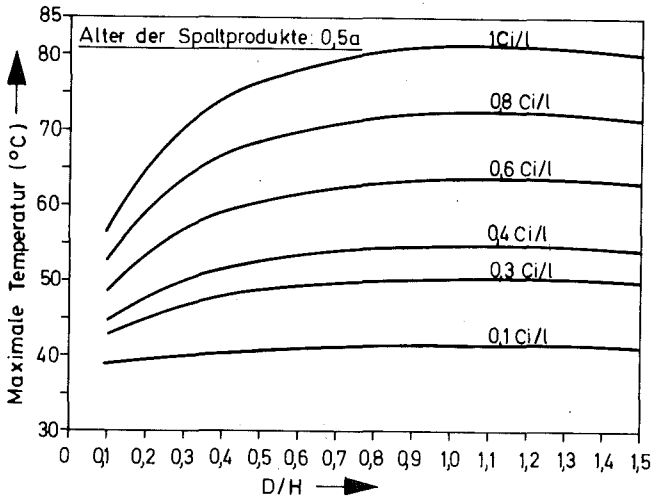


Abb. 10

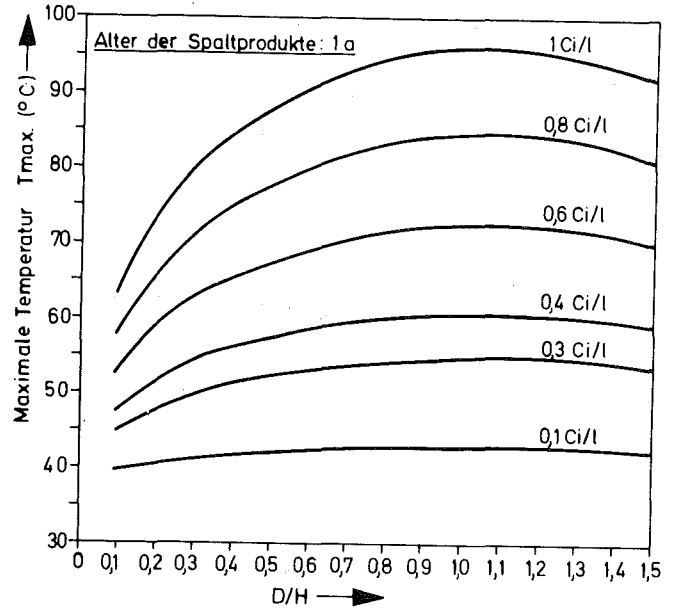


Abb. 11

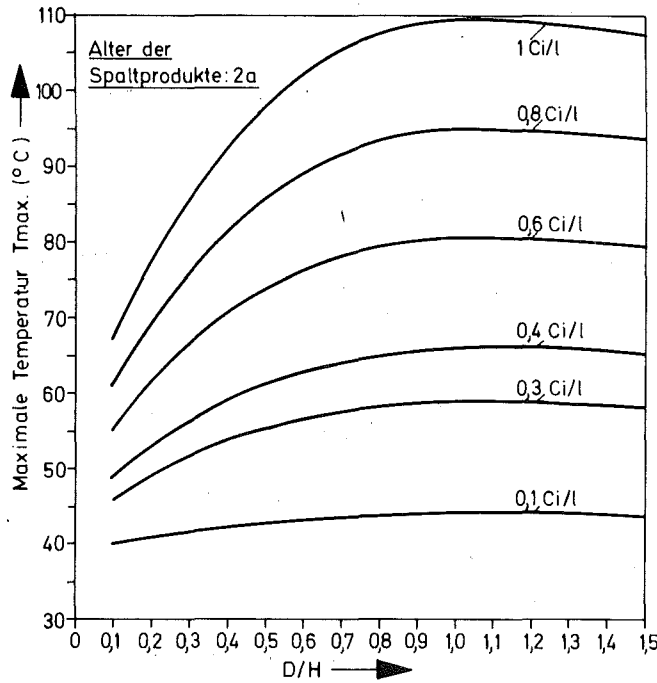


Abb. 12

Abb.10-12; Maximale Temperatur in zylindrischen Lagerräumen (15.000 m<sup>3</sup>) bei instantaner Einlagerung von Zementprodukten ohne Plutonium in Abhängigkeit vom Verhältnis D/H für verschiedenes Alter der Spaltprodukte



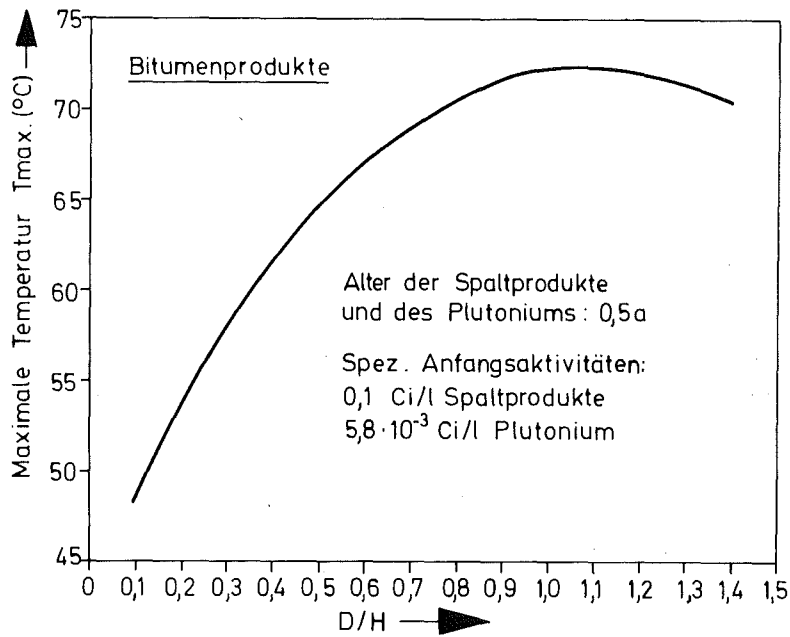


Abb.13; Maximale Temperatur in zylindrischen Lagerräumen ( $15.000 \text{ m}^3$ ) bei instantaner Einlagerung von spaltprodukt- und plutoniumhaltigen Bitumenprodukten in Abhängigkeit vom Verhältnis D/H

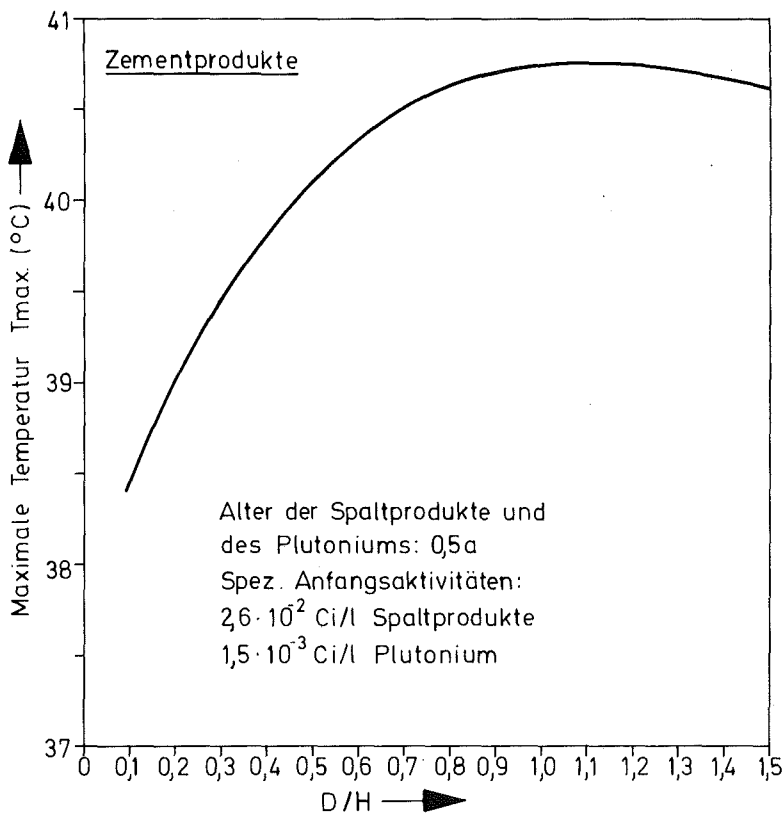


Abb.14; Maximale Temperatur in zylindrischen Lagerräumen ( $15.000 \text{ m}^3$ ) bei instantaner Einlagerung von spaltprodukt- und plutoniumhaltigen Zementprodukten in Abhängigkeit vom Verhältnis D/H.

### 3.1.2.3 Einfluß des Alters der Spaltprodukte und der Einlagerungsart auf die Maximaltemperatur in einem zylindrischen Lagerraum beim Lagern von spaltproduktthaltigen Bitumen- und Zemenprodukten ohne Plutonium

Den Einfluß des Alters der Spaltprodukte auf die Temperaturentwicklung in einem zylindrischen Lagerraum ( $V = 15.000 \text{ m}^3$ ,  $D = 22,8 \text{ m}$ ,  $H = 36 \text{ m}$ ) bei instantaner und stufenweiser Einlagerung von spaltproduktthaltigen Bitumenprodukten zeigen Abb. 15 und 16 am Beispiel der Lagerung von Produkten mit einer spezifischen Anfangsaktivität von  $0,3 \text{ Ci/l}$ . Aus den Abbildungen geht hervor, daß das Temperaturmaximum einige Jahre nach Beendigung des Einlagerungsvorganges auftritt, und zwar umso später, je älter die Spaltprodukte sind.

Den Einfluß der Einlagerungsart (instantan, stufenweise) auf die Temperaturentwicklung in einem Lagerraum beim Lagern von Bitumenprodukten mit einer spezifischen Anfangsaktivität von  $0,3 \text{ Ci/l}$  und einem Alter der Spaltprodukte von  $0,5a$  und  $2a$  zeigt Abb. 17. Es zeigt sich, daß die Maximaltemperatur im Lagerraum im Falle der stufenweisen Einlagerung etwa derjenigen der instantanen entspricht. Somit hat die Einlagerungsart bei Bitumenprodukten nur einen kleinen Einfluß auf die Größe der Temperatur.

Ein wesentlicher Unterschied zwischen instantaner und stufenweiser Einlagerung besteht allerdings darin, daß bei der stufenweisen Einlagerung das Temperaturmaximum viel später als bei der instantanen auftritt und außerdem nicht im Zentrum des Lagerraumes, wie dies der Fall bei der instantanen ist, sondern nach oben verschoben.

Analog zu den Abbildungen 15 und 16 zeigen Abb. 18 und 19 den Einfluß des Alters der Spaltprodukte auf die Temperaturentwicklung in einem Lagerraum bei instantaner bzw. stufenweiser Einlagerung von Zementprodukten mit einer spezifischen Anfangsaktivität von  $1 \text{ Ci/l}$ . Wie bei den Bitumenprodukten zeigt sich auch hier, daß das Alter der Spaltprodukte einen starken Einfluß sowohl auf die Größe als auch auf den Zeitpunkt des Auftretens der maximalen Temperatur hat.

Den Einfluß der Einlagerungsart (instantan, stufenweise) auf die Temperaturentwicklung beim Lagern von Zementprodukten mit einer spezifischen Anfangsaktivität von 1 Ci/l und einem Alter der Spaltprodukte von 0,5 a und 2 a zeigt Abb. 20. Im Gegensatz zu den Bitumenprodukten zeigt sich hier, daß die stufenweise Einlagerung von Zementprodukten zu niedrigeren Temperaturen im Lagerraum führt als die instantane (bei gleicher spezifischer Anfangsaktivität und gleichem Alter der Spaltprodukte).

Aus den Temperaturergebnissen sowie der bei gleichem Alter der Spaltprodukte bestehenden Proportionalität zwischen der Temperaturerhöhung ( $\Delta T$ ) in einem Lagerraum und der spezifischen Anfangsaktivität der Produkte, läßt sich einfach berechnen, bei welcher spezifischer Anfangsaktivität der Bitumen- und Zementprodukte eine bestimmte Temperatur in einem Lagerraum und infolgedessen auch in den Produkten erreicht wird. Nimmt man z.B. an, daß bei der Einlagerung von Bitumen- und Zementprodukten in dem hier betrachteten zylindrischen Lagerraum ( $D = 22,8 \text{ m}$ ,  $H = 36 \text{ m}$ ) die maximal zulässige Temperatur für Bitumenprodukte  $70^{\circ}\text{C}$  und für Zementprodukte  $90^{\circ}\text{C}$  beträgt, dann werden diese Temperaturen bei den in Tab. 14 und 15 angegebenen Werten der spezifischen Anfangsaktivität erreicht.

Tab. 14 Werte für die spezifische Anfangsaktivität in spaltprodukt-haltigen Bitumen/ $\text{NaNO}_3$ -Gemischen ohne Plutonium, bei denen während der Lagerung in einem zylindrischen Lagerraum ( $D = 22,8 \text{ m}$ ,  $H = 36 \text{ m}$ ) eine angenommene Maximaltemperatur von  $70^{\circ}\text{C}$  erreicht wird

Alter der Spaltprodukte [a]	Spezifische Anfangsaktivität [Ci/l]	
	instantane Einlagerung	stufenweise Einlagerung
0,5	0,60	0,70
1	0,45	0,45
2	0,35	0,3

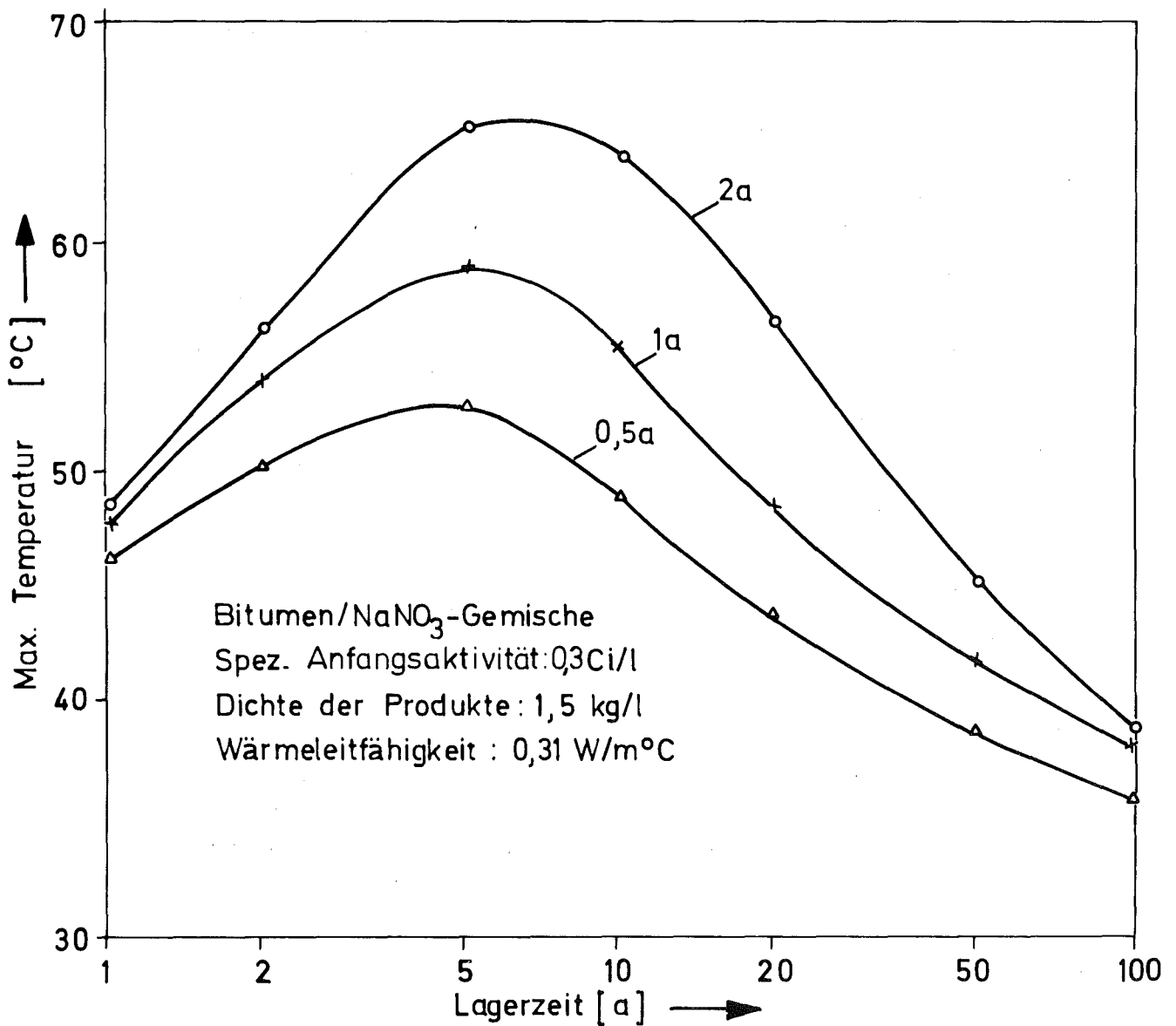


Abb.15; Einfluß des Alters der Spaltprodukte auf die maximale Temperatur in einem zylindrischen Lagerraum ( $V = 15.000 \text{ m}^3$ ,  $D = 22,8 \text{ m}$ ,  $H = 36 \text{ m}$ ) bei instantaner Einlagerung von spaltproduktthaltigen Bitumenprodukten ohne Plutonium

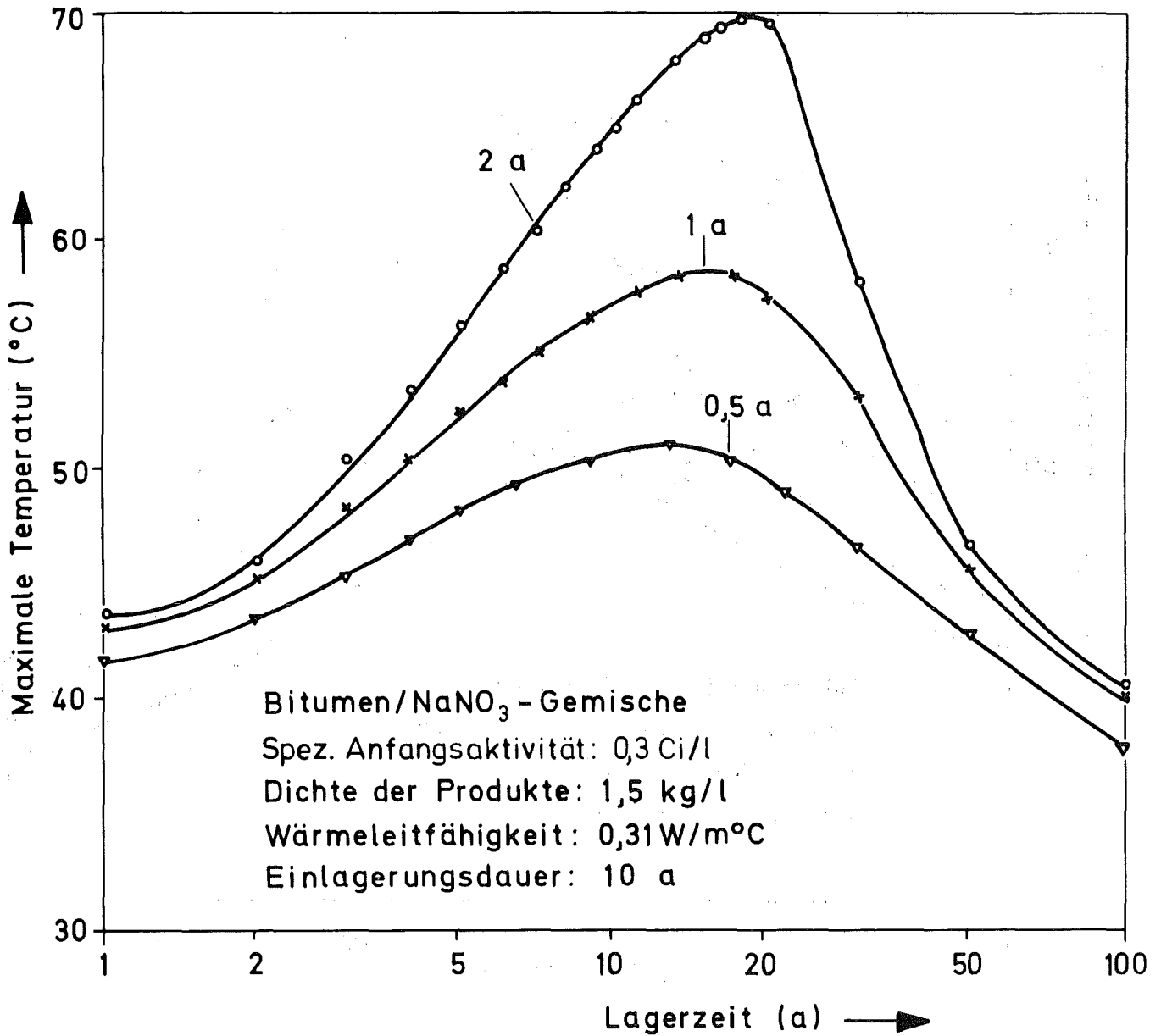


Abb. 16; Einfluß des Alters der Spaltprodukte auf die maximale Temperatur in einem zylindrischen Lagerraum ( $V = 15.000 \text{ m}^3$ ,  $D = 22,8 \text{ m}$ ,  $H = 36 \text{ m}$ ) bei stufenweiser Einlagerung von spaltproduktthaltigen Bitumenprodukten ohne Plutonium

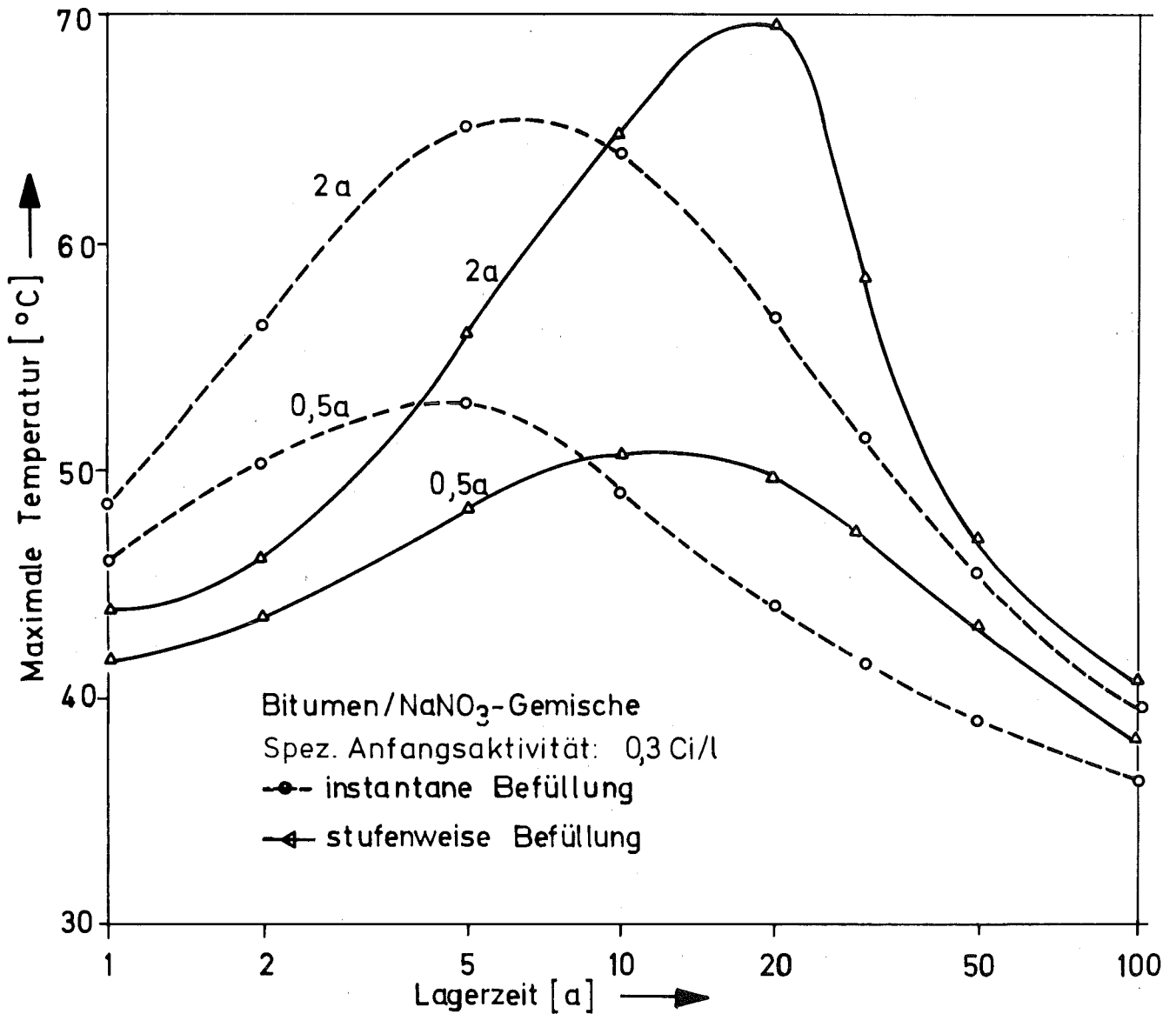


Abb. 17; Einfluß der Einlagerungsart auf die maximale Temperatur in einem zylindrischen Lagerraum ( $V = 15.000 \text{ m}^3$ ,  $D = 22,8 \text{ m}$ , Höhe = 36 m) beim Lagern von spaltproduktartigen Bitumenprodukten ohne Plutonium (Alter der Spaltprodukte: 0,5 a, 2 a)

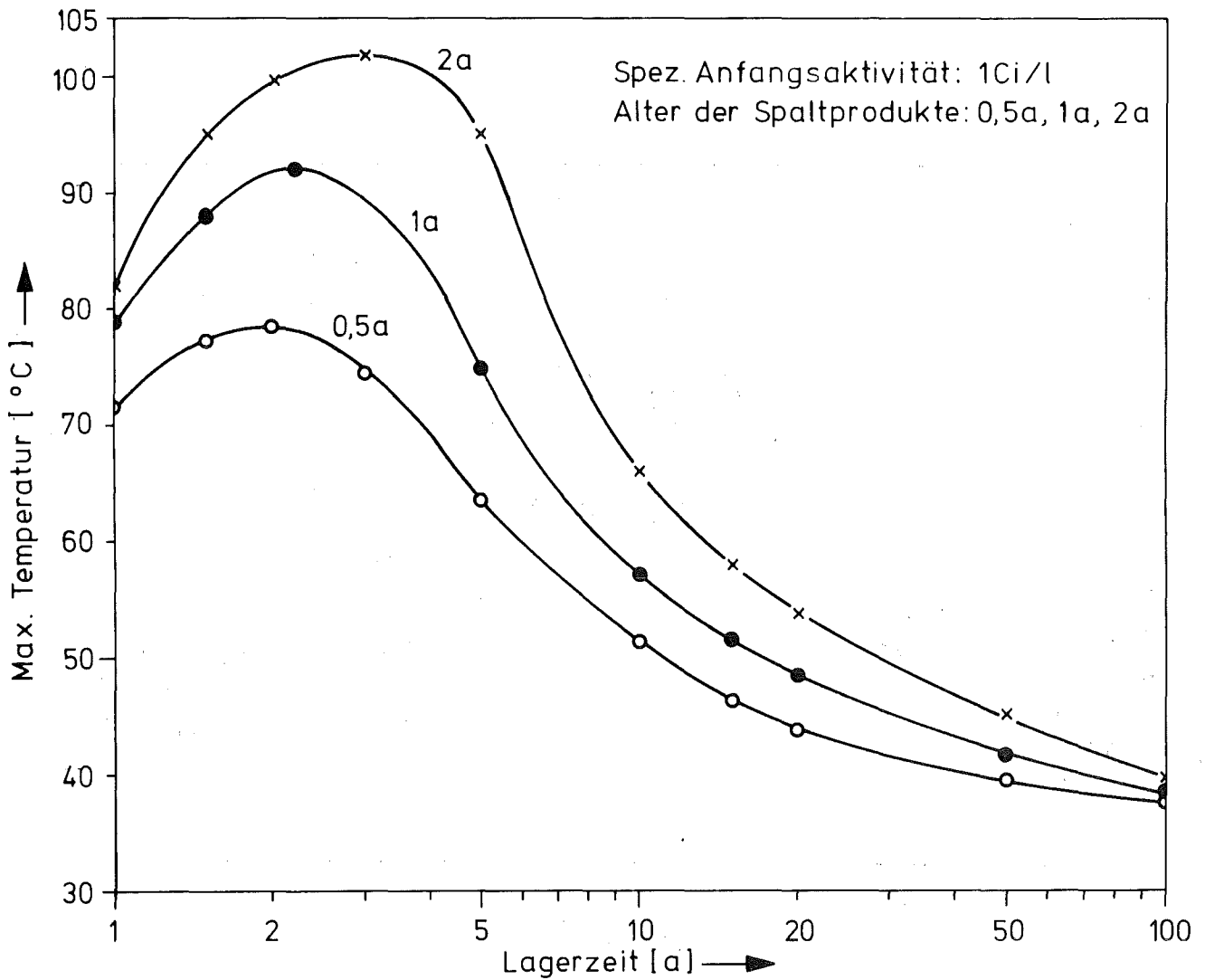


Abb. 18; Einfluß des Alters der Spaltprodukte auf die maximale Temperatur in einem zylindrischen Lagerraum ( $V= 15.000 \text{ m}^3$ ,  $D= 22,8 \text{ m}$ ,  $H = 36 \text{ m}$ ) bei instantaner Einlagerung von Zementprodukten ohne Plutonium.

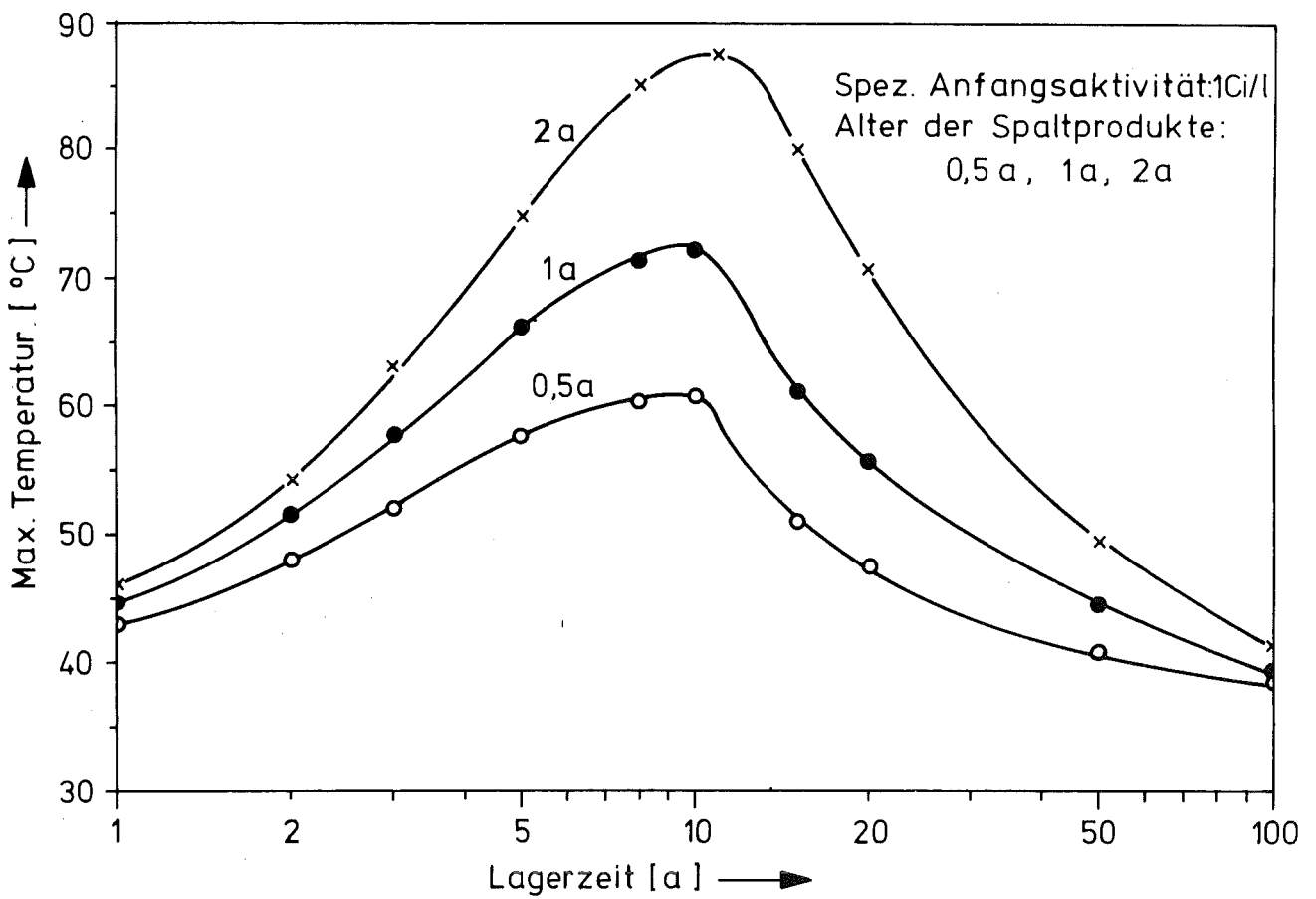


Abb. 19; Einfluß des Alters der Spaltprodukte auf die maximale Temperatur in einem zylindrischen Lagerraum ( $V = 15.000 \text{ m}^3$ ,  $D = 22,8 \text{ m}$ ,  $H = 36 \text{ m}$ ) bei stufenweiser Einlagerung von Zementprodukten ohne Plutonium.



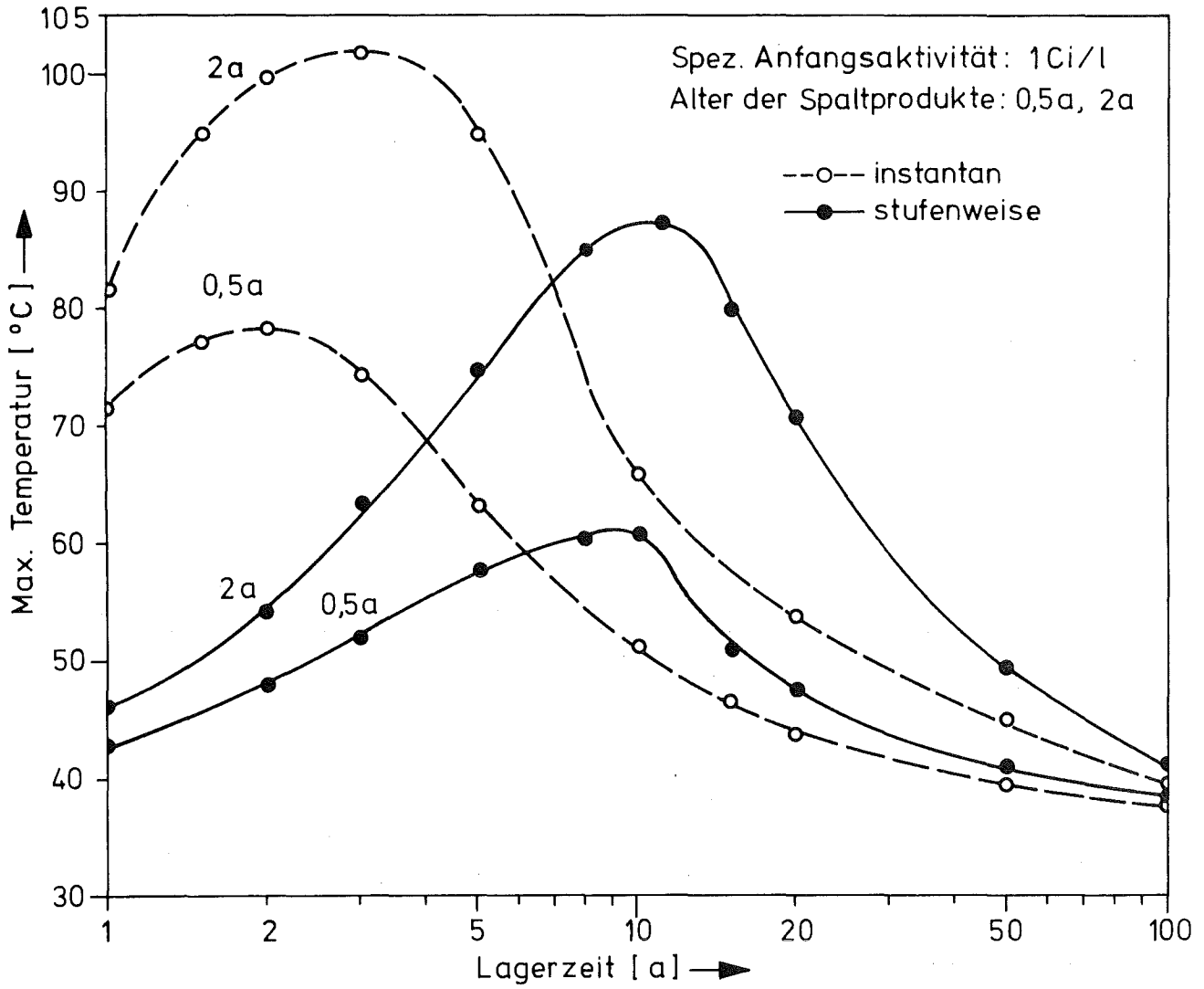


Abb. 20; Einfluß der Einlagerungsart auf die maximale Temperatur in einem zylindrischen Lagerraum ( $V = 15.000 \text{ m}^3$ ,  $D = 22,8 \text{ m}$ ,  $H = 36 \text{ m}$ ) beim Lagern von Zementprodukten ohne Plutonium.

Tab. 15 Werte für die spezifische Anfangsaktivität in spaltprodukt-haltigen Zement/Nitrat-Gemischen ohne Plutonium, bei denen während der Lagerung in einem zylindrischen Lagerraum (D = 22,8 m, H = 36 m) eine angenommene Maximaltemperatur von 90°C erreicht wird.

Alter der Spaltprodukte [ a ]	Spezifische Anfangsaktivität [ Ci/l ]	
	instantane Einlagerung	stufenweise Einlagerung
0,5	1,28	2,19
1	0,96	1,5
2	0,81	1,04

### 3.1.2.4 Einfluß der Einlagerungsart auf die Maximaltemperatur in einem zylindrischen Lagerraum beim Lagern von spaltprodukt- und plutoniumhaltigen Bitumen- und Zementprodukten

Die berechneten Beiträge der Spaltprodukte und des Plutoniums zur maximalen Temperaturerhöhung in einem zylindrischen Lagerraum bei instantaner bzw. stufenweiser Einlagerung von Bitumenprodukten sind in Abb. 21 und 22 in Abhängigkeit von der Lagerzeit dargestellt. In beiden Abbildungen ist ebenfalls die aus den einzelnen Temperaturbeiträgen zusammengesetzte maximale Temperaturerhöhung ( $\Delta T_{\max}$ ) aufgetragen. Aus den Abbildungen geht hervor, daß das Maximum der Temperaturerhöhung im Lagerraum hauptsächlich durch den Beitrag des Plutoniums bestimmt wird. Er liegt je nach Einlagerungsart etwa um den Faktor 5,6 bis 6 höher als derjenige der Spaltprodukte, obwohl die spezifische Aktivität an Plutonium etwa um den Faktor 17 niedriger liegt als die an Spaltprodukten. Der hohe Beitrag des Plutoniums zur Temperatur

im Vergleich zu dem der Spaltprodukte ist auf die hohe Energie und die langen Halbwertszeiten der Plutoniumisotope zurückzuführen. Den größten Beitrag dazu liefern das Pu -238 und das aus dem Pu -241 aufgebaute Am -241, deren Anteile zur gesamten Wärmeleistung des Plutoniums etwa 53% bzw. 32% betragen (vgl. Tab. 11). Ferner zeigen die Abbildungen 21 und 22, daß sogar nach 200 Jahren Lagerzeit aufgrund des sehr langsamen Abklingens der Wärmeleistung des Plutoniums die Temperaturerhöhung im Lagerraum immer noch etwa 15-16<sup>0</sup>C beträgt.

Abb. 23 zeigt den Einfluß der Einlagerungsart (instantan, stufenweise) auf die Maximaltemperatur  $T_{\max}$  beim Lagern von Bitumenprodukten. Daraus erkennt man, daß hinsichtlich der Größe der Maximaltemperatur fast kein Unterschied zwischen instantaner und stufenweiser Einlagerung besteht. Ein Einfluß der Einlagerungsart auf die Temperatur ist somit nicht festzustellen.

Die Beiträge der Spaltprodukte und des Plutoniums zur maximalen Temperaturerhöhung in einem zylindrischen Lagerraum sowie die daraus resultierende maximale Temperaturerhöhung bei instantaner bzw. stufenweiser Einlagerung von Zementprodukten sind in Abb. 24 und 25 dargestellt. Wie bei den Bitumenprodukten wird auch bei den Zementprodukten die maximale Temperaturerhöhung hauptsächlich durch den Beitrag des Plutoniums bestimmt, der je nach Einlagerungsart um den Faktor 2,7 bis 4,5 höher liegt als derjenige der Spaltprodukte. Den Einfluß der Einlagerungsart auf die Maximaltemperatur  $T_{\max}$  beim Lagern von Zementprodukten zeigt Abb. 26. Wie bei den Bitumenprodukten, zeigt sich auch im Falle der Einlagerung von Zementprodukten, daß hinsichtlich der Temperaturentwicklung in einem Lagerraum fast kein Unterschied zwischen instantaner und stufenweiser Einlagerung besteht.

Der Vergleich der Abb. 23 und 26 zeigt wie bei den Abfallprodukten ohne Plutonium, daß die bei der Einlagerung von Zementprodukten auftretenden Temperaturen im Lagerraum viel niedriger liegen als diejenigen bei der Einlagerung von Bitumenprodukten. Dies ist teils auf die hier zugrunde gelegten kleineren spezifischen Anfangsaktivitäten der Zementprodukte gegenüber den Bitumenprodukten und teils auf die höhere Wärmeleitfähigkeit der Zementprodukte zurückzuführen.

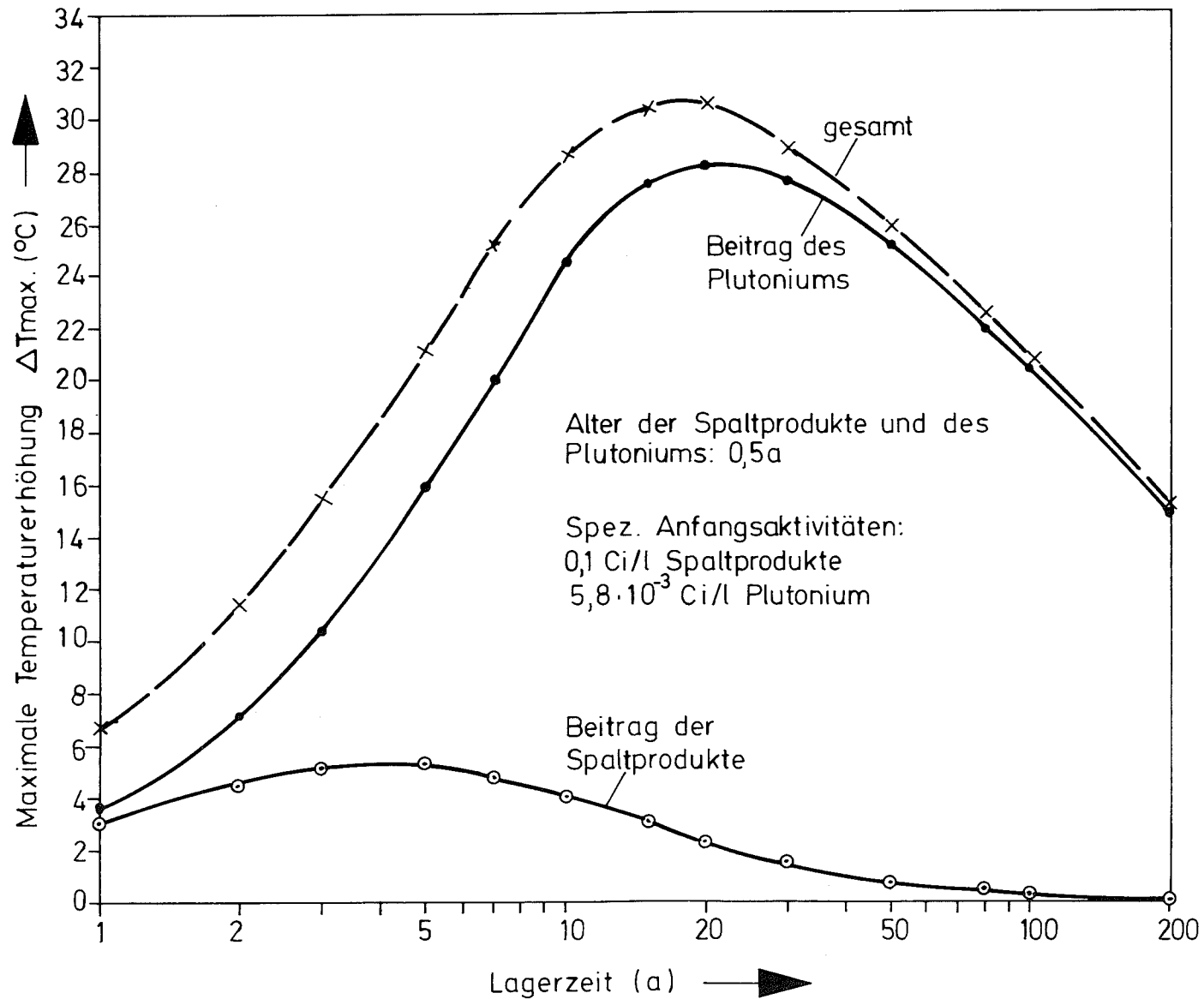


Abb. 21; Beiträge der Spaltprodukte und des Plutoniums zur maximalen Temperaturerhöhung in einem zylindrischen Lagerraum ( $V = 15.000 \text{ m}^3$ ,  $D = 22,8 \text{ m}$ , Höhe = 36 m) bei instantaner Einlagerung von Bitumenprodukten.

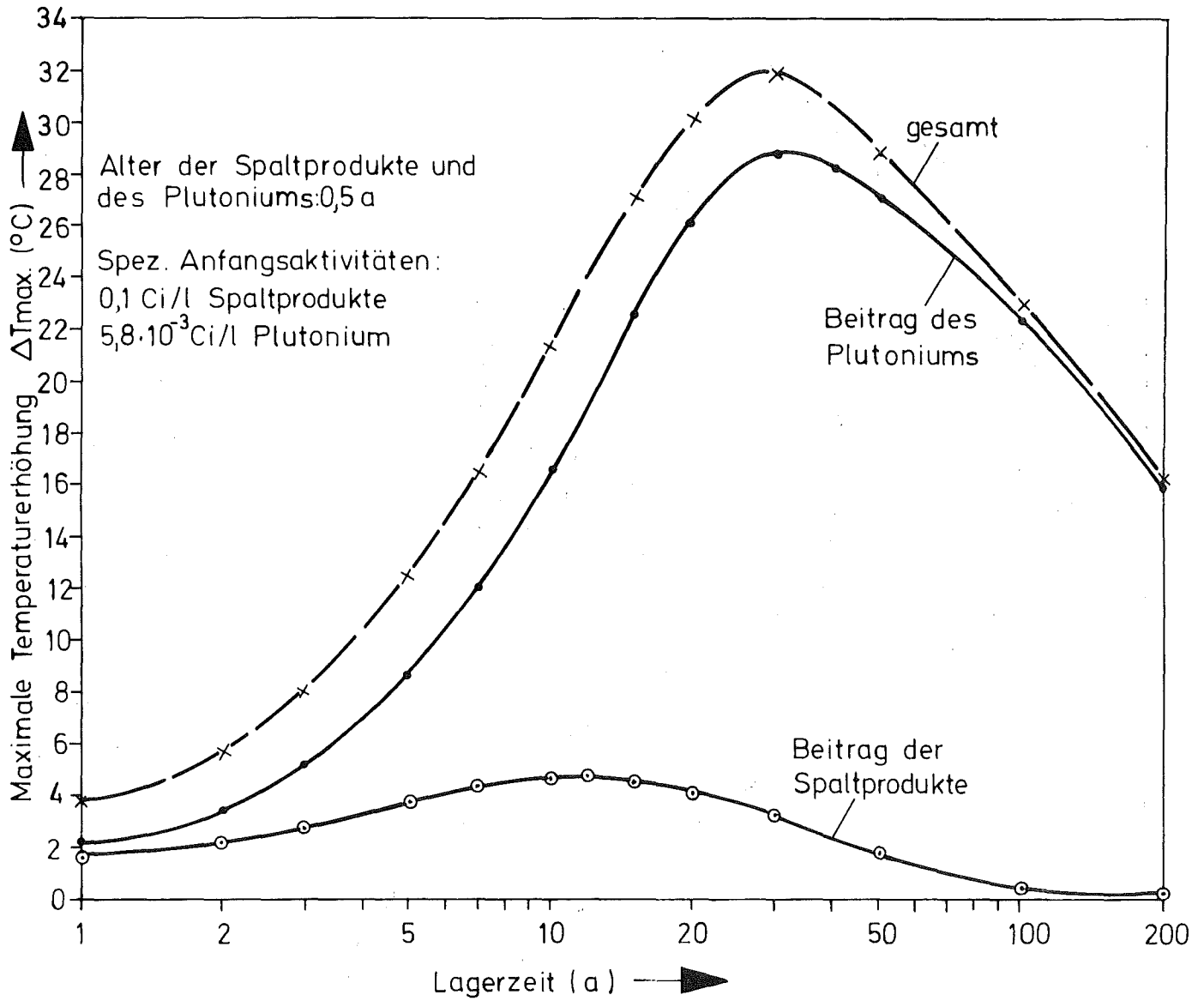


Abb. 22; Beiträge der Spaltprodukte und des Plutoniums zur maximalen Temperaturerhöhung in einem zylindrischen Lagerraum ( $V = 15.000 \text{ m}^3$ ,  $D = 22,8 \text{ m}$ ,  $H = 36 \text{ m}$ ) bei stufenweiser Einlagerung von Bitumenprodukten

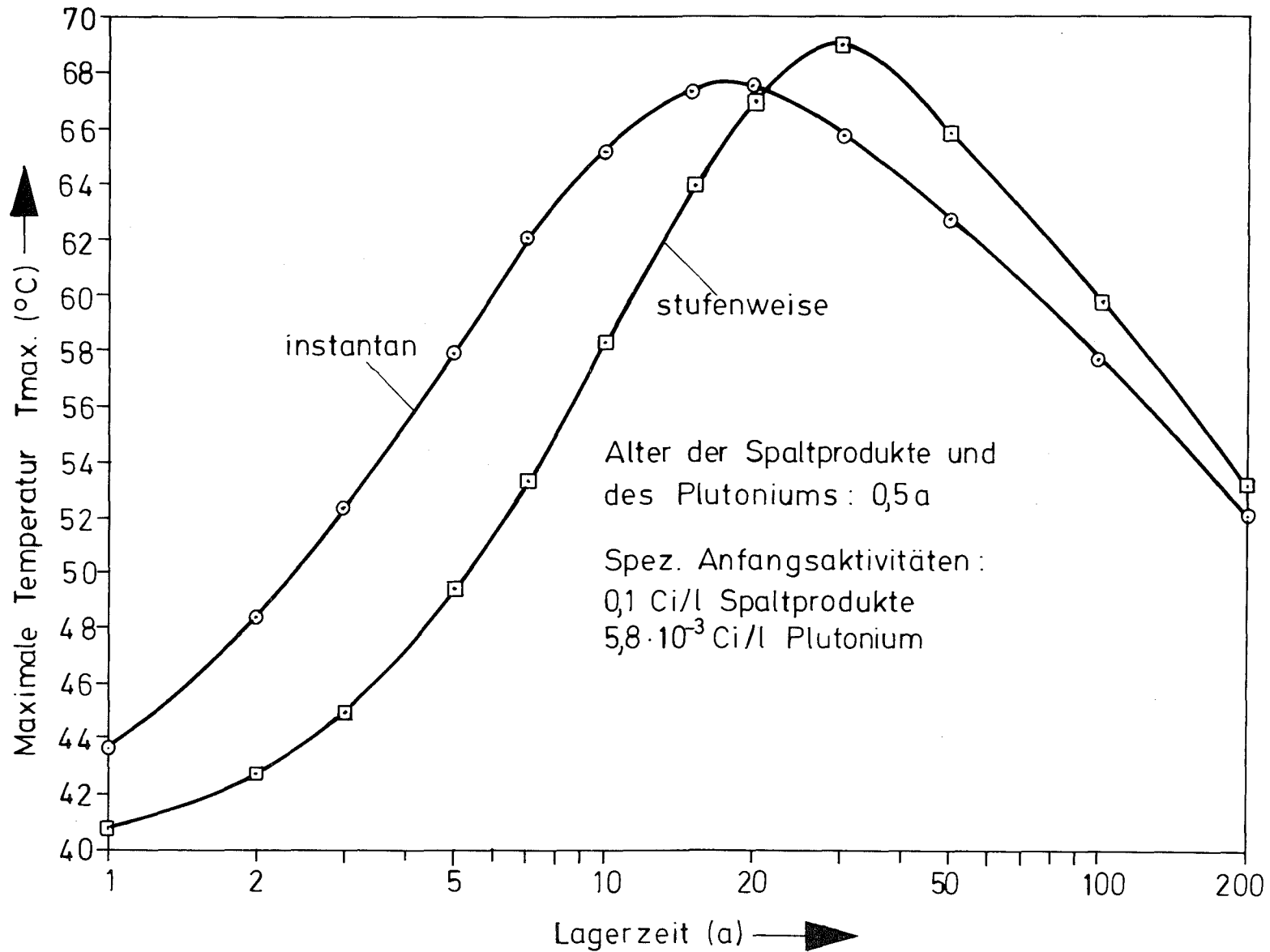


Abb. 23; Vergleich der Temperaturentwicklung in einem zylindrischen Lagerraum ( $V = 15.000 \text{ m}^3$ ,  $D = 22,8 \text{ m}$ ,  $H = 36 \text{ m}$ ) bei instantaner und stufenweiser Einlagerung von spaltproduktthaltigen Bitumenprodukten mit Plutonium.

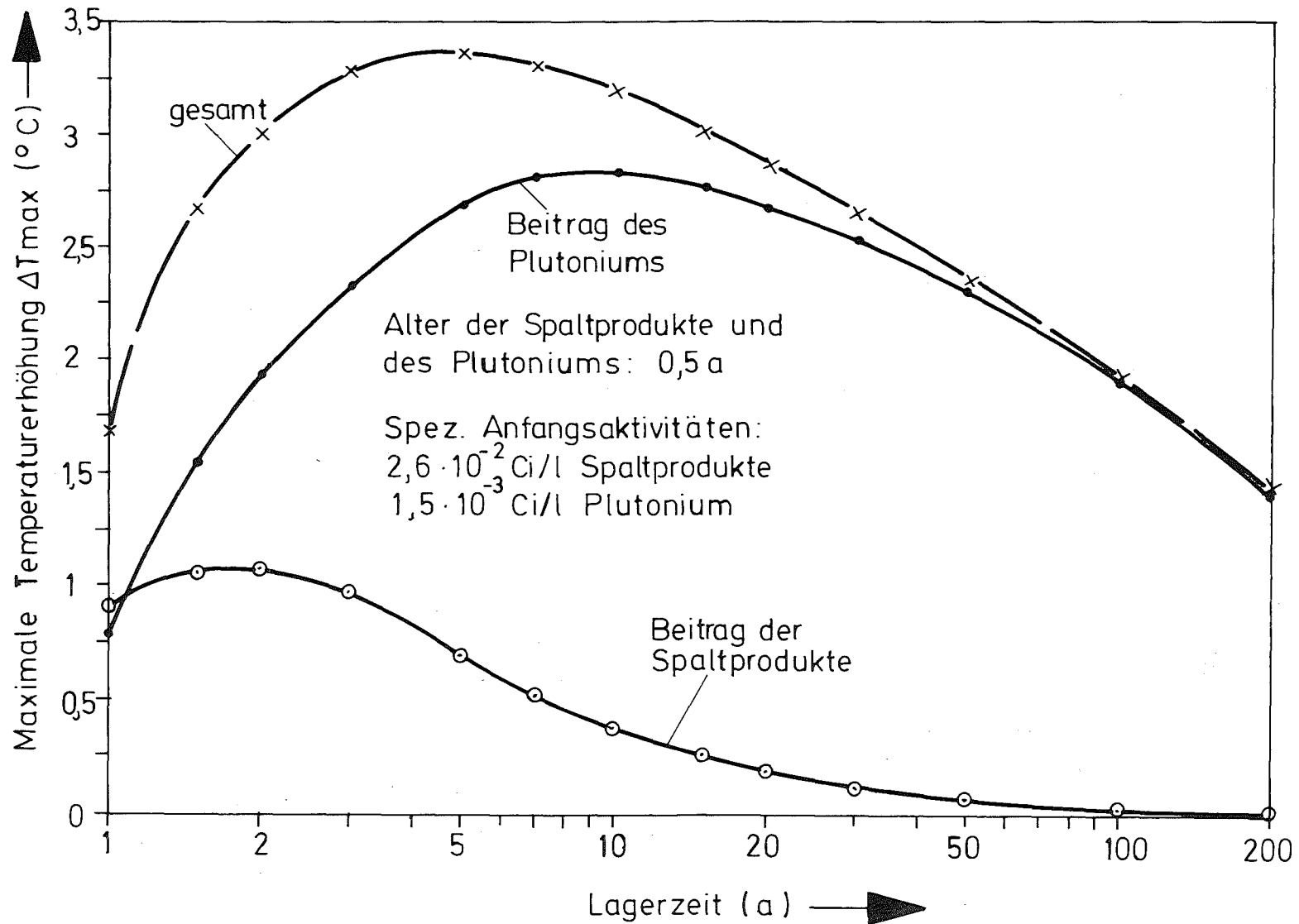


Abb. 24; Beiträge der Spaltprodukte und des Plutoniums zur maximalen Temperaturerhöhung in einem zylindrischen Lagerraum ( $V = 15.000 \text{ m}^3$ ,  $D = 22,8 \text{ m}$ ,  $H = 36 \text{ m}$ ) bei instantaner Einlagerung von Zementprodukten.

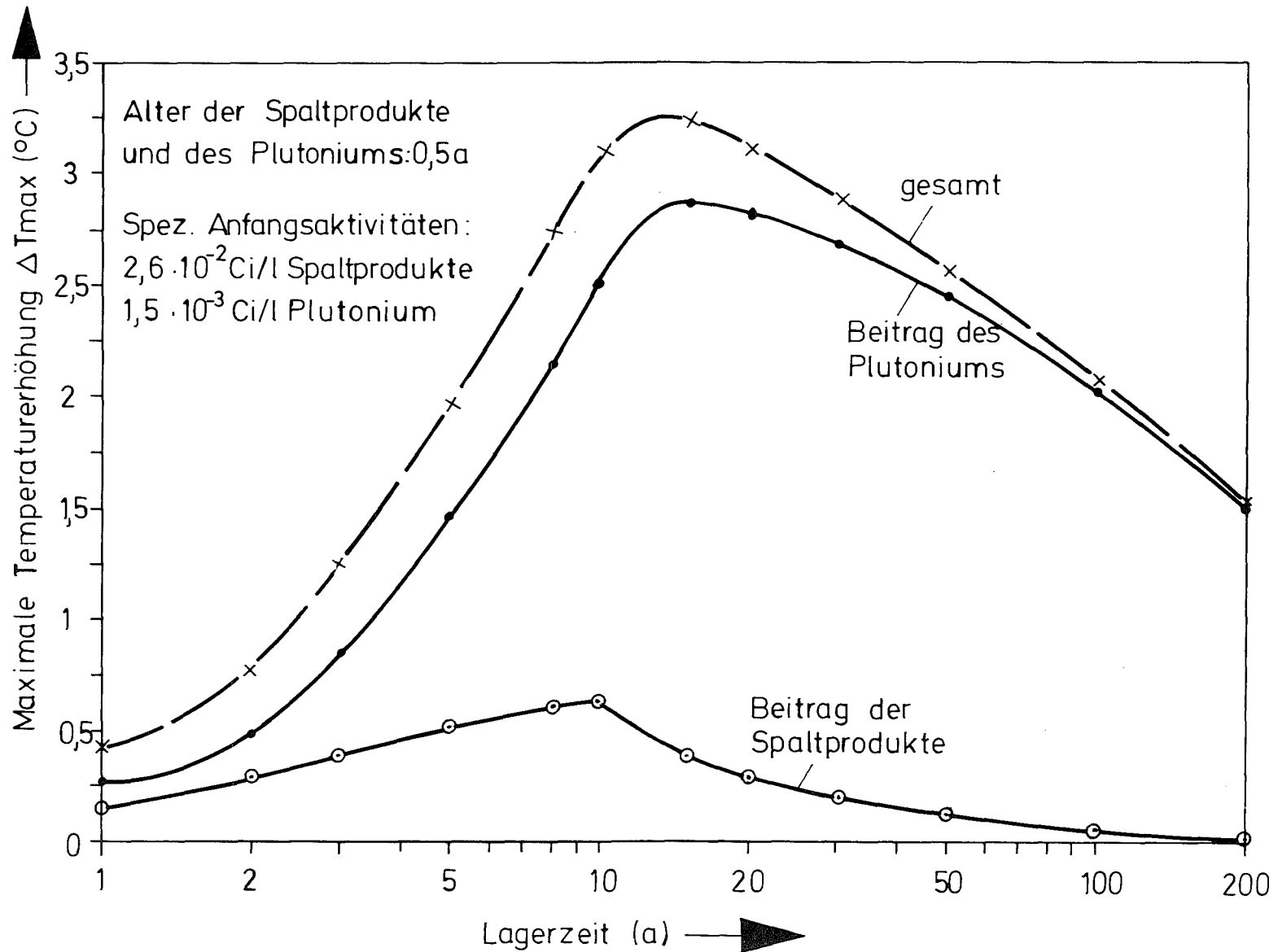


Abb.25; Beiträge der Spaltprodukte und des Plutoniums zur maximalen Temperaturerhöhung in einem zylindrischen Lagerraum ( $V = 15.000 \text{ m}^3$ ,  $D = 22,8 \text{ m}$ ,  $H = 36 \text{ m}$ ) bei stufenweiser Einlagerung von Zementprodukten



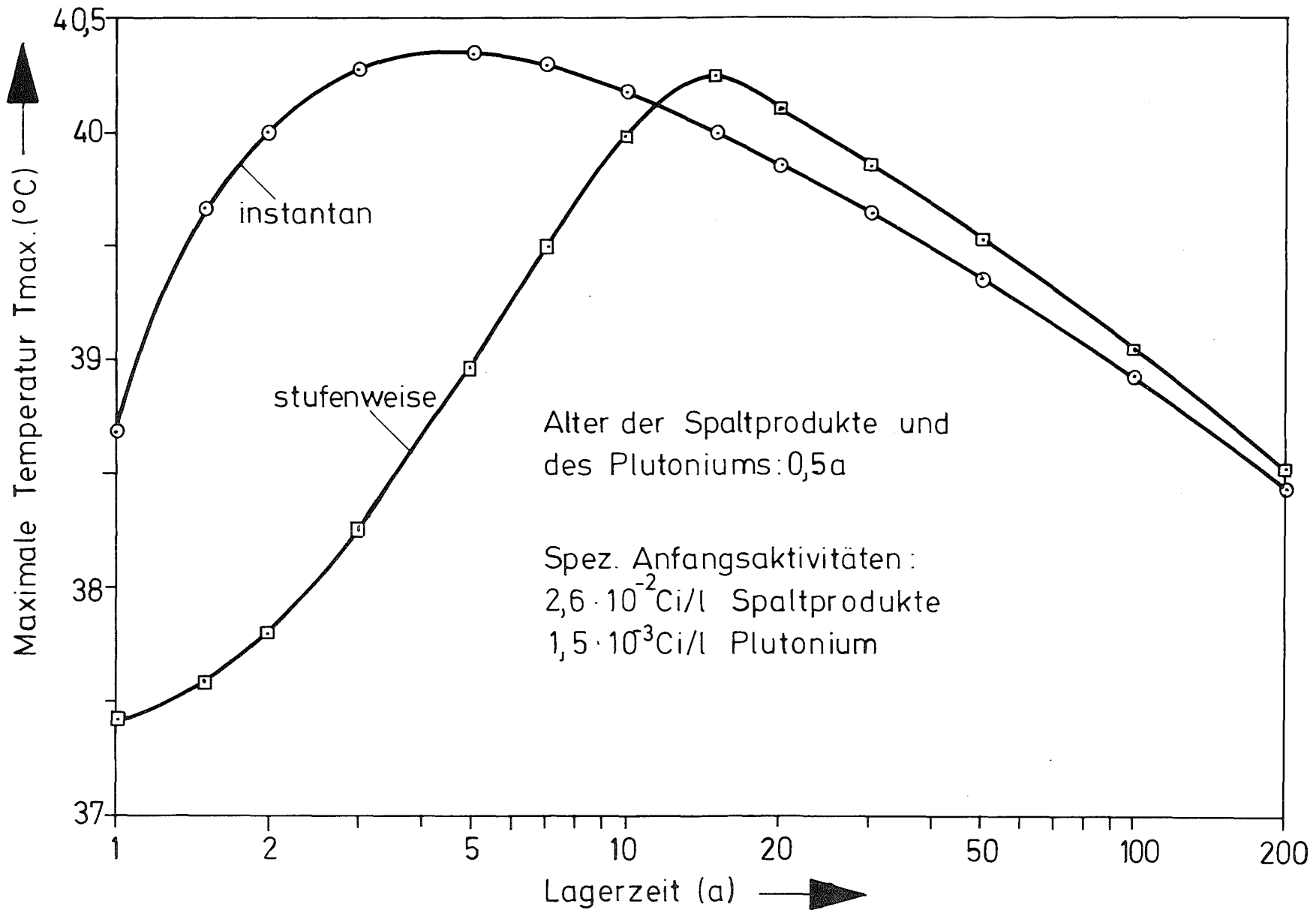


Abb.26; Vergleich der Temperaturentwicklung in einem zylindrischen Lagerraum ( $V = 15.000 \text{ m}^3$ ,  $D = 22,8 \text{ m}$ ,  $H = 36 \text{ m}$ ) bei instantaner und stufenweiser Einlagerung von spaltproduktthaltigen Zementprodukten mit Plutonium.

Wie bei den Produkten ohne Plutonium wurden auch für die plutoniumhaltigen Produkte Werte für die spezifische Anfangsaktivität ermittelt, bei denen während der Lagerung in dem hier betrachteten zylindrischen Lagerraum (D = 22,8 m, H = 36 m) die angenommene Maximaltemperatur von 70°C für Bitumenprodukte bzw. 90°C für Zementprodukte erreicht wird. Diese Werte für das in diesen Untersuchungen betrachtete Aktivitätsverhältnis Spaltprodukte/Plutonium von 17:1 sind in Tab. 16 und 17 in Abhängigkeit von der Einlagerungsart angegeben. Das Alter der Spaltprodukte und des Plutoniums beträgt dabei 0,5 a. Der Vergleich der Werte der Tabellen 16 und 17 zeigt, daß die spezifischen Anfangsaktivitäten in den Zementprodukten etwa um den Faktor 4 höher liegen als diejenigen in den Bitumenprodukten.

Tab.16 Werte der spezifischen Anfangsaktivität in spaltprodukt- und plutoniumhaltigen Bitumen/NaNO<sub>3</sub>-Gemischen (0,5a alt, Aktivitätsverhältnis Spaltprodukte/Plutonium 17:1), bei denen während der Lagerung in einem zylindrischen Lagerraum (D = 22,8 m, H = 36 m) eine angenommene Maximaltemperatur von 70°C erreicht wird.

Einlagerungsart	Spezifische Anfangsaktivität [Ci/l]	
	Spaltprodukte	Plutonium
instantan	$1,07 \cdot 10^{-1}$	$6,2 \cdot 10^{-3}$
stufenweise	$1,03 \cdot 10^{-1}$	$6,0 \cdot 10^{-3}$

Tab. 17 Werte der spezifischen Anfangsaktivität in spaltprodukt- und plutoniumhaltigen Zement/Nitrat-Gemischen (0,5 a alt, Aktivitätsverhältnis Spaltprodukte/Plutonium 17:1), bei denen während der Lagerung in einem zylindrischen Lager-  
raum (D = 22,8, H = 36 m) eine angenommene Maximaltemperatur von 90°C erreicht wird.

Einlagerungsart	Spezifische Anfangsaktivität Ci/l	
	Spaltprodukte	Plutonium
instantan	$4,0 \cdot 10^{-1}$	$2,3 \cdot 10^{-2}$
stufenweise	$4,3 \cdot 10^{-1}$	$2,5 \cdot 10^{-2}$

### 3.2 Diskussion

Die Ergebnisse der Untersuchungen zeigen, daß sowohl die Dimensionierung eines Lagerraumes als auch das Alter der Spaltprodukte in den Abfallprodukten einen starken Einfluß auf die Temperaturentwicklung in den Abfallprodukten und damit auch im Lagerraum haben. Stark gestreckte oder flache Lagerräume ( $D \ll H$  oder  $D \gg H$ ) und junge Spaltprodukte führen zu günstigeren Temperaturverhältnissen.

Ein Einfluß der Einlagerungsart (instantan, stufenweise) auf die Temperatur wurde nur im Falle der Einlagerung von spaltproduktthaltigen Zement-

produkten ohne Plutonium festgestellt. Hier führte die stufenweise Einlagerung zu viel niedrigeren Temperaturwerten als die instantane. Der Grund dafür ist, daß infolge der guten Wärmeleitfähigkeit der Zementprodukte die Wärme relativ schnell an das Lagermedium abgeführt wird und somit keine starke Überlagerung der Temperaturbeiträge verschiedener Schichten auftritt. Dies ist umso deutlicher zu beobachten, je jünger die Spaltprodukte sind, d.h. je schneller die Wärmeleistung der Produkte abnimmt. Bei sehr langsamem Abklingen der Wärmeleistung wie im Falle der plutoniumhaltigen Zementprodukte ist dieser Effekt nicht mehr vorhanden.

Im Falle der Einlagerung von spaltproduktartigen Bitumenprodukten mit und ohne Plutonium führte die Verteilung der einzulagernden Abfallmengen in größeren Zeiträumen, wie dies der Fall bei der stufenweisen Einlagerung ist, etwa zu gleichen Temperaturen wie die instantane. Hier kommt es wegen der schlechten Wärmeleitfähigkeit der Bitumenprodukte zu einer starken Speicherung der Wärme und somit zu einer stärkeren Überlagerung der Temperaturbeiträge verschiedener Schichten. Die Maximaltemperatur tritt daher erst relativ spät nach Beendigung des Einlagerungsvorganges auf. In bestimmten Fällen, in denen die Wärmeleistung der Produkte sehr langsam abklingt, (hohes Alter der Spaltprodukte, große Mengen an Plutonium) kann die Überlagerung von lokalen Temperaturmaxima sogar dazu führen, daß die stufenweise Einlagerung zu höheren Temperaturen als die instantane führt.

Der Vergleich zwischen Zement- und Bitumenprodukten hinsichtlich der Temperaturentwicklung in einem Lagerraum zeigt, daß die Zementprodukte aufgrund ihrer besseren Wärmeleitfähigkeit zu niedrigeren Temperaturen im Lagerraum führen als die Bitumenprodukte. Infolgedessen liegen die Werte für die spezifische Anfangsaktivität in den Zementprodukten, bei denen die maximal zulässige Temperatur erreicht wird, wesentlich höher als diejenigen für Bitumenprodukte. Es muss jedoch bezweifelt werden - wie bereits im Abschnitt 2.3 "Radiolyse" erwähnt -, ob Zementprodukte mit den sich aus der Fixierung von hohen Aktivitäten ergebenden großen Salzgehalten den heutigen Anforderungen der Endlagerung genügen.

Die aus diesen Untersuchungen gewonnenen Ergebnisse sind aus folgenden Gründen konservativ:

- Durch die Annahmen, daß die Lagerräume vollständig befüllt sind und der Inhalt der Lagerräume kompakt ist, ergibt sich eine höhere Wärmeleistung pro Volumen als sie in der Praxis aufgrund der tatsächlich kleineren erreichbaren Füllungsgrade auftreten wird.
- Die effektive Wärmeleitfähigkeit des Lagerinhalts wird höher sein als in den Rechnungen zugrundegelegt wurde, da die Befüllung der Lagerräume nur mit Abfallprodukten angenommen wurde, ohne den Einfluß des miteingelagerten gut wärmeleitenden Faßwerkstoffs auf die Wärmeableitung aus dem Abfall an das umgebende Salz zu berücksichtigen.
- Hinsichtlich der Zementprodukte wurde die Wärmeleitfähigkeit der Produkte, die mit steigender Temperatur abnimmt /18/, wiederum dadurch unterschätzt, daß an Stelle des Wertes für eine realistische mittlere Temperatur im Lagerraum der Wert für die hier angenommene maximal zulässige Temperatur der Produkte von 90°C zugrundegelegt wurde.

Infolge der o.g. konservativen Annahmen werden in der Praxis niedrigere Temperaturen auftreten als sie hier ermittelt wurden.

Nicht berücksichtigt wurden allerdings bei den Temperaturberechnungen die luftgefüllten Hohlräume zwischen den einzelnen Blechfässern. Die Berücksichtigung dieser Hohlräume würde zwar wegen der schlechten Wärmeleitfähigkeit der Luft zu einer Erniedrigung der Wärmeabfuhr durch Leitung aus dem Abfall führen. Bei einer geeigneten Stapelung der Fässer würde jedoch durch die auftretende Konvektion eine Erhöhung des Wärmetransportes erfolgen. Dadurch würde die Verschlechterung der Wärmeabfuhr durch Leitung zumindest zum Teil kompensiert.

#### 4. Zusammenfassung

##### 4.1 Bildung von Radiolysegasen bei der Einlagerung von spaltprodukt-haltigen Bitumen- und Zementprodukten ohne Plutonium in unterirdischen Lagerräumen

Es wurde der Einfluß des Alters der in Bitumen- und Zementprodukten fixierten Spaltprodukte sowie des Füllungsgrades eines Lagerraumes auf die Radiolysegasbildung bei der Einlagerung der Abfallprodukte in unterirdischen Salzlageräumen berechnet. Darüber hinaus wurden aus den berechneten Radiolysegasmengen Werte für die spezifische Anfangsaktivität in spaltprodukt-haltigen Bitumen- und Zementprodukten ohne Plutonium ermittelt, bei denen in einem unbelüfteten Lagerraum die untere Radiolysegaszündgrenze (4 Vol.% in Luft) nach einer Betriebsdauer von 10 Jahren gerade erreicht wird.

Es zeigte sich, daß die Radiolysegas-mengen in einem Lagerraum mit steigendem Füllungsgrad des Lagerraumes und wachsendem Alter der Spaltprodukte (bei gleicher spezifischer Anfangsaktivität) zunehmen. Ferner ergab sich aus den Ergebnissen der Berechnungen, daß die beim Lagern von Zementprodukten auftretenden Radiolysegas-mengen in einem Lagerraum etwa um den Faktor 17 niedriger liegen als diejenigen beim Lagern von Bitumenprodukten gleicher spezifischer Anfangsaktivität und gleichen Alters der Spaltprodukte.

Die aus den berechneten Radiolysegas-mengen abgeleiteten Werte für die spezifische Anfangsaktivität in den Produkten, bei denen in einem unbelüfteten Lagerraum nach einer Betriebsdauer von 10 Jahren ein zündfähiges Radiolyse-gas/Luft-Gemisch gerade erreicht wird, liegen je nach Alter der Spaltprodukte und Füllungsgrad des Lagerraumes für Bitumenprodukte zwischen 0,56 Ci/l und 2,65 Ci/l und für Zementprodukte zwischen 9,7 Ci/l und 50 Ci/l.

#### 4.2 Wärmeentwicklung aus Bitumen- und Zementprodukten bei der Einlagerung in unterirdischen Lagerräumen

Es wurde die Abhängigkeit der auftretenden Maximaltemperatur in zylindrischen Lagerräumen ( $V = 15.000 \text{ m}^3$ ) von der Dimensionierung des Lagerraumes beim Lagern von spaltprodukthaltigen Bitumen- und Zementprodukten mit und ohne Plutonium untersucht. Darüber hinaus wurde am Beispiel eines zylindrischen Lagerraumes ( $D = 22,8 \text{ m}$ ,  $H = 36 \text{ m}$ ) der Einfluß des Alters der Spaltprodukte und der Einlagerungsart der Produkte (instantan, stufenweise) auf die Maximaltemperatur im Lagerraum bestimmt. Ferner wurden für diesen betrachteten Lagerraum Werte für die spezifische Anfangsaktivität in Bitumen- und Zementprodukten ermittelt, bei denen eine für diese Untersuchungen angenommene maximal zulässige Temperatur von  $70^\circ\text{C}$  für Bitumenprodukte bzw.  $90^\circ\text{C}$  für Zementprodukte gerade erreicht wird.

Es zeigte sich, daß die Temperatur in einem Lagerraum mit wachsendem Alter der Spaltprodukte (bei gleicher spezifischer Anfangsaktivität) zunimmt. Der maximale Temperaturwert wird jeweils bei einem Durchmesser/Höhe-Verhältnis ( $D/H$ ) des Lagerraumes von etwa 1 erreicht. Ein Einfluß der Einlagerungsart der Abfallprodukte auf die Temperatur wurde nur im Falle der Einlagerung von spaltprodukthaltigen Zementprodukten ohne Plutonium festgestellt - hier führte die stufenweise Einlagerung zu niedrigeren Temperaturwerten als die instantane. Dagegen ließ sich im Falle der Einlagerung von spaltprodukthaltigen Zementprodukten mit Plutonium sowie von Bitumenprodukten mit und ohne Plutonium ein Einfluß der Einlagerungsart der Produkte auf die Temperatur nicht erkennen.

Aus dem Vergleich zwischen Zement- und Bitumenprodukten geht hervor, daß die bei der Einlagerung von Zementprodukten auftretenden Temperaturen in einem Lagerraum deutlich niedriger liegen als diejenigen beim Lagern von Bitumenprodukten.

Die Werte für die spezifische Anfangsaktivität in spaltprodukthaltigen Produkten ohne Plutonium bei der Einlagerung in dem hier betrachteten

Lagerraum ( $D/H = 0,63$ ) liegen je nach Einlagerungsart und Alter der Spaltprodukte für die Bitumenprodukte zwischen  $0,3 \text{ Ci/l}$  und  $0,7 \text{ Ci/l}$  und für die Zementprodukte zwischen  $0,8 \text{ Ci/l}$  und  $2,2 \text{ Ci/l}$ . Die entsprechenden Werte der spezifischen Anfangsaktivität in spaltproduktthaltigen Produkten mit Plutonium betragen bei dem hier betrachteten Aktivitätsverhältnis Spaltprodukte/Plutonium von 17:1 und bei einem Alter der Spaltprodukte und des Plutoniums von  $0,5 \text{ a}$  je nach Einlagerungsart:

Für Bitumenprodukte:  $1,03 \cdot 10^{-1} \text{ Ci/l}$  bis  $1,07 \cdot 10^{-1} \text{ Ci/l}$  an Spaltprodukten  
und  $6,0 \cdot 10^{-3} \text{ Ci/l}$  bis  $6,2 \cdot 10^{-3} \text{ Ci/l}$  an Plutonium

Für Zementprodukte :  $4,0 \cdot 10^{-1} \text{ Ci/l}$  bis  $4,3 \cdot 10^{-1} \text{ Ci/l}$  an Spaltprodukten  
und  $2,3 \cdot 10^{-2} \text{ Ci/l}$  bis  $2,5 \cdot 10^{-2} \text{ Ci/l}$  an Plutonium.



## 5. Schlußfolgerungen

Die im vorliegenden Bericht durchgeführten Berechnungen zeigen, daß sowohl die Radiolysegasbildung als auch die Wärmefreisetzung obere Grenzen für die spezifische Anfangsaktivität in Bitumen- und Zementprodukten bei der Einlagerung in großräumigen Lagerräumen setzen. Dabei ist das Wärmeproblem deutlich restriktiver, und zwar um so mehr je schlechter die Wärmeleitfähigkeit eines Produktes ist und je näher das Verhältnis Durchmesser/Höhe (D/H) des Lagerraumes bei 1 liegt.

Das D/H-Verhältnis von zylindrischen Lagerräumen in geologischen Formationen wird durch andere, z.B. gebirgsmechanische Gesichtspunkte bestimmt und kann daher nicht beliebig variiert werden. Daraus folgt, daß unter Beibehaltung der hier angenommenen Temperaturgrenzen eine Erhöhung der spezifischen Anfangsaktivität der einzulagernden Produkte über die in dieser Arbeit ermittelten Höchstwerte hinaus nur möglich ist, wenn die Wärmeleitfähigkeit der Produkte verbessert bzw. die effektive Wärmeleitfähigkeit des Lagerrauminhalts erhöht wird. Letzteres könnte z.B. durch das Einbringen von Materialien mit hoher Wärmeleitfähigkeit zusammen mit dem Abfall erreicht werden. Eine andere Möglichkeit wäre das Einbringen von gut wärmeleitenden Zwischenschichten.

Eine Beeinflussung der Standfestigkeit der Lagerräume durch die Erwärmung des umgebenden Salzes kann für die hier betrachteten Fälle ausgeschlossen werden, da die maximale Temperaturerhöhung an der Wand der Lagerräume nur gering ist. So beträgt z.B. beim Lagern von Bitumenprodukten mit 0,5 a alten Spaltprodukten und 1 Ci/l in einem zylindrischen Lagerraum mit  $V = 15.000 \text{ m}^3$  und  $D/H = 0,63$  die maximale Temperaturerhöhung ( $\Delta T$ ) des Salzes an der Wand des Lagerraumes ca.  $5^{\circ}\text{C}$ . Die entsprechende Temperaturerhöhung beim Lagern von Zementprodukten gleicher spezifischer Anfangsaktivität und gleichen Alters der Spaltprodukte liegt bei etwa  $9^{\circ}\text{C}$ .

Zur Vermeidung von kritischen Konzentrationen an Radiolysegasen können technische Maßnahmen ergriffen werden, durch die ein Luftaustausch zwischen dem Lagerraum und seiner Umgebung und dadurch eine Verringerung der Radiolysegas-Konzentration sichergestellt wird.

Grundsätzlich ist es von Vorteil, wenn die Konzentration des in den Bitumen- und Zementprodukten vorliegenden Plutoniums wegen seines hohen Beitrages zur Wärmeentwicklung und wahrscheinlich auch zur Radiolysegasbildung möglichst gering ist.

Die Autoren dieser Arbeit danken Herrn Dr. Krause für wertvolle Anregungen und Herrn W. Kluger für zahlreiche Informationen.

6. Literaturverzeichnis

- /1/ M.C.Schuchardt, H.-J. Engelmann, W. Diefenbacher, in H.Krause, G.Rudolph (Hrsg.), Jahresbericht 1974 der ABRA, KFK-2212 (1975), S. 128
- /2/ W.Körner, A.Dagan, Isotopentechnik 7 (1971) 296
- /3/ W.Kluger, in H.Krause und G.Rudolph (Hrsg.), Jahresbericht 1973 der ADB, KFK-2126 (1975) 8
- /4/ W.Kluger, in H.Krause (Hrsg.), Jahresbericht 1971 der ADB, KFK-1830 (1973) 7
- /5/ Technical Reports Series Nr. 116, IAEA (1970)
- /6/ W.Fischer, W.Körner, Isotopenpraxis 5 (1969) 376
- /7/ W.Kluger, H.Krause, O.Nentwich, IAEA Research Coordination Meeting on the Incorporation of Radioactive Wastes in Bitumen, Dubna 9 - 13 Dec. 1968
- /8/ R.Tabardel-Brian, J.Rodier, G.Lefillatre, CEA-R-3730 (1969)
- /9/ W.Kluger, in H.Krause (Hrsg.), Jahresbericht 1972 der ADB, KFK-2000 (1974) 7
- /10/ Engler-Bunte-Institut der Universität Karlsruhe, "Gutachtliche Stellungnahme zu gastechischen Fragen bei der Lagerung von radioaktiven Abfällen in der Prototyp-Kaverne im Salzbergwerk Asse", unveröffentlicht
- /11/ M.E.Meek, B.F.Rider, NEDO-12154 (1972)
- /12/ M.E.Meek, B.F.Rider, APED-5398 (1968)
- /13/ C.M.Lederer, I.M.Hollander, S.Perlman, Table of Isotopes, 6<sup>th</sup>ed. John Wiley and Sons, New York (1967)

- /14/ BNL - 325 (1972)
- /15/ W.Seelmann-Eggebert, G.Pfennig, H.Münzel, Nuklid-Tabellen (1974)
- /16/ ORNL-4451 (1970)
- /17/ H.Wertenbach, priv.Mitteilung
- /18/ P.Daruschy, priv. Mitteilung
- /19/ D'Ans Lax, Taschenbuch für Chemiker und Physiker, Band I (1967), Springer Verlag, Heidelberg
- /20/ W.Guber, P.Daruschy, W.Hild, in H.Krause und G.Rudolph (Hrsg.), Jahresbericht 1974 der ABRA, KFK-2212 (1975), S. 165
- /21/ H.Poltz, in Landolt-Börnstein, IV Band, 4.Teil, Wärmetechnik, S.875 ff., Springer-Verlag, Berlin (1967)
- /22/ H.Schmidt, Dissertation, RWTH Aachen (1971)

## A n h a n g

### Rechenverfahren und Rechenprogramme

#### A.1 Berechnung der H<sub>2</sub>-Bildungsraten und der kumulierten H<sub>2</sub>-Mengen im Lagerraum

##### A.1.1 Rechenverfahren

Die Berechnung der H<sub>2</sub>-Bildungsraten bzw. der kumulierten H<sub>2</sub>-Mengen im Lagerraum bei den im Abschn. 2.2.1 gemachten Modellannahmen geht davon aus, daß die von den fixierten Abfällen ausgesandte β + γ-Strahlung vollständig in den Abfallprodukten absorbiert wird, und daß die H<sub>2</sub>-Bildungsrate proportional zur Dosisleistung in den Abfällen ist /3/. Damit ergibt sich ein eindeutiger Zusammenhang zwischen der H<sub>2</sub>-Bildungsrate und den im Lagerraum vorhandenen Aktivitäten und Zerfallenergien.

##### a) Berechnung der H<sub>2</sub>-Bildungsrate

Die H<sub>2</sub>-Bildungsrate zu einem Zeitpunkt t<sup>+</sup>) erhält man durch Integration der Beiträge der im Zeitraum zwischen t<sub>1</sub> (Alter der Spaltprodukte) und t<sub>2</sub> (Einlagerungsdauer + Alter der Spaltprodukte) kontinuierlich eingelagerten Abfallprodukte nach der Gleichung:

$$\dot{H}_2(t) = X \cdot R \cdot \sum_i E_{\text{eff}}^i \int_{t_1}^{t''} A_i (t - t' + t_1) \cdot dt' \quad (1)$$

wobei während der Einlagerung ( $t \leq t_2$ )  $t'' = t$  und nach Beendigung der Einlagerung ( $t > t_2$ )  $t'' = t_2$  gilt.

---

<sup>+</sup>) t = 0 entspricht dem Zeitpunkt der Reaktorentnahme

Dabei bedeuten:

$X$  = Radiolytische  $H_2$ -Ausbeute  $[cm^3/MeV]$

$R$  = Einlagerungsrate  $[m^3/a]$

$A_i(t)$  = Beitrag des Nuklids  $i$  zur spezifischen Aktivität der Abfallprodukte zum Zeitpunkt  $t$   $[Ci/m^3]$

$E_{eff}^i$  = Effektive Zerfallsenergie des Nuklids  $i$   $[MeV]$

Die Berechnung der Größen  $A_i(t)$  und  $E_{eff}^i$  sowie des Integrals in Glg. (1) wurde mit Hilfe des im folgenden Abschnitt (A.1.2) beschriebenen Programms SPALT vorgenommen. Die dazu benötigten Spaltproduktausbeuten wurden von Meek und Rider /11, 12/, die  $\beta$ - und  $\gamma$ -Energien der Isotope von Lederer et al. /13/, die Aktivierungsquerschnitte von BNL /14/ und die Halbwertszeiten von Seelmann-Eggebert et al. /15/ entnommen.

Für die radiolytische  $H_2$ -Ausbeute wurden folgende Literaturdaten zugrundegelegt:

$X_{\text{Bit. Prod.}} = 3 \text{ cm}^3/\text{Mrad} \cdot \text{kg} = 4,8 \cdot 10^{-17} \text{ cm}^3/\text{MeV}$  /4/

$X_{\text{Zem. Prod.}} = 0,2 \text{ cm}^3/\text{Mrad} \cdot \text{kg} = 3,2 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^3/\text{MeV}$  /9/

b) Berechnung der kumulierten  $H_2$ -Mengen im Lagerraum

Die kumulierten  $H_2$ -Mengen im Lagerraum zum Zeitpunkt  $t$  erhält man durch Integration der Glg. (1) von  $t_1$  bis  $t$ .

Für die Zeit während der Einlagerung ( $t \leq t_2$ ) gilt:

$$H_2(t) = X \cdot R \cdot \sum_i E_{eff}^i \int_{t_1}^t \left[ \int_{t_1}^{t^*} A_i(t^* - t' + t_1) dt' \right] dt^* \quad (2)$$

Für die Zeit nach Beendigung der Einlagerung ( $t > t_2$ ) gilt:

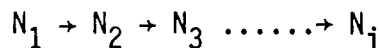
$$H_2(t) = X \cdot R \cdot \sum_i E_{\text{eff.}}^i \left[ \int_{t_1}^{t_2} \left[ \int_{t_1}^{t^*} A_i (t^* - t' + t_1) dt' \right] dt^* + \int_{t_2}^t \int_{t_1}^{t_2} A_i (t^* - t' + t_1) dt' dt^* \right] \quad (3)$$

#### A.1.2 Beschreibung des Rechenprogramms SPALT

Das in Fortran IV geschriebene Programm SPALT erlaubt die Berechnung des Spaltproduktinventars sowie der Aktivität, der Zerfallsenergien und der Wärmeleistung von 88 Ketten mit insgesamt 342 Nukliden für beliebige Reaktorleistungen, Bestrahlungs- und Abkühlzeiten.

##### a) Berechnung der Aktivität

Das Differentialgleichungssystem das den Aktivitätsaufbau in den Brennelementen während des Reaktorbetriebes sowie den Zerfall nach Abschalten des Reaktors beschreibt, ist samt den zugehörigen allgemeinen Lösungen bekannt. Betrachtet man die Kette



mit den Spaltausbeuten  $\eta_1, \eta_2, \dots, \eta_i$ , den Zerfallskonstanten  $\lambda_1, \lambda_2, \dots, \lambda_i$  und den Einfangsquerschnitten  $\sigma_1, \sigma_2, \dots, \sigma_i$ , dann wird bei einem Fluß  $\phi$  und einer Spaltrate  $F$  pro sec die Bildungsrate des allgemeinen Gliedes

$$N_i = -(\lambda_i + \sigma_i \phi) N_i + \lambda_{i-1} N_{i-1} + \eta_i F \quad (4)$$

Die Lösung dieser Gleichung hat die allgemeine Form

$$N_i(t) = \frac{(1 - e^{-\lambda_i^* \cdot t})}{\lambda_i^*} \cdot F \cdot \left( n_i + \frac{\lambda_{i-1}}{\lambda_{i-1}^*} \cdot \left( n_{i-1} + \frac{\lambda_{i-2}}{\lambda_{i-2}^*} \right. \right. \\ \cdot \left. \left. \left( \dots \left( n_2 + \frac{\lambda_1}{\lambda_1^*} \right) \right) \right) \right) - \sum_{r=1}^{i-1} \left( F \frac{\lambda_r}{\lambda_r^*} \right. \\ \cdot \left. \left( n_r + \frac{\lambda_{r-1}}{\lambda_{r-1}^*} \left( n_{r-1} + \dots \right) \right) \right) \cdot \left[ \prod_{q=r+1}^{i-1} \lambda_q \right] \cdot S_{\lambda_q^* \dots \lambda_i^*} \quad (5)$$

wobei  $\lambda_i^* = \lambda_i + \sigma_i \cdot \Phi$

$$\text{und } S_{\lambda_q^* \dots \lambda_i^*} = \sum_{q=r}^i \frac{e^{-\lambda_q^* \cdot t}}{(\lambda_r^* - \lambda_q^*) \cdot (\lambda_{r+1}^* - \lambda_q^*) \cdot \dots \cdot (\lambda_i^* - \lambda_q^*)}$$

Bei  $r = q$  ist der Term  $(\lambda_r^* - \lambda_q^*) = 1$  zu setzen.

In dieser Gleichung wird der Zerfall der Spaltprodukte durch den Neutroneneinfang berücksichtigt; nicht generell betrachtet wird aber dabei der Einfang von Neutronen als Quelle für die nächstfolgende Kette. Der Nuklid-aufbau durch Neutroneneinfang wurde nur für die stabilen Elemente wie auch für Nuklide mit großem Einfangsquerschnitt betrachtet.

Die allgemeine Gleichung (5) gilt streng nur für eine konstante Leistungsverteilung der Spaltquelle, z.B. wenn die Reaktorleistung zu 100% aus der Spaltung von U-235 oder von Pu-239 kommt; natürlich gilt diese Beziehung auch für eine konstante Leistungsverteilung von z.B. 70% U-235 und 30% Pu-239. Als Spaltquelle wird nur die Spaltung von U-235 und des durch die Spaltung von U-238 kontinuierlich aufgebauten Pu-239 berücksichtigt. Der entstehende Fehler durch Vernachlässigung der Spaltung von U-238 und Pu-241 ist bei den bisher betriebenen Leichtwasser Reaktoren kleiner als 1%.

Entsprechend der für U-235 und Pu-239 verschiedenen Spaltprodukt-ausbeuten ist das resultierende Spaltproduktinventar vom

Leistungsverhältnis  $\frac{P(U-235)}{P(Pu-239)}$  abhängig. Da sich dieses Verhältnis während der Reaktorbetriebszeit stetig ändert, ist es notwendig die Bestrahlungszeit in kleinere Zeitschritte zu unterteilen und für jeden dieser Schritte das Verhältnis  $\frac{P(U-235)}{P(Pu-239)}$  sowie das Spaltproduktinventar zu berechnen. Zur genauen Bestimmung der Plutoniummenge muß der Konversionsfaktor  $c$  bekannt sein, der aber keine Konstante sondern eine Funktion der Anreicherung und des vorhandenen Plutoniumgehaltes ist. Für unsere Betrachtungen wurde zur Vereinfachung der Rechnungen mit einem konstanten mittleren Konversionsfaktor von  $c = 0,45$  gerechnet. Innerhalb der einzelnen Zeitschritte wird nach Glg. (4) das Spaltproduktinventar bestimmt.

Das Abklingen der Nuklide nach Ende der Bestrahlungszeit wurde berechnet nach der allgemein gültigen Beziehung:

$$N_i(t) = N_i^0 \cdot e^{-\lambda_i \cdot t} + \sum_{r=1}^{i-1} N_r^0 \left[ \prod_{q=r}^{i-1} \lambda_q \right] S_{\lambda_q} \quad (6)$$

$$\text{wobei } S_{\lambda_q} = \frac{e^{-\lambda_q \cdot t}}{(\lambda_r - \lambda_q) \cdot (\lambda_{r+1} - \lambda_q) \cdots (\lambda_i - \lambda_q)}$$

Bei  $r = q$  ist der Term  $(\lambda_r - \lambda_q) = 1$  zu setzen.

Die spez. Aktivität des Nuklids  $i$  zum Zeitpunkt  $t$  rechnet sich aus  $A_i(t) = N_i(t) \cdot \lambda_i$ ; das gesamte Aktivitätsinventar setzt sich aus den Beiträgen der einzelnen Nuklide zusammen. Bei der Berechnung der Aktivitäten der  $n$ -Teilschritte wurde berücksichtigt, daß die Spaltnuklide der ersten  $n-1$  Teilschritte bis zum endgültigen Abschalten des Reaktors dem Neutronenfluß ausgesetzt bleiben. Für diese Zeit sind in der Formel (6) die  $\lambda_i$  durch  $\lambda_i^*$  zu ersetzen.



b) Berechnung der effektiven Zerfallsenergie

Die effektive Zerfallsenergie des Nuklids  $i$  ( $E_{\text{eff}}^i$ ) wurde berechnet nach der Formel

$$E_{\text{eff}}^i = \sum_{\kappa, \lambda, m} (P_{\alpha\kappa}^i E_{\alpha\kappa}^i + P_{\beta\lambda}^i \bar{E}_{\beta\lambda}^i + P_{\gamma m}^i E_{\gamma m}^i) \quad (7)$$

wobei:

$P_{\alpha\kappa}^i$  = Zahl der pro Zerfall emittierten  $\alpha$ -Teilchen der Energie  $E_{\alpha\kappa}$

$P_{\beta\lambda}^i$  = Zahl der pro Zerfall emittierten  $\beta$ -Teilchen der mittleren Energie  $\bar{E}_{\beta\lambda}^i$

$P_{\gamma m}^i$  = Zahl der pro Zerfall emittierten  $\gamma$ -Quanten der Energie  $E_{\gamma m}^i$

Die mittlere Energie  $\bar{E}_{\beta\lambda}^i$  wurde berechnet nach der Formel:

$$\bar{E}_{\beta\lambda}^i = 0,33 E_{\text{max.}}^i \left(1 - \frac{\sqrt{Z_i}}{50}\right) \cdot \left(1 + \frac{\sqrt{E_{\text{max.}}^i}}{4}\right) \quad (8)$$

wobei:

$Z_i$  = Ordnungszahl des  $\beta$ -Strahlers  $i$

$E_{\text{max.}}^i$  = maximale Energie des  $\beta$ -Strahlers  $i$

## A.2 Berechnung der Temperaturen in zylindrischen Lagerräumen

Für die Berechnung der zu erwartenden Temperaturen in einem zylindrischen Lagerraum bei den im Abschnitt 3.1.1 gemachten Modellannahmen, wurden insgesamt 3 verschiedene instationäre Wärmeleitungsprogramme verwendet. Ein Teil der Rechnungen zur instantanen Einlagerung von Bitumenprodukten wurde mit einem relativ einfachen Programm ("WARMELEIT") durchgeführt, das auf einer analytischen Formel für die Wärmeausbreitung in einem homogenen unendlichen Medium beruht. Hierbei wird von einer homogenen Quellverteilung in einem quaderförmigen Gebiet ausgegangen sowie von einem Zeitverhalten der Quellstärke in Form einer Summe von 14 Exponentialtermen entsprechend dem Zerfall der Spaltprodukte. Diese Exponentialterme wurden aus den Ergebnissen abgeleitet, die mit Hilfe des Programms SPALT (Abschn A.1.2) gewonnen wurden. Es gilt:

$$\vartheta(\vec{r}, t) = \frac{W_0}{4\rho c} \int_{\tau_1}^{\infty} \left\{ \sum_i p_i(0) \exp \left[ \left( \frac{1}{\tau^2} - t \right) \cdot \frac{\ln 2}{T_i} \right] \cdot \frac{3}{\pi} \left[ \operatorname{erf} \left( \frac{X_j + L_j}{\sqrt{4\alpha}} \cdot \tau \right) - \operatorname{erf} \left( \frac{X_j - L_j}{\sqrt{4\alpha}} \cdot \tau \right) \right] \right\} \frac{d\tau}{\tau^3} + \vartheta_0 \quad (9)$$

wobei  $\tau = \frac{1}{\sqrt{t - t_1}}$

Dabei bedeuten:

$W_0$  = Spezifische Wärmeleistung zum Zeitpunkt der Reaktorentnahme ( $t=0$ )

$p_i(0)$  = Anteil des Nuklids  $i$  an der spezifischen Wärmeleistung zur Zeit  $t=0$

$T_i$  = Halbwertszeit des Nuklids  $i$

$X_j$  = Komponenten des Ortsvektors  $\vec{r}$

$L_j$  = Halbe Kantenlängen der Volumenquelle in den 3 Koordinatenrichtungen

- $t_1$  = Einlagerungszeitpunkt ( $\cong$  Alter der Spaltprodukte zum Zeitpunkt der Einlagerung)
- $\rho c$  = Spezifische Wärmekapazität des Mediums
- $a$  = Temperaturleitfähigkeit ( $a = \frac{\lambda}{\rho c}$ )
- $\vartheta_0$  = Anfangstemperatur (für diese Rechnungen  $37^\circ\text{C}$  angenommen)

Die Integration über die Zeitvariable  $\tau$  muß auf numerischem Wege vorgenommen werden, wobei die obere Integrationsgrenze relativ niedrig gewählt werden kann, da der Integrand mit wachsendem  $\tau$  stark abfällt.

Zur Anwendung dieses Programms auf den zylindrischen Lagerraum wurde der kreisförmige Zylinderquerschnitt durch ein flächengleiches Quadrat angenähert. Ein Nachteil des Programms "WÄRMELEIT" ist, daß nur die Temperaturverteilung im Inneren des Lagerraumes, nicht aber im umgebenden Salz berechnet werden kann. Die Wandtemperatur muß daher als konstant angenommen werden.

Genauere Berechnungen mit einem aufwendigeren Wärmeleitungsprogramm "TEFELD" /22/, das die Diffusionsgleichung in 2-dimensionaler Zylindergeometrie auf numerischem Wege löst und den Temperaturverlauf sowohl im Inneren des Lagerraumes als auch im umgebenden Salz berechnet, zeigten, daß im Falle von Bitumenprodukten die Annahme einer konstanten Wandtemperatur akzeptabel ist. Sie führte zu einer Unterschätzung der Maximaltemperatur im Lagerraum um etwa 5%. Bei Zementprodukten treten aufgrund der besseren Wärmeleitfähigkeit gegenüber den Bitumenprodukten größere Wandtemperaturerhöhungen (relativ zur Zentraltemperatur) auf, so daß die Annahme der konstanten Wandtemperatur nicht gerechtfertigt ist. Somit mußten sämtliche Temperaturrechnungen für die Zementprodukte mit dem Programm "TEFELD" durchgeführt werden. Allerdings berechnen beide beschriebenen Programme die Temperatur nur für den Fall der instantanen Einlagerung.

Für die Behandlung des Temperaturproblems bei der stufenweisen Einlagerung wurde ein spezielles numerisches Programm erstellt, das die sich ändernde Geometrie und den dabei stattfindenden axialen Wärmetransport explizit behandelt, während der radiale Wärmetransport näherungsweise berücksichtigt wird.

Zur Bestimmung der Zentraltemperaturen  $T_i$  in den einzelnen Schichten werden für jede Einlagerungsschicht  $i$  die Gleichungen

$$\frac{dT_i(t)}{dt} = \frac{\lambda}{\rho \cdot c_p \cdot d^2} \left( T_{i-1}(t) + T_{i+1}(t) - 2T_i(t) \right) + \frac{W_i(t)}{\rho \cdot c_p} - \frac{\lambda}{\rho \cdot c_p} B^2 T_i(t) \quad (10)$$

$$i = 2, 3, \dots, n - 1$$

durch Integration in kleinen Zeitschritten gelöst.

Dabei bedeuten:

- $\lambda$  = Wärmeleitfähigkeit der Lagerrauminhalts
- $\rho$  = Dichte des Lagerrauminhalts
- $c_p$  = Spezifische Wärme des Lagerrauminhalts
- $d$  = Dicke der Einlagerungsschichten
- $W_i$  = Spezifische Wärmeleistung in der  $i$ -ten Schicht
- $n$  = Anzahl der eingelagerten Schichten

Für die unterste Schicht 1 sowie die jeweils oberste Schicht  $n$  gelten etwas andere Beziehungen, da hier die Wärmeableitung in den Lagerraumboden (konstante Temperatur  $T_0 = 37^\circ\text{C}$ ) bzw. der Wärmeübergang durch die Luft (Wärmeübergangszahl  $\alpha$ ) berücksichtigt werden müssen. Für die Wärmeübergangszahl  $\alpha$  wurde der Wert  $2 \text{ W/m}^2\text{C}$  angenommen. Die Rechnungen zeigten, daß der Wert von  $\alpha$  wenig Einfluß auf die Temperaturen im Füllstapel hat, so daß eine grobe Schätzung von  $\alpha$  ausreichend ist.

Der letzte Term der rechten Seite von Glg. (10) berücksichtigt den radialen Wärmeabfluß. Die Größe  $B^2$  ergibt sich aus dem radialen Temperaturprofil  $T(r)$ , welches durch geeignete Hilfsrechnungen mit den bereits beschriebenen Programmen abgeschätzt wurde.

Es gilt dann:

$$B^2 = - \frac{\left( \frac{\partial^2 T(r)}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \cdot \frac{\partial T(r)}{\partial r} \right)}{T(r)} \quad (11)$$

bei  $r = 0$

Das radiale Temperaturprofil  $T(r)$  hängt allerdings merklich von der Zeit ab. Für die Bestimmung von  $B^2$  wurde daher jeweils ein Zeitpunkt gewählt, der in etwa dem Auftreten des Temperaturmaximums bei der stufenweisen Einlagerung entspricht, mit dem Ziel, eine größtmögliche Genauigkeit für die speziell interessierende Maximaltemperatur zu erreichen.

Wird bei diesem Programm die Anzahl der Einlagerungsschritte hinreichend groß gewählt, so kann damit praktisch der Fall einer kontinuierlichen Einlagerung behandelt werden.