



KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH GmbH

Institut für Chemische Technologie

**Sicherheitstechnische Untersuchungen
und Störfallanalysen zu Beseitigungsmethoden
des aus dem Auflöserabgas
einer Wiederaufarbeitungsanlage für
LWR-Kernbrennstoffe abgetrennten Krypton-85**

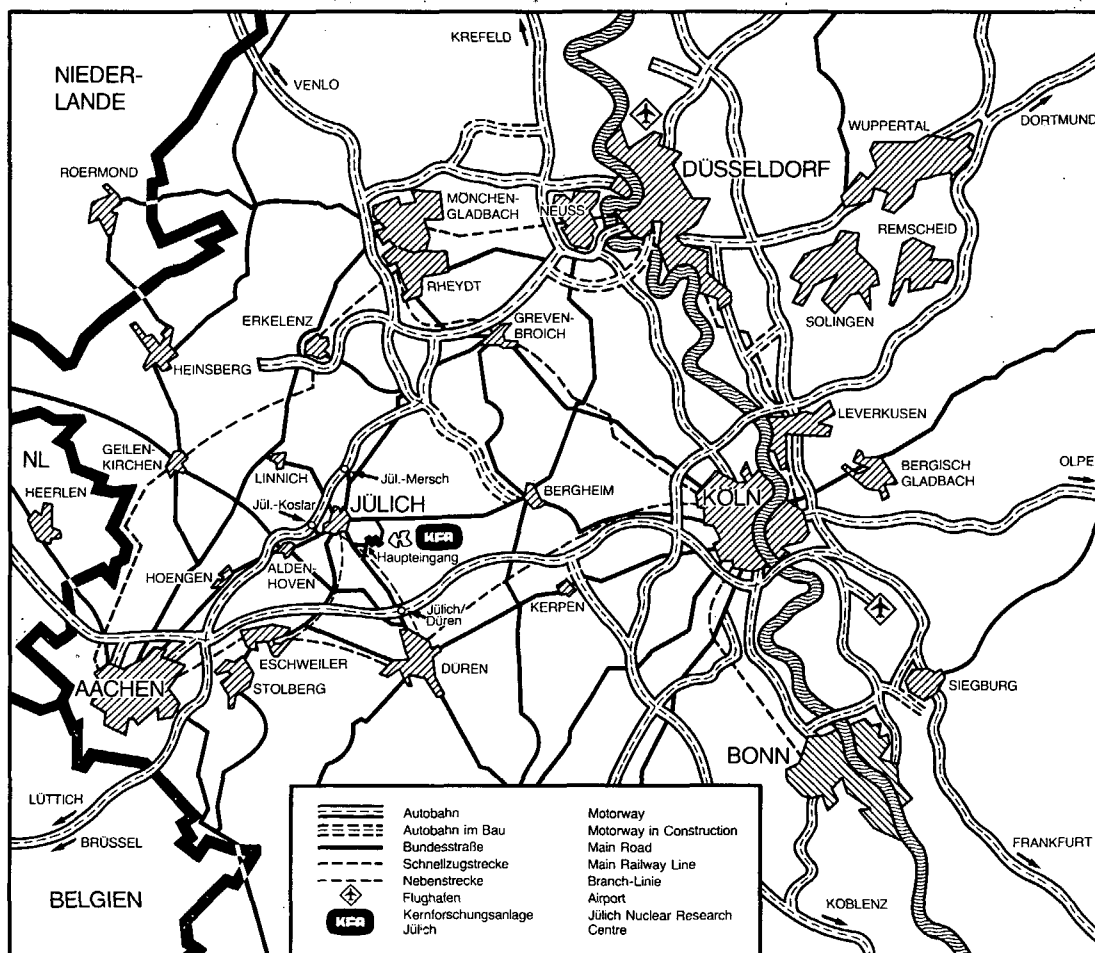
von

D. Niephaus

Jül - 1765

Februar 1982

ISSN 0366-0885



Als Manuskript gedruckt

Berichte der Kernforschungsanlage Jülich – Nr. 1765
 Institut für Chemische Technologie Jül-1765

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH
 Postfach 1913 · D-5170 Jülich (Bundesrepublik Deutschland)
 Telefon: 02461/610 · Telex: 833 556 kfa d

**Sicherheitstechnische Untersuchungen
und Störfallanalysen zu Beseitigungsmethoden
des aus dem Auflöserabgas
einer Wiederaufarbeitungsanlage für
LWR-Kernbrennstoffe abgetrennten Krypton-85**

von

D. Niephaus

D 82 (Diss. T.H. Aachen)

Die Arbeit wurde im Rahmen des Forschungsprogramms der Europäischen Atomgemeinschaft zur Bewirtschaftung und Lagerung radioaktiver Abfälle unterstützt und enthält Teile der unter den Verträgen Nr. 047-77-7 WASD und Nr. 051-78-1 WASD erarbeiteten Ergebnisse.

SAFETY-ENGINEERING STUDIES AND SAFETY ANALYSIS OF METHODS FOR STORAGE OR DISPOSAL OF KR-85 SEPARATED FROM THE DISSOLVER OFF-GAS OF A LWR FUEL REPROCESSING PLANT

by

Dieter Niephaus

ABSTRACT

In this report results of experimental and literature studies concerning safety, technical and radiological aspects of longterm storage and deep-sea disposal of cylinders filled with compressed Krypton-85 retained in a fuel reprocessing plant are presented.

As regards design features of the storage concept, the main results are:

- Corrosion experiments with austenitic steels postulated as candidate materials for cylinders and valves reveal neither any change in strength characteristic nor significant corrosion damage due to rubidium.
- Adsorption experiments with various adsorbents show, that a reduction of pressure load of a factor 2 seems to be reachable by filling charcoal into the cylinder.
- Safety analysis results in maximum dose commitments between 0.004 Sv and 26 Sv, the latter value being applicable to the hypothetical release of the entire storage contents (1296 cylinders).

As regards design features of the deep-sea disposal concept, the main results are:

- Theoretical evaluations of sink-position and -stability of the cylinders during sinking leads to the result that there is no chance for the release of Krypton-85 during pressure compensation.
- Flow experiments with a model cylinder results in drag-coefficients of about 0.7, so that the impact velocity to the sea bottom is evaluated to be 6 ms^{-1} .
- The behaviour of krypton-85 in the deep sea, examined within the scope of a literature survey, leads to the result that the formation of krypton hydrate may be considered probable under the given temperature and pressure conditions.
- Based on a thorough literature survey, a CrNiMo steel (DIN-no. 1.4439) is proposed as cylinder and valve material; this steel has proved successful during corrosion experiments in the North Sea.
- The conservative values for accident frequencies and causes incorporated into the safety analysis show that the hazards involved in the transport of gaseous krypton-85 can be kept within justifiable limits.

SICHERHEITSTECHNISCHE UNTERSUCHUNGEN UND STÖRFALL-
ANALYSEN ZU BESEITIGUNGSMETHODEN DES AUS DEM AUF-
LÖSERABGAS EINER WIEDERAUFARBEITUNGSANLAGE FÜR
LWR-KERNBRENNSTOFFE ABGETRENNTEN KRYPTON-85

von
Dieter Niephaus

KURZFASSUNG

Für die Sicherstellung des bei der Wiederaufarbeitung abgetrennten Kr-85 werden in der vorliegenden Arbeit zu möglichen Beseitigungsmethoden, nämlich der langfristigen oberirdischen Lagerung von mit Kr-85 gefüllten Druckgasflaschen und alternativ der Versenkung von mit Kr-85 gefüllten Druckgasflaschen ins Meer, experimentelle und theoretische Untersuchungsergebnisse zu Fragen der Sicherheit, der Sicherheitstechnik sowie der radiologischen Auswirkungen von Störfällen konzeptspezifisch vorgestellt.

Die wesentlichen Ergebnisse zur oberirdischen Lagerung sind:

- Korrosionsexperimente mit verschiedenen austenitischen Stählen, die als Flaschen- und Ventilwerkstoffe in Betracht kommen, zeigen, daß weder Änderungen in den Festigkeitskennwerten bzw. im Bruchverhalten noch signifikante Korrosionsschäden durch das Kr-85 Zerfallsprodukt Rubidium zu erwarten sind.
- Adsorptionsexperimente mit verschiedenen Adsorbentien zeigen, daß eine Reduzierung des Gasdruckes um den Faktor 2 erreichbar ist, wenn zusätzlich Aktivkohle eingefüllt wird.
- Eine Sicherheitsanalyse zeigt, daß bei Störfällen mit Dosisbelastungen zwischen 0,004 Sv und 26 Sv zu rechnen ist, wobei sich der letzte Werte auf die hypothetische Freisetzung des gesamten Lagerinhalts (1296 Druckgasflaschen) bezieht.

Die wesentlichen Ergebnisse zur Versenkung ins Meer sind:

- Überlegungen zur Stabilität der Sinklage einer Druckgasflasche zeigen, daß eine Freisetzung von Kr-85 während des Druckausgleichs beim Absinken nicht möglich ist.
- Mit dem an einem Druckgasflaschenmodell bei Strömungsversuchen ermittelten Widerstandsbeiwert von ca. 0,7 wird die Auftreffgeschwindigkeit einer Druckgasflasche auf den Meeresboden bei ca. 6 ms^{-1} liegen.
- Die Auswertung einschlägiger Literatur zum Verhalten von Krypton in Wasser rechtfertigt die Annahme, daß die Bildung von Kryptonhydrat durch das in die Druckgasflasche eingedrungene Wasser unter den gegebenen Temperatur- und Druckbedingungen in der Tiefsee wahrscheinlich ist.
- Aufgrund der Literatúrauswertung zur Meerwasserkorrosion wird ein austenitischer Cr-Ni-Mo-Stahl (W.-Nr. 1.4439) als Druckgasflaschen- und Ventilwerkstoff vorgeschlagen. Dieser Stahl zeigte nach mehrjähriger Auslagerung in der Nordsee keine Korrosionsschäden.
- Die bei der Sicherheitsanalyse anhand von statistischen Daten abgeschätzten Unfallhäufigkeiten ergeben, daß beim Überlandtransport für eine "schwere Beschädigung" der Ladung mit Erwartungswerten von 10^{-3} - 10^{-6} pro Jahr zu rechnen ist, wobei diese Werte nicht unbedingt die Typ B-Verpackung der Druckgasflaschen berücksichtigen. Unter diesem Aspekt sind dann mögliche Störfallfreisetzungen zu sehen, die wegen der bodennahen Ausbreitung zu über dem Grenzwert liegenden Dosiswerten führen.

INHALTSVERZEICHNIS

	Seite
1. EINLEITUNG	1
1.1 Situation der Kernenergie	1
1.2 Zielsetzung und Abgrenzung der Arbeit	3
2. KONZEPT DER LAGERUNG VON KR-85 IN EINEM OBER- IRDISCHEN GEBÄUDE	4
2.1 Basisdaten zur Konzeptauslagerung	4
2.2 Konzeptbeschreibung	5
2.2.1 Radioaktivitätsinventar und Wärme- erzeugung im Lager	5
2.2.2 Das Lagergebäude	6
2.2.3 Auslegung der Druckgasflasche und Betriebsbedingungen nach der Ein- lagerung	10
3. SICHERHEITSTECHNISCHE PROBLEME BEI DER LANGFRISTIGEN LAGERUNG	11
3.1 Radiologische Eigenschaften von Kr-85 und da- raus resultierende Strahlenbelastung des Flaschenwerkstoffs	11
3.2 Korrosion durch Umgebungsluft, Rubidium und dessen Verunreinigungen	13
3.2.1 Auswahl möglicher DGF-Werkstoffe	14
3.2.2 Rb-Korrosionsstandzeitversuche mit austenitischen Chrom-Nickel-Stählen	15
3.2.2.1 Versuchsbedingungen und -durchführung	15
3.2.2.2 Nachuntersuchungen zur Rb-Korrosion	21
3.2.3 Ergebnisse der Nachuntersuchungen	22
3.2.3.1 Werkstoff 1.4306	22
3.2.3.2 Werkstoff 1.4541	29
3.2.3.3 Werkstoff 1.4429	33
3.2.3.4 Werkstoff 1.4439	36
3.2.3.5 Schweißnähte	37
3.2.3.6 Sauerstoff- und Schwermetallgehalt im Rubidium nach dem 3000 h-Stand- zeitversuch	37
3.2.4 Diskussion der Ergebnisse in Hinblick auf Werkstoffauswahl und langfristige Standzeit	39
3.3 Krypton-Adsorption zur Herabsetzung des Gas- druckes in zu lagernden Druckgasflaschen	40
3.3.1 Adsorptionsexperimente bei hohen Temperaturen und Drücken	41

Seite

3.3.2	Grenzflächenüberschuß-Isothermen bei hohen Drücken	42
3.3.3	Ergebnisse der Adsorptionsexperimente	42
3.3.3.1	Krypton/Graphon	42
3.3.3.2	Krypton/Molekularsieb	45
3.3.3.3	Krypton/Aktivkohle	45
3.3.4	Vergleich der untersuchten Adsorbentien	50
3.3.5	Abschätzung der erreichbaren Druckabsenkung durch Adsorption	52
3.3.5.1	Temperatur in der Adsorbensschüttung	56
3.3.5.2	Druckabsenkungsfaktor	58
3.3.6	Vor- und Nachteile der adsorptiven DGF-Lagerung	62
4.	SICHERHEITSUNTERSUCHUNGEN - STÖRFALLANALYSE	63
4.1	Methodik	63
4.2	Inventare und Barrieren	64
4.2.1	Beschreibung der zu betrachtenden Radioaktivitätsinventare	64
4.2.2	Barrieren gegen die Freisetzung von Kr-85	67
4.2.2.1	Barrierenschema	67
4.2.2.2	Barrierenbeschreibung	67
4.2.2.3	Barrierenzustände und damit verbundene Freisetzungsbruchteile	73
4.3	Freisetzungs- und Fehlerbaumanalyse	77
4.3.1	Symbolik	78
4.3.2	Freisetzungsbaum für die Betriebsphase	79
4.3.3	Fehlerbaumanalyse für die Betriebsphase	84
4.3.3.1	Wahrscheinlichkeit und Ausfallrate	84
4.3.3.2	Barrierenzustände und Häufigkeitsdichten	87
4.3.4	Freisetzungsbaum für die Lagerphase	105
4.3.5	Fehlerbaumanalyse für die Lagerphase	107
4.4	Auswahl angenommener Störfälle und damit verbundene Freisetzungsmengen	108
4.5	Atmosphärische Ausbreitung und Dosisbelastung	110

	Seite
5. KONZEPT DER VERSENKUNG VON KRYPTON-85 IN DAS MEER	114
5.1 Basisdaten zur Konzeptauslegung	114
5.2 Konzeptbeschreibung	114
5.2.1 Verfahrensablauf bei Versenkungs- aktionen	114
5.2.2 Auslegungsmerkmale wichtiger Komponenten	117
5.2.2.1 Druckgasflasche und Ventil	117
5.2.2.2 Transportbehälter	119
5.2.2.3 Abschirmbüchse	120
6. SICHERHEITSTECHNISCHE PROBLEME BEI DER VERSENKUNG	121
6.1 Anforderung an den Flaschen- und Ventil- werkstoff	121
6.2 Korrosionsverhalten von hochlegierten auste- nitischen Stählen in Meerwasser	122
6.3 Korrosionsbeeinflussende Faktoren	122
6.3.1 Angriffsmittelseitige Parameter	123
6.3.2 Werkstoffseitige Parameter	125
6.4 Auswahl eines geeigneten Flaschen- und Ventilwerkstoffs	129
6.5 Lage und Geschwindigkeit der Druckgasflasche während ihres Sinkens auf dem Meeresboden	134
6.6 Verhalten des Krypton-85 in der Tiefsee	139
6.6.1 Krypton-Hydratbildung	139
6.6.2 Ausbreitung des Kryptons in der Tiefsee	141
7. SICHERHEITSUNTERSUCHUNGEN - STÖRFALLANALYSE	143
7.1 Methodik	143
7.2 Barrierenbeschreibung	143
7.3 Unfallhäufigkeiten und -ursachen	145
7.3.1 Straßenverkehr	145
7.3.2 Schienenverkehr	147
7.3.3 Schiffsverkehr	149
7.3.4 Ergebnisse für das Transportkonzept	150
7.4 Unfallszenarien	151
7.5 Atmosphärische Ausbreitung und Dosisbelastung	153
8. ZUSAMMENFASSUNG	157

9. VERGLEICHENDE BEWERTUNG UNTER DEM ASPEKT VON
SICHERHEIT UND KOSTEN

Seite

162

NOMENKLATUR

163

LITERATUR

170

1. EINLEITUNG

1.1 Situation der Kernenergie

Die Frage der Entsorgung von Kernkraftwerken nimmt inzwischen in der öffentlichen Diskussion eine zentrale Stellung ein.

Angesichts der Entsorgungsproblematik fordern Kernenergiegegner einen sofortigen Verzicht auf den weiteren Ausbau der Kernenergienutzung. Sie übersehen dabei, daß damit die Probleme der Entsorgung bereits installierter Kernkraftwerke keineswegs gelöst werden und darüberhinaus ein in Zukunft notwendiger Beitrag zur Energieversorgung nicht mehr zur Verfügung stände.

Befürworter dagegen plädieren für eine fortschreitende Kernenergienutzung, sehen aber in zunehmendem Maße die Notwendigkeit eines forcierten Ausbaus als nicht mehr gegeben an. Dies aufgrund der Tatsache, daß die bisherigen Prognosen des zukünftigen Energiebedarfs viel zu optimistisch waren.

Wurden noch bis Mitte der 70er Jahre Kernkraftwerkkapazitäten von 80 GW_e - 100 GW_e für das Jahr 1990 als notwendig prognostiziert, so wurden die Schätzungen von Jahr zu Jahr reduziert und mit der bereits für Mitte der 80er Jahre als notwendig prognostizierten Kapazität von 40 GW_e - 50 GW_e ist aus heutiger Sicht wahrscheinlich nicht vor der Jahrtausendwende zu rechnen.

Unter diesem Aspekt besteht für die Errichtung einer großen Wiederaufarbeitungsanlage (WAA) für eine Kernkraftwerkkapazität von 50 GW_e kein Zeitdruck mehr. In einer Stellungnahme der Reaktor-Sicherheitskommission (RSK) und der Strahlenschutzkommission (SSK) vom 20.10.1977 wird die Überzeugung vertreten, daß die erforderlichen Kenntnisse und technischen Mittel vorhanden sind oder rechtzeitig beschafft werden können, um eine derartig große Wiederaufarbeitungsanlage (WAA) sicherheitstechnisch zu realisieren /1/. Aufgeworfene Fragen und Probleme stellen dabei die Realisierung nicht grundsätzlich infrage, sondern können durch gezielte Forschungs- und Entwicklungs-(FE)-Arbeiten gelöst werden. Die Ergebnisse der FE-Arbeiten können somit entsprechend einer schrittweisen Planung der WAA projektbegleitend einfließen. Zu den angesprochenen Fragen gehört auch

das Problem der Rückhaltung und Sicherstellung von Krypton-85.

Während die kurzlebigen Isotope der im Brennstoff eines Kernreaktors erzeugten Spaltedelgase zum Zeitpunkt der Wiederaufarbeitung der Brennelemente (BE) wegen der voraussichtlich mehrjährigen Zwischenlagerung fast vollständig zerfallen sind, ist als Radionuklid das relativ langlebige Isotop Krypton-85

($T_{1/2} = 10,76 \text{ a}$) nach der chemischen Auflösung der BE als Bestandteil des Auflöserabgases vorhanden.

Die vollständige Freisetzung der anfallenden Kr-85-Mengen führt zu einer meßbaren lokalen Strahlenbelastung in der Umgebung der Wiederaufarbeitungsanlage. Bei der Emission über einen hohen Schornstein und wegen der raschen Ausbreitung und Verdünnung des Edelgases bleibt die resultierende Strahlenexposition weit unterhalb der zulässigen Grenzwerte. Bedenkt man aber, daß andere Industrienationen ebenfalls die Option zur Wiederaufarbeitung haben bzw. schon Wiederaufarbeitungsanlagen betreiben, so ist dann neben der lokalen Strahlenbelastung wegen der weltweiten Akkumulation von Kr-85 in der Atmosphäre eine zunehmende globale Strahlenbelastung zu erwarten.

Der grundlegenden Forderung des Strahlenschutzes, die Strahlenbelastung der Bevölkerung so gering wie möglich zu halten, muß deshalb international Rechnung getragen werden. Zur Zeit wird dies durch die in den USA vom Umweltschutzamt erlassenen gesetzlichen Regelungen /2/ und durch die in der Bundesrepublik Deutschland von der Strahlenschutzkommission (SSK) ausgesprochene Empfehlung /3/ zur Kr-85 Rückhaltung, berücksichtigt. Entsprechende Regelungen bzw. Empfehlungen werden zur Zeit im Bereich der Europäischen Gemeinschaft (EG) diskutiert.

Vor diesem Hintergrund wird international an alternativen Verfahren und Konzepten zur Abtrennung und Sicherstellung von Kr-85 gearbeitet, wobei zum Teil schon ein fortgeschrittenes Entwicklungsstadium erreicht ist.

Hier in der Bundesrepublik Deutschland lautet die oben ausgesprochene Empfehlung der SSK, daß für eine große WAA ein Maximalabgabewert von $3,7 \cdot 10^{16} \text{ Bq}$ (10^6 Ci) als Planungsrichtwert angestrebt werden sollte. Um die Einhaltung dieses Wertes zu erreichen, müssen Abtrennverfahren entwickelt werden, die einen

Dekontaminationsfaktor (DF) ≥ 100 erreichen. Als möglicherweise risikoarme Beseitigungsmethoden für das abgetrennte Kr-85 werden entweder die langfristige Lagerung in Druckgasflaschen (DGF) oder alternativ die Versenkung von mit Kr-85 gefüllten DGF ins Meer genannt.

1.2 Zielsetzung und Abgrenzung der Arbeit

Der Vorzug der beiden angesprochenen Verfahren liegt darin, daß im konventionellen Bereich das Abfüllen, der Transport und die Lagerung von Gasen in DGF Stand der Technik ist. Ein sofort im technischen Maßstab verfügbares Verfahren kann damit gezielt auf die spezielle Problematik hin weiter entwickelt werden.

Vor allem zu nennen sind:

- die überlicherweise erhöhten Sicherheitsanforderungen in der Kerntechnik,
- die Selbsterhitzung des Gases aufgrund des radioaktiven Zerfalls,
- die dadurch erhöhten Temperaturbelastungen des DGF-Werkstoffs sowie
- die Auswahl eines geeigneten DGF-Werkstoffs, der wegen der langen Einsatzdauer eine gute Korrosionsbeständigkeit aufweisen muß.

Unter diesen Gesichtspunkten wurden im Institut für Chemische Technologie der KFA Jülich sowohl für die Sicherstellung von Kr-85 in überwachten oberirdischen Lagerräumen als auch für die Versenkung von Kr-85 in das Meer technische Konzepte entwickelt /4/.

Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, durch experimentelle Untersuchungen und durch Auswertung einschlägiger Literatur zur Klärung sicherheitstechnischer Probleme beizutragen sowie durch Störfallbetrachtungen die bei dem jeweiligen Konzept zu erwartenden Gefährdungen der Umwelt aufzuzeigen. Dabei werden die Störfallauswirkungen unabhängig von der Eintrittswahrscheinlichkeit betrachteter Störfälle gesehen, d. h. es wird keine quantitative Risikobewertung im Sinne der Probabilistik angestrebt. Um

dennoch eine Vorstellung über die Häufigkeit des Eintritts solcher Störfälle zu vermitteln, werden, soweit statistische Daten vorliegen, Eintrittswahrscheinlichkeiten für Störfälle abgeschätzt.

Die Klärung sicherheitsrelevanter Fragen zusammen mit der Abschätzung von Störfallauswirkungen soll dann zu einer sicherheitstechnischen Beurteilung und Bewertung führen, die als eine Entscheidungshilfe für die Realisierung eines der beiden Konzepte dienen kann.

Vom Ablauf her werden zuerst die Untersuchungen im Zusammenhang mit dem Konzept zur oberirdischen Lagerung, dann die Untersuchungen zum Konzept der Meeresversenkung und abschließend die vergleichende Bewertung der beiden Konzepte abgehandelt. Ausgangspunkt ist dabei jeweils eine kurze Darstellung der wesentlichen Merkmale der vorliegenden Konzepte.

2. KONZEPT DER LAGERUNG VON KR-85 IN EINEM OBER- IRDISCHEN GEBÄUDE (nach /4/)

2.1 Basisdaten zur Konzeptauslegung

Ausgangspunkt für die Entwicklung des Konzepts war die von der SSK empfohlene Rückhaltung und Sicherstellung des in einer zukünftigen WAA für LWR-BE anfallenden Kr-85. Die geplante Wiederaufarbeitungskapazität wurde mit 1400 t Uran pro Jahr veranschlagt und soll die Entsorgung einer installierten Kraftwerkleistung von 50 GW_e sicherstellen. Als Betriebszeit der WAA sind mindestens 15 Jahre vorgesehen.

Bei der Auflösung der BE im Head-End der Anlage werden die Spaltedelgase Xenon und Krypton quantitativ mit dem Auflöserabgas frei. Wegen der beim Spaltprozeß im Brennstoff wesentlich höheren Spaltausbeute an Xenon besteht das Spaltedelgasgemisch zu ca. 94 % aus Xenon-Isotopen und nur zu ca. 6 % aus Krypton-Isotopen. Während die Radioaktivität des Xenon zum Zeitpunkt der Wiederaufarbeitung bereits abgeklungen ist, beträgt der Anteil des Radioisotops Kr-85 ungefähr 7 %.

Neben der Abtrennung der Edelgase vom Auflöserabgas wird die weitere Trennung der beiden Edelgase voneinander zur Herabsetzung der Lager- und Transportvolumina mittels Tieftemperaturrektifikation angestrebt. Nach diesem Verfahrensschritt ergeben sich nach dem derzeitigen Entwicklungsstand unter Vernachlässigung der Verunreinigungen folgende auf die Menge des wiederaufzuarbeitenden Urans bezogene Werte für das zu lagernde Gasgemisch.

Tabelle 1: Zur Lagerung anfallende Gasmengen pro Tonne aufzuarbeitenden Urans

	<u>Masse</u> g/tU	<u>rel. Molmasse</u> g/mol	<u>Molzahl</u> mol/tU	<u>Normvolumen</u> l/tU
Kr-85	30,9	85,00	0,364	8,15
Kr _{ges.}	407,3	84,98	4,793	107,39
Xe	71,5	134,18	0,533	11,94
Kr+Xe	478,8	-	5,326	119,33

2.2 Konzeptbeschreibung

2.2.1 Radioaktivitätsinventar und Wärmeerzeugung im Lager

Pro Jahr müssen ca. 7,5 kmol des in Tabelle 1 spezifizierten Gasgemisches mit einer Kr-85 Aktivität von ca. $6,2 \cdot 10^{17}$ Bq ($16,8 \cdot 10^6$ Ci) sichergestellt werden. Bei einem vorgesehenen Flascheninventar von $7,4 \cdot 10^{15}$ Bq ($2 \cdot 10^5$ Ci) sind ungefähr 85 50l-DGF notwendig, die pro Jahr gefüllt und eingelagert werden müssen.

Während der 15-jährigen Betriebszeit der WAA wächst das Radioaktivitätsinventar im Lager stetig an und erreicht unter Berücksichtigung des gleichzeitigen Zerfalls einen Maximalwert von ca. $6 \cdot 10^{18}$ Bq ($163 \cdot 10^6$ Ci). Dies entspricht einer Wärmeleistung

von etwa 255 kW. Danach klingt sowohl die Radioaktivität als auch die Wärmeenerzeugung entsprechend dem radioaktiven Zerfallsgesetz stetig ab. Etwa 100 Jahre nach dem Einlagerungsende ist die Radioaktivität mit $9,6 \cdot 10^{15}$ Bq unter dem empfohlenen jährlichen Maximalabgabewert $3,7 \cdot 10^{16}$ Bq abgeklungen. Prinzipiell könnte jetzt die Freisetzung des Lagerinventars in die Atmosphäre in Betracht gezogen werden. Andererseits ist zu überlegen, ob Krypton und Xenon als wichtige und teure Gebrauchsgüter nicht zweckmäßiger einer Verwertung zugeführt werden können.

2.2.2 Das Lagergebäude

Das Kryptonlager bildet einen geschlossenen Gebäudeblock, der gegen Einwirkungen von außen (EVA) ausgelegt ist. In zwei Lagerzonen sind jeweils 3 Lagerzellen angeordnet. Jede Lagerzelle stellt für sich einen von der Umwelt abgeschlossenen Raum dar, in dem ein Lagergestell mit jeweils 54 Lagerschächten eingebaut ist. Jeder Lagerschacht besitzt vier vertikale Lagerpositionen und ist über Abschlußstopfen vom Beschickungsraum zugänglich (Abb. 1).

Das Gebäude ist als Kontrollbereich ausgestaltet und wird zwangsbelüftet. Die Zwangsbelüftung dient allerdings nicht zur Abfuhr der in den Lagerzellen erzeugten Wärme, sondern zur Aufrechterhaltung unterschiedlicher Druckzonen. Es sind drei Druckzonen (DZ) vorgesehen. In einer schematischen Darstellung (Abb. 2) ist die Einteilung der Gebäuderäume in die drei Druckzonen sowie die Luftführung der Zwangsbelüftung zu erkennen.

Jede der in einem Transportgestell arretierten DGF wird von der Füllstation in einem Einzeltransportbehälter (Abb. 3) zum Lagergebäude befördert.

In der Anlieferungszone wird die Einheit "Transportgestell/DGF" dem Transportbehälter mittels Kran entnommen und zur Eingangskontrolle in die Inspektionszone gehoben. Nach der Inspektion erfolgt der Weitertransport und die Einlagerung in einen Lagerschacht.

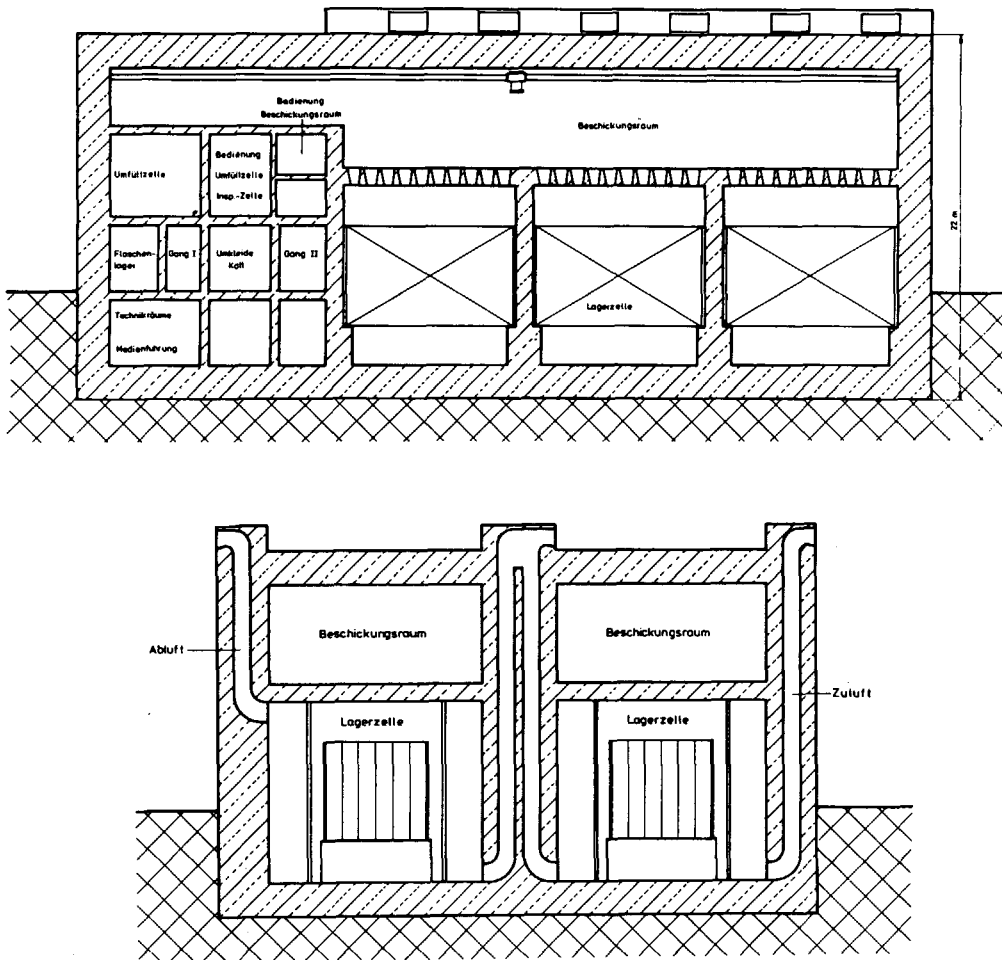


Abb.1: Längs- und Querschnitt des Lagergebäudeentwurfs

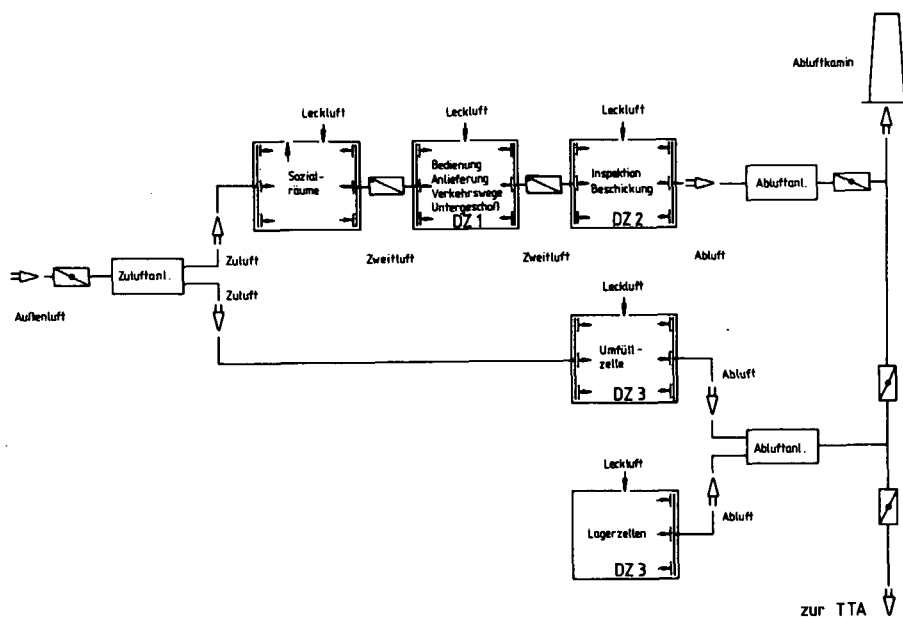


Abb.2: Druckzonen (DZ) und Luftführung im Lagergebäude (schematisch)

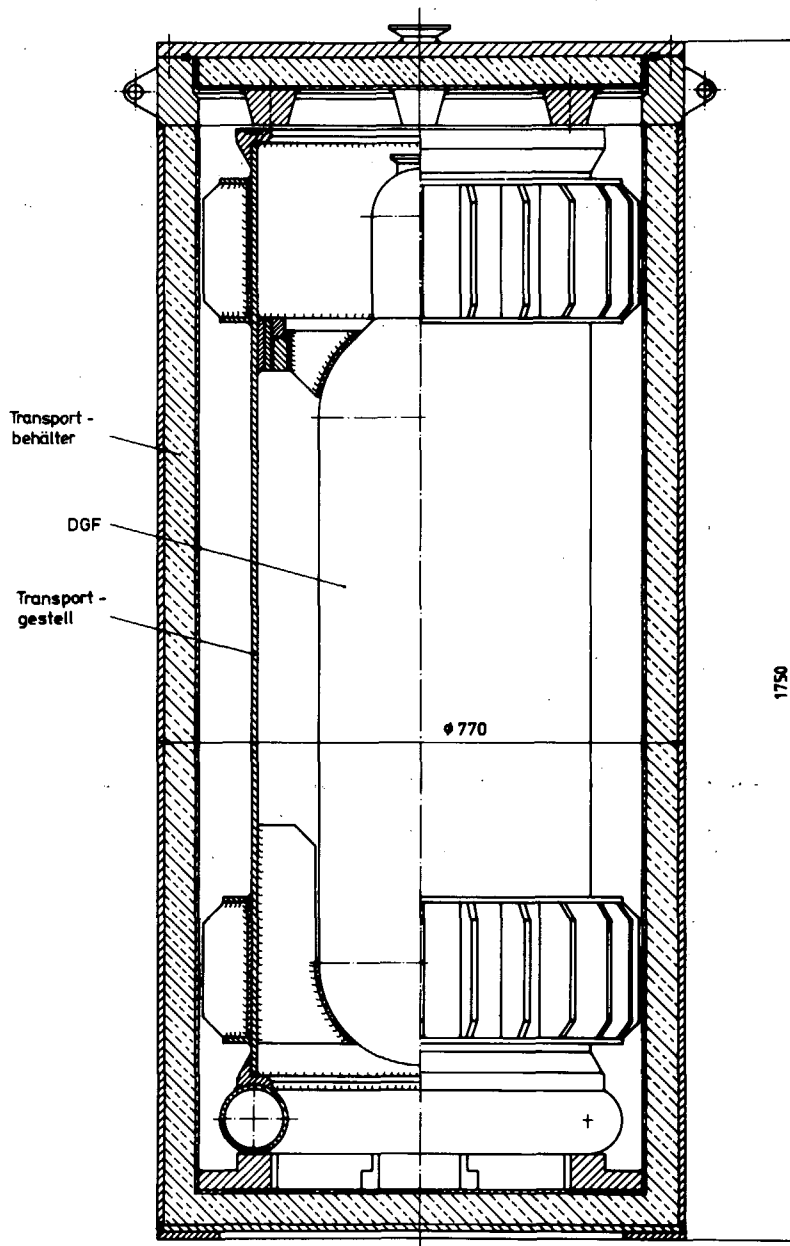


Abb. 3: Behälterereinheit für den innerbetrieblichen Transport einer DGF von der Füllstation zum Lagergebäude

Sollte jedoch festgestellt werden, daß ein DGF undicht ist, wird sie von der Inspektions- in die Umfüllzelle transportiert und umgefüllt.

Jeder Lagerschacht besitzt eine Meßeinrichtung zur Überwachung der Radioaktivität. Aufgrund einer maximal zulässigen Leckrate des Ventils und unter Annahme eines einmaligen täglichen Luftwechsels

einer Lagerzelle im Normalbetrieb, liegt die abgeschätzte Radioaktivitätskonzentration in der Zellenluft mit ca. $5 \cdot 10^5 \text{ Bq m}^{-3}$ rund 3 Zehnerpotenzen über der Nachweisgrenze von ca. $6,7 \cdot 10^2 \text{ Bq m}^{-3}$ /4/. Höhere Radioaktivitätskonzentrationen können also sicher aufgelöst, d. h. größere Leckagen festgestellt werden. Die undichte DGF wird durch Detektieren aller im betroffenen Schacht befindlichen DGF ausfindig gemacht. Dazu werden diese einzeln aus dem Lagerschacht in die Inspektionszelle transportiert und überprüft. Die als undicht erkannte DGF wird wiederum in die Umfüllzelle überführt.

Die Wärmeabfuhr aus den Lagerzellen erfolgt indirekt durch Naturkonvektion. Die von den DGF abgegebene Wärme erzeugt in den Lagerzellen einen zirkulierenden Luftstrom, der die aufgenommene Wärme über eine Wärmetauscherwand an die Umgebungsluft abgibt (Abb. 4).

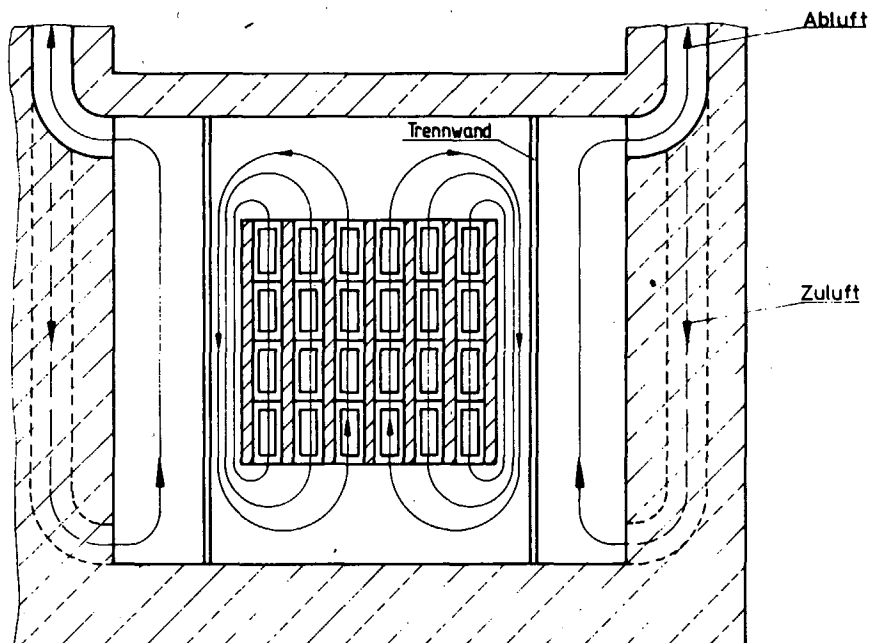


Abb. 4: Schematische Darstellung der Luftkonvektion in einer Lagerzelle

Ebenfalls durch Naturkonvektion wird die Umgebungsluft über Zuluftschächte an die Wärmetauschwand herangeführt und über Ab-

luftschächte wieder an die Umgebung abgegeben. Die Öffnungen der Schächte zur Umgebung hin sind so angeordnet und geschützt, daß bei einem Flugzeugabsturz (EVA) kein Treibstoff in die Lagerzellen eindringen kann.

2.2.3 Auslegung der Druckgasflasche und Betriebsbedingungen nach der Einlagerung

Als Kryptonbehälter wurde eine zylindrische DGF gewählt, deren Auslegungsmerkmale aus Tabelle 2 zu ersehen sind.

Tabelle 2: Auslegungsmerkmale der DGF

<u>Druckgasflasche</u>	
Nennvolumen	50 l
Länge (ohne Ventil)	1100 mm
Außendurchmesser	300 mm
Wandstärke	23 mm*
Gewicht (ohne Ventil)	1660 N
Werkstoff	austenitischer Cr-Ni-(Mo)-Stahl
zul. Betriebsdruck	75 bar (bei 200°C)
zul. Betriebstemperatur	200°C
zul. Füllmenge	
Kr-85	6,06 mol
Kr _{ges}	79,75 mol
Xe	8,87 mol
	88,62 mol
Wärmeleistung	314 W (bei zul. Füllmenge)

*Maximale Wandstärke, da die Berechnung mit der niedrigsten $R_{pO,2}$ -Grenze (1.4306) der ausgewählten Werkstoffe erfolgte

Als mögliche DGF- und Ventilwerkstoffe wurden austenitische Chrom-Nickel-(Molybdän)-Stähle ausgewählt, die in Kapitel 3.2 näher spezifiziert und auf ihr Korrosionsverhalten bezüglich des Zerfallsprodukts Rubidium-85 untersucht werden.

Jede DGF enthält zum Zeitpunkt ihrer Einlagerung $7,4 \cdot 10^{15}$ Bq ($2 \cdot 10^5$ Ci) Krypton-85. Das entspricht einer Wärmeleistung von ca. 314 Watt.

Bei vorgesehener Einlagerung von jeweils vier senkrecht übereinanderstehenden DGF in einem Lagerschacht und einer zellenweisen Beschickung des Lagers erreicht die Wärmeerzeugung nach vollständiger Belegung (216 DGF) einer Lagerzelle den Maximalwert von ca. 63 kW.

Für diesen Zeitpunkt wurden Wärmeberechnungen durchgeführt, die zeigen, daß die indirekte Kühlung der DGF in einer Lagerzelle mittels Naturkonvektion möglich ist /4/.

Die Wandtemperaturen der DGF erreichen danach im Lagerschacht Werte von $\theta_{F,1} \approx 105^\circ\text{C}$ in der untersten und Werte von $\theta_{F,4} \approx 125^\circ\text{C}$ in der obersten DGF-Lage. Die mittleren Gastemperaturen liegen dabei ca. 16°C über den Wandtemperaturen, und es ergeben sich Betriebsdrücke zwischen ca. 58 bar (unterste Lage) und ca. 61 bar (oberste Lage). Damit liegen sowohl die Betriebstemperaturen als auch die -drücke in den ungünstigen oberen Positionen der Lagerschächte unterhalb der zulässigen Werte, obwohl den Rechnungen die Annahme einer Umgebungslufttemperatur von $\theta_u = 38^\circ\text{C}$ zugrunde liegt.

3. SICHERHEITSTECHNISCHE PROBLEME BEI DER LANGFRISTIGEN LAGERUNG

3.1 Radiologische Eigenschaften von Kr-85 und daraus resultierende Strahlenbelastung des Flaschenwerkstoffs

Krypton-85 zerfällt mit einer Wahrscheinlichkeit von 99,57 % durch β^- -Emission in das stabile Alkalimetall Rubidium-85. Die maximale Zerfallsenergie beträgt $E_{\beta_{\max}} = 0,687$ MeV, die mittlere Energie $\bar{E}_{\beta_{\text{eff}}} = 0,266$ MeV. Mit einer Wahrscheinlichkeit von 0,43 % erfolgt der Zerfall durch β^- -Emission ($E_{\beta_{\max}} = 0,173$ MeV, $\bar{E}_{\beta_{\text{eff}}} = 0,0475$ MeV) in einen angeregten Zustand von Rb-85, der dann weiter unter γ -Emission mit $E_\gamma = 0,514$ MeV in den Grundzustand von Rb-85 übergeht.

Die β^- -Teilchen werden durch Ionisations- und Anregungsprozesse im Flaschenwerkstoff absorbiert, wobei die maximale Reichweite ca. 0,3 mm beträgt. Die Wechselwirkung der γ -Quanten erfolgt durch Compton- und Photoeffekte. Die Ionisation als mögliche Schädigung des Werkstoffs kann ausgeschlossen werden. Die hohe Beweglichkeit und große Zahl der freien Valenzelektronen in Metallen führt schnell (10^{-10} s) zur Ausheilung (Rekombination) der Schäden.

Auch Schäden durch Anregungsprozesse können ausgeschlossen werden. Sowohl β^- -Teilchen als auch γ -Quanten regen im Werkstoff durch Wechselwirkungen Hüllenelektronen an, d. h. diese werden auf ein höheres Energieniveau gehoben. Beim Zurückfallen auf ihr Ursprungsniveau geben sie ihre Anregungsenergie in Form von Röntgenstrahlung wieder ab.

Bei allen Vorgängen handelt es sich um Wechselwirkungen mit der Atomhülle, d. h. Gitterdefekte durch Herausschlagen von Atomen aus dem Gitterverband werden nicht induziert. Dazu sind direkte Wechselwirkungen mit dem Kern und außerdem ausreichende Energien der stoßenden Teilchen notwendig. Bei leichten Kernen (Atomgewicht < 90) sind β^- -Energien > 1 MeV erforderlich, d. h. aber, die Energie der β^- -Teilchen aus dem Kr-85 Zerfall reicht nicht aus, um Gitterdefekte zu erzeugen.

Insgesamt kann damit eine Schädigung des Werkstoffs durch die langfristige Strahlenbelastung ausgeschlossen werden, denn auch eine Aktivierung des Werkstoffs über den Kernphotoeffekt ist nicht möglich. Dazu wären γ -Energien von 7 MeV - 8 MeV notwendig.

Während also die β^- -Teilchen in einer sehr dünnen Schicht an der Innenwand der DGF absorbiert werden und nicht als Strahlung nach außen dringen können, müssen bei der Handhabung und Lagerung der DGF Strahlenschutzvorkehrungen getroffen werden, um den geschwächten γ -Quantenfluß und den durch Wechselwirkung entstehenden Röntgenstrahlenfluß weitestgehend abzuschirmen.

Beim Transport wird das durch die Bleiabschirmung des Transportbehälters erreicht, bei der Lagerung übernimmt der Gebäudebeton die Abschirmfunktion.

3.2 Korrosion durch Umgebungsluft, Rubidium und dessen Verunreinigungen

Wichtige Kriterien für die Auswahl eines geeigneten DGF- und Ventilwerkstoffes sind neben allgemein guten mechanischen und technologischen Eigenschaften vor allem die Beständigkeit des Werkstoffes gegenüber atmosphärischer Korrosion (Kühlluft im Lager) und Flüssig-Metall-Korrosion (Rubidium und Verunreinigungen).

Unter diesen Gesichtspunkten sind nichtrostende austenitische Chrom-Nickel-(Molybdän)-Stähle, die vorwiegend im Bereich der chemischen und pharmazeutischen Industrie, der Reaktortechnik, der Architektur etc. eingesetzt werden, als geeignet anzusehen. Die Zusammensetzung dieser Stähle basiert auf Grundgehalten von 16,5 % - 25 % Chrom und 8 % - 25 % Nickel, wobei das Grundlegierungselement Chrom bei Gehalten über 13 % den Stahl gegenüber vielen chemischen Reagenzien passiviert. Allgemein ist die Beständigkeit gegen atmosphärische Korrosion (Industrie-, See-, Stadt- und Landluft) gegeben, wobei aufgrund von langjährigen Betriebserfahrungen seitens der Verwender für den einen oder anderen Stahl Einschränkungen gemacht werden müssen. Auch die Hersteller geben Empfehlungen für welchen Einsatz die jeweiligen Stähle am besten geeignet sind. Beachtet man die entsprechenden Einschränkungen bzw. Empfehlungen, die in der Korrosionsliteratur bzw. in Werkstoffblättern gegeben werden, so findet man Stähle, die gegenüber atmosphärischer Korrosion beständig sind. Bei der Kühlluft im Lager handelt es sich um aufbereitete Umgebungsluft. Starke Luftverschmutzungen können somit ausgeschlossen werden. Weiterhin fehlt jeglicher Niederschlag. Beides fördert auch bei nichtrostenden Cr-Ni-Stählen die Neigung zur Lokalkorrosion. Wählt man nun Stähle, die in natürlicher Umgebung auch nach langjährigem Einsatz keine oder nur geringfügige Lokalkorrosion zeigen, so läßt sich selbst für einen Zeitraum von ca. 115 Jahren ein die Sicherheit mindernder Korrosionsangriff durch die Kühlluft ausschließen.

Dagegen ist über die Korrosion durch Rubidium verhältnismäßig wenig bekannt. Erst im Zusammenhang mit der Krypton-Abtrennung und Lagerung wurde dieses Problem aktuell und initiierte

entsprechende Korrosionsuntersuchungen /5/, /6/, /7/. Sie sind teilweise noch nicht abgeschlossen. In die Untersuchungen wurden sehr unterschiedliche Werkstoffmaterialien einbezogen. Im Rahmen dieser Arbeit werden aus den dargelegten Gründen nur austenitische Stähle hinsichtlich ihres Korrosionsverhaltens gegenüber Rubidium untersucht.

3.2.1 Auswahl möglicher DGF-Werkstoffe

Aus dem breiten Angebot an austenitischen Chrom-Nickel-Stählen wurden für Rb-Korrosionsversuche die in Tabelle 3 aufgeführten Stähle ausgewählt.

Tabelle 3: Stähle für Rb-Korrosionsstandzeitversuche

Werkstoff-Nr.	Kurzname	Haupteinsatzgebiete (Hersteller-Empfehlung)	maximale ohne Einschränkung zugelassene Einsatztemperatur
1.4306	X2CrNi 18 9	chem. Apparatebau, Reaktortechnik	350°C
1.4541	X10CrNiTi 18 9	chem. Apparatebau, Architektur, Medizin, Reaktortechnik	400°C
1.4429	X2CrNiMoN 18 14	säurebeständige Apparaturen, Harnstoffanlagen, Druckbehälter, Tieftemperaturanlagen	350°C
1.4439	X3CrNiMoN 17 13 5	Schiffsbau, Meerwasserentsalzungsanlagen, Druckbehälterbau, Aufbereitungsanlagen radioaktiver Abfallprodukte	400°C

Alle aufgeführten Stähle bieten aufgrund langjähriger Betriebserfahrungen eine sichere Gewähr, daß unter lagerspezifischen Be-

dingungen atmosphärische Korrosion nicht auftritt.

In Tabelle 4 sind die Stähle hinsichtlich ihrer chemischen Zusammensetzung näher spezifiziert.

Tabelle 4: Chemische Zusammensetzung der Stähle

WERKSTOFF-NR.	LEGIERUNGSBESTANDTEILE IN %							
	C	Si	Mn	Cr	Ni	Ti	Mo	N
1.4306	≤0,03	≤1,0	≤2,0	$\frac{17}{20}$	$\frac{10}{12,5}$	-	-	-
1.4541	≤0,1	≤1,0	≤2,0	$\frac{17}{19}$	$\frac{9}{11,5}$	5x%C	-	-
1.4429	≤0,03	≤1,0	≤2,0	$\frac{16,5}{18,5}$	$\frac{12,5}{15}$	-	$\frac{2,5}{3}$	$\frac{0,15}{0,25}$
1.4439	≤0,04	≤1,0	≤2,0	$\frac{16,5}{18,5}$	$\frac{12,5}{14,5}$	-	$\frac{4,0}{5,0}$	$\frac{0,1}{0,2}$

Im Hinblick auf die Korrosionsbeständigkeit gegenüber Rubidium unter den für die Lagerung von Kr in DGF spezifischen Bedingungen wurden verschiedene Versuchsserien durchgeführt.

3.2.2 Rb-Korrosionsstandzeitversuche mit austenitischen Chrom-Nickel-Stählen

3.2.2.1 Versuchsbedingungen und -durchführung

In einer ersten Versuchsserie waren jeweils 2 gleiche Stahlproben mit unterschiedlicher Oberflächengüte (poliert und geschliffen, gebeizt) der ersten 3 in Tabelle 4 aufgeführten Stähle sowie Schweißproben der Stahlpaarungen 1.4541/1.4306, 1.4306/1.4429 und 1.4429/1.4541 dem flüssigen Rubidium für 1000 h bzw. 3500 h ausgesetzt. Die Proben wurden dabei zusammen mit dem Rubidium in die in Abb. 5 dargestellten Hochdruckautoklaven (Werkstoff 1.4571) jeweils ohne aufgeprägte Zugspannung eingesetzt. Durch Halterungen waren sie so fixiert, daß eine vollständige Benetzung der Probenoberflächen durch Rb

gewährleistet war.

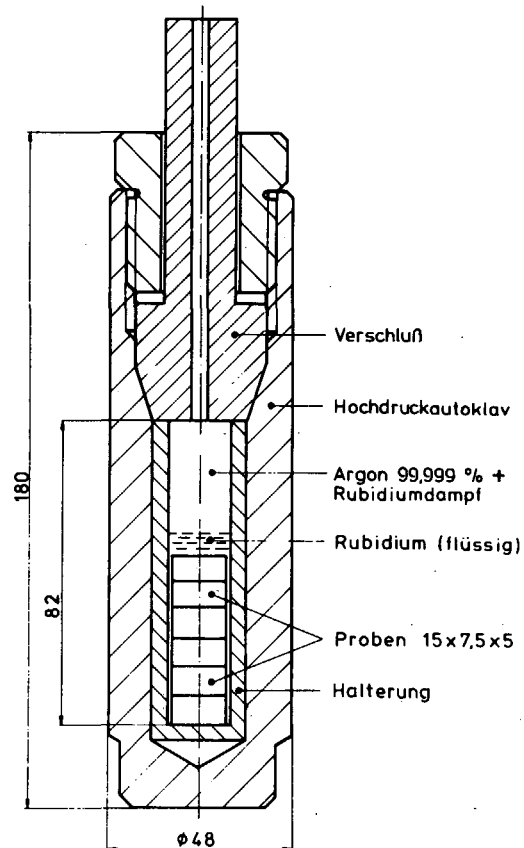


Abb. 5: Schematische Darstellung eines befüllten Hochdruckautoklaven (Proben ohne Zugspannung)

Durch die in die Verschlußstücke eingeschraubten Ventile wurde Reinstargon eingeleitet. In einem Muffelofen wurden die Autoklaven auf 200°C aufgeheizt, wobei das Gaspolster einen Druck von 200 bar erzeugte.

Nach Beendigung des 1000 h-Versuchs sollten die Autoklaven vor der Probenentnahme durckentlastet werden. Dabei stellte sich aber heraus, daß der Druck fast auf Umgebungsdruck abgesunken war.

Ein anschließender Lecktest des Systems Hochdruckautoklav-Ventil ergab, daß die Hauptundichtigkeit in der Verschraubung der beiden ineinander lag. Durch stärkeres Einschrauben der Ventile in die Verschlußstücke konnte die Leckrate auf 10^{-8} mbar ls^{-1} heruntersgesetzt werden. Da dieser systematische Fehler auch den 3500 h-Versuch betraf, wurden auch hier die Ventile nach-

gezogen und erneut ein Druck von 200 bar aufgegeben.

Die metallografischen Untersuchungen der Proben wurden im Institut für Reaktorwerkstoffe der KFA durchgeführt. Die zuerst vorliegenden Schliffbilder des Werkstoffs 1.4429 ließen keinen Korrosionsangriff erkennen. Deshalb wurde zur Absicherung der metallografischen Untersuchungsmethode kurzfristig eine weitere Versuchsserie bei 500°C und 100 bar gestartet. Dabei wurden metallografisch nachweisbare Korrosionserscheinungen erwartet, denn in /5/ wird die Temperatur als eine entscheidende Einflußgröße auf die Art und das Auftreten eines Korrosionsangriffs durch Rb beschrieben. Die Standzeit wurde wiederum auf 1000 h festgelegt.

Weiter fanden Noppel et. al. /7/ bei ihren Untersuchungen, daß auch im Werkstoff vorhandene Spannungen eine die Korrosion fördernde Wirkung haben. Um diesen auch bei der Flaschenlagerung auftretenden Effekt zu berücksichtigen, wurden die Experimente in einer weiteren Versuchsserie mit Proben unter Zugspannung fortgeführt. In einem 3000 h-Standzeit-Versuch wurden jeweils 3 Zugproben (B6 x 30 DIN 50125) der bisher untersuchten Werkstoffe sowie zusätzlich der für die Meeresversenkung von Kr als geeignet erscheinende Werkstoff 1.4439 (Kap. 6.4) unter Last bei einer Temperatur von 200°C und einem durch Argon aufgebrachten Druck von 100 bar in Autoklaven eingesetzt. Die Proben standen dabei jeweils zur Hälfte in flüssigem Rb (Abb. 6). Parallel dazu wurden von jedem Werkstoff jeweils 2 Proben unter Last in reiner Ar-Atmosphäre bei gleicher Temperatur als Vergleichsproben eingesetzt.

Das Aufbringen der Last erfolgte dadurch, daß die Proben mit Muttern in Halterungen (jeweils gleiche Werkstoffe wie die Proben) verspannt wurden ($\sigma_v \approx 0,5 \cdot R_{p0,2} (200^\circ\text{C})$). Dabei wurde allerdings gleichzeitig eine Verdrehspannung τ_t aufgeprägt, die jedoch, da rein elastisch, keine Rückwirkungen auf die Zugversuche bzw. die zu ermittelnden Festigkeitskennwerte erwarten ließ.

Der Druck in den Autoklaven wurde bei dieser Versuchsserie überwacht und ein durch Leckagen verursachter Druckabfall in der Versuchsanordnung konnte über eine Versorgungseinheit ausge-

glichen werden (Abb. 7).

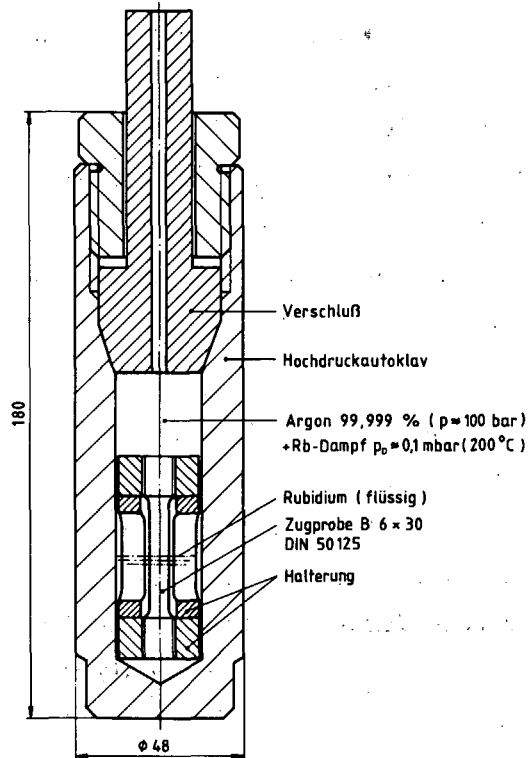


Abb. 6: Schematische Darstellung eines befüllten Hochdruckautoklaven (Proben unter Zugspannung)

Alle mit der Handhabung von Rb verbundenen Tätigkeiten (Be- und Entladen der Autoklaven, Probenreinigung etc.) wurden in einer Handschuhbox (Abb. 8) unter Argonatmosphäre durchgeführt. Mit einer kontinuierlich arbeitenden Gasreinigungsanlage konnte der Sauerstoff- und Feuchtegehalt der Boxatmosphäre kleiner als 10 vpm (O_2) bzw. 100 vpm (H_2O) gehalten werden.

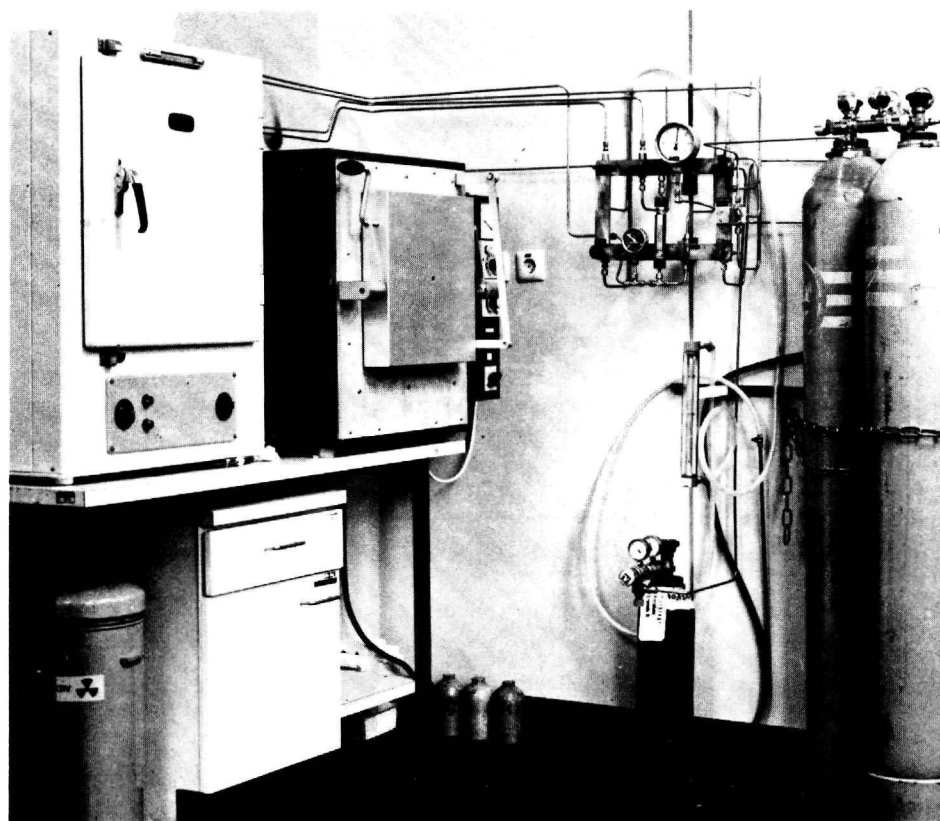
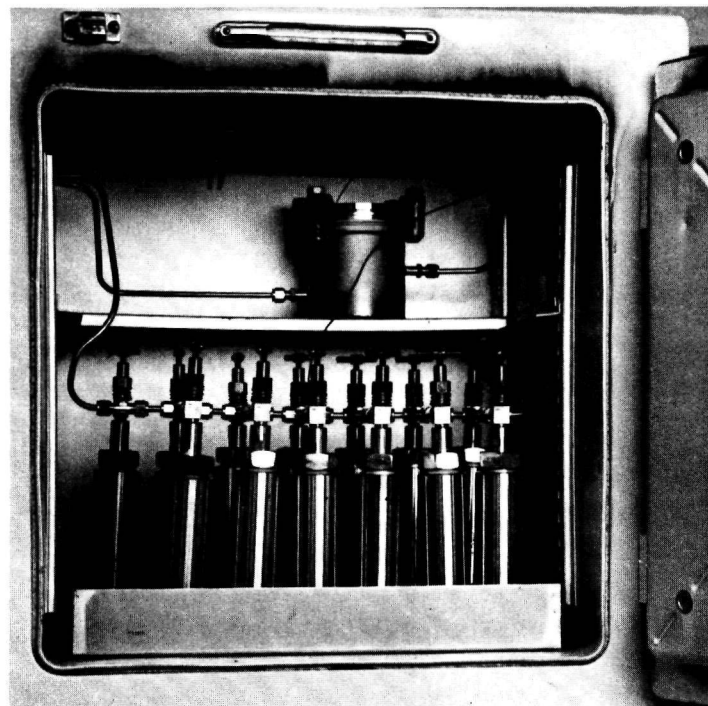


Abb. 7: Versuchsanordnung mit Gasversorgung

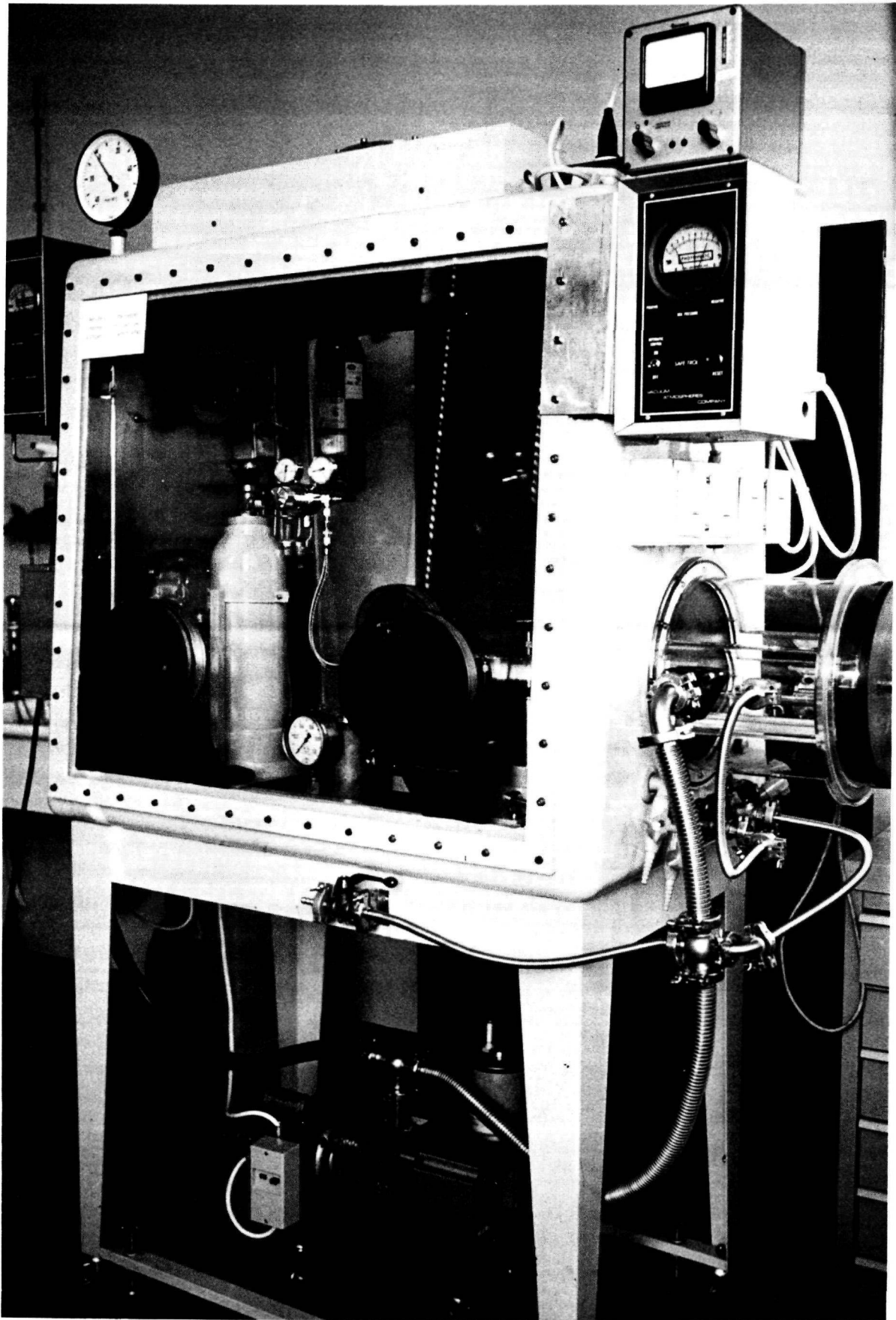


Abb. 8: Handschuhbox mit Gasreinigungseinheit

3.2.2.2 Nachuntersuchungen zur Rb-Korrosion

Tabelle 5 gibt einen Überblick über die nach den jeweiligen Standzeitversuchen durchgeführten Probenuntersuchungen.

Tabelle 5: Nach den Standzeitversuchen angewendete Untersuchungsmethoden zur Charakterisierung des Korrosionsverhaltens

Stand- zeit- versuch Unter- suchungs- methode	1000 h, 200°C ohne Zug- spannung	1000 h, 500°C ohne Zug- spannung	3500 h, 200°C ohne Zug- spannung	3000 h, 200°C mit Zug- spannung
Metallografie	Oberflächen- und Quer- schliffe	Oberflächen- und Quer- schliffe	Oberflächen- und Quer- schliffe	Querschliffe
Rasterelektro- nenmikroskop (SEM)		Oberfläche		Bruchflächen der Zugproben
Energiedisper- sive Röntgenana- lyse (EDAX/SEM)		Oberflächen- analyse Elemente Fe, Cr, Ni, Rb		Oberflächen- analyse Element Rb
Wägung	Gewichtsver- lustprüfung	Gewichtsver- lustprüfung	Gewichtsver- lustprüfung	
Ionenmikrosonde (SIMS)		Eindring- tiefe des Rb in die Pro- ben		
Zugversuche nach DIN 50145				Zugfestigkeit Streckgrenze, Bruchdehnung und Bruchver- halten
Atomabsorptions- spektrometrie (AS)				Rb-Kontamina- tion mit Fe, Cr, Ni
Neutronenakti- vierungsanalyse				Rb-Kontamina- tion mit Sauerstoff

3.2.3 ----- Ergebnisse der Nachuntersuchungen

3.2.3.1 Werkstoff 1.4306

Schon nach 1000-stündigem Einsatz in Rb bei 200°C zeigen sich, allerdings erst nach einer Ätzbehandlung, leichte Korrosionseffekte an der Oberfläche. Einzelne Körner werden mehr oder weniger stark lokal angegriffen. Eine Tiefenwirkung ist nicht feststellbar.

Nach 3500-stündigem Einsatz werden neben relativ gleichmäßig über einzelnen Körnern verteilten lokalen zusätzlich Korrosionsangriffe längs der Korngrenzen sichtbar (Abb. 9).

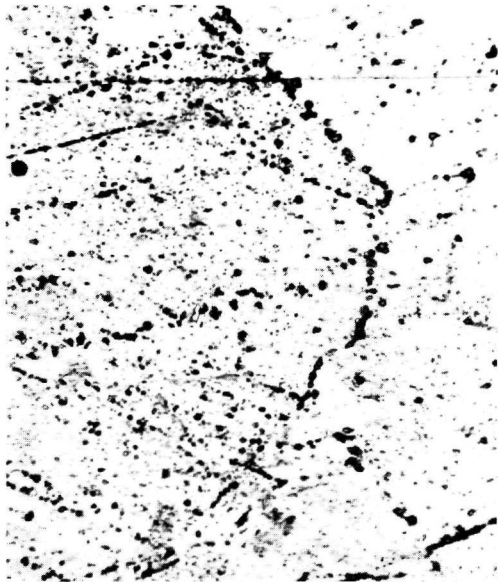


Abb. 9: Oberfläche der Werkstoffprobe 1.4306 (poliert)
Nach dem Einsatz (3500 h, 200°C) mit V2A
Beize geätzt (x 500)

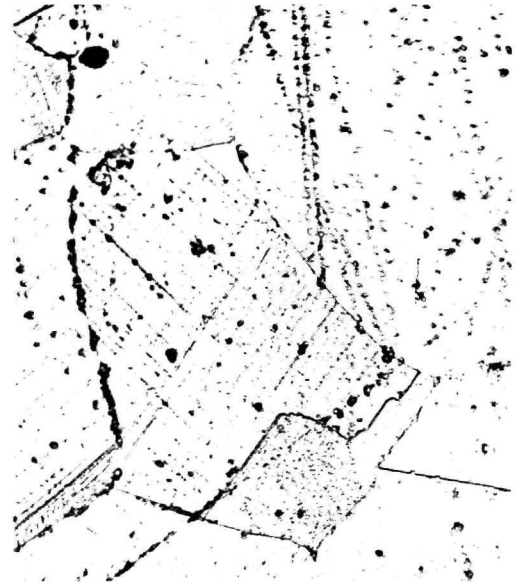
Anhand der Querschliffe ist auch die Tiefe des Korrosionsangriffs kaum erkennbar (Bandbreite möglicher Korngrenzen-, lokaler Oberflächenangriffe und Korrosionsbeläge etwa 1 µm - 3 µm).

Bei den Proben der Versuchsserie mit verschärften Einsatzbedingungen (500°C) werden stärkere Korrosionsangriffe längs der

Korngrenzen und Bearbeitungsspuren bzw. eine größere Ausdehnung der lokalen Angriffe sichtbar (Abb. 10).



a) ungeätzt



b) geätzt

Abb. 10: Oberfläche der Werkstoffprobe 1.4306 (poliert)
nach 1000 h in Rb bei 500°C (x 500)

Die Querschliffbilder, speziell die der Proben mit geschliffener Oberfläche, lassen deutlich eine in die Tiefe gehende Korrosionsschicht erkennen. Die Bandbreite liegt bei ca. 4 μm - 6 μm .

Kornzerfall bzw. interkristalline Korrosion, bedingt durch die langfristige Glühbehandlung, scheiden dabei als mögliche Ursachen aus. Die Vergleichsprobe, ebenfalls 1000 h bei 500°C allerdings nur in einer Ar-Atmosphäre eingesetzt, zeigt keine deutliche Korrosionsschicht (Abb. 11).

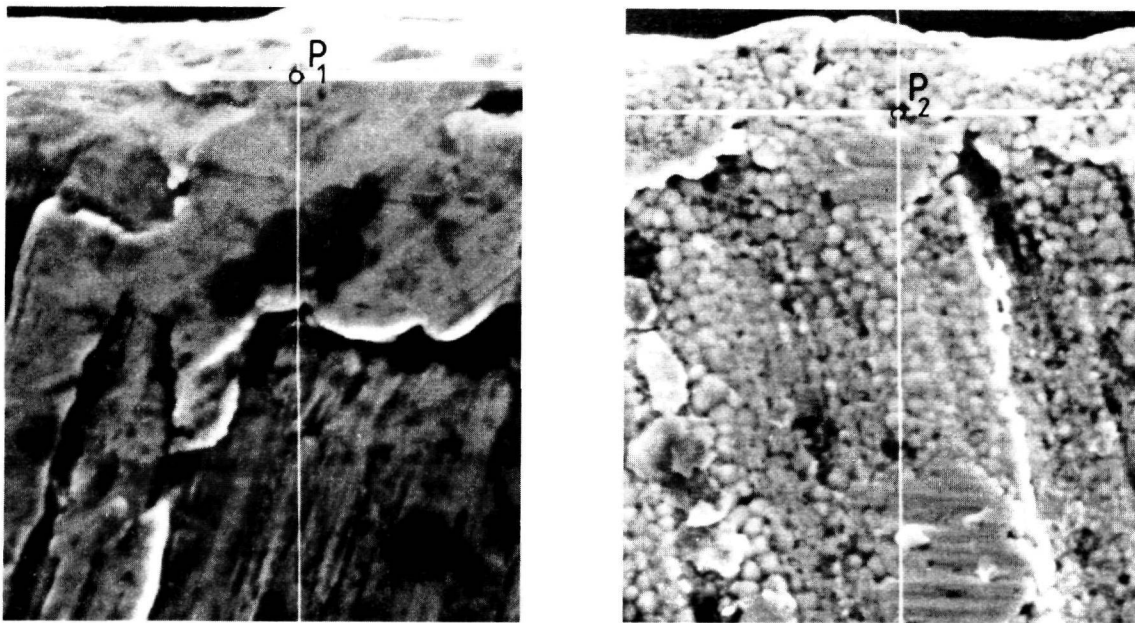
Die Untersuchung der Proben mittels Rasterelektronenmikroskopie (SEM) verdeutlicht, daß es sich um Korngrenzenangriffe mit der Folge der Gefügauflockerung an der Oberfläche handelt (Abb. 12). Die für einige Punkte der Oberfläche durchgeführte energiedispersive Röntgenanalyse (EDAX) deutet darauf hin, daß Chrom und Nickel in Lösung gehen (Abb. 13).



a) Probe in Ar-Atmosphäre

b) Probe in Rubidium

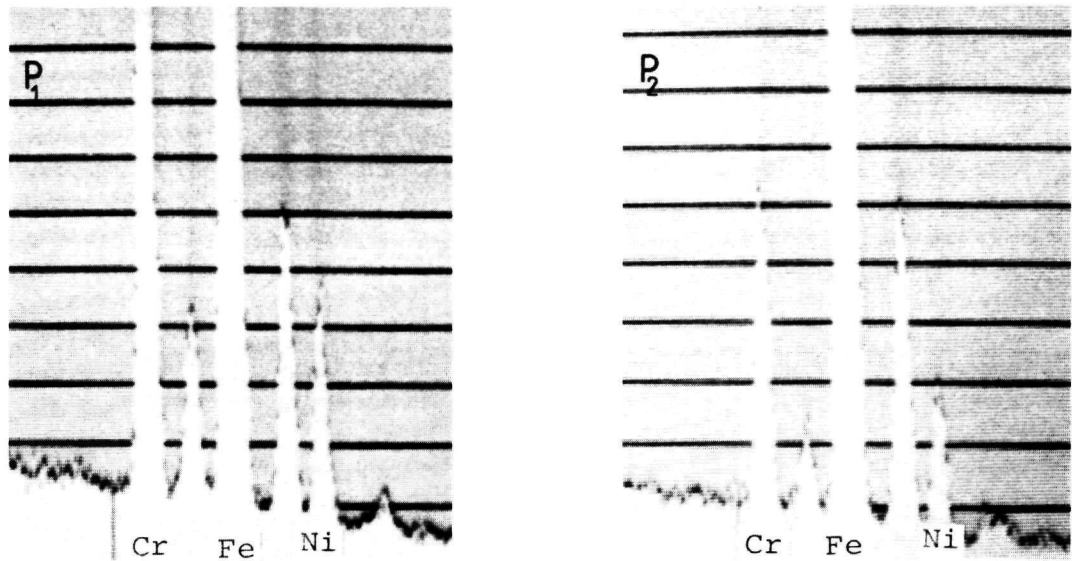
Abb. 11: Querschliffe der Werkstoffproben 1.4306 nach 1000-stündigem Einsatz bei 500°C (x 1250)



a) Probe in Ar-Atmosphäre

b) Probe in Rubidium

Abb. 12: SEM-Aufnahmen der Trennflächen (Diamanttrennscheibe) des Werkstoffs 1.4306 nach 1000-stündigem Einsatz bei 500°C (x 1800)



a) Probe in Ar-Atmosphäre

b) Probe in Rubidium

Abb. 13: Qualitative Intensitätslinien der Elemente Fe, Cr, Ni
punktuell bestimmt durch EDAX

Als Mechanismus hierfür dürften Diffusionsprozesse angesehen werden. So konnte durch weitere Untersuchungen mittels Ionenmikrosonde (SIMS) in die Proben eindiffundiertes Rb nachgewiesen werden. Abb. 14 zeigt die normierten Rb-Intensitäten in Abhängigkeit von der Sputterzeit. Die Tiefe, nach der die Rb-Intensitäts- in die Rb-Untergrundintensitätskurve (Nachweisgrenze) übergeht, wurde durch optische Tiefenmessung mittels Vielstrahlinterferenzmikroskopie bzw. aus den Sputterdaten bestimmt und beträgt ca. 0,15 μm . Die Übereinstimmung der beiden Methoden zur Tiefenbestimmung liegt bei $\pm 20\%$.

Zusätzlich konnten dabei für diesen Werkstoff Korrelationen der Rb-Spots zu Korngrenzenschnittpunkten im Cr-Verteilungsbild nachgewiesen werden. Zusammen mit den Ergebnissen der SEM- und EDAX-Messungen kann davon ausgegangen werden, daß Rb durch Korngrenzendiffusion in den Werkstoff gelangt.

Die mit SIMS nachgewiesene Rb-Eindringtiefe liegt allerdings deutlich unterhalb der aus den metallografischen Schliffbildern erkennbaren Tiefe der Korrosionsschicht. Eine vernünftige Erklärung mag sein, daß die Korrosionseffekte durch die Ätzbe-

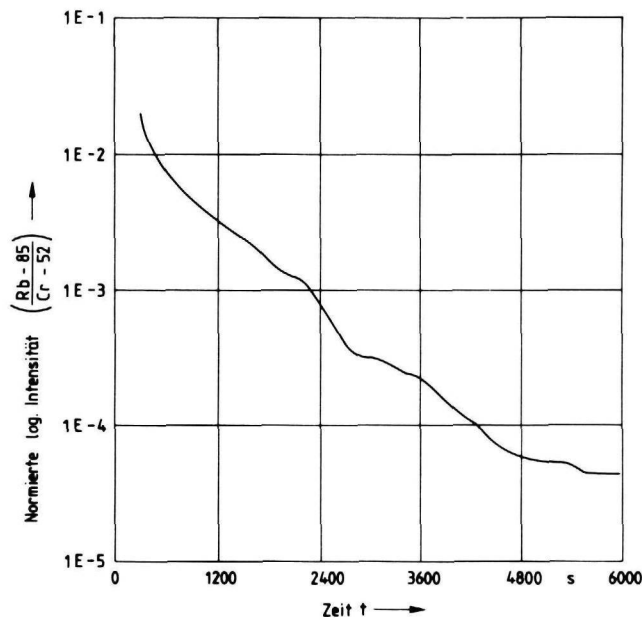


Abb. 14: Normierte Rb-Intensität im Werkstoff 1.4306 in Abhängigkeit von der Sputterzeit (SIMS) (Rb-Diffusionstiefe nach 1000 h bei 500°C)

handlung, stärker als ursprünglich vorhanden, in Erscheinung treten. Verstärkungen um den Faktor 5 ÷ 10 sind dabei möglich /8/. Korrigiert man entsprechend, liegt die Bandbreite der Korrosionsschicht bei 0,4 µm - 1 µm. Die dann noch verbleibende Differenz zu den SIMS-Werten ist vermutlich darauf zurückzuführen, daß neben der Rb-Diffusion Korrosion durch Verunreinigungen (O₂, H₂O) stattgefunden hat. Berechnet man mit dem aus dem Versuch ermittelten flächenbezogenen Massenverlust* Δm_a von ca. $2 \cdot 10^{-4} \text{ g cm}^{-2}$ die Dicke der Korrosionsschicht, so ergibt sich die Größenordnung von ca. 0,3 µm.

An den Zugproben, die 3000 h lang bei 200°C bis zur Hälfte in flüssigem Rb standen, war visuell keine Trennlinie zur nicht mit Rb benetzten Probenhälfte zu erkennen. Auch die Querschliffe, die nach den Zugversuchen aus beiden Probenbereichen angefertigt und metallografisch dokumentiert wurden, zeigten weder einen Unterschied noch eine erkennbare Korrosionszone. Ohne Erfolg wurden einige Proben mittels EDAX auf eindiffundiertes Rb untersucht. Trotzdem ist auch hier, wie die Schwermetallanalyse

*Bezeichnung und Definition nach DIN 50 905, Bl. 2

(Cr, Ni, Fe) des verwendeten Rb ergab, die Oberfläche geringfügig angegriffen worden. Allerdings sind die Effekte aus sicherheitstechnischer Sicht vernachlässigbar. So war ein Einfluß auf die Festigkeitskennwerte bzw. das Bruchverhalten der Proben nicht feststellbar.

Tab. 6 zeigt neben den für diesen Werkstoff allgemein garantierten Mindestwerten die aus den Zugversuchen für die Rb- und für die Vergleichsproben gewonnenen Kennwerte der Streckgrenze ($R_{p0,2}$), der Zugfestigkeit (R_m) und der Bruchdehnung (A).

Tabelle 6: Mindest-Festigkeitskennwerte des Werkstoffs 1.4306 (Gewährleistungswerte) sowie die mit den Proben B6 x 30 DIN 50125 ermittelten Festigkeitskennwerte (Vergleichs- und Rb-Proben)

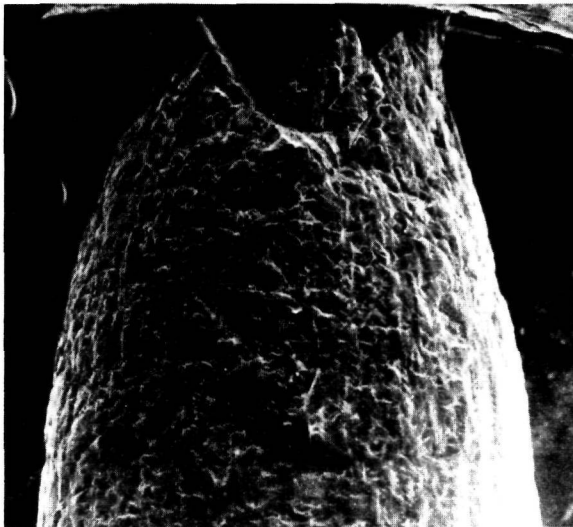
	$\frac{R_{p0,2}}{N \cdot mm^{-2}}$	$\frac{R_m}{N \cdot mm^{-2}}$	$\frac{A}{\%}$	Bruchlage von N	Bruch
Gewährleistungswerte	180	450-700	50	*/.	*/.
Vergleichsprobe (200°C, Ar)	285 244	560 545	64,9 68,2	3 4	verlegt
Rb-Proben (200°C, Rb)	285 228 328	561 545 562	67,4 67,9 62,9	4 3 5	verlegt

Bei einigen Proben trat der Bruch nicht in der Mitte der Versuchslänge auf. In diesen Fällen wurde eine Bruchverlegung durchgeführt, so daß nach DIN 50145 ein vergleichbarer Wert der Bruchdehnung A bestimmt werden konnte. Für die Angabe der Bruchlage wurde eine Zehnerteilung nach DIN 50145 vorgenommen, hierbei bedeuten:

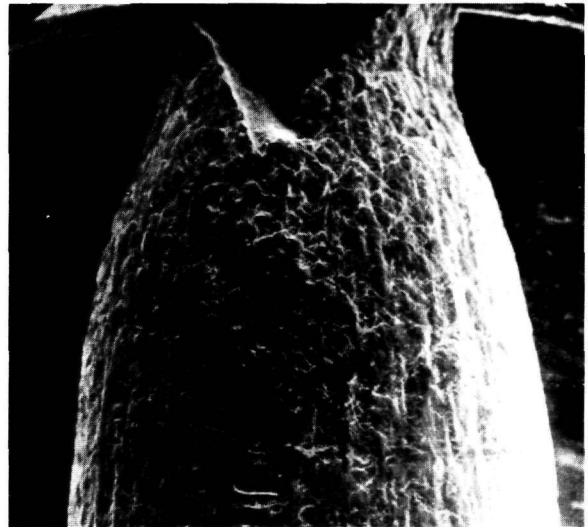
N = 5 Bruch in der Mitte der Versuchslänge,

N = 1 Bruch am Ende der Versuchslänge.

Alle Zugproben zeigten den für duktile Werkstoffe charakteristischen Verformungs- oder Einschnürungsbruch. Dabei verläuft der Bruch in einer inneren Zone senkrecht zur Richtung der Hauptspannung (normalflächiger Bruch) und in einer kegelförmigen Randzone annähernd unter 45° in zur Hauptspannung liegenden Ebenen maximaler Schubspannungen (scherflächiger Bruch, Abb. 15).



a) Probe in Rb

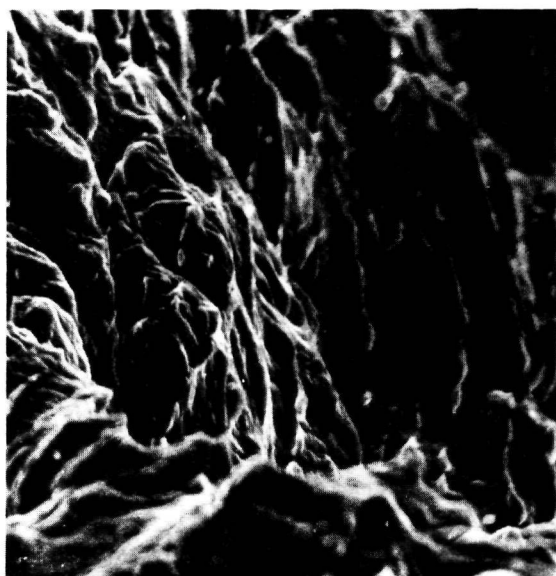


b) Probe in Ar

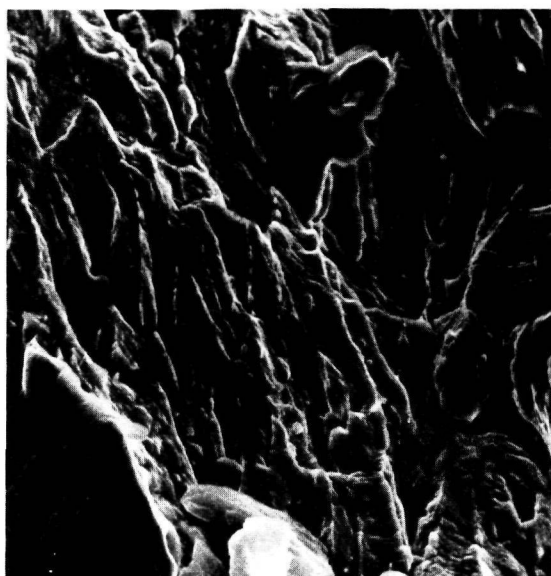
Abb. 15: Einschnürbereich und Bruchfläche (makroskopisch) einer Zugprobenhälfte ($\times 15$)

SEM - U = 25 kV, Kippwinkel 0° , Sekundärelektronen -

Mikroskopisch sind die Bruchflächen durch Grübchen gekennzeichnet, deren Randflächen hochgezogen sind (grübchenflächiger Bruch). Die Grübchen entstehen durch Poren, Risse und Einschlüsse. Beim Bruchvorgang werden die zwischen ihnen liegenden Brücken durch plastische Verformung nahezu hundertprozentig eingeschnürt (Abb. 16).



a) Probe in Rb



b) Probe in Ar

Abb. 16: Bruchfläche mikroskopisch ($\times 1000$)
SEM - U = 25 kV, Kippwinkel 0° , Sekundärelektronen $\rightarrow$

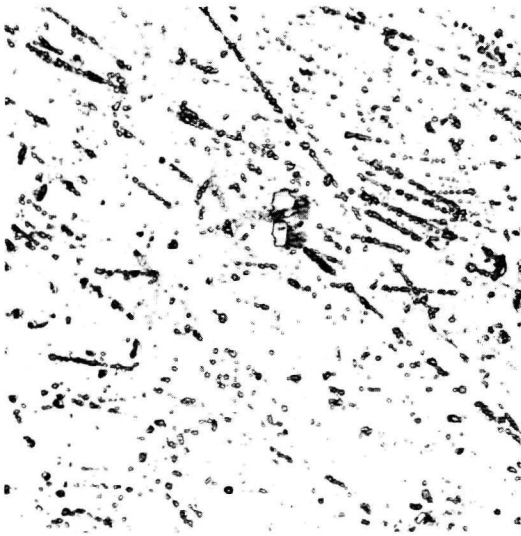
3.2.3.2 Werkstoff 1.4541

Nach 1000- bzw. 3500-stündiger Standzeit bei 200°C zeigen sich nach dem Ätzen der polierten Oberfläche mehr oder weniger starke Korrosionseffekte an einzelnen Körnern. Auch hier bleibt die Tiefenwirkung des Angriffs gering und dürfte in der Bandbreite des Werkstoffs 1.4306 liegen.

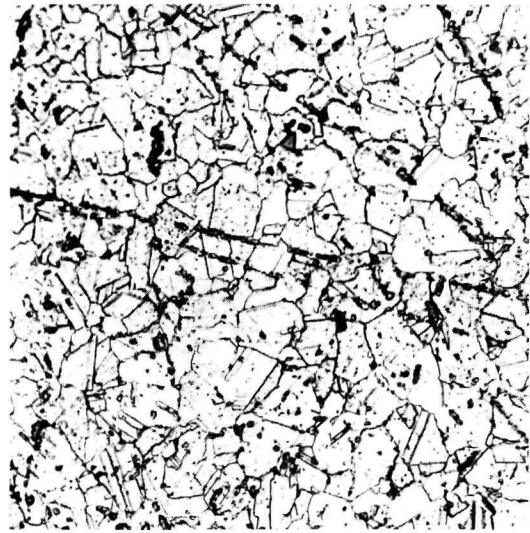
Bei dem Versuch mit verschärften Bedingungen (500°C) zeigte sich dann allerdings, daß hier die Korrosionseffekte am stärksten auftraten. So zeigt die polierte Oberfläche eine große Anzahl von lokalen Angriffen (Abb. 17 a,b), und auch die Tiefe der Korrosionseffekte ist größer.

Anhand der Querschliffe (Abb. 18) läßt sich eine Bandbreite der Korrosionszone von 8 - 9 μm angeben.

Auch hier müssen die Werte wegen der Ätzeffekte nach unten korrigiert werden, so daß sich eine Bandbreite von 0,8 - 1,8 μm ergibt. Der flächenbezogene Massenverlust ist mit $\Delta m_a \approx 3 \cdot 10^{-4} \text{ g cm}^{-2}$ größer als die des Werkstoffs 1.4306. Als mittlere Korrosionsschichtdicke wäre danach ein Wert von ca. 0,4 μm anzusetzen.

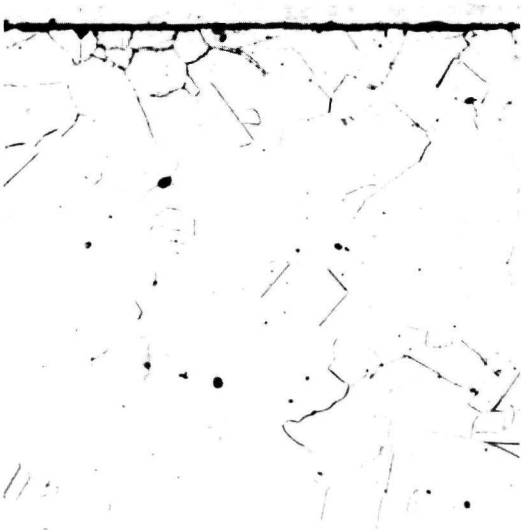


a) ungeätzt



b) geätzt

Abb. 17: Oberfläche der Werkstoffproben 1.4541 (poliert) nach 1000 h in Rb bei 500°C (x 500)



a) Oberfläche poliert



b) Oberfläche geschliffen

Abb. 18: Querschliffe der Werkstoffproben 1.4541 nach 1000 h in Rb bei 500°C (x 1250)

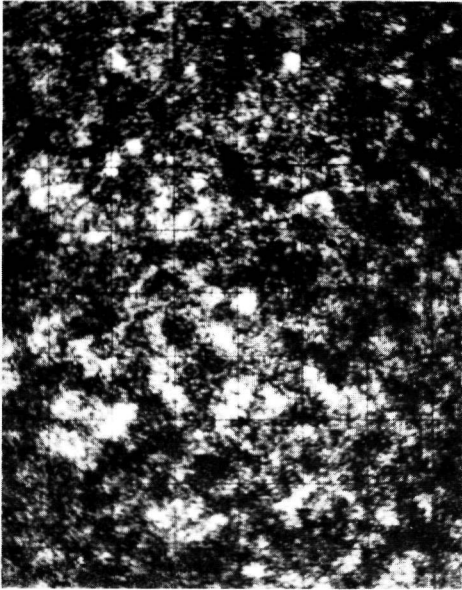
Die Bestimmung der Rb-Eindringtiefe mittels SIMS wurde auch hier durchgeführt. Danach ließ sich Rb auch in größeren Tiefen $\approx 0,3 \mu\text{m}$ nachweisen. Die Fotos der Verteilungsbilder (Abb. 19) lassen erkennen, daß es sich in größeren Tiefen um Rb-Zusammenballungen handelt. Hierbei ist aber keine deutliche Zuordnung der Rb-Spots zu denen anderer Elemente zu erkennen, obwohl die SEM- bzw. EDAX-Untersuchungen auch hier wieder eine Cr- bzw. Ni-Verarmung in der Korrosionsschicht zeigten.

Die Zugversuche ergaben auch bei diesem Werkstoff keinen Hinweis darauf, daß aufgetretene Korrosionseffekte einen die Festigkeit mindernden Einfluß haben (Tab. 7).

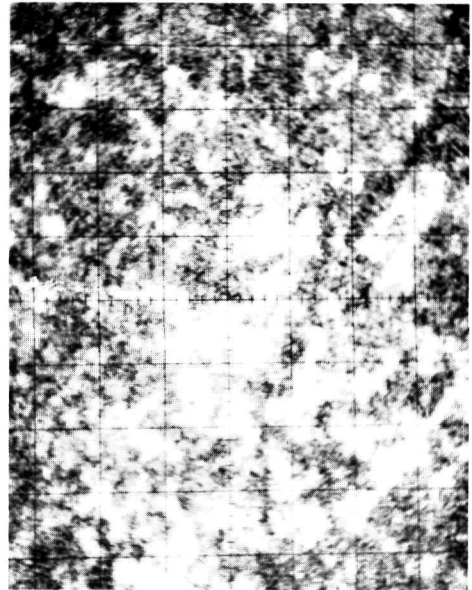
Tabelle 7: Mindest-Festigkeitskennwerte des Werkstoffs 1.4541 (Gewährleistungswerte) sowie die mit den Proben B6x30 DIN 50125 ermittelten Festigkeitskennwerte (Vergleichs- und Rb-Proben)

	$\frac{R_{p0,2}}{N \cdot \text{mm}^{-2}}$	$\frac{R_m}{N \cdot \text{mm}^{-2}}$	$\frac{A}{\%}$	Bruchlage von N	Bruch
Gewährleistungswerte	210	500-700	40	·/·	·/·
Vergleichs- proben (200°C, Ar)	718 328	886 683	20,8 54,4	1 4	außerhalb
Rb-Proben (200°C, Rb)	722 722 319	877 880 687	15,9 14,4 52,2	1 1 5	außerhalb außerhalb

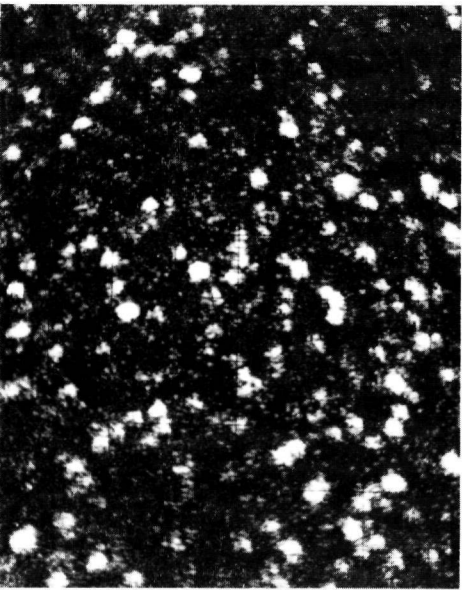
Die mit "außerhalb" gekennzeichneten Proben rissen aufgrund fertigungstechnischer Mängel in der Nähe der Gewindeköpfe. Dadurch konnte sich die Brucheinschnürung nicht ungehindert ausbilden, so daß sich hier zu kleine Bruchdehnungen ergaben. Weiter werden dadurch auch die Festigkeitskennwerte verfälscht, weil die Spannung (Nennspannung) σ in jedem Augenblick des Zugversuches durch die auf den Anfangsquerschnitt S_0 bezogene Zugkraft ermittelt wird. Der maßgebliche Querschnitt S war



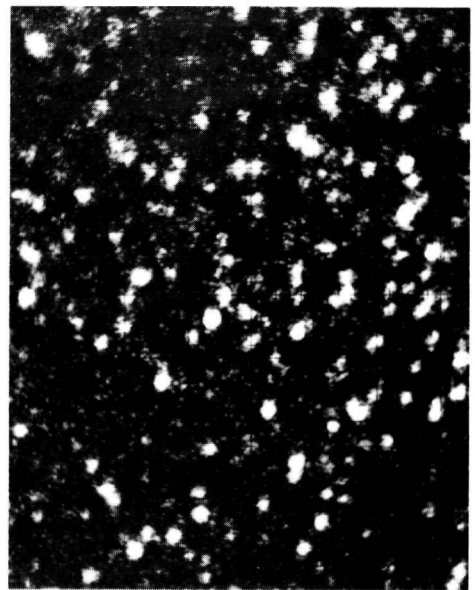
a) Beschußbeginn



b) nach 780 s



c) nach 4200 s



d) nach 5100 s ($\approx 0,3 \mu\text{m}$)

Abb. 19: Rb-Verteilung im Werkstoff 1.4541 nach 1000 h bei 500°C in Abhängigkeit von der Sputterzeit (SIMS)

wegen des Übergangsradius zum Gewindekopf damit größer als S_0 , so daß sich zu hohe Werte für die Streckgrenze und Zugfestigkeit ergeben.

Aufgrund der SEM-Bruchflächen-Untersuchung konnten auch bei diesem Werkstoff keine Anomalien im Bruchverhalten festgestellt werden.

3.2.3.3 Werkstoff 1.4429

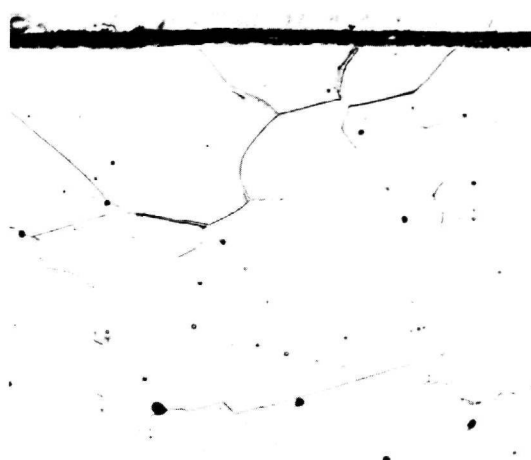
Nach 1000-stündigem Einsatz in Rb bei 200°C konnten an diesem Werkstoff weder Gefüge- noch Oberflächenveränderungen festgestellt werden. Nach 3500-stündigem Einsatz lassen sich anhand der metallographischen Schliffbilder leichte Korrosionseffekte nicht mit Sicherheit ausschließen.

Unbehandelt zeigen die mit polierter Oberfläche eingesetzten Proben keine Veränderungen nach der Versuchsdauer. Nach dem Ätzen (V2A-Beize) der Oberfläche zeigt sich aber, daß einzelne Körner angegriffen wurden. Auch bei den Proben mit geschliffener Oberfläche deuten sich Korrosionseffekte an, die bevorzugt längs der Schleifriefen erfolgten. Die Tiefe möglicher lokaler Angriffe bei diesem Werkstoff ist jedenfalls sehr gering. Anhand der Querschliffbilder läßt sich eine Bandbreite der Tiefenwirkung von ca. $1\text{ }\mu\text{m}$ vermuten, wobei die erkennbaren Effekte aber ebenso gut von der mechanischen Bearbeitung der Oberfläche vor dem Einsatz bzw. durch die Ätzbehandlung bei der Schliffpräparation herrühren könnten. Denn selbst bei den Querschliffen der Werkstoffproben, die dem Rb 1000 h lang einer Temperatur von 500°C ausgesetzt waren, läßt sich im Gegensatz zu den beiden anderen Werkstoffen keine deutlich in die Tiefe gehende Korrosionszone erkennen (Abb. 20).

Außerdem wies dieser Werkstoff in Übereinstimmung mit dem metallografischen Befunden den geringsten flächenbezogenen Massenverlust ($\Delta m_a \approx 1 \cdot 10^{-4} \text{ g cm}^{-2}$) auf. Daraus ergibt sich eine mittlere Korrosionsschichtdicke von ca. $0,13\text{ }\mu\text{m}$. Diese Angabe hat hierbei, im Gegensatz zu den beiden vorangegangenen Werkstoffen, wegen des relativ gleichmäßigen Oberflächenan-



a) Oberfläche poliert
1000 h in Rb
bei 500°C



b) Oberfläche geschliffen
1000 in Rb
bei 500°C

Abb. 20: Querschliffe (500 x) der Proben des Werkstoffs 1.4429
mit unterschiedlicher Oberflächengüte

griffs am ehesten Bedeutung. So zeigt die polierte Oberfläche auch ohne Ätzbehandlung lokale Korrosion an einzelnen Körnern sowie längs der noch vorhandenen Bearbeitungsriefen. Nach dem Ätzen wird deutlich sichtbar, daß neben einem über einzelnen Körnern relativ gleichmäßig verteilten lokalen Angriff auch Kornbereiche mit verstärkter Korrosion auftreten. Auch die in geschliffenem Zustand eingesetzten Proben zeigen einen mehr oder weniger gleichmäßig über die Oberfläche verteilten Korrosionsbelag (Abb. 21 a-c).

Eindiffundiertes Rb konnte auch bis in Tiefen nachgewiesen werden, die mit denen des Werkstoffs 1.4541 vergleichbar sind. Die Rb-Verteilungsbilder zeigen aber hier, daß das Rb relativ homogen im Werkstoff verteilt ist.

Die Zugversuche ergaben auch bei diesem Werkstoff keinen Hinweis darauf, daß die aufgetretenen Korrosionseffekte einen die Festigkeit bzw. des Bruchverhaltens ändernden Einfluß haben (Tab. 8).

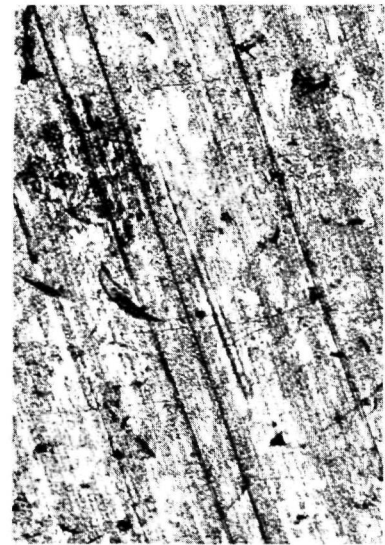
Daß eine geringfügige Korrosion stattgefunden hat, ergab die Analyse des verwendeten Rb. Leider wurde das bei den ersten 200°C-Standzeitexperimenten verwendete Rb nicht auf Schwermetallkontaminationen untersucht. Die Frage, ob im Werkstoff



a) Oberfläche poliert
(x 500)



b) Oberfläche poliert, nach dem Einsatz mit V2A-Beize geätzt
(x 500)



c) Oberfläche geschliffen
(x 200)

Abb. 21: Oberflächen der Proben des Werkstoffs 1.4429 nach 1000 h in Rb bei 500°C

Tabelle 8: Mindest-Festigkeitskennwerte des Werkstoffs 1.4429 (Gewährleistungswerte) sowie die mit den Proben B6x30 DIN 50125 ermittelten Festigkeitskennwerte (Vergleichs- und Rb-Proben)

	$\frac{R_{p0,2}}{N \cdot mm^{-2}}$	$\frac{R_m}{N \cdot mm^{-2}}$	$\frac{A}{\%}$	Bruchlage von N	Bruch
Gewährleistungswerte	300	600-800	40	*/.	*/.
Vergleichsproben (200°C, Ar)	308 307	649 649	49,7 45,8	2 3	verlegt verlegt
Rb-Proben (200°C, Rb)	311 301 313	656 644 656	43 53,5 49,8	2 5 3	verlegt verlegt

vorhandene Spannungen einen die Rb-Korrosion fördernden Effekt haben, läßt sich damit endgültig nicht beantworten. Eine 50 %-ige Streckgrenzenausnutzung, wie sie im letzten Standzeitexperiment verwirklicht wurde, dürfte sicherlich keinen wesentlichen Beitrag zur Korrosion leisten.

3.2.3.4 Werkstoff 1.4439

Der Werkstoff 1.4439 wurde wegen seiner zu erwartenden Eignung als Behälterwerkstoff für die Versenkung von Kr-85 in das Meer erst nachträglich in die Untersuchungen mit einbezogen. Es liegen deshalb lediglich Ergebnisse von unter Spannung eingesetzten Proben vor. Die aus den Zugversuchen ermittelten Festigkeitskennwerte bzw. die SEM-Bruchflächenuntersuchung lassen auch für diesen Werkstoff keinerlei die Festigkeit bzw. das Bruchverhalten ändernder Einfluß durch den Einsatz in Rb erkennen (Tab. 9).

Tabelle 9: Mindest-Festigkeitskennwerte des Werkstoffs 1.4439 (Gewährleistungswerte) sowie die mit den Proben B6x30 DIN 50125 ermittelten Festigkeitskennwerte (Vergleichs- und Rb-Proben)

	$\frac{R_{p0,2}}{N \cdot mm^{-2}}$	$\frac{R_m}{N \cdot mm^{-2}}$	A %	Bruchlage von N	Bruch
Gewährleistungswerte	300	600-800	40	*/.	*/.
Vergleichs- proben (200°C, Ar)	441 391	675 670	43,5 51,9	5 4	
Rb-Proben (200°C, Rb)	379 348 320	655 650 659	50,7 50,2 54,4	5 5 3	verlegt

Die anschließende metallografische Untersuchung der Bruchstücke zeigte keine in die Tiefe gehenden Korrosionsangriffe, obwohl aufgrund der Ergebnisse der Rb-Analyse geringfügige Oberflächen-

korrosion stattgefunden hat.

3.2.3.5 Schweißnähte

Als Schweißproben wurden die in Kap. 3.2.2 aufgeführten Werkstoffpaarungen eingesetzt. Die Proben selbst wurden nach dem Schweißen mit einer Drahtbürste gereinigt, mit einem groben Schmirgelpapier nachbearbeitet und anschließend gebeizt. Aufgrund der damit vorhandenen großen Oberflächenrauigkeit der jeweiligen Grundwerkstoffe sowie der der Schweißraupe war ein Vergleich der Oberflächen nicht möglich. Aber auch dadurch, daß die Eindringtiefe möglicher Korrosionsangriffe bei den reinen Werkstoffen bei Temperaturen bei 200°C in den Querschliffen kaum erkennbar war, ermöglichten die Querschliffe der Schweißproben keine weiteren Aussagen. Die Gefüge in der Schweißzone zeigten sehr komplexe Bilder mit Einschlüssen, Ausscheidungen und Seigerungen, jedoch keine weitergehenden Korrosionseffekte.

3.2.3.6 Sauerstoff- und Schwermetallgehalt im Rubidium nach dem 3000 h-Standzeitversuch

Wie schon mehrfach angedeutet, wurde bei diesem Versuch neben den Werkstoffproben außerdem das dabei verwendete Rb mit Hilfe der Neutronenaktivierungsanalyse auf Sauerstoff bzw. mittels Atomabsorptionsspektrometrie (AS) auf Schwermetallkontaminationen (Cr, Ni, Fe) untersucht.

Die Sauerstoffanalyse einer aus einem Autoklaven stammenden 1,5 g Rb-Probe ergab einen Wert von 28 ± 5 ppm O bzw. die aus 3 verschiedenen Autoklaven zusammengemischte (1:1:1) 3 g Rb-Probe einen Wert von 19 ± 4 ppm O. Die Gehalte sind jeweils Mittelwerte aus 5 Einzelmessungen jeder Rb-Probe. Die Werte können als obere Grenzwerte für die Sauerstoffkontamination angesehen werden, da die Probenpräparation weitere Handhabungsschritte und damit längere Verweilzeiten in der Handschuhbox notwendig machte.

Inwieweit der daraus resultierende Gehalt an Rubidiumoxid ($\text{Rb}_2\text{O} \leq 350 \text{ ppm}$) die Korrosion beeinflusste, kann nicht beurteilt werden. Dazu hätten Versuche mit definiert unterschiedlichen Sauerstoffgehalten durchgeführt werden müssen. Nach /7/ üben Rb-Oxide einen korrosionsfördernden Einfluß aus. Bei Gehalten von 770 ppm O (simuliert durch Zugabe von Rb_2O) wurde dort an dem Werkstoff 1.4306 ein verstärkter Krongrenzenangriff gefunden, wobei allerdings über die Sauerstoffkontamination der Vergleichsserie keine Angaben gemacht werden.

Für die Untersuchung des Rubidiums auf Schwermetalle wurden aus allen Autoklaven (12) jeweils 1 g Rb-Proben zur Analyse entnommen. In Tabelle 10 sind die mit AS ermittelten Schwermetallkontaminationen des Rb aufgelistet. Die Angaben sind Mittelwerte und Standardabweichungen aus 3 bis 5 Einzelmessungen.

Anhand der Tabelle wird deutlich, daß die Werte z. T. an (Cr, Fe) bzw. nur wenig (Ni) über der Nachweisgrenze der verwendeten Analyseverfahren liegen. Weiter sind keine signifikanten Unterschiede im Materialabtrag der eingesetzten Werkstoffe zu erkennen, so daß wohl insgesamt alle untersuchten Werkstoffe bei Temperaturen, die unter Lagerbedingungen niedriger als die Versuchstemperaturen sind ($\text{max. } 125^\circ\text{C}$), gegenüber Rb als korrosionsbeständig anzusehen sind.

Außerdem enthalten die aufgeführten Werte auch den Materialabtrag der mit Rb-benetzten Autoklavenoberfläche, die ca. 40 % der insgesamt mit Rb-benetzten Fläche ($\text{ca. } 68 \text{ cm}^2$) ausmachte. Drei Autoklaven (Werkstoff 1.4571) wurde nach Beendigung der Versuche zerteilt und metallografisch untersucht. Auch hier war ein in die Tiefe gehender Korrosionsangriff nicht erkennbar. Da die Autoklaven außerdem genau wie zu lagernde DGF dem echten 3-achsigen Spannungszustand ausgesetzt waren, dürfte auch der Werkstoff 1.4571 als DGF-Werkstoff infrage kommen. Darüberhinaus betrug die Standzeit der Autoklaven 7500 Stunden.

Tabelle 10: Schwermetallkontamination des Rubidiums nach einer Standzeit von 3000 h bei 200°C

eingesetzter Werkstoff	Nickel $\mu\text{g}_{\text{Ni}}^{-1}\text{g}_{\text{Rb}}$	Eisen $\mu\text{g}_{\text{Fe}}^{-1}\text{g}_{\text{Rb}}$	Cr $\mu\text{g}_{\text{Cr}}^{-1}\text{g}_{\text{Rb}}$
1.4306	1,1 $\pm$ 0,0 2,9 $\pm$ 0,1 2,4 $\pm$ 0,1	3,5 $\pm$ 0,5 5,9 $\pm$ 0,8 7,0 $\pm$ 0,8	0,16 $\pm$ 0,02 0,28 $\pm$ 0,04 0,13 $\pm$ 0,04
1.4541	1,4 $\pm$ 0,1 1,6 $\pm$ 0,3 1,5 $\pm$ 0,2	4,5 $\pm$ 0,7 3,8 $\pm$ 0,5 5,2 $\pm$ 0,7	0,33 $\pm$ 0,06 0,12 $\pm$ 0,01 0,19 $\pm$ 0,03
1.4429	0,8 $\pm$ 0 2,5 $\pm$ 0,1 2,3 $\pm$ 0,0	2,9 $\pm$ 0,2 5,2 $\pm$ 0,9 8,4 $\pm$ 0,7	0,08 $\pm$ 0,01 0,22 $\pm$ 0,02 0,4 $\pm$ 0,04
1.4439	1,2 $\pm$ 0,2 1,3 $\pm$ 0,1 2,0 $\pm$ 0,1	3,6 $\pm$ 0,5 6,2 $\pm$ 0,9 6,4 $\pm$ 1,2	0,13 $\pm$ 0,02 0,47 $\pm$ 0,04 0,2 $\pm$ 0,01
•/• Rb- Null- probe	0,1 $\pm$ 0	2,9 $\pm$ 0,4	0,08 $\pm$ 0,02

3.2.4 Diskussion der Ergebnisse in Hinblick auf Werkstoff- auswahl und langfristige Standzeit

Aufgrund der vorliegenden Ergebnisse sind wohl alle untersuchten Stähle als DGF- und Ventilwerkstoff geeignet. Die bei 200°C nachgewiesenen Korrosionseffekte bzw. der damit verbundene Materialabtrag sind bei allen untersuchten Stählen vernachlässigbar klein. Ein die Sicherheit mindernder Einfluß auf die Festigkeit bzw. das Bruchverhalten konnte nicht festgestellt werden.

Die Rb-Füllmengen bei der letzten Versuchsserie betrugen ca. 6 g - 7 g pro Autoklav, so daß damit der nach 3000 Stunden aufgetretene Materialabtrag (Probe, Halterung und Autoklav) in der Größenordnung von ca. 30 µg - 80 µg (Σ Fe, Cr, Ni) bzw. die daraus resultierende flächenbezogene Massenverlustrate* v_{int} mit ca. $1,5 \cdot 10^{-6} \text{ g m}^2 \text{ h}^{-1}$ - $4 \cdot 10^{-6} \text{ m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ angebbare ist. Extrapoliert man diese Werte bis auf die notwendige DGF Standzeit von ca. 115 Jahren ($1,0 \cdot 10^6 \text{ h}$), so ist mit einer Dickenabnahme der DGF-Wand von ca. 0,2 mm - 0,5 mm zu rechnen. Trotz der schmalen Basis (kurze Versuchsstandzeiten), für diese unter Annahme einer linearen Abtragsrate* w abgeschätzten Dickenabnahme, sind das vermutlich konservative Werte, denn eine konstant hohe Temperatur von 200°C ist nicht gegeben.

Bei der Einlagerung frisch gefüllter DGF liegt die Wandtemperatur um rund den Faktor zwei niedriger und bereits nach 4 - 5 Halbwertszeiten nimmt die Wandtemperatur fast Umgebungstemperatur an /4/. Dann aber liegt das gebildete Rb in fester Form vor (Erstarrungspunkt von Rb 38,9°C).

Unter dem Aspekt einer Werkstoffersparnis, d. h. einer Wandstärkenreduzierung, wären die Molybdän-legierten Stähle vorzuziehen. Diese weisen bei Berechnungstemperatur (200°C) wesentlich höhere Streckgrenzen auf. Die notwendige Wandstärke bei Verwendung der Stähle 1.4429 bzw. 1.4439 könnte damit von 23 mm (1.4306) auf 15 mm reduziert werden.

3.3 Krypton-Adsorption zur Herabsetzung des Gasdruckes in zu lagernden Druckgasflaschen

Geht man von der bisher betrachteten reinen Druckgaslagerung aus, so stellt sich bei der vorgesehenen Edelgasfüllmenge von 88,6 mol ein Druck von ca. 61 bar in den DGF ein (Einlagerungszeitpunkt). Selbst nach 4 - 5 Halbwertszeiten liegt der Druck noch bei etwa 42 bar, obwohl die Wärmeproduktion und damit die Gas- und Wandtemperaturen bereits stark erniedrigt sind /4/.

*Bezeichnung und Definition nach DIN 50905, Bl. 2

Die Reduzierung der Druckbelastung der DGF-Wandung durch eine alternative Befülltechnik bei sonst gleichen Konzeptdaten erscheint daher wünschenswert. Im folgenden wird nun der Aspekt einer Druckabsenkung durch zusätzliches Einfüllen eines Adsorptionsmittels (Adsorbens) in die DGF näher betrachtet.

Da experimentelle Daten zur Kryptonadsorption für infrage kommende Adsorbentien in dem hier zu erwartenden Temperatur- und Druckbereich nicht vorlagen, wurden am Lehrstuhl für Physikalische Chemie II der Ruhruniversität Bochum im Auftrag des ICT Hochtemperatur- und Hochdruck-Adsorptionsexperimente mit inaktivem Krypton und verschiedenen Adsorbentien durchgeführt.

Grund für die Auftragsvergabe war das Vorhandensein einer Hochdruckapparatur, an der entsprechende Adsorptionsexperimente mit Argon bzw. Methan an grafitiertem Ruß (Graphon) bei Drücken bis 150 bar und Temperaturen bis 50°C bereits durchgeführt wurden. Erste Abschätzungen anhand der Argon/Graphon-Daten /9/, /10/ ließen erwarten, daß der Druck in einer DGF durch Adsorption merklich absinken müßte.

3.3.1 Adsorptionsexperimente bei hohen Temperaturen und Drücken

Während die Experimente mit den Systemen Krypton/Graphon und Krypton/Aktivkohle gute Ergebnisse lieferten, zeigte sich bei den Versuchen mit dem System Krypton/Molekularsieb, daß die Reproduzierbarkeit der Meßwerte nicht zufriedenstellend war. Eine wahrscheinliche Ursache für die Streuung der Meßwerte ist, daß die Molekularsieb-Proben nach der Vorbehandlung (Ausheizen bei ca. 400°C und 200 mbar) ca. 15 min der Raumluft ausgesetzt waren, bevor sie in die Meßapparatur (Mikrowaage Typ 4436, Fa. Sartorius) eingeschleust wurden. Hierbei nahmen die stark hygroskopischen Proben eine von den Raumbedingungen abhängige, nicht genau quantifizierbare Wassermenge auf. Ein nochmaliges Ausheizen in der Meßapparatur war nicht möglich. Des weiteren scheint die Vorbehandlung der Proben im Hinblick auf eine optimale Beladung der Proben ein entscheidender Parameter zu

sein. Hierzu wären systematische Untersuchungen erforderlich geworden.

3.3.2 Grenzflächenüberschuß-Isothermen bei hohen Drücken

Bei hinreichend hohen Drücken durchlaufen die Adsorptionsisothermen ein Maximum. Dieses wird mit zunehmender Temperatur zu höheren Drücken hin verschoben und ist dann weniger ausgeprägt. Das Auftreten solcher Maxima ist aus der Literatur /11/, /12/, /13/ bekannt und wird anschaulich wie folgt gedeutet:

Die auf der Oberfläche eines Adsorbens adsorbierte Gasmenge wird allgemein als Überschußmenge gegenüber einer bei gleichen Bedingungen (p , T) korrespondierenden Gasphase definiert. Durch steigern des Gasdruckes läßt sich die Dichte in der Adsorptionsgrenzschicht erhöhen, infolge des Platzbedarfs der Gasatome aber nicht beliebig weit. Nach Erreichen eines Maximalwertes bewirkt eine weitere Steigerung des Druckes eine Zunahme der Dichte der korrespondierenden Gasphase und somit ein Absinken der Überschußmenge. Für den theoretischen Fall einer dichtesten Kugelpackung ($p \rightarrow \infty$) sind adsorbierte Phase und Gasphase nicht mehr zu unterscheiden, und die Überschußmenge wird per Definition Null.

Es ist üblich, den Überschuß als Überschußvolumen im Normalzustand (NTP) bzw. als Massenüberschuß pro Masseneinheit des Adsorbens anzugeben /11/, /12/. Hier wird in Anlehnung an /9/, /10/, /13/, /14/ die Überschußmenge darüber hinaus auf die Oberflächeneinheit des Adsorbens bezogen und mit "spezifischer Grenzflächenüberschuß" bezeichnet.

3.3.3 Ergebnisse der Adsorptionsexperimente

3.3.3.1 Krypton/Graphon

Bei Graphon handelt es sich um einen grafitierten Ruß der Fa. Cabot Corp. Mass (USA). Die spezifische Oberfläche A_g wird mit

$85 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ und die Dichte ρ_t mit $1,9087 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ angegeben. Die Oberflächenbeschaffenheit wird als homogen und glatt beschrieben /10/, /13/.

Die Adsorption von Krypton an Graphon wurde im Druckbereich von 2 - 150 bar für verschiedene Temperaturen gemessen. In Abb. 22 sind die spezifischen Grenzflächenüberschuß-Isothermen N^σ als Funktion des Druckes aufgetragen.

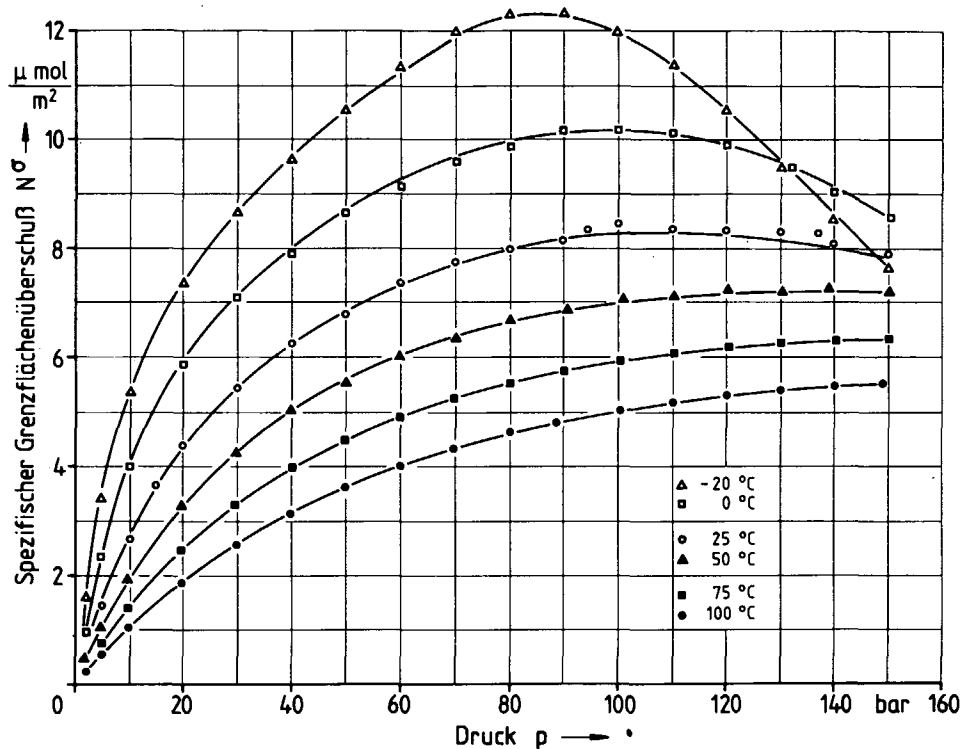


Abb. 22: Spezifische Grenzflächenüberschuß-Isothermen N^σ als Funktion des Druckes für das System Krypton/Graphon

Die Beschreibung der Isothermen mit der Gleichung

$$N^\sigma = \frac{B \cdot p - K \cdot p^2}{1 - q \cdot p} \quad (1)$$

ergibt unter Verwendung der in Tabelle 11 angegebenen Parameter eine gute Übereinstimmung zwischen gemessenen und berechneten Werten, wobei die Abweichungen mit zunehmender Temperatur kleiner werden und für Temperaturen $\theta \geq 25^\circ \text{C}$ im Rahmen der Meßgenauigkeit liegen.

Tabelle 11: Parameter zur Berechnung der spezifischen Grenzflächenüberschuß-Isothermen für das System Krypton/Graphon /17/

$\frac{\theta}{^{\circ}\text{C}}$	$\frac{B}{\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{bar})}$	$\frac{K}{\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{bar}^2)}$	$\frac{a}{\text{bar}^{-1}}$
100	0,11592	$1,6072 \cdot 10^{-4}$	$9,8589 \cdot 10^{-3}$
75	0,15907	$2,3066 \cdot 10^{-4}$	$12,865 \cdot 10^{-3}$
50	0,22579	$3,5823 \cdot 10^{-4}$	$17,072 \cdot 10^{-3}$
25	0,33062	$5,8314 \cdot 10^{-4}$	$23,060 \cdot 10^{-3}$
0	0,44764	$11,628 \cdot 10^{-4}$	$23,482 \cdot 10^{-3}$
- 20	0,51645	$22,296 \cdot 10^{-4}$	$15,809 \cdot 10^{-3}$

Für den hier interessierenden Druckbereich sind in Abb. 23 die entsprechenden spezifischen Grenzflächenüberschuß-Isobaren als

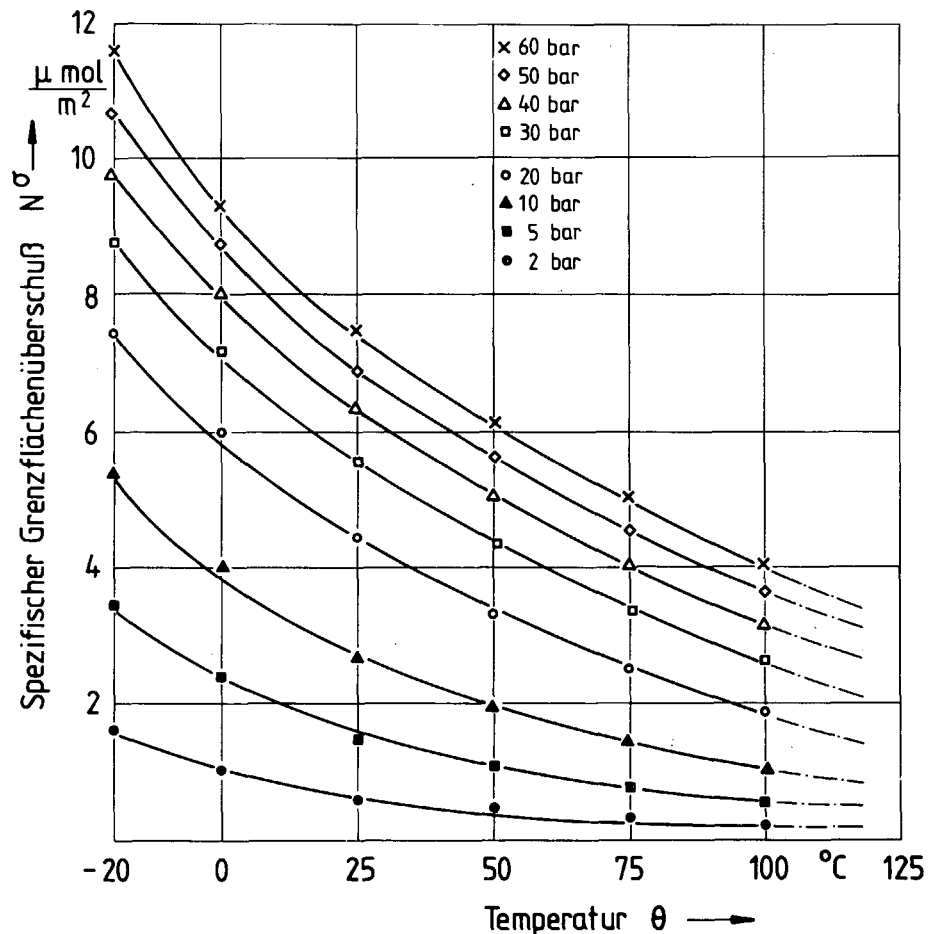


Abb. 23: Spezifische Grenzflächenüberschuß-Isobaren als Funktion der Temperatur für das System Krypton/Graphon

Funktion der Temperatur aufgetragen. Diese Darstellung ist für eine Abschätzung der Beladungskapazität bzw. der Druckabsenkung insofern günstiger, als nicht die Temperatur, sondern der Druck in einer DGF homogen ist.

3.3.3.2 Krypton/Molekularsieb

Es wurde das Molekularsieb Typ 5A der Fa. Merck, Darmstadt, verwendet, das handelsüblich in Perlform ($\varnothing \approx 2 \text{ mm}$) angeboten wird. Die Schüttdichte ρ_s wird vom Hersteller mit $700 - 750 \text{ g} \cdot \text{l}^{-1}$ angegeben. Für die Versuchsdurchführung wurden die Perlen allerdings aufgemahlen und nach dem Sieben die Kornfraktion $0,1 \text{ mm} \leq d_s \leq 0,125 \text{ mm}$ weiterverwendet.

Der mittlere Porendurchmesser des Molekularsiebs liegt bei 1 nm ($10 \text{ \AA}$). Die spezifische Oberfläche A_s wurde im Institut für Reaktorwerkstoffe der KFA-Jülich nach der BET-Einpunkt-Methode zu $(344 \pm 34) \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1} (\text{N}_2)$ bestimmt.

Im Druckbereich von $2 - 150 \text{ bar}$ wurde der spezifische Grenzflächenüberschuß (25°C) gemessen. Auf eine grafische Darstellung der Adsorptionsisothermen wird hier verzichtet. Sie ist in Abb. 26 (Kap. 3.3.4) im Zusammenhang mit einem Vergleich des spezifischen Adsorptionsvermögens aller untersuchten Adsorbentien eingetragen.

Adsorptionsisothermen bei höheren Temperaturen wurden nicht gemessen, weil sich die Präparation der hygroskopischen Proben als problematisch erwies und zu Meßungenauigkeiten führte. Entsprechende Adsorptionsisobaren wie beim System Krypton/Graphon konnten daher nicht ermittelt werden.

3.3.3.3 Krypton/Aktivkohle

Es wurden die in Tab. 12 näher spezifizierten Aktivkohlesorten der Fa. Norit-Adsorptions-GmbH untersucht.

Tabelle 12: Spezifikationen der verwendeten Aktivkohlesorten

Eigenschaft		Norit R 2030	Sorbonorit B4
BET-Oberfläche	$A_s/m^2 \cdot g^{-1}$	700	1.100
Schüttdichte	$\rho_s/g \cdot cm^{-3}$	0,520	0,415
Eigendichte	$\rho_t/g \cdot cm^{-3}$	1,825	2,393
Porenvolumen	$V_p/cm^3 \cdot g^{-1}$	0,67	0,93
Mikroporen	(< 1 nm)	0,26 (39 %)	0,42 (45 %)
Mesoporen	(1 - 100 nm)	0,06 (9 %)	0,09 (10 %)
Makroporen	(> 100 nm)	0,35 (52 %)	0,42 (45 %)
Kornvolumen	$V_K/cm^3 \cdot g^{-1}$	1,22	1,35
Korndichte	$\rho_K/g \cdot cm^{-3}$	0,82	0,74
Korndurchmesser	d/mm	3	4
Anmerkung: Eigendichte ρ_t aus eigenen Messungen (Helium-Verdrängung) /15/. Übrige Angaben vom Hersteller, wobei beide Qualitäten in extrudierter Form mit einer Stäbchenlänge von 4 - 12 mm lieferbar sind.			

Darüberhinaus erscheint eine weitere Aktivkohlesorte dieses Herstellers geeignet zu sein. Neben einer noch größeren spezifischen Oberfläche ($1250 m^2 g^{-1}$) wird diese Sorte mit kleineren Stäbchendurchmessern ($\emptyset 1 mm$) und Längen (2 m - 9 mm) geliefert. Durch Mischen mit einer der beiden größeren Fraktionen ließe sich die Schüttdichte ρ_s und damit sowohl Aufnahmekapazität als auch die Wärmeleitfähigkeit λ_e der Schüttung weiter erhöhen.

Die Beschreibung der Adsorptionsisothermen der beiden untersuchten Kohlesorten mit der zugeschnittenen Größengleichung

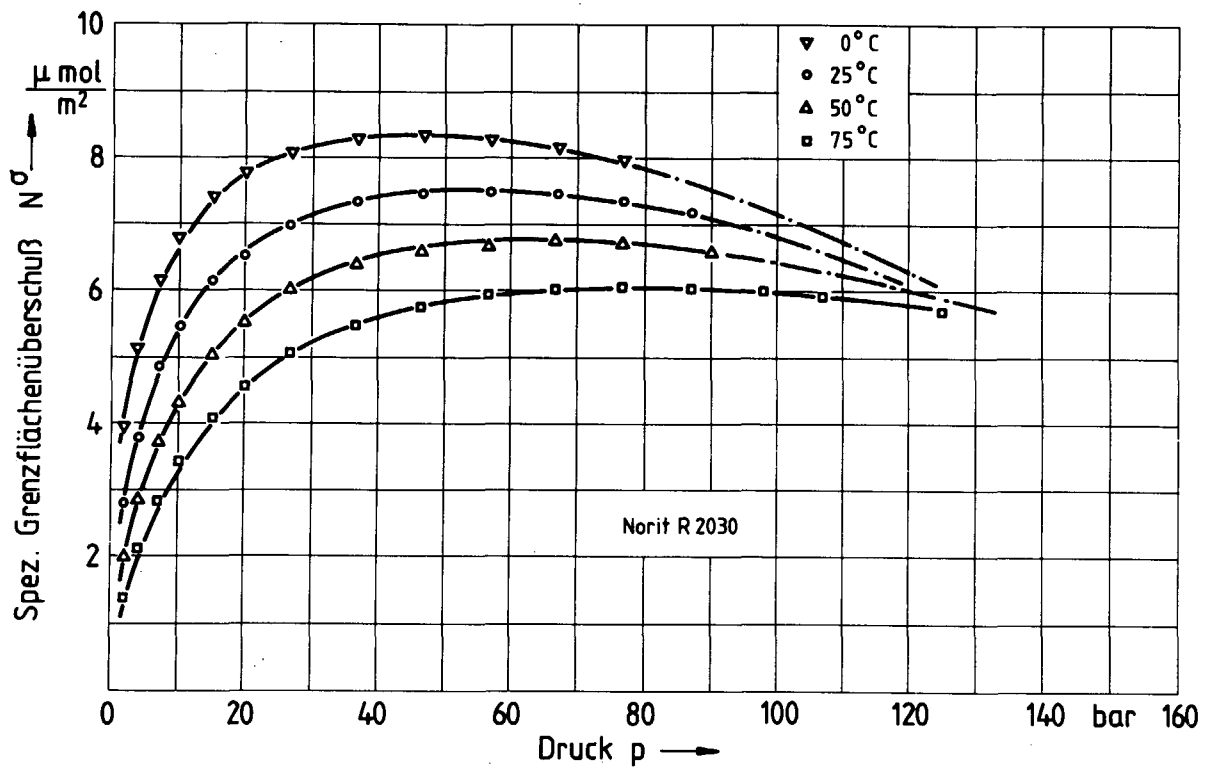
$$N^\sigma = \frac{a_0 \cdot p + a_1 \cdot p^2 + a_2 \cdot p^3}{1 + a_3 \cdot p} \cdot C_i \quad (2)$$

ergibt unter Verwendung der in Tab. 13 angegebenen Parameter eine gute Übereinstimmung zwischen gemessenen und berechneten Werten, wobei auch hier wieder die Abweichungen mit zunehmender Temperatur kleiner werden.

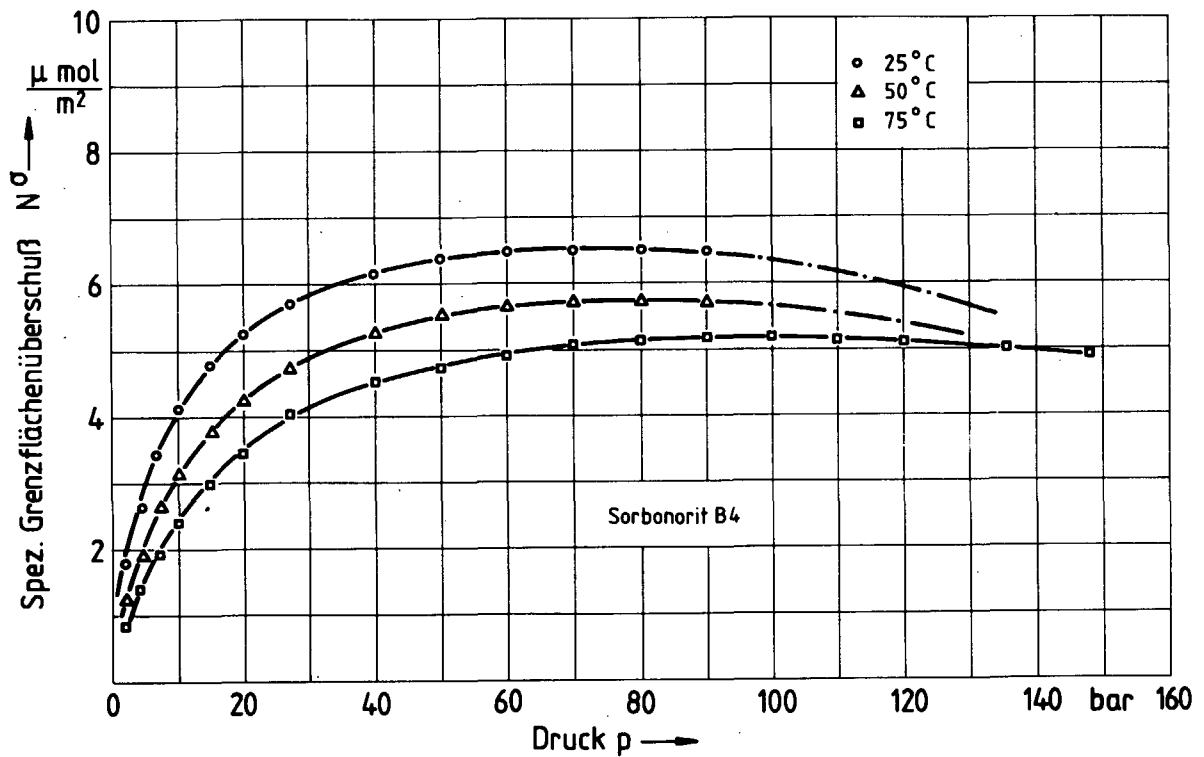
Tabelle 13: Parameter zur Berechnung der spezifischen Grenzflächenüberschuß-Isothermen

NORIT R 2030 $C_1 = 1,71 \cdot 10^{-8}$					
$\theta/^{\circ}\text{C}$	a_0	a_1	$a_2/10^{-3}$	a_3	$p_{\max}$
0	202,871	1,04396	-12,9891	0,43538	80
25	118,147	0,70853	- 7,1963	0,28563	90
50	69,423	0,27564	- 2,3894	0,17768	100
75	42,955	0,11359	- 0,8978	0,11655	140
SORBONORIT B4 $C_2 = 1,085 \cdot 10^{-8}$					
$\theta/^{\circ}\text{C}$	a_0	a_1	$a_2/10^{-3}$	a_3	$p_{\max}$
25	103,295	0,61821	- 5,2328	0,18639	100
50	64,496	0,40815	- 3,0950	0,13160	100
75	38,082	0,08558	- 0,6591	0,07348	150
$p_{\max}$: Grenze des Gültigkeitsbereichs (Meßbereich)					

In Abb. 24 a, b sind für beide untersuchten Aktivkohlen die Grenzflächenüberschuß-Isothermen als Funktion des Druckes dargestellt. Für den hier interessierenden Druckbereich ≤ 60 bar wurden daraus die entsprechenden Grenzflächenüberschuß-Isobaren als Funktion der Temperatur ermittelt (Abb. 25 a, b).

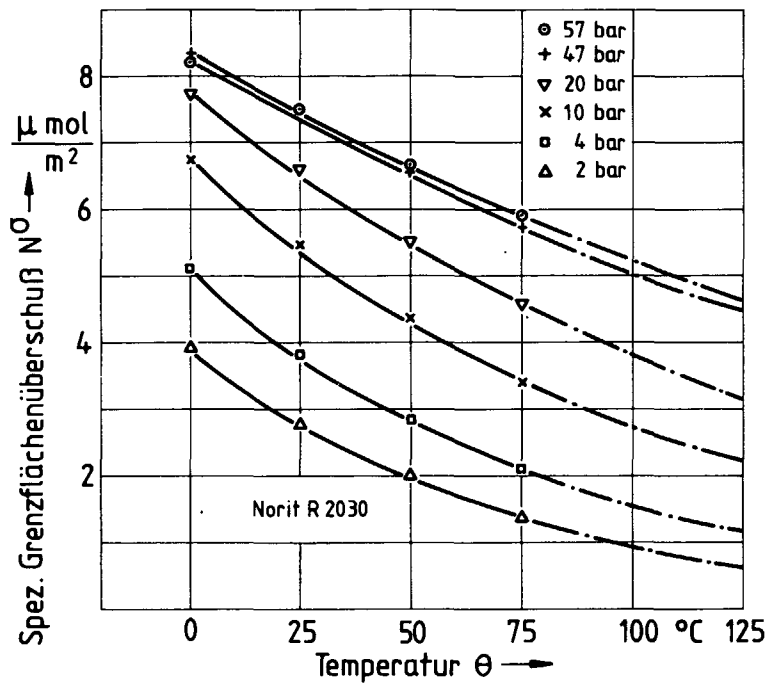


a) System Krypton/R2030

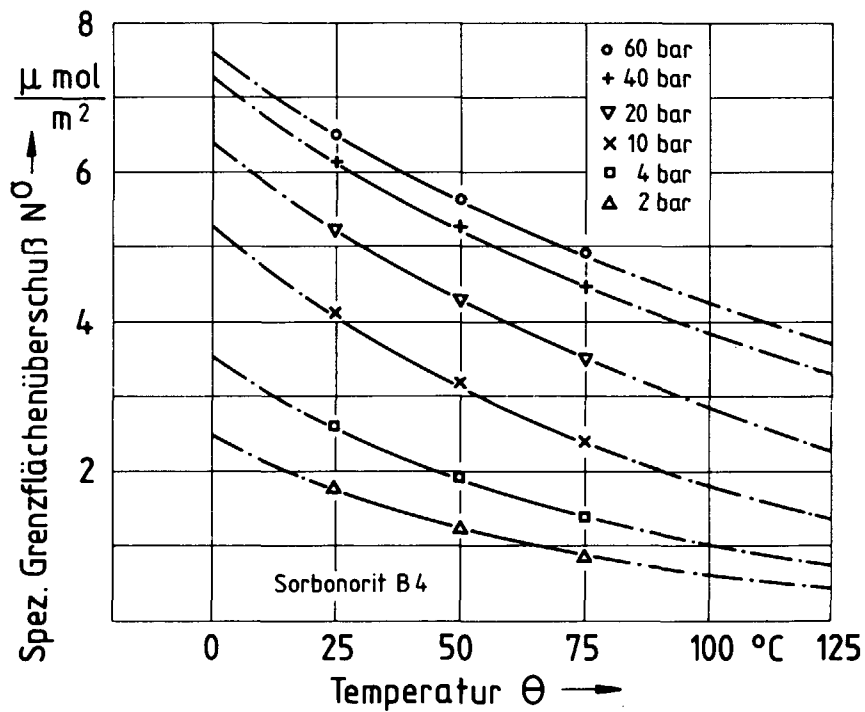


b) System Krypton/Sorbonorit B4

Abb. 24: Spezifische Grenzflächenüberschuß-Isothermen N^σ als Funktion des Druckes



a) System Krypton/R2030



b) System Krypton/Sorbonorit B4

Abb. 25: Spezifische Grenzflächenüberschuß-Isobaren als Funktion der Temperatur

3.3.4 Vergleich der untersuchten Adsorbentien

Die Darstellung des Adsorptionsüberschusses als Grenzflächenüberschuß pro Flächeneinheit hat den Vorteil, daß man bei bekannter spezifischer Oberfläche von Adsorbentien den bei diesen zu erwartenden Adsorptionsüberschuß pro Masseneinheit durch Vergleich mit einem bekannten Referenzsystem abschätzen kann.

Aus Abb. 26 wird ersichtlich, daß das spezifische Adsorptionsvermögen des Referenzsystems (Graphon mit homogener Oberfläche), hier am Beispiel der 25°C-Adsorptionsisothermen gezeigt, bis zu Drücken von ca. 40 bar bzw. 60 bar schlechter ist als das der übrigen Adsorbentien (MS, Aktivkohle mit heterogener Oberfläche).

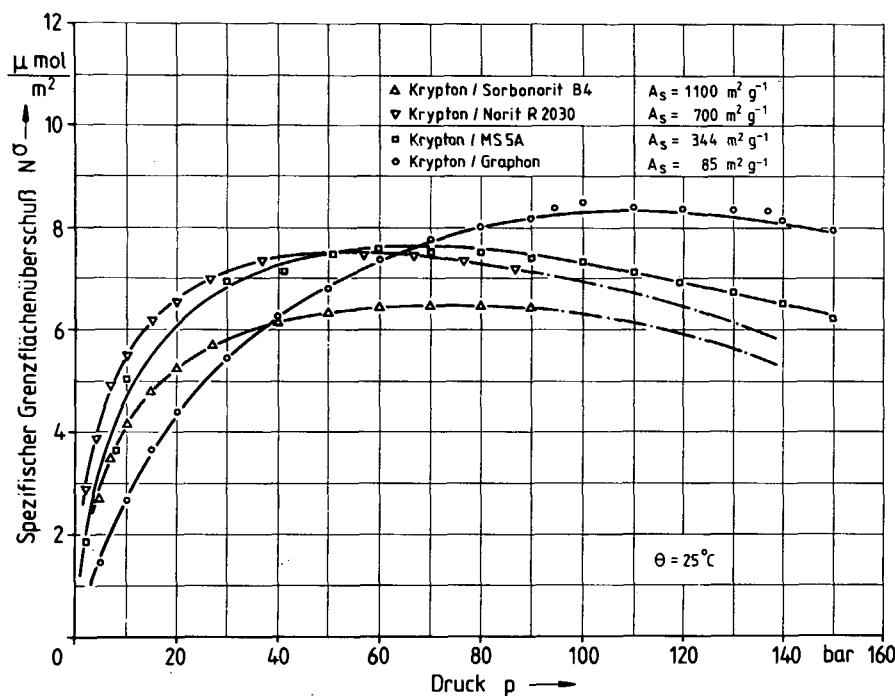


Abb. 26: Vergleich der Grenzflächenüberschuß-Isothermen (25°C) der vier untersuchten Adsorbentien

Bezogen auf die Masseneinheit des jeweiligen Adsorbens bedeutet das, daß die hochporösen Adsorbentien deutlich besser adsorbieren, als es der Erhöhung der angebotenen Oberfläche entspricht. Für einen Druck von 20 bar z. B. zeigt Tab. 14 die experimentellen Daten (N_e^σ , n_e^σ , m_e^σ) und als Vergleich die mit obiger

Annahme anhand der Graphon-Daten berechneten Werte (n_b^σ , m_b^σ) für die übrigen Adsorbentien. Die Berechnung erfolgte durch:

$$n_b^\sigma = N_{\text{GRA}}^\sigma \cdot A_s \quad (3)$$

und

$$m_b^\sigma = m_{\text{GRA}}^\sigma \frac{A_s}{A_{s, \text{GRA}}} \quad (4)$$

wobei für A_s jeweils die spezifische Oberfläche des betrachteten Adsorbens einzusetzen ist.

Tabelle 14: Vergleich der experimentell ermittelten massenspezifischen Adsorptionsüberschüsse mit den anhand der Graphon-Daten berechneten Werten für die Adsorbentien MS5A, R 2030 und Sorbonorit B4

	$\frac{N_e^\sigma}{\mu\text{mol} \cdot \text{m}^{-2}}$	$\frac{n_e^\sigma}{\mu\text{mol} \cdot \text{g}^{-1}}$	$\frac{n_b^\sigma}{\mu\text{mol} \cdot \text{g}^{-1}}$	$\frac{m_e^\sigma}{\text{mg} \cdot \text{g}^{-1}}$	$\frac{m_b^\sigma}{\text{mg} \cdot \text{g}^{-1}}$
Graphon	4,4	374		31,4	
MS 5A	6,8	2353	1514	197,1	127,1
R 2030	6,6	4627	3080	386,8	285,5
Sorbonorit B4	5,3	5775	4840	483,6	406,3

Vergleicht man die experimentell ermittelten mit den abgeschätzten Werten, so wird deutlich, daß solche Abschätzungen konservativ sind. Weiter wird aus den experimentellen Daten ersichtlich, daß die Aktivkohle Sorbonorit B4 massenspezifisch am meisten Krypton adsorbiert, also das effektivste Adsorptionsmittel ist.

Betrachtet man jedoch den pro Volumeneinheit zu erzielenden Adsorptionsüberschuß (Tab. 15), so verschwindet dieser Unterschied in der Effektivität praktisch; bei den gegebenen Parametern ($p = 20 \text{ bar}$, $\theta = 25^\circ\text{C}$) ist die Aktivkohle R 2030 sogar das etwas

effektivere Adsorbens.

Tabelle 15: Vergleich der massenspezifischen mit der volumen-
spezifischen Effektivität der Adsorbentien für
 $p = 20 \text{ bar}$ und $\theta = 25^\circ\text{C}$

	$\frac{n_e^\sigma}{\mu\text{mol}\cdot\text{g}^{-1}}$	$\frac{n_V^\sigma}{\text{mol}\cdot\text{l}^{-1}}$	$\frac{m_M^\sigma}{\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}}$	$\frac{m_V^\sigma}{\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}}$
Graphon	374		31,4	
MS 5A	2353	1,65	197,1	138
R 2030	4627	2,41	386,8	201
Sorbono- rit B4	5775	2,4	483,6	200,7

Dies ist eine Folge der unterschiedlichen Schüttdichte ρ_s , durch die jeweils die pro Volumeneinheit einfüllbare Masse bestimmt wird. Ein anderer Parameter, der die Effektivität wieder zugunsten der Aktivkohle Sorbonorit B4 verschiebt, ist die Eigendichte ρ_t der Adsorbentien. Dies zeigt der Formalismus zur Berechnung eines Druckabsenkungsfaktors bei zusätzlicher Beladung einer Flasche mit einem Adsorbens.

3.3.5 Abschätzung der erreichbaren Druckabsenkung durch Adsorption

Wird eine DGF zusätzlich mit einem Adsorbens gefüllt, so gelten folgende Volumenbilanzen:

$$V_{\text{DGF}} = V_K + V_{\text{ZK}} \quad (5)$$

mit dem Kornvolumen V_K und dem Zwischenkornvolumen V_{ZK} .

Das Kornvolumen kann weiter beschrieben werden durch:

$$V_K = V_P + V_F \quad (6)$$

mit dem dem Gas zugänglichen Porenvolumen V_P (offene Porosität) und dem dem Gas nicht zugänglichen Totvolumen V_F (Festkörpervolumen mit innerer Porosität). Die in das vorgegebene Flaschenvolumen V_{DGF} einfüllbare Masse an Adsorbens (m_A) wird durch die Schüttdichte ρ_s bestimmt, und es gilt:

$$m_A = \rho_s \cdot V_{DGF} \quad (7)$$

Mit der damit gegebenen Masse m_A gilt für die Eigendichte ρ_t des Adsorbens:

$$\rho_t = \frac{m_A}{V_F} \quad (8)$$

Während nun das Totvolumen V_F das dem Gas zur Verfügung stehende Volumen reduziert, wird das Gas im Porenvolumen V_P infolge des Adsorptionspotentials gegenüber dem Zwischenkornvolumen V_{ZK} angereichert. Die Überschussmasse im Porenvolumen ergibt sich zu:

$$M^\sigma = M_{Kr,P} - \rho_{Kr} \cdot V_P \quad (9)$$

mit der Gesamtmasse Krypton ($M_{Kr,P}$) im Porenvolumen und der Gasdichte ρ_{Kr} im Zwischenkornvolumen V_{ZK} .

Maßgebend für die Effektivität eines Adsorbens ist nun das Verhältnis der pro Masseneinheit des Adsorbens gebundenen Überschussmasse Gas ($M^\sigma/m_A = m_M^\sigma$) zu seinem Totvolumen V_F/m_A . Dieses Verhältnis hat die Dimension einer Dichte:

$$\left[\frac{M^\sigma}{m_A} \middle/ \frac{V_F}{m_A} \right] = \frac{M^\sigma}{V_F} = \rho_{Kr}^* \quad (10)$$

Formal läßt sich das reale System daher durch ein Ersatzsystem beschreiben, in dem das Kryptongas im Poren- und Zwischenkornvolumen die Gasdichte ρ_{Kr} und im Totvolumen die Gasdichte ρ_{Kr}^* hat. Der Adsorptionsüberschuß gegenüber einem System mit reiner

Gasfüllung der Dichte ρ_{Kr} beträgt dann

$$\Delta M_{Kr} = (\rho_{Kr}^* - \rho_{Kr}) \cdot V_F \quad (11)$$

bzw. der Adsorptionsüberschuß pro Masseneinheit:

$$\Delta m_M = \frac{\Delta M_{Kr}}{m_A} = \frac{M^\sigma}{m_A} - \frac{\rho_{Kr}}{\rho_t} = m_M - \frac{\rho_{Kr}}{\rho_t} \quad (12)$$

Die Überschußmasse Δm_V bzw. Überschußmenge Δn_V im Einheitsvolumen gegenüber der Masse m_{VO} bzw. Menge n_{VO} im Einheitsvolumen ohne Adsorbens (reine Gasfüllung) beträgt dann:

$$\Delta m_V = \Delta m_M \cdot \rho_s \quad (13)$$

$$= \rho_s \cdot \left(m_M^\sigma - \frac{\rho_{Kr}}{\rho_t} \right) \quad (13a)$$

$$\text{bzw.} \quad \Delta n_V = \Delta m_M \cdot \rho_s \cdot \frac{1}{M} \quad (14)$$

$$= \rho_s \cdot \Delta n_M \quad (14a)$$

$$= \rho_s \cdot \left(n_V^\sigma - \frac{\rho_{Kr}}{\rho_t \cdot M} \right) \quad (14b)$$

Die Gleichungen machen deutlich, daß für die Wirksamkeit eines Adsorptionsmittels neben der Schüttdichte ρ_s auch die Eigendichte ρ_t des Materials von Bedeutung ist.

Anhand der experimentellen Daten lassen sich nun für verschiedene Drücke und Temperaturen die Überschußmengen bzw. Überschußmassen gegenüber einer reinen Gasfüllung berechnen. Definiert man hierbei einen sogenannten Speicherfaktor

$$f_s = \frac{n_{VO} + \Delta n_V}{n_{VO}} = f_s(T, p) \quad (15)$$

so gibt dieser an, um welchen Betrag sich die im Einheitsvolumen speicherbare Gasmenge durch Zugabe eines Adsorbens gegenüber der Gasmenge ohne Adsorbens erhöht.

Tab. 16 zeigt im Vergleich die bei $T = 348 \text{ K}$ (75°C) speicherbaren Molmengen im Einheitsvolumen ohne und mit Adsorbensfüllung sowie die sich ergebenden Speicherfaktoren $f_s = f_s(p; \theta = 75^{\circ}\text{C})$ für die beiden untersuchten Aktivkohlesorten.

Tabelle 16: Speicherbare Molmengen mit und ohne Adsorbens und Speicherfaktor $f_s = f_s(p; \theta = 75^{\circ}\text{C})$

$\frac{p}{\text{bar}}$	$\frac{n_{\text{VO}}}{\text{mol/l}}$ ohne Adsorbens	$\frac{\Delta n_{\text{V}}}{\text{mol/l}}$		Speicherfaktor f_s	
		R 2030	B4	R 2030	B4
20	0,71	1,46	1,45	3,10	3,04
40	1,45	1,63	1,79	2,13	2,23
50	1,85	1,61	1,85	1,87	2,00
60	2,24	1,56	1,87	1,70	1,83
70	2,64	1,49	1,85	1,56	1,70

Danach läßt sich z. B. bei einem Druck von 20 bar die etwa 3-fache Molmenge an Krypton durch Zugabe einer der beiden Aktivkohlesorten speichern. Das entspricht aber in etwa der Molmenge, die sich normalerweise bei gleicher Temperatur ohne Adsorbens bei einem Druck von ca. 60 bar speichern ließe. Bei einer Füllmenge von ca. 2,24 mol/l würde also der Druck von ca. 60 bar auf ca. 20 bar abgesenkt, und der zugehörige Druckabsenkungsfaktor betrüge dann $f_D \approx 3$. Analoge Ergebnisse lassen sich anhand der vorliegenden Adsorptionsdaten auch für andere Temperaturen ermitteln. Speziell für Temperaturen $> 75^{\circ}\text{C}$ müssen die aus den Isothermendaten gewonnenen Adsorptionsisobaren auf die zu erwartenden Temperaturen extrapoliert werden. Da Sorbonorit B4 das etwas effektivere Adsorbens ist, werden für die weitere Abschätzung die auf höhere Temperaturen extrapolierten Isobarendaten (Abb. 27) von Sorbonorit B4 herangezogen.

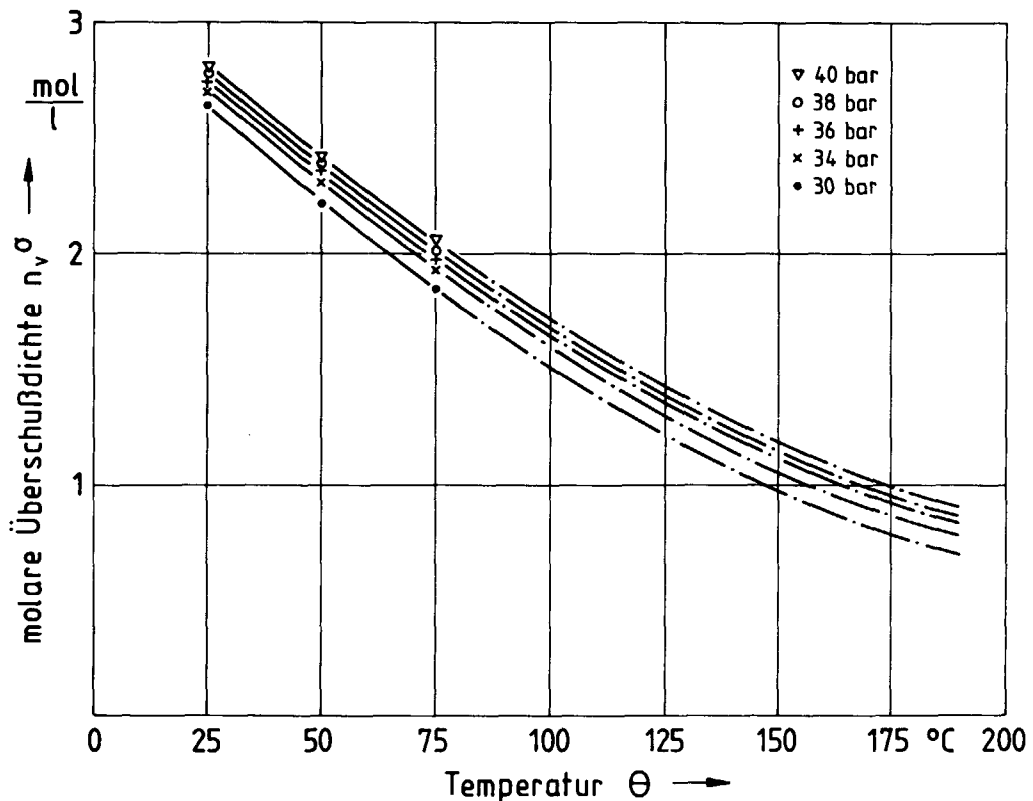


Abb. 27: Überschuß-Isobaren für das Adsorbens Sorbonorit B4 in Abhängigkeit von der Temperatur Θ

3.3.5.1 Temperatur in der Adsorbensschüttung

Für das vorliegende Konzept ist bei den untersten DGF eine mittlere Wandtemperatur von $\Theta_{F,1} \approx 105^\circ\text{C}$ und bei den obersten DGF eine mittlere Wandtemperatur $\Theta_{F,4} \approx 125^\circ\text{C}$ zu erwarten. Das sind Maximalwerte, weil die in die Wärmeabfuhrberechnung aus dem Lager eingehende Umgebungslufttemperatur von 38°C als konservativ anzusehen ist.

Zum Zeitpunkt der Einlagerung muß ein Wärmestrom von $\dot{Q}(t=0) = \dot{Q}_0 = 314 \text{ W}$ abgeführt werden. Ohne Berücksichtigung einer ungleichmäßigen Wärmequellenverteilung über den Radius infolge der temperaturabhängigen Adsorption ergibt sich eine spezifische Wärmeleistung $\phi(t=0) = \phi_0 = 6,28 \text{ W/l}$. Mit dieser vereinfachenden Annahme läßt sich dann die Differentialgleichung des Temperaturfeldes

$$\frac{d^2\theta}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{d\theta}{dr} = - \frac{\phi_o}{\lambda_e} \quad (16)$$

lösen. Mit den Randbedingungen $\theta(r=R_{DGF}) = \theta_{F,4}; \left. \frac{d\theta}{dr} \right|_{r=0} = 0$

lautet die Gleichung des Temperaturfeldes

$$\theta(r) = \frac{\phi_o \cdot R_{DGF}^2}{4 \cdot \lambda_e} \left(1 - \frac{r^2}{R_{DGF}^2} \right) + \theta_{F,4} \quad (17)$$

wobei R_{DGF} der Innenradius der DGF, $\theta_{F,4}$ die aufgeprägte Wandtemperatur und λ_e die effektive Wärmeleitfähigkeit der gasgefüllten Adsorbensschüttung ist. Weiter läßt sich dann die Zentraltemperatur durch

$$\theta_{\max} = \theta(r=0) = \theta_{F,4} + \frac{\phi_o \cdot R_{DGF}^2}{4 \cdot \lambda_e} \quad (18)$$

berechnen, wenn die effektive Wärmeleitfähigkeit bekannt ist.

Wärmeleitfähigkeiten von Aktivkohleschüttungen unterschiedlicher Zusammensetzung und Schüttdichte (ρ_s) wurden in /16/ untersucht. Dort wird darauf hingewiesen, daß mit stranggepreßter zylindrischer Aktivkohle besonders dichte und gut wärmeleitende Schüttungen hergestellt werden können. Dies wurde auch durch die Meßergebnisse bestätigt. Die Schüttungen mit stranggepreßter Aktivkohle (RBL 4) in Verbindung mit zusätzlich eingerüttelten Graphitkörnern (S 1425) wiesen dabei die höchsten Wärmeleitfähigkeiten auf ($\lambda_e \approx 40 \cdot 10^{-4} \text{ W cm}^{-1} \text{ K}^{-1}$). Zwar führt das Einrütteln von Graphit zur Erhöhung der Schüttdichte ρ_s und zur Verbesserung der Wärmeleitfähigkeit λ_e , aber das Kryptonaufnahmevermögen einer solchen Schüttung wird im Vergleich zu einer reinen Aktivkohleschüttung gleicher Schüttdichte ρ_s schlechter. Die Möglichkeit, durch Einrütteln kleiner Aktivkohlefraktionen die Schüttdichte ρ_s zu erhöhen und damit die Wärmeleitfähigkeit λ_e zu verbessern, wurde nur ansatzweise weiterverfolgt.

Bei vergleichbaren Eigenschaften der Aktivkohlesorten RBL 4 und Sorbonorit B4 /17/, scheint die Wärmeleitfähigkeit von

$\lambda_e \approx 40 \cdot 10^{-4} \text{ W cm}^{-1} \text{ K}^{-1}$ auch durch Zugabe kleinerer Aktivkohlefraktionen erreichbar zu sein.

Legt man diesen Wert zugrunde, so ergibt sich eine Zentraltemperatur $\theta_{\max}$ von ca. 188°C bzw. eine Temperaturdifferenz $\Delta\theta = \theta_{\max} - \theta_{F,4}$ von ca. 63°C . Durch die stärkere Adsorption des Krypton infolge fallender Temperatur zur Wand hin wird die spezifische Wärmeleistung zur Wand hin ansteigen. Dadurch wird das Temperaturprofil sicher keine quadratische Abhängigkeit vom Radius zeigen. Vielmehr wird es in Wandnähe steiler und in Achsennähe flacher verlaufen /16/, /18/.

3.3.5.2 Druckabsenkungsfaktor

Mit dem eingangs entwickelten Formalismus läßt sich bei konstanter Temperatur in einer gasgefüllten Adsorbensschüttung mit Hilfe der Adsorptionsisobaren leicht ein Druckabsenkungsfaktor f_D angeben. Wegen der nicht konstanten Temperatur in einer mit radioaktivem Gas gefüllten DGF wird hier die Abschätzung eines Druckabsenkungsfaktors f_D grafisch-analytisch durchgeführt.

In Abb. 28 sind unter Annahme der quadratischen Temperaturabhängigkeit vom Radius r die pro Volumeneinheit speicherbaren Mengen $n_{V,r}$ (molare Dichte) für verschiedene Drücke aufgetragen. Hierbei gilt

$$n_{V,r}(r)_{p=\text{const}} = n_V^\sigma + \frac{p}{R \cdot T} \quad (19)$$

Die bei einem bestimmten Druck p in einer DGF speicherbare Gasmenge läßt sich dann durch

$$n_{\text{DGF}} = \int_0^{R_{\text{DGF}}} n_{V,r}(r) \cdot dV \quad (20)$$

berechnen, wobei der Wert des Integrals mit $88,6 \text{ mol}$ vorgegeben und damit die entsprechende Isobare zu ermitteln ist. Berücksichtigt man, daß dem Gas durch das Totvolumen V_F nur ein reduziertes Volumen

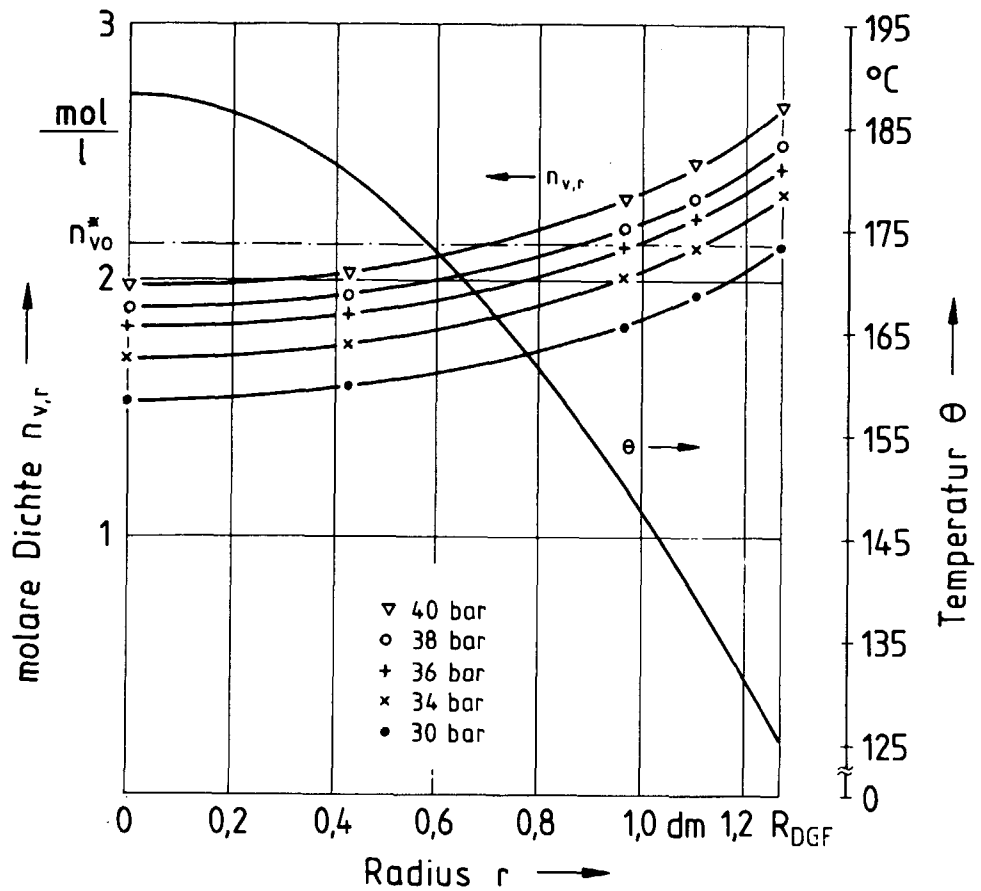


Abb. 28: Molare Dichte als Funktion von r für verschiedene Drücke bei Annahme eines quadratischen Temperaturprofils

$$V_{P,ZK} = V_P + V_{ZK} = V_{DGF} - V_F \approx 41,3 \cdot l \quad (21)$$

zur Verfügung steht, ergibt sich hierbei gegenüber der reinen Gasfüllung bei 50 l ($n_{V0} = 1,76 \text{ mol/l}$) eine höhere mittlere molare Dichte $n_{V0}^* = 2,14 \text{ mol/l}$, die für den weiteren Vergleich herangezogen werden muß. Für eine DGF gilt dann

$$n_{V0}^* = \frac{\int_0^{R_{DGF}} n_{V,r}(r) \cdot dV}{V_{P,ZK}} \quad (22)$$

Bei Kenntnis der Isobarenfunktion $n_{V,r}(r)_{p=\text{const}}$ kann das Integral bestimmt werden. Die in Abb. 28 dargestellten Isobaren lassen sich mit ausreichender Genauigkeit durch

$$n_{V,r}(r) = \frac{n_{V,W} - n_{V,Z}}{R_{DGF}^2} r^2 + n_{V,Z} \quad (23)$$

analytisch beschreiben und man erhält

$$n_{\text{DGF}} = \frac{V_{\text{P,ZK}}}{V_{\text{DGF}}} \int_0^{R_{\text{DGF}}} n_{\text{V},r}(r) \cdot dV \quad (24)$$

Die Integration liefert

$$n_{\text{DGF}} = V_{\text{P,ZK}} \frac{n_{\text{V,W}} + n_{\text{V,Z}}}{2} \quad (25)$$

mit $n_{\text{V,W}}$ als molarer Dichte an der Wand ($r = R_{\text{DGF}}$) und $n_{\text{V,Z}}$ als molarer Dichte im Zentrum ($r = 0$), und weiter

$$\frac{n_{\text{DGF}}}{V_{\text{P,ZK}}} = n_{\text{VO}}^* = \frac{n_{\text{V,W}} + n_{\text{V,Z}}}{2} \quad (26)$$

Gleichung (26) ist bei ca. 36 bar erfüllt, denn aus Abb. 28 entnimmt man für $n_{\text{V,W}} \approx 2,44$ mol/l und für $n_{\text{V,Z}} \approx 1,82$ mol/l. Eingesetzt in die Gleichung ergibt sich für n_{VO}^* der Wert von 2,14 mol/l.

Die vorgegebene Gasmenge von 88,6 mol pro DGF läßt sich durch zusätzliche Befüllung mit einem Adsorbens (hier Sorbonorit B4) bei ca. 36 bar gegenüber ca. 61 bar bei reiner Gasfüllung einlagern. Der Druckabsenkungsfaktor für die oberste DGF ergibt sich dann bei der Einlagerung zu

$$f_{\text{D}} \approx \frac{61 \text{ bar}}{36 \text{ bar}} \approx 1,7$$

Trotz der getroffenen vereinfachenden Annahmen gibt der abgeschätzte Wert die richtige Größenordnung an. Deshalb wurde auf eine erneute Abschätzung unter Berücksichtigung der ungleichmäßigen Wärmequellenverteilung verzichtet. Die Lösung der Differentialgleichung des Temperaturfeldes mit einem quadratischen Ansatz der Quellverteilung als Störglied, führt zwar sicher zu einer besseren Anpassung an die tatsächlich vorliegenden Verhältnisse, verändert aber den Wert nur unwesentlich. Nimmt man eine über den Radius konstante Temperatur von 125°C

bzw. 190°C an, so liegt der Druckabsenkungsfaktor zwischen $1,4 \leq f_D \leq 2$. Zusätzlich sind natürlich die Unsicherheiten bezüglich der extrapolierten Isobarendaten vorhanden.

Wie schon angedeutet, läßt sich eine weitere Steigerung des Druckabsenkungsfaktor f_D durch Erhöhung der Schüttdichte ρ_s erreichen. Das bedeutet zwar gleichzeitig eine Erhöhung des Totvolumens V_F , aber dabei wird das effektivere Porenvolumen V_P und damit die angebotene Oberfläche auf Kosten des Zwischenkornvolumens V_{ZK} erhöht.

Auf Anfrage stellte die Firma Norit auch Aktivkohlesorten mit körniger Struktur zur Verfügung, deren Adsorptionseigenschaften mit der jeweils gegenübergestellten Sorte in extrudierter Form vergleichbar sind. Neben den Schüttdichten der reinen Fraktionen wurden die Schüttdichten der Kombinationen bestimmt. Die Schüttdichten der extrudierten Sorten lagen dabei etwas höher als vom Hersteller angegeben (Tab. 17).

Tabelle 17: Schüttdichten von Aktivkohleschüttungen

Lieferform Stäbchen	$\frac{\rho_s}{\text{g cm}^{-3}}$	Lieferform Körner	$\frac{\rho_s}{\text{g cm}^{-3}}$	·/. Kombina- tion	$\frac{\rho_s}{\text{g cm}^{-3}}$
Norit R1 Extra Ø 1 mm	0,43	AZO Ø 50µm-250µm	0,29	R1/AZO	0,5
Norit R 2030 Ø 3 mm	0,53	Elorit Ø 0,1mm-0,5mm	0,32	R 2030/ Elorit	0,64
Sorbonorit B4 Ø 4 mm	0,44	PK Ø 0,25mm-1mm	0,26	B4/PK	0,55

Die Bestimmung der Schüttdichten erfolgte nach einer Prüfvorschrift des Arbeitskreises Kohlenstoff (AKK) der Deutschen Keramischen Gesellschaft /19/.

Die Ergebnisse lassen erkennen, daß durch Optimierung der Adsorbenszugabe das Angebot an aktiver Oberfläche noch erhöht wer-

den kann. Überschlägige Abschätzungen führen zu erreichbaren Druckabsenkungsfaktoren von $f_D > 2$.

3.3.6 Vor- und Nachteile der adsorptiven DGF-Lagerung

Die Vorteile liegen auf der Hand. Die Druckbelastung wird von der Befüllung an deutlich verringert. Mit zunehmender Lagerzeit verbessert sich der adsorptive Effekt aufgrund abnehmender Temperaturen weiter. Während der Druck bei der reinen Gaslagerung nach 4 - 5 Halbwertszeiten (Zerfallswärmeleistung ca. 20 W - 10 W) nur um den Faktor 1,5 auf ca. 42 bar abfällt, wird der Druck bei adsorptiver Befüllung nach überschlägiger Abschätzung unter 10 bar abgefallen sein.

Weiter werden damit mögliche Leckagen reduziert, denn der ausströmende Leckagestrom ist direkt proportional zum anstehenden Druck. Darüber hinaus stellt die Adsorbensschüttung einen Strömungswiderstand für das Gas auf dem Weg zur Lecköffnung dar.

Obwohl schon bei der reinen Druckgaslagerung ein die Sicherheit mindernder Korrosionsangriff durch Rb kaum zu befürchten ist, wird in diesem Zusammenhang ein zusätzlicher Vorteil deutlich.

Aufgrund der Kr-Anreicherung im Porenvolumen wird dort auch der größte Teil des Rb gebildet und bleibt, wie Untersuchungen zeigen /16/, bis zu Temperaturen von etwa 400°C dort fixiert. Die Rb-Kontamination der DGF-Wandung wird damit bei einem Oberflächenverhältnis von Adsorbens/DGF $> 10^7$ auf ein Minimum reduziert.

Als Nachteil der adsorbensgefüllten DGF-Lagerung muß lediglich die Brennbarkeit der Aktivkohle angesehen werden. Bei Störfällen, die zur Zerstörung der DGF führen, könnte die Aktivkohle über Rb-Luftsauerstoff-Reaktionen entzündet werden und größere Störfallauswirkungen einleiten. Dieser Aspekt wird im Rahmen der Störfallanalysen näher betrachtet.

4. SICHERHEITSUNTERSUCHUNGEN - STÖRFALLANALYSE

4.1 Methodik

Das Konzept zur langfristigen Lagerung von Kr-85 wurde im zweiten Kapitel beschrieben, so daß eine Störfallanalyse und damit eine sicherheitstechnische Beurteilung durchgeführt werden kann. Die Störfallanalyse hat zwei Aussagen zum Ziel:

- Die möglichst vollständige Identifizierung der denkbaren Störfallabläufe, wodurch eine Auswahl der wesentlichen Störfälle ermöglicht wird.
- Die Erarbeitung von Ablauf- bzw. Folgenanalysen für die wesentlichen Störfälle.

Die Bearbeitung erfolgt im Rahmen dieser Arbeit in der nachstehenden Schrittfolge:

- Ermittlung der Aktivitätsinventare sowie Charakterisierung der Barrieren und ihrer Zustände.
- Identifizierung von Störfällen mit Hilfe der Freisetzungsbbaumethode.
- Ermittlung von Eintrittshäufigkeiten wesentlicher Störfälle mit Hilfe der Fehlerbaumanalyse.
- Untersuchung der Schadensauswirkung.

Auf der Basis der für die Analyse des Lagers wesentlichen Auslegungsdaten werden die vorhandenen Aktivitätsinventare zusammengestellt und deren Einschluß beschrieben. Die vorgesehene Sicherheitseinschlüsse werden jeweils in einem Barrierendiagramm schematisch dargestellt. Diese Darstellung ermöglicht die Erfassung aller Freisetzungspfade, auf denen Aktivität in die Umgebung gelangen kann.

Davon ausgehend werden dann Freisetzungsbäume konstruiert, die mit dem unerwünschten Ereignis "Freisetzung von Kr-85 in die Atmosphäre" beginnen und systematisch die Ereigniskombinationen

ermitteln, die das unerwünschte Ereignis auslösen. Dazu werden die realen Komponenten des Systems in einer logischen Struktur miteinander verknüpft. Die Freisetzungsbäume werden im allgemeinen mit dem Zustandekommen des Versagens der primären Barrieren abgeschlossen, ohne daß über die Ursachen des Versagens dieser Barrieren schon Einzelheiten ausgeführt werden. Hierdurch wird es möglich, die Freisetzungsmengen der jeweiligen Freisetzungspfade anzugeben.

Die Freisetzungsbäume werden dann durch sog. Häufigkeitsbäume (Fehlerbäume) erweitert, um dem Ereignis "Versagen einer Barriere" eine Ausfallhäufigkeit zuzuordnen. Das Ereignis ("Versagen einer Barriere") wird hierbei soweit analysiert, bis man auf Basisereignisse stößt, für die Ausfalldaten existieren. Hiermit wird für ausgewählte Fälle eine Abschätzung der Ausfallhäufigkeit möglich.

Der von Farmer /20/ in die Kerntechnik eingeführte Begriff des Risikos (R) als Produkt aus Häufigkeit (H) und Schadensauswirkung (S) eines Störfalles

$$R = H \cdot S \quad (27)$$

läßt sich durch Kombination der zu erstellenden Freisetzungs- und Fehlerbäume quantifizieren und zur sicherheitstechnischen Bewertung heranziehen.

Wegen der Schwierigkeiten bei der Beschaffung von belastbaren Ausfalldaten für Basisereignisse wird die probabilistische Betrachtungsweise, d. h. die Verknüpfung der beiden Methoden zur Ermittlung von Risikowerten, nicht angewandt.

4.2 Inventare und Barrieren

4.2.1 Beschreibung der zu betrachtenden Radioaktivitätsinventare

Die Menge des radioaktiven Gesamtinventars des Lagers hängt vom Beladungszustand ab und wird deshalb für Störfallbetrachtungen in Einzelinventare unterschiedlicher Gefährdungskategorien aufgeteilt.

In der Betriebsphase des Lagers ($t_B \leq 15a$) werden pro Jahr ca. 85 DGF mit einem Inventar von $I_{FO} = 7,4 \cdot 10^{15}$ Bq in eine Lagerzelle eingelagert. Entsprechend dem radioaktiven Zerfall nimmt das Inventar einer DGF nach Gl. 28

$$I_F(t) = I_{FO} \cdot e^{-\lambda(t-t_E)} \quad t_E \leq t \leq t_{LE} \quad (28)$$

mit $\lambda = 0,0644 \text{ a}^{-1}$

t in a

t_E = Einlagerungszeitpunkt der jeweiligen DGF $0 \leq t_E \leq t_B$

t_{LE} = Ende Lagerzeit $t_{LE} \geq 115 \text{ a}$

ab. Bei Störfällen während der Handhabung wird wegen $t_H \ll T_{1/2}$ (t_H = Manipulationszeit während der DGF-Einlagerung) mit einem Inventar von $I_{FO} = 7,4 \cdot 10^{15}$ Bq gerechnet.

Eine Lagerzelle hat 216 Lagerpositionen, d. h. bei $N_a = 85 \text{ DGF a}^{-1}$ ist eine Zelle nach ca. 2,5 a voll belegt. Die zeitliche Abhängigkeit der Zelleninventare I_{LZi} ($i = 1, 2 \dots 6$) läßt sich durch

$$I_{LZi}(t) \approx \frac{I_{Fa}}{\lambda} (1 - e^{-\lambda(t-t_{ZAi})}) \quad t_{ZAi} \leq t \leq t_{ZEi} \quad (29)$$

mit $I_{Fa} = N_a \cdot I_{FO} = 6,2 \cdot 10^{17} \text{ Bq a}^{-1}$

i = Zellennummer

t_{ZAi} = Belegungsanfang der i-ten Zelle

t_{ZEi} = Belegungsende der i-ten Zelle

beschreiben; nach vollständiger Belegung ist jeweils ein Inventar von $I_{LZO} \approx 1,5 \cdot 10^{18}$ Bq eingelagert. Entsprechend dem radioaktiven Zerfall nimmt dann das jeweilige Inventar nach Gl. 30

$$I_{LZi}(t) = I_{LZO} e^{-\lambda(t-t_{ZEi})} \quad t_{ZEi} \leq t \leq t_{LE} \quad (30)$$

ab. Nach Belegung der letzten Zelle (I_{LZ6}) ist das Inventar der ersten Zelle bereits auf $I_{LZ1} \approx 6,7 \cdot 10^{17} \text{ Bq}$ abgeklungen.

Während der Betriebsphase läßt sich das Gesamtinventar I_{LB} des Lagers durch Gl. 31 mit

$$I_{LB}(t) \approx \frac{I_{Fa}}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t}) \quad 0 \leq t \leq t_B \quad (31)$$

beschreiben. Am Ende der Betriebsphase ist im Lager ein Gesamtinventar von $I_{LBO} \approx 6 \cdot 10^{18}$ Bq vorhanden und nimmt dann in der anschließenden Lagerphase entsprechend Gl. 32

$$I_{LL}(t) = I_{LBO} e^{-\lambda(t-t_B)} \quad t_B \leq t \leq t_{LE} \quad (32)$$

ab.

Um die Zeitabhängigkeit zu berücksichtigen, wird bei nicht mit der Handhabung zusammenhängenden Störfällen von mittleren Inventaren nach Gleichung 33 ausgegangen.

$$\bar{I} = \frac{1}{t_2 - t_1} \int_{t_1}^{t_2} I(t) dt \quad (33)$$

Damit lassen sich für die 15-jährige Betriebsphase des Kr-Lagers folgende Aktivitätsinventare angeben:

$\bar{I}_{LB} = 3,5 \cdot 10^{18} \text{ Bq}$	für Freisetzen, die das gesamte Lagerinventar betreffen
$\bar{I}_{LZ} = 1,2 \cdot 10^{18} \text{ Bq}$	für Freisetzen, die ein Zelleninventar betreffen ($\bar{I}_{LZ} = \bar{I}_{LB} / \bar{N}_Z$, $\bar{N}_Z = 3$)
$\bar{I}_{FB} = 5,4 \cdot 10^{15} \text{ Bq}$	für Freisetzen, die bereits eingelagerte DGF betreffen ($\bar{I}_F = \bar{I}_{LB} / \bar{N}_{DGF}$, $\bar{N}_{DGF}^L = 648$)

Für die anschließende mindestens 100-jährige Lagerphase gilt dann:

$\bar{I}_{LL} = 9,3 \cdot 10^{17} \text{ Bq}$	für Freisetzen, die das gesamte Lagerinventar betreffen
$\bar{I}_{LZL} = 1,6 \cdot 10^{17} \text{ Bq}$	für Freisetzen, die ein Zelleninventar betreffen
$\bar{I}_{FL} = 7,2 \cdot 10^{14} \text{ Bq}$	für Freisetzen, die eine DGF betreffen

4.2.2-----Barrieren gegen die Freisetzung von Kr-85

4.2.2.1 Barrierenschema

Das Barrierenschema weist die konstruktiv vorgegebenen aktiven und passiven Barrieren aus und lokalisiert den Ort des Radioaktivitätsinventars. Die grafische Darstellung ermöglicht es, die Freisetzungspfade für die unterschiedlichen Kombinationsmöglichkeiten von Barrierenversagen anschaulich zu verfolgen. Die Kennzeichnung der Barrieren erfolgt durch B N.M.L., mit N, M, L jeweils 1, 2, 3

N bezeichnet hierbei die einschließende Barriere oder das Rückhaltesystem

M bezeichnet die Aufteilung der Barriere N in mehrere Bereiche oder Einzelkomponenten mit unterschiedlicher Rückhaltewirkung

L kennzeichnet unterschiedliche Zustände, die eine Barriere einnehmen kann. Hierbei werden die Zustände intakt und defekt unterschieden

Die Barrierenzustände werden in der Barrierenbeschreibung für das Lager aufgelistet und erläutert.

Versagenszustände von Barrieren mit idealem Barrierencharakter (vollständige Umschließung) im Normalzustand (Zellenboden, Gebäudebeton, Behälter) werden nur aufgeführt, sofern ein Versagen anzunehmen ist. Für den Gebäudebeton wird dies nicht angenommen, da das Lager gegen Einwirkungen von außen ausgelegt ist.

4.2.2.2 Barrierenbeschreibung

Das folgende Kapitel enthält eine Beschreibung der Barrieren und ihrer Zustände. Auf die damit verknüpften Freisetzungsbruchteile wird im Anschluß eingegangen. In den Abbildungen 29 bis 30 sind die für die Störfallanalyse wesentlichen Barrieren schematisch dargestellt.

B1-Druckgasflasche

Je nach Zeitpunkt umschließt die DGF das Inventar I_{FO} , $\bar{I}_{FB}$ oder $\bar{I}_{FL}$ (Kap. 4.2.1). Sie besteht aus den zwei parallel liegenden Teilbarrieren Flaschenkörper (B 1.1) und Flaschenventil (B 1.2).

Der Flaschenkörper besitzt - ebenso wie das Flaschenventil - ein kontinuierliches Spektrum von Barrierenzuständen, das aus Gründen der Einfachheit auf drei Zustände reduziert wird:

Im Normalzustand stellt der Flaschenkörper eine absolute Barriere ohne Freisetzung dar, was als Barrierenzustand B 1.1.1 definiert wird.

Der Barrierenzustand B 1.1.2 wird eingenommen bei einer Leckage aus einer kleinen Schadensöffnung, wobei genügend Zeit verbleibt, das restliche Inventar in eine intakte Flasche umzufüllen.

Der Barrierenzustand B 1.1.3 bedeutet einen Riß im Flaschenkörper bzw. ein Zerplatzen, was mit einem plötzlichen Freisetzen des gesamten Inventars gleichzusetzen ist.

Das Flaschenventil B 1.2 hat im Normalzustand eine maximale Leckrate von $1,3 \cdot 10^{-8}$ mbar·l/s, der entsprechende Barrierenzustand wird als B 1.2.1 bezeichnet.

Der Barrierenzustand B 1.2.2 tritt ein bei einer erhöhten Leckage durch das Ventil.

B2-Transportbehälter

Der Transportbehälter dient zum innerbetrieblichen Transport einer DGF von der Füllstation zum Lagergebäude. Er stellt eine gasdichte Umschließung der DGF im Fall eines Lecks dar (zweite Barriere) und gewährleistet die Strahlenabschirmung.

Der Transportbehälter umschließt die Barriere B1 mit dem Inventar I_{FO} und besteht aus den parallel liegenden Teilbarrieren Behälterwand und -boden (B 2.1) sowie Behälterdeckel (B 2.2). Der Behälter wird nur in intaktem Zustand in die Anlieferungszone gebracht und kann somit als dicht angesehen werden. Bei einem Vorfall während des internen Transports (Transportunfall) wird der Behälter nicht in das Lagergebäude gebracht, sondern zur Abfüllstation zurücktransportiert. Zu einer Freisetzung kann

es daher nur beim Öffnen des Behälterdeckels kommen.

Im Barrierenzustand B 2.2.1, der das Öffnen des Behälterdeckels während des Anlieferungs Vorgangs beschreibt, kommt es bei defekter Barriere B1 zur Freisetzung von Krypton in die Anlieferungszelle (B4).

B3-Gebäudebelüftung (Unterdruckstaffelung)

Durch die gestaffelte Unterdruckhaltung (vgl. Kap. 2.2.3) wird das Verschleppen von Radioaktivität in Gebäudebereiche verhindert, die dem Personal zugänglich sind. Ein Ausfall der Unterdruckhaltung braucht im Rahmen dieser Analyse nicht betrachtet zu werden, da er nicht zu einer Freisetzung von Kr-85 in die Umgebung führt.

Die aus den 3 Druckzonen abgezogene Luft wird im Normalfall über den Kamin (B 3.2) an die Umgebung abgegeben. Die Funktion der Abluftklappen (B 3.1) besteht darin, im Fall eines Lecks die Abgabe der aus der Druckzone 3 (Lagerzellen, Umfüllzelle) abgezogenen Luft über den Kamin zu unterbinden und den Luftstrom in die Abgasreinigungsanlage (TTA) der Wiederaufarbeitungsanlage umzuleiten (vgl. Abb. 2).

Der Barrierenzustand B 3.1.1 ist der Zustand, der eingenommen wird, wenn die Abluftklappen auf Anforderung funktionieren. Der Barriere wird dann eine Freisetzung entsprechend dem DF der Abgasreinigungsanlage zugeordnet.

Der Barrierenzustand B 3.1.2 bedeutet das Versagen der Abluftklappen auf Anforderung, d. h. Freisetzung über den Kamin.

Dem Abluftkamin wird im Normalbetrieb der Barrierenzustand B 3.2.1 mit einer Freisetzung entsprechend den dazugehörigen Ausbreitungsparametern zugeordnet.

Der Barrierenzustand B 3.2.2 tritt bei einer Zerstörung des Abluftkamins (z. B. durch Einwirkung von außen) ein, was mit einer anderen Freisetzung entsprechend der geringeren Freisetzungshöhe verbunden ist.

B4-Anlieferungs- und Inspektionszelle

Die Anlieferungszelle und die Inspektionszelle mit ihren Öffnungen (Zellentor und Deckenstopfen) stellen eine im Normal-

zustand dichte Umschließung dar mit dem maximalen Radioaktivitätsinhalt I_{FO} . In die Zellen freigesetztes Kr-85 wird mit der Abluft (B3) über den Kamin an die Umgebung abgegeben. Da das Lagergebäude darüberhinaus gegen äußere Einwirkungen gesichert ist, braucht dem Zellenbeton (B 4.1,...) kein Versagen unterstellt zu werden. Dem Zellentor (B 4.2) werden 2 Zustände zugeordnet, die bei Ausfall der Belüftung zu einer direkten Abgabe von Kr-85 an die Umgebung (Freisetzungshöhe $H = 2 \text{ m}$) führen können:

Der Barrierenzustand B 4.2.1 bezeichnet den Normalzustand des geschlossenen Zellentors, bei dem keine Abgabe zu erwarten ist.

Der Barrierenzustand B 4.2.3 beschreibt das Offenstehen des Tors, wodurch das gesamte freigesetzte Inventar entweichen kann.

Das unbeabsichtigte Öffnen des Deckenstopfens (B 4.3) kann nicht zu einer direkten Abgabe von Radioaktivität in die Umgebung führen. Daher werden keine damit zusammenhängenden Barrierenzustände untersucht.

B5-Umfüllzelle und Beschickungsraum

Umfüllzelle und Beschickungsraum können als dichte Umschließung mit dem maximalen Kr-85-Inventar I_{FO} angesehen werden, die gegen Einwirkungen von außen ausgelegt ist. In die Zelle bzw. den Raum freigesetztes Kr-85 wird mit der Abluft (B3) über den Kamin an die Umgebung abgegeben. Ein Versagen des Zellenbetons (B 5.1) braucht daher nicht betrachtet zu werden.

Die Zellendurchführungen (B 5.2) stellen keine mögliche Verbindung zur Umgebung dar, ein Defekt kann daher nicht zur direkten Abgabe von Kr-85 an die Umgebung führen. Barrierenzustände werden deshalb an dieser Stelle nicht betrachtet.

B6-Lagerzelle

Die Lagerzellen gehören der Druckzone 3 an und dienen der gegen äußere Einwirkung geschützten langfristigen Aufbewahrung und Kühlung der DGF. Die Wärmeabfuhr erfolgt durch Wärmetauscherwände an die Umgebungsluft. Jede Zelle kann maximal 216 DGF aufnehmen.

Möglicherweise in die Zelle freigesetztes Kr-85 wird mit der Abluft (B3) über den Kamin oder in die Abgasreinigungsanlage abgegeben. Da durch eine Undichtigkeit im Zellenbeton (B 6.1) außerdem in der Regel keine direkte Verbindung zur Umgebung hergestellt wird, braucht ein Versagen dieser Barriere nicht weiter betrachtet zu werden.

Die Wärmetauschwände (B 6.2) stehen demgegenüber in direktem Kontakt mit der Umgebungsluft. Für sie werden 2 Barrierenzustände definiert, die beim Versagen von B1 zu einer Abgabe von Kr-85 über die Kühlluftschächte führen können (Freisetzungshöhe $H \approx 20$ m).

Im Normalzustand mit funktionierender Unterdruckhaltung stellen die Wärmetauscherwände eine absolute Barriere ohne Freisetzung dar, was als Barrierenzustand B 6.2.1 definiert wird.

Im Barrierenzustand B 6.2.2, der ein Leck in einer Wärmetauscherwand beschreibt, kommt es bei Ausfall der Unterdruckhaltung zu einer Abgabe von Kr-85 über die Kühlluftschächte.

Die Deckenstopfen (B 6.3) haben keine unmittelbare Verbindung zur Umgebung, sondern führen in die Druckzone DZ 2. Daher wird ein Versagen dieser Barriere nicht weiter untersucht.

B7-Gebäude

Die Zellen und Räume werden von einer äußeren Betonschale umschlossen, die das Lager vor Einwirkungen von außen schützt. Da das in das Gebäude freigesetzte Krypton unmittelbar mit der Abluft in die Umgebung abgegeben wird, werden Leckagen durch den Gebäudebeton (B 7.1) und durch Gebäudezugänge nicht weiter betrachtet.

Den Kühlluftschächten (B 7.3) werden in diesem Zusammenhang keine Rückhalteeigenschaften zugeordnet.

Hiermit sind alle relevanten Barrieren und Übergänge für das Lager beschrieben. Von der Betriebsweise her wird in eine Betriebsphase (15 a) und in eine Lagerphase (≥ 100 a) unterschieden. Während in der Lagerphase ein einheitliches Barriersystem (B1, B3, B6) vorliegt, gilt dies in der Betriebsphase nur für schon in die Lagerzelle eingebrachte Flaschen. Während

des Einlagerungsvorgangs durchläuft jeweils nur das Inventar I_{FO} in B1 verschiedene Barrieren innerhalb des Gebäudes.

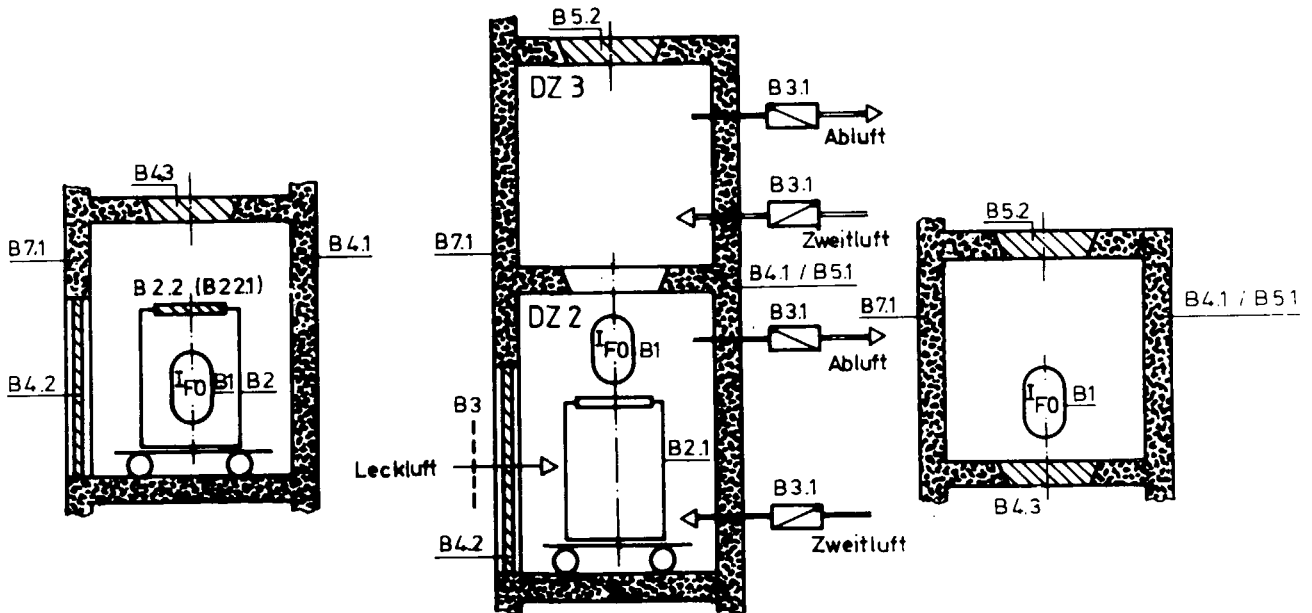
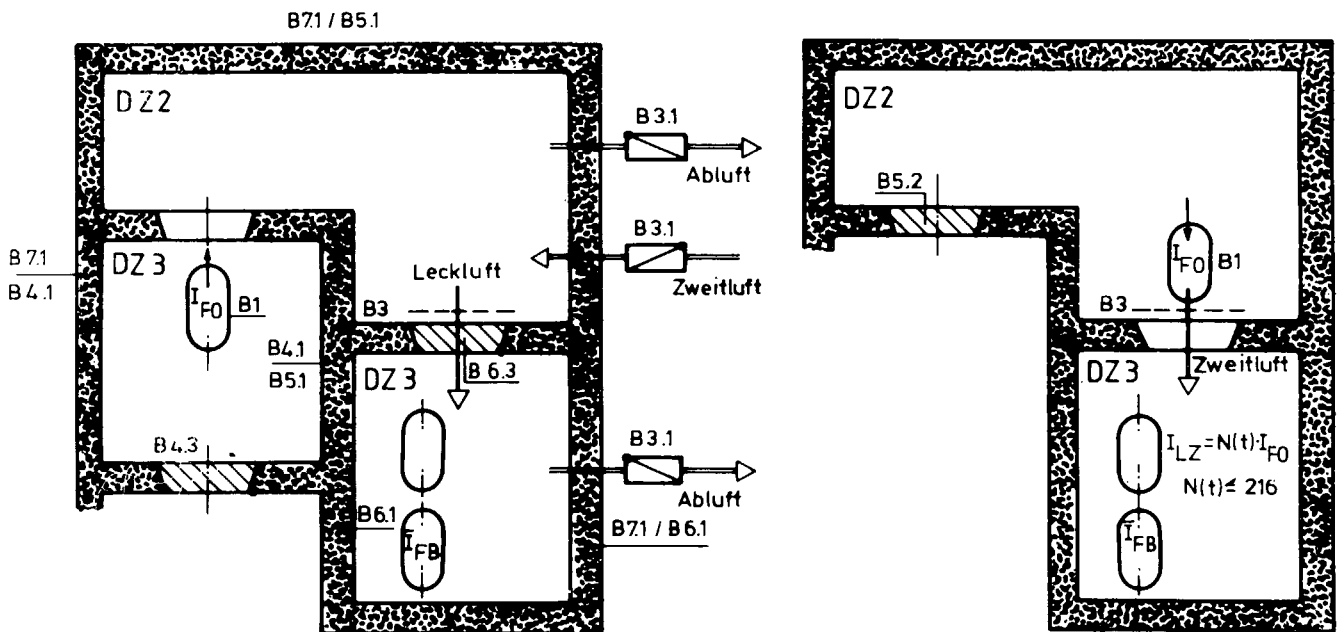


Abb. 29: Barrierenschema für den Vorgang Anlieferung/Inspektion



a) Transport in den Beschickungsraum

b) Einbringen in die Lagerzelle

Abb. 30 a,b: Barrierenschema Einlagerungsvorgang

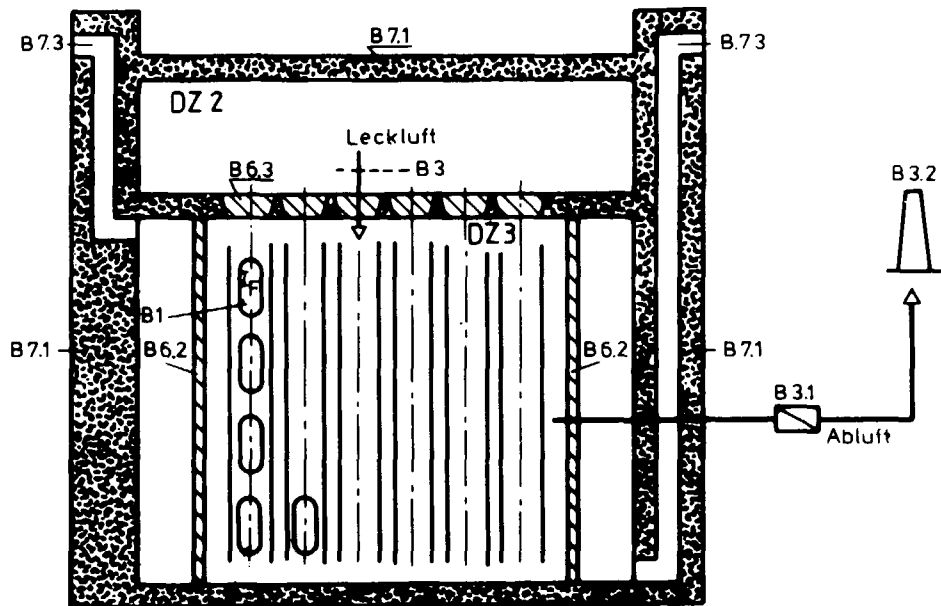


Abb. 30 c: Barrierenschema für die stationäre Lagerung

4.2.2.3 Barrierenzustände und damit verbundene Freisetzungsbruchteile

Die Rückhalteeigenschaften der vorhandenen Barrieren sind je nach Zustand nicht mehr gegeben. Die im vorherigen Kapitel qualitativ beschriebenen Barrierenzustände werden hier bezüglich der zu erwartenden Freisetzungsmengen bei nicht idealem Zustand quantifiziert. Dazu wird ein sog. Freisetzungsbruchteil (RF-Release Fraction) definiert, der die Menge des radioaktiven Materials angibt, die eine Barriere, bezogen auf die ursprünglich vor der Barriere vorhandene Menge durchläßt. Die RF werden zusammen mit den Quelltermen (ursprüngliches Inventar) jeweils den entsprechenden Basisereignissen des Freisetzungsbaums zugeordnet.

Die meisten Barrieren des Lagers haben keine Edelgasrückhalteeigenschaften und beeinflussen nur die Freisetzungshöhe. Bei diesen wird nach obiger Definition auch im Normalzustand $RF = 1$ gesetzt.

Als nahezu ideale Barriere (Normalzustand) ist die DGF einschließlich Ventil anzusehen. Wie die anschließende Abschätzung zeigt, kann dafür $RF_N \approx 0$ angenommen werden. Beim Zerplatzen oder Aufreißen der DGF sowie Abreißen des Ventils bleibt keine

Zeit für einen Eingriff, und es wird $RF = 1$ gesetzt.

Für die Zustände "Größere Leckage" (B 1.1.2/B 1.2.2) und "Normalzustand" (B 1.1.1/B 1.2.1) werden die damit verbundenen RF abgeschätzt.

RF_{GL} bei größerer Leckage (B 1.1.2/B 1.2.2)

Eine größere Leckage liegt vor, wenn die Größe des Lecks nach Detektion der erhöhten Radioaktivität im Schacht (Durchflußproportionalzähler /4/) noch genügend Zeit läßt, die betroffene DGF zu ermitteln und deren Inhalt umzufüllen. Als Zeitspanne dafür werden 8 Stunden angesetzt. Nach Abschätzung typischer Leckgrößen kann dann das während dieser Zeit ausströmende Inventar I_{GL} und weiter der RF_{GL} bestimmt werden.

Es werden folgende Annahmen getroffen:

- es liegt eine viskose Strömung vor,
- es handelt sich um isentropes Ausströmen,
- die Lecköffnung wird idealisiert als konvergente Düse betrachtet.

Mit diesen Annahmen nimmt der Massenstrom $\dot{m}$ unabhängig vom Umgebungsdruck p_u seinen Maximalwert $\dot{m}_{max}$ an. Das Gas tritt hierbei mit Schallgeschwindigkeit aus (Laval-Zustand). Es gilt dann /21/

$$\dot{m}_{max} = A_{\ddot{o}} \cdot \psi_{max} \cdot p_o \sqrt{\frac{2\kappa}{\kappa-1} \cdot \frac{1}{R T_o}} \quad (34)$$

- $A_{\ddot{o}}$ = Strömungsquerschnitt (Lecköffnung)
- ψ_{max} = 0,33 Durchflußfunktion
- κ = 1,667 Isentropenexponent
- p_o $\approx$ 61 bar Druck in der DGF
- T_o $\approx$ 413 K Temperatur in der DGF
- R $\approx$ 93,8 J kg⁻¹K⁻¹ Gaskonstante des Gemischs

Die Bedingung für viskoses Ausströmen lautet /22/

$$\lambda_G \leq \frac{d_{\ddot{o} \min}}{100} \quad (35)$$

$$d_{\ddot{o} \min} \geq 100 \lambda_G \quad (36)$$

λ_G = freie Weglänge
 $d_{\ddot{o}}$ = Durchmesser des Lecks

und nach der kinetischen Gastheorie gilt:

$$\lambda_G = \frac{1}{\pi \sqrt{2} n \cdot d_A^2} \quad (37)$$

$$= \frac{kT}{\pi \sqrt{2} p \cdot d_A^2} \quad (37a)$$

$d_A \approx d_{Kr} \approx 3,4 \cdot 10^{-10}$ m Atomdurchmesser
 $k = 1,3 \cdot 10^{-23} \text{ JK}^{-1}$ Boltzmann-Konstante
 n = Teilchendichte

Als Druck p ist hier der Druck in der Öffnung, also der Laval-
 druck p_L anzusetzen /21/, /22/:

$$p_L = p_O \left(\frac{2}{\kappa+1} \right)^{\frac{\kappa}{\kappa-1}} \quad (38)$$

Der kleinste Durchmesser bzw. Strömungsquerschnitt, bei dem als
 Transportphänomen noch viskose Strömung herrscht, ergibt sich
 dann zu

$$d_{\ddot{o} \text{ min}} \geq 4 \cdot 10^{-7} \text{ m}$$

$$\text{bzw. } A_{\ddot{o} \text{ min}} \geq 1,3 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2$$

Nach /23/ liegen typische Lecköffnungen im Bereich von
 $10^{-6} \text{ m} \leq d_{\ddot{o}} \leq 10^{-4} \text{ m}$, so daß Gl. 34 angewendet werden kann.

Mit $A_{\ddot{o} \text{ max}} \approx 8 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2$ kann die in der Zeitspanne von 8 h aus-
 strömende Masse m_{max} ermittelt werden. Wegen $\dot{m} \sim p$ und $p \sim m$
 wird m_{max} schrittweise durch

$$m_{\text{max}} < \sum_{i=1}^8 \dot{m}_i \cdot \Delta t = \sum_{i=1}^8 \Delta m_i \quad (39)$$

mit $\Delta t = 3600 \text{ s}$

$$\dot{m}_i < p_i \cdot A_{\text{ö max}} \cdot \psi_{\text{max}} \sqrt{\frac{2\kappa}{\kappa-1} \frac{1}{R T_0}} \quad (40)$$

$$\text{und } p_i \approx \frac{m_i - \Delta m_{i-1}}{V_{\text{DGF}}} \cdot R T_0 \quad (41)$$

abgeschätzt. Danach strömt in 8 Stunden eine Gasmasse von $m_{\text{max}} < 4000 \text{ g}$ aus. Für die Kr-85-Masse ergibt sich

$$m_{\text{max Kr-85}} = x_{\text{Kr-85}} \cdot m_{\text{max}} \quad x_{\text{Kr-85}} = \frac{n_{\text{Kr-85}}}{n_{\text{Kr ges}} + n_{\text{Xe}}} \approx 0,07$$

und für das ausgeströmte Radioaktivitätsinventar

$$I_{\text{GL}} = A_{\text{Kr-85}} \cdot m_{\text{max Kr-85}} \quad A_{\text{Kr-85}} = 1,4 \cdot 10^{13} \text{ Bq g}_{\text{Kr-85}}^{-1}$$

$$I_{\text{GL}} < 4 \cdot 10^{15} \text{ Bq}$$

Der Zustand (B 1.1.2/B 1.2.2) ist damit durch $RF_{\text{GL}} = I_{\text{GL}} / I_{\text{FO}} \approx 0,5$ charakterisiert. Es wird dabei nicht zwischen einem Leck im Flaschenkörper und Ventil unterschieden.

RF_N bei spezifizierter Leckrate L_V des Ventils

Die Leckrate L ist allgemein definiert durch

$$\begin{aligned} L(t) &= \frac{dp}{dt} \cdot V \\ &= \frac{dm}{dt} \cdot RT \end{aligned} \quad (42)$$

Sie wird hier als konstant angenommen und man kann schreiben

$$L_V = \dot{m}_g \cdot R T_0 \quad (43)$$

$$L_V = 1,3 \cdot 10^{-8} \text{ mbar ls}^{-1} \quad \text{höchstzulässige Leckrate des Ventils}$$

$$\dot{m}_g = \text{Gasmassenstrom in kg s}^{-1}$$

$$\begin{aligned} T_O &= 413 \text{ K Gastemperatur in der DGF} \\ R &\approx 93,8 \text{ J kg}^{-1} \text{K}^{-1} \text{ Gaskonstante des Gemischs} \end{aligned}$$

Für den Kr-85 Massenstrom ergibt sich dann

$$\begin{aligned} \dot{m}_{\text{Kr-85}} &\approx x_{\text{Kr-85}} \cdot \frac{L_V}{R \cdot T_O} \\ &\approx 2,3 \cdot 10^{-12} \text{ g}_{\text{Kr-85}} \text{ s}^{-1} \end{aligned} \quad (44)$$

bzw. der austretende Radioaktivitätsstrom zu

$$\dot{I}_{\text{LN}} \approx A_{\text{Kr-85}} \cdot \dot{m}_{\text{Kr-85}} \approx 33 \text{ Bq s}^{-1} \quad (45)$$

Pro Jahr bedeutet das eine Routinefreisetzung von $I_{\text{LN}} \approx 1 \cdot 10^9 \text{ Bq}$. Die Freisetzungsbruchteile lassen sich dann in der Betriebsphase mit

$$\begin{aligned} \text{RF}_O &= \frac{I_{\text{LN}}}{I_{\text{FO}}} \approx 1,4 \cdot 10^{-7} \\ \text{RF}_B &= \frac{I_{\text{LN}}}{I_{\text{FB}}} \approx 1,85 \cdot 10^{-7} \end{aligned}$$

angeben. Diese Werte rechtfertigen die obige Annahme $\text{RF}_N \approx 0$. Routinefreisetzungen werden deshalb im Freisetzungsbaum nicht berücksichtigt.

4.3 Freisetzungs- und Fehlerbaumanalyse

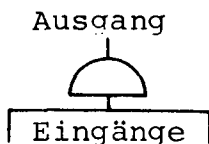
Freisetzungs- (RT = Release Tree) bzw. Fehlerbäume (FT = Fault Tree) werden von oben nach unten aufgebaut, wobei als unerwünschtes Ereignis "Freisetzung von radioaktivem Material" bzw. "Ausfall einer Komponente (System)" festgelegt wird und die Spitze (TOP) des Baumes bildet. Freisetzungsbaume werden im allgemeinen mit dem Versagen von primären Barrieren (Basiserignisse (BE), die zur Freisetzung führen) abgeschlossen. Die BE werden dann mittels Fehlerbaumanalyse weiter verfolgt, um

die Häufigkeit des Barrierenversagens abzuschätzen.

Die Darstellung der RT und FT erfolgt dabei jeweils mit nachstehender Symbolik.

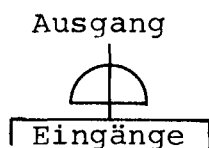
4.3.1 Symbolik

Logische Verknüpfungen



UND-
Verknüpfung

Das Ausgangsereignis tritt ein, wenn alle Eingangsereignisse eintreten

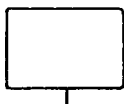


ODER-
Verknüpfung

Das Ausgangsereignis tritt ein, wenn mindestens ein Eingangsereignis eintritt

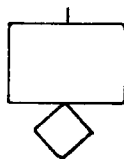
Für beide Verknüpfungen sind beliebig viele Eingänge zulässig.

Ereignissymbole



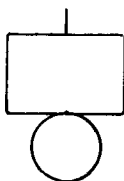
TOP-
Ereignis

Das TOP-Ereignis steht an der Spitze des RT, FT; es hat keinen Ausgang



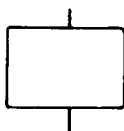
Basiser-
eignis
(BE)

Die weitere Auflösung des BE wird zunächst ausgesetzt. Im Fall der Freisetzungsbau-
methode: Angabe der versagenden Barriere und der Versagenszustände



Basiser-
eignis

Basisereignis wird nicht mehr weiter aufgelöst

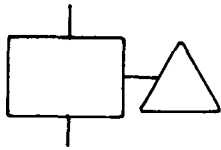


Zustand,
Ereignis

Beschreibung von Zuständen bzw. Ereignissen werden in ein Kommentar-
rechteck, das über der Verknüpfung oder dem Eingang angeordnet ist, eingetragen

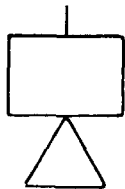
Eingang
(Log. Verknüpfung)

Übertragungssymbole



Übertragungs-
ausgang

Mit Übertragungssymbolen können Teile, die mehrfach auftreten, übernommen werden (TRT, TFT)



Übertragungs-
eingang

Der mit 1 bezeichnete Teil ist am Übertragungsausgang detailliert dargestellt und wird am Übertragungseingang vollständig übernommen

4.3.2 Freisetzungsbaum für die Betriebsphase

Abb. 31 zeigt den grundsätzlichen Aufbau des Freisetzungsbaums für die Betriebsphase des Lagers. Er beginnt mit dem unerwünschten Ereignis "Freisetzung von Kr-85 in die Atmosphäre" und verzweigt sich über eine ODER-Verknüpfung in 3 mögliche Freisetzungspfade.

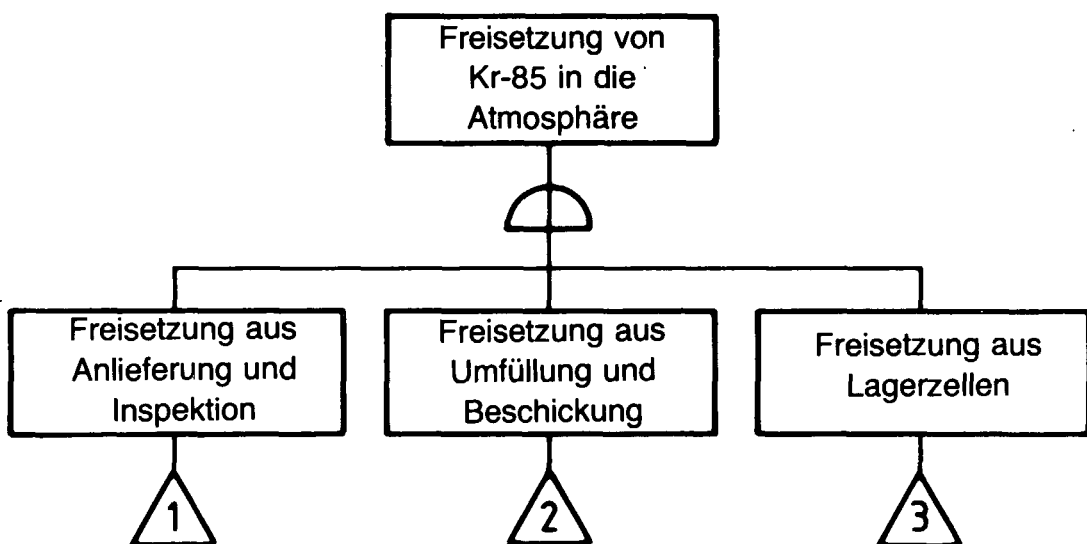


Abb. 31: Freisetzungsbaum für die Betriebsphase

Für die Pfade existieren qualitativ unterschiedliche Freisetzungskategorien:

- der Abluftkamin,
- die Kühlluftschächte,
- die Zellentore der Anlieferungsräume.

Diese sind durch verschiedene Freisetzungshöhen charakterisiert und führen über den Ausbreitungsmechanismus zu unterschiedlichen Schadensauswirkungen (Dosisbelastungen). In Abb. 32 - 34 sind die den Freisetzungspfaden zugeordneten Freisetzungsbäume dargestellt.

In den Räumen (Anlieferung, Inspektion, Umfüllung und Beschickung) wird jeweils nur eine DGF mit dem Inventar I_{FO} gehandhabt. Wird während der Handhabung eine DGF beschädigt, so erfolgt auch eine Freisetzung in die Atmosphäre.

Die maximale Freisetzungsmenge beträgt dabei $7,4 \cdot 10^{15}$ Bq (Anlieferungszustand der DGF). Eine Freisetzung von Kr-85 in den Beschickungsraum oder in die Umfüllzelle führt wegen der Zwangsbelüftung immer zu einer Freisetzung über den Abluftkamin.

Die DGF werden mittels Kran aus dem Transportbehälter in die Inspektionszelle gehoben. Dabei ist der Abschlußstopfen geöffnet. Beide Räume werden deshalb zusammen betrachtet. Ein Defekt an der angelieferten DGF führt entweder zu einer Freisetzung über den Abluftkamin oder im Falle eines Defektes des Zellentores zur Freisetzung direkt in die Umgebung (bei gleichzeitigem Ausfall der Belüftung). Ist der Hubvorgang beendet und der Abschlußstopfen wieder eingesetzt, fällt die Inspektionszelle in die gleiche Kategorie wie die anfangs beschriebenen Räume und wird daher nicht gesondert betrachtet.

In den Lagerzellen können eine oder mehrere DGF beschädigt werden. Wird dies erkannt, so kann je nach freigesetzter Menge entschieden werden, ob die kontaminierte Luft der entsprechenden Zelle zur Tieftemperaturanlage umgeleitet wird oder ob sie kontrolliert über den Abluftkamin abgegeben werden kann. Funktioniert die dazu immer notwendige Zwangsbelüftung der Zellen im Fall einer Beschädigung von DGF nicht, und es ist ein Defekt in einer der Wärmetauschwände vorhanden, so erfolgt eine Freisetzung über die Kühlluftschächte in die Atmosphäre.

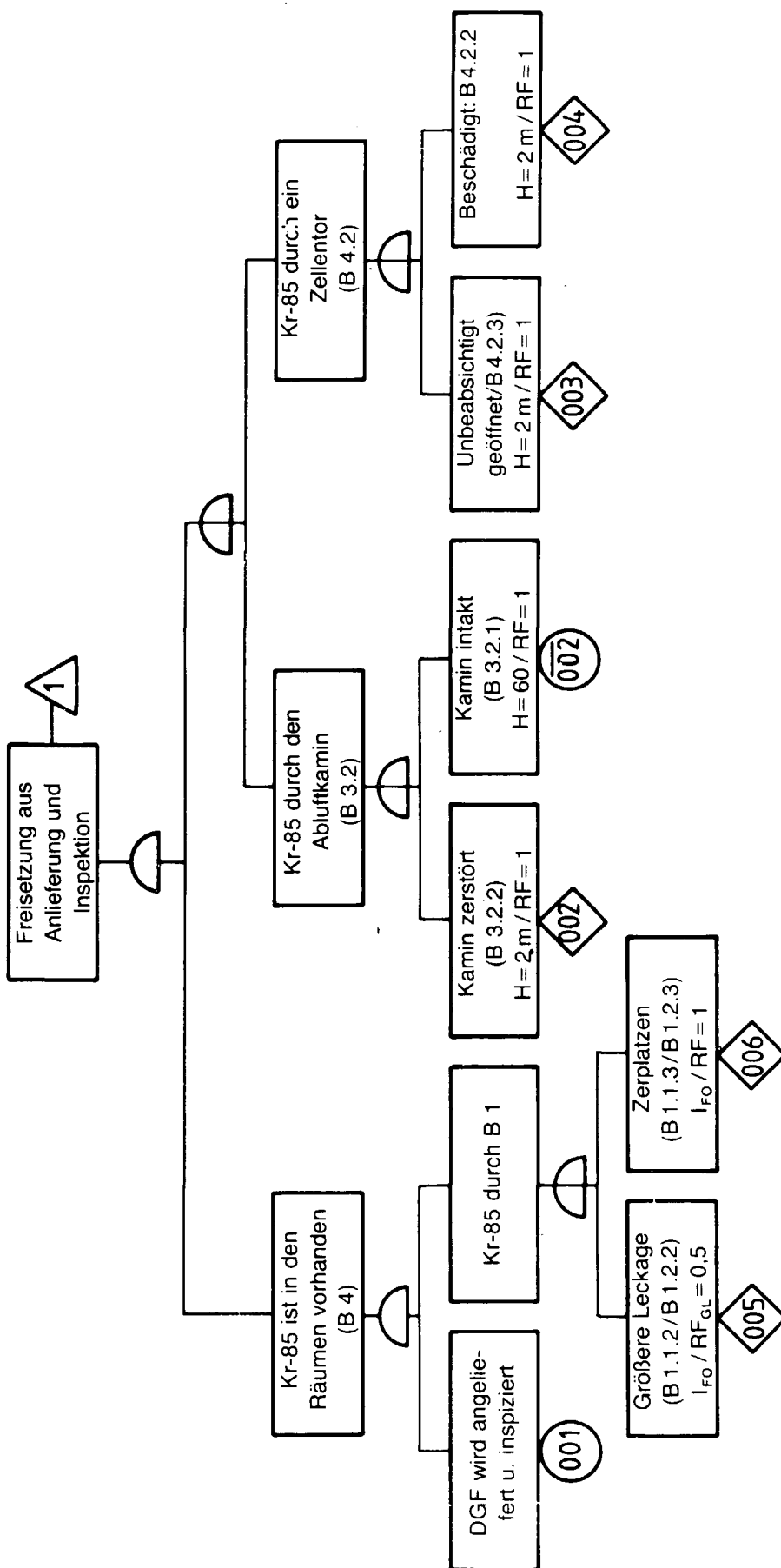


Abb. 32: Freisetzungsbaum für die Betriebsphase: TRT 1

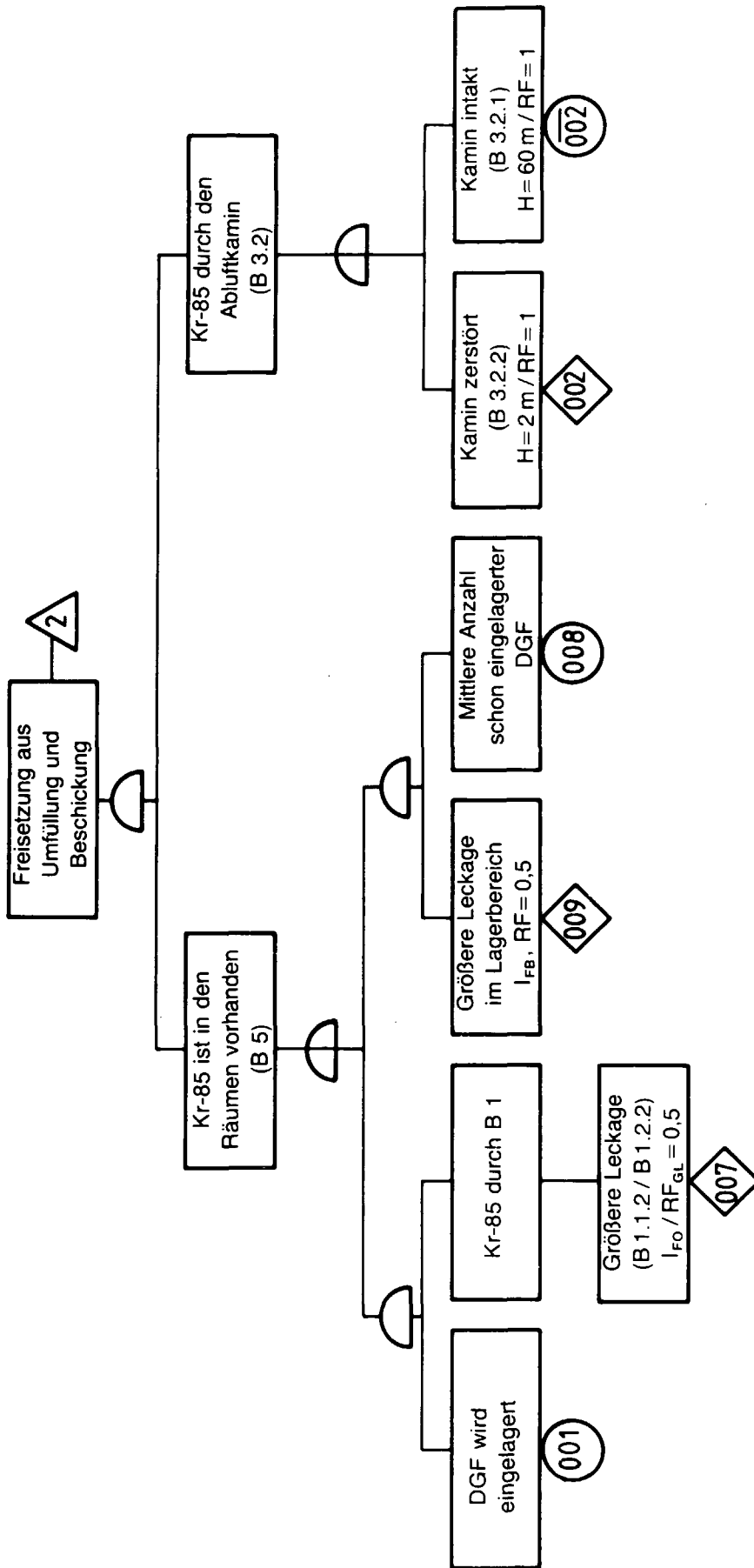


Abb. 33: Freisetzungsbaum für die Betriebsphase: TRT 2

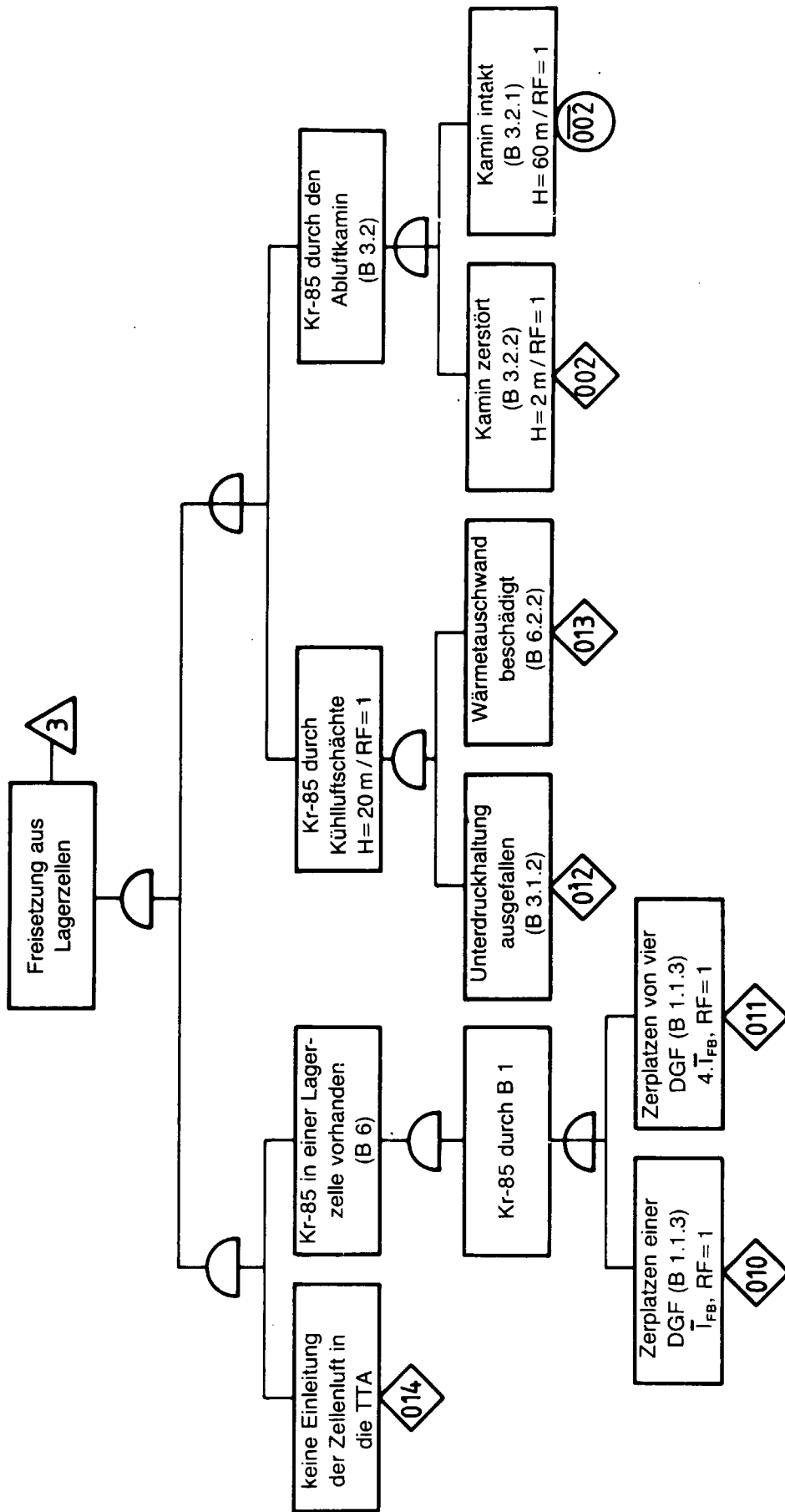


Abb. 34: Freisetzungsbaum f r die Betriebsphase: TRT 3

4.3.3 Fehlerbaumanalyse für die Betriebsphase

Von der Methode her ist der Fehlerbaum ein geeignetes Mittel, das Ausfallverhalten von Systemen zu beschreiben. Allgemein werden Fehlerbäume dabei soweit entwickelt, bis man auf Basisereignisse stößt, für die Ausfalldaten existieren. Unter Berücksichtigung der logischen Struktur der FT sind dann Eintrittshäufigkeiten der TOP-Ereignisse (hier: BE der RT) berechenbar, wobei die ermittelten Werte allerdings im Zusammenhang mit den oft unsicheren Eingangsdaten gesehen werden müssen. Denn in der Literatur werden zwar an vielen Stellen Ausfalldaten angegeben, aber die Angaben (Bauform der Komponente, Einsatzort- und -bedingungen etc.) sind oft ungenau und unvollständig.

Obwohl das vorliegende System in seiner Barrierenstruktur sehr einfach ist, bereitet auch hier die Abschätzung von Versagenhäufigkeiten der BE der RT Schwierigkeiten, denn die technische Detailauslegung (Steuerung und Überwachung der Schließ- und Öffnungsfunktionen von Gebäudezugängen, den Hubeinrichtungen sowie Abluftsystem, Einrichtung der Inspektionszelle, Kontrollmeßgeräte etc.) liegt noch nicht vor.

Deshalb werden soweit wie möglich im Ausfallverhalten vergleichbare Einrichtungen zur Abschätzung von Häufigkeiten herangezogen. Außerdem sind natürlich für diese Art der DGF-Lagerung keine DGF-Ausfalldaten verfügbar. Hier wird auf Daten der konventionellen DGF Handhabung und Lagerung zurückgegriffen.

Die Ergebnisse der FT-Analyse für weiter auflösbare BE der RT können daher nur als Anhaltswerte oder nullte Näherung dienen.

4.3.3.1 Wahrscheinlichkeit und Ausfallrate

Die Abschätzung von Ausfallwahrscheinlichkeiten erfolgt vereinfacht unter Annahme zeitlich konstanter Ausfallraten. Die Konstanz der Ausfallrate ist die charakteristische Eigenschaft exponentialverteilter Lebensdauern. Die Verteilung beschreibt nur die sog. Spontan- oder Zufallsausfälle. Ein Zufallsausfall eignet sich nicht wegen der Änderung der Systemparameter, sondern

nur deshalb, weil infolge des Zufallscharakters der äußeren Beanspruchung gelegentlich Grenzlaster überschritten werden. Die Wahrscheinlichkeit P , daß eine Betrachtungseinheit (Komponente, System) bis zum Zeitpunkt t ausgefallen ist, wird definiert durch:

$$P \{T_L \leq t\} = F(t) = \begin{cases} 0 & t \leq 0 \\ 1 - \exp(-\lambda t) & t > 0 \end{cases} \quad (46)$$

T_L = Lebensdauer

$F(t)$ = Ausfallwahrscheinlichkeitsfunktion

Komplementär dazu ist die Wahrscheinlichkeit P , daß der Ausfall nach der Zeit t erfolgt, gegeben durch:

$$P \{T_L > t\} = 1 - F(t) \quad (47)$$

$$= R(t) = \begin{cases} 1 & t \leq 0 \\ \exp(-\lambda t) & t > 0 \end{cases} \quad (47a)$$

$R(t)$ = Zuverlässigkeitsfunktion

Die Verteilungsdichtefunktion der Lebensdauer T_L

$$f(t) = \frac{d}{dt}(F(t)) = - \frac{d}{dt}(R(t)) \quad (48)$$

$$= \lambda \cdot \exp(-\lambda t) \quad (48a)$$

beschreibt die Wahrscheinlichkeit für einen Ausfall pro Zeitintervall dt . Die Ausfallrate λ selbst ist gegeben durch

$$\lambda = \frac{d}{dt}(F(t)) \cdot \frac{1}{R(t)} = \frac{f(t)}{R(t)} \quad (49)$$

und wird nach Voraussetzung als konstant angenommen. Als Erwartungswert $E \{T_L\}$ für die mittlere Lebensdauer T_L ergibt sich aufgrund dieser Eigenschaft

$$E \{T_L\} = \int_{t=0}^{\infty} t f(t) dt = \frac{1}{\lambda} \quad (50)$$

und die Wahrscheinlichkeit, daß eine Komponente, die zur Zeit t noch intakt war auch zur Zeit $t + \Delta t$ noch funktioniert, bestimmt sich zu

$$P \{T_L > t + \Delta t \mid T_L > t\} = \frac{R(t + \Delta t)}{R(t)} = \exp(-\lambda \Delta t) \quad (51)$$

Die letzte Gleichung macht deutlich, daß das Ausfallverhalten zu jeder Zeit gleich ist, d. h. es ist unbedeutend für welche Zeitdauer die Komponente in Betrieb war.

Der Formalismus beschreibt also weder Frühausfälle noch Alterungsausfälle. Es muß daher gefordert werden, daß durch Prüfen und Probeläufe Frühausfälle ausgemerzt werden, so daß Geräte und Komponenten ohne "Kinderkrankheiten" zum Einsatz kommen bzw. daß durch rechtzeitiges Austauschen Alterungsausfälle nicht auftreten können.

Ausfallraten sind zumeist als Ausfälle pro 10^6 Stunden angegeben und werden hier entsprechend umgerechnet. Bei einem Beobachtungszeitraum von $t_a = 1$ Jahr ($t = 8760$ h) ist meist $\lambda t \leq 0,01$ und $\exp(-\lambda t) \approx 1$. Die Ausfalldichte kann dann über

$$f(t) = \lambda \cdot \frac{t}{t_a} \cdot \exp(-\lambda t) \quad (52)$$

mit der Ausfallrate gleichgesetzt und als Maß für das Ausfallverhalten (Ausfallhäufigkeit pro Jahr, Häufigkeitsdichte) angenommen werden.

Darüber hinaus existieren Angaben über das Versagen pro Anforderung bzw. direkt über Häufigkeiten pro Jahr. Die Versagenhäufigkeit bei Anforderungen wird mit

$$H = N_A \cdot P_A \quad (53)$$

P_A = Versagenswahrscheinlichkeit pro Anforderung

N_A = Anforderungen pro Jahr

abgeschätzt. Nur in der Betriebsphase werden Inspektionen, Kranmanipulationen etc. erforderlich. Die Zahl der Anforderungen ist

somit durch die Zahl der jährlich einzulagernden DGF gegeben und wird über eine UND-Verknüpfung im Freisetzungsbaum berücksichtigt.

4.3.3.2 Barrierenzustände und Häufigkeitsdichten

Im folgenden wird den BE (Ok_l ; $l = 1, 2, \dots$, $k = 0, 1, \dots$) der TRT jeweils eine Häufigkeitsdichte zugeordnet. Sofern erforderlich, werden Teilfehlerbäume (TFT) konstruiert, deren Auswertung die entsprechende Häufigkeitsdichte ergibt. Während der Betriebsphase wird die Häufigkeitsdichte von Jahr zu Jahr als konstant angenommen. Die kumulierte Eintrittshäufigkeit H_L für den gesamten Betrachtungszeitraum ($t_B = 15$ a) ist dann durch das Produkt der jeweiligen Häufigkeitsdichten mit der Betriebszeit gegeben.

TRT 1: Freisetzung aus Anlieferung und Inspektion

001 Handhabungshäufigkeit in Anlieferung und Inspektion

Es werden 85 DGF pro Jahr angeliefert und geprüft

$$h_{001} = 85 \text{ a}^{-1}$$

002 Kaminzerstörung

Als mögliche Ursachen für eine Kaminzerstörung kommen massive Einwirkungen von außen (EVA) in Betracht.

- | | | |
|---|--|------|
| - Flugzeugabsturz | $h_1 \approx 10^{-7} \text{ a}^{-1}$ | /24/ |
| - Erdbeben* | $h_2 \leq 10^{-3} \text{ a}^{-1}$ | /25/ |
| - Explosion einer zündfähigen Gaswolke infolge eines Tankzugunfalls | $h_3 \approx 1,4 \cdot 10^{-5} \text{ a}^{-1}$ | /26/ |

*Erdbeben, bei dem die Beschleunigung a die des Sicherheitserdbebens (a_0) übersteigt

Es gilt die ODER-Verknüpfung:

$$h = 1 - \prod_{i=1}^n [1 - h_i] \quad (54)$$

und es ergibt sich

$$h_{002} \leq 10^{-3} \text{ a}^{-1}$$

002 Kamin im Normalbetrieb

Komplementär zu 002

$$h_{\overline{002}} = 1 - h_{002} \approx 9,99 \cdot 10^{-1} \text{ a}^{-1}$$

003 Zellentor "Anlieferung" unbeabsichtigt geöffnet

Das unbeabsichtigte Öffnen kann herrühren von menschlicher Fehlbedienung, Ausfall der Steuerung bzw. des Antriebs oder von einem Fehler in der Bedienungs- und Kontrollarmatur. Daten über das Versagen von Schleusentoren liegen nicht vor. Deshalb wird hier die Ausfallrate $\lambda \approx 6 \cdot 10^{-6} \text{ h}^{-1}$ (unbeabsichtigtes Öffnen eines motor-gesteuerten Schiebers) /27/ angenommen.

$$h_{003} \approx 5 \cdot 10^{-2} \text{ a}^{-1}$$

004 Zellentor "Anlieferung" beschädigt

Hier kommen nur Einwirkungen von außen in Betracht. Es wird wie bei 002

$$h_{004} \leq 10^{-3} \text{ a}^{-1}$$

gesetzt.

Beschädigungen durch das DGF-Transportfahrzeug selbst bleiben unberücksichtigt, denn es stehen zwei Anlieferungszellen zur Verfügung.

005 Größere Leckage an DGF oder Ventil

Nach Auskunft der Firma Linde AG, München

- sind dort ca. $1,2 \cdot 10^6$ DGF im Umlauf,
- wird jede DGF im Mittel alle 7 Jahre einer Wiederholungsprüfung unterzogen,
- werden also ca. $1,7 \cdot 10^5$ DGF pro Jahr geprüft,
- werden davon im Mittel 262 DGF pro Jahr wegen festgestellter Mängel ausgesondert.

$$h_4 \approx \frac{262}{1,7 \cdot 10^5} a^{-1} \approx 1,5 \cdot 10^{-3} a^{-1}$$

Diese Häufigkeitsdichte wird als Schätzwert für Leckagen am Flaschenkörper angenommen, obwohl

- das Aussondern nicht gleichzusetzen ist mit DGF Leckagen,
- darin sicher auch Ventilschäden enthalten sind
- und die untersuchten DGF meist einem rauheren Betrieb ausgesetzt sind.

In /27/ wird für ein faltenbalggedichtetes Ventil (Natriumbetrieb) ein $\lambda \approx 5 \cdot 10^{-6} h^{-1}$ und für ein Dampfabsperrventil ($11 \text{ bar} \leq p \leq 80 \text{ bar}$, $182^\circ\text{C} \leq \theta \leq 292^\circ\text{C}$) ein $\lambda \approx 8 \cdot 10^{-6} h^{-1}$ angegeben. Das für die Kr-85-Lagerung entwickelte Ventil ist faltenbalggedichtet und mit redundanten Dichtsitzen versehen. Beide Barrieren werden berücksichtigt und man erhält:

$h_5 \approx 7 \cdot 10^{-2} a^{-1}$	1. Ventil undicht
$h_6 \approx 4,4 \cdot 10^{-2} a^{-1}$	2. Ventil undicht

Da das DGF-Ventil im Gegensatz zu den zum Vergleich herangezogenen Ventilen nach dem Abfüllen nicht mehr betätigt wird, dürften das obere Grenzwerte sein.

Sowohl Prüfvorschriften als auch -geräte für die Dichtigkeitskontrolle sind noch nicht spezifiziert. Menschliches Versagen ist allerdings relativ unabhängig von Prüfmethoden und -geräten und wird durch

- falsches Ablesen	$P_{A1} \approx 8 \cdot 10^{-3}$	/28/
- falsches Betätigen	$P_{A2} \approx 2 \cdot 10^{-3}$	/29/
- Nichtbeachten von Prüfvorschriften	$P_{A3} \approx 6,5 \cdot 10^{-2}$	/28/
- Armaturen nicht richtig bedient	$P_{A4} \approx 2 \cdot 10^{-3}$	/28/
- mech. Verbindung nicht richtig hergestellt	$P_{A5} \approx 2 \cdot 10^{-2}$	/28/

berücksichtigt.

Alle Ereignisse werden durch ein ODER verknüpft und es ist

$$P_A = 1 - \prod_{i=1}^5 [1 - P_{Ai}]$$

$$P_A \approx 10^{-1} \quad \text{menschliches Versagen pro Anforderung}$$

Darüber hinaus kann ein Gerät aufgrund von Defekten falsche Meßwerte liefern. Für das Nichtentdecken dieser Fehler wird

$$h_7 \approx 10^{-1} \text{ a}^{-1}$$

gesetzt /30/.

Gerätetechnisch sollten neben der direkten Anzeige der Meßdaten auch Schreiber zur Datenerfassung und -kontrolle eingesetzt werden. Für einen Schreiber mit mehreren Eingängen wird die Ausfallrate in /27/ mit $\lambda \approx 114 \cdot 10^{-6} \text{ h}^{-1}$ angegeben. Für die Dichtigkeitskontrolle ist ein Lecksuchgerät erforderlich. Anstelle eines normalerweise massenspektrometrisch arbeitenden Gerätes ist hier prinzipiell ein β -Detektor einsetzbar. Es wird daher die Ausfallrate für einen Strahlungs-

detektor mit $\lambda \approx 9,5 \cdot 10^{-6} \text{ h}^{-1}$ /27/ angenommen. Diese Ausfallrate ist nicht näher spezifiziert und kann sowohl Fehler im Meßwertgeber als auch in der Anzeige enthalten. Sie wird hier nur auf den Meßwertgeber (β -Detektor) bezogen. Für eine falsche Anzeige wird eine Ausfallhäufigkeit von $h_8 \approx 3 \cdot 10^{-2} \text{ a}^{-1}$ /20/ angenommen.

Ferner können die Verbindungen und Verdrahtungen (Steckkontakte, Klemmverbindungen etc.) Fehler aufweisen. Dafür wird in /31/ ein λ von ca. $1 \cdot 10^{-6} \text{ h}^{-1}$ angegeben. Damit:

$h_8 \approx 8 \cdot 10^{-2} \text{ a}^{-1}$	Fehler im Leckdetektor
$h_9 \approx 3 \cdot 10^{-2} \text{ a}^{-1}$	Fehler in der Anzeige
$h_{10} \approx 10^{-1} \text{ a}^{-1}$	Fehler im Schreiber
$h_{11} \approx 9 \cdot 10^{-3} \text{ a}^{-1}$	Fehler in der Verdrahtung

Eine größere Leckage kann aber nicht nur dann auftreten, wenn dies bei der Kontrolle übersehen wird, sondern auch durch mechanische Einwirkung bei der Handhabung.

Die DGF soll davor durch das Transportgestell geschützt werden. Dieses ist für eine Fallhöhe von 9 m ausgelegt. Durch die baulichen Gegebenheiten sind die Hubhöhen in Anlieferung und Inspektion auf $h \approx 6 \text{ m}$ begrenzt. Ein Versagen durch nicht erkannte Material-, Montage- oder Schweißfehler ist auch bei geringeren Fallhöhen nicht auszuschließen. Im Fall des Absturzes vom Kranhaken wird hier pessimistisch in 1/3 aller Fälle ($P_{14} = 3,3 \cdot 10^{-1}$) ein teilweises Versagen der Schutzfunktion des Transportgestells angenommen. Die Häufigkeit von Kranversagen wird in /32/ für den kerntechnischen Bereich (KTA-Auslegung) mit $h_{12} \approx 5 \cdot 10^{-4} \text{ a}^{-1}$ angegeben. Neben der DGF-Handhabung wird der Kran auch für andere Hubvorgänge benutzt werden. Als Gesamtbetriebszeit werden 100 h im Jahr und für die DGF-Manipulation eine Zeit von ca. 0,5 h angenommen. Die Wahrscheinlichkeit für das

Manipulieren der DGF errechnet sich zu

$$p_M = \frac{0,5 h}{100 h} = 5 \cdot 10^{-3}$$

und die Absturzhäufigkeit zu

$$\begin{aligned} h_{13} &= h_{12} \cdot p_M \\ &= 2,5 \cdot 10^{-6} \text{ a}^{-1} \end{aligned}$$

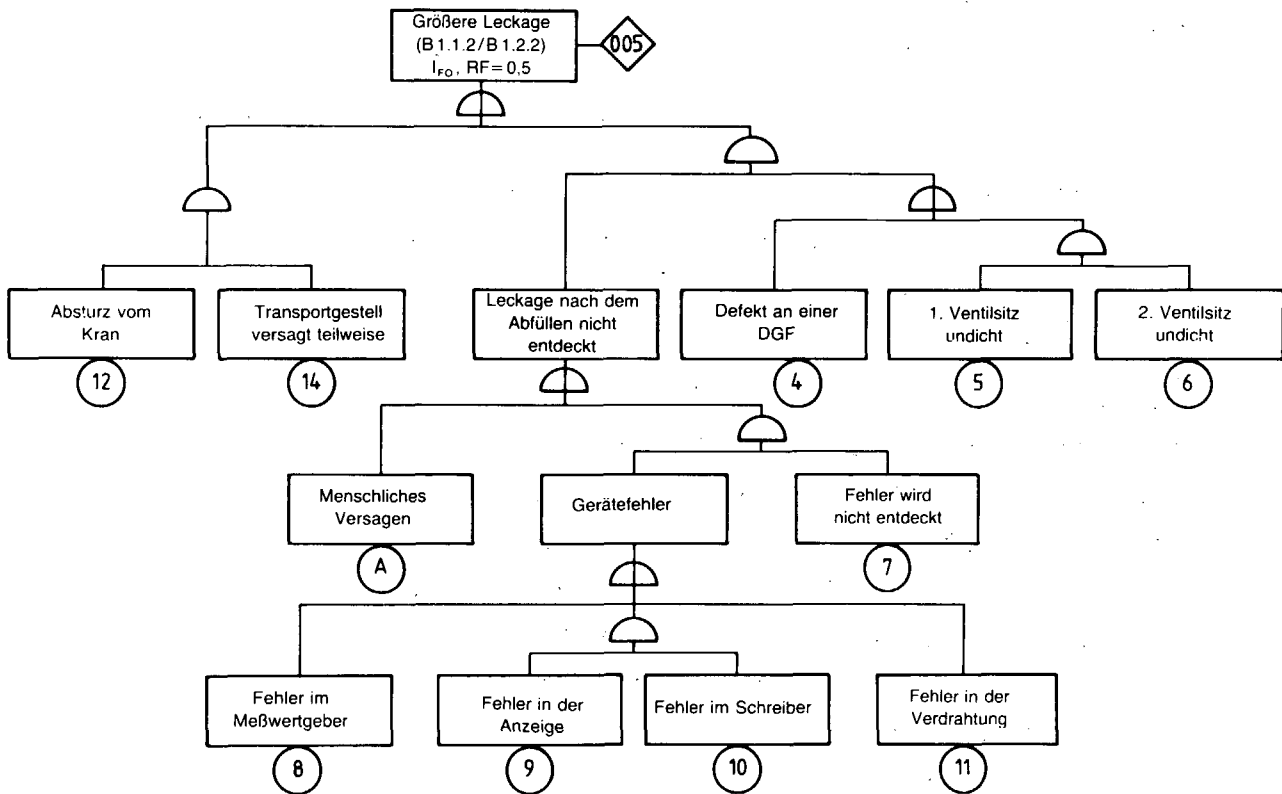


Abb. 35: Teilfehlerbaum zur Ermittlung der Leckagehäufigkeit h_{005}

Abb. 35 zeigt den TFT, mit dem sich dem BE 005/TRT 1 eine Häufigkeitsdichte zuordnen läßt.

Die Auswertung des Teilfehlerbaums ergibt:

$$h_{005} \approx 5 \cdot 10^{-4} \text{ a}^{-1}$$

006 Zerplatzen oder Aufreißen einer DGF

Als auslösendes Ereignis wird der Absturz vom Kran angesehen. Fallversuche mit AVR-BE-Edelstahlbehältern zeigten, daß diese bei Fallhöhen bis zu 9 m nach dem Aufprall auf starre Unterlagen zwar stark plastisch verformt wurden aber nicht aufrissen /33/. Obwohl die Behälter von der Geometrie her anders gestaltet ($H = 1000 \text{ mm}$, $D = 596 \text{ mm}$, $s = 6 \text{ mm}$) und nicht mit Druck beaufschlagt sind, dürften die Versuche aufzeigen, daß auch ungeschützte DGF-Abstürze aus 9 m Höhe überleben können.

Für vom Transportgestell geschützte DGF gilt das umso mehr. Ein katastrophales Versagen des Transportgestells bei entsprechender Auslegung ist sicher äußerst unwahrscheinlich. Es erscheint daher ausreichend konservativ in 1 % der Absturzfälle ein Zerplatzen oder Aufreißen einer DGF anzunehmen.

$$h_{006} \approx 10^{-2} \cdot h_{13} \approx 3 \cdot 10^{-8} \text{ a}^{-1}$$

TRT 2: Freisetzung aus Umfüllung und Beschickung

007 Größere Leckage an DGF oder Ventil

Wegen einer weiteren Inspektion nach der Anlieferung wird die Häufigkeit, daß ein DGF mit Leckage im Beschickungsraum manipuliert wird, noch einmal um eine Größenordnung reduziert (2. Inspektion als weiterer Eingang in das UND-Gatter von TFT) und liegt damit bei $h_{15} \approx 5 \cdot 10^{-5} \text{ a}^{-1}$.

Beim Anfahren der vorgesehenen Lagerposition sind Leckagen infolge eines Absturzes vom Beschickungskran wegen der geringen Hubhöhe (das Transportgestell muß lediglich freigehoben sein) wohl auszuschließen, nicht aber wenn die Lagerposition erreicht ist. Hier beträgt die mögliche Fallhöhe bei leerem Schacht maximal 9 m. Das Absenken in den Schacht sollte mit sehr geringer Geschwindigkeit erfolgen. In /34/ wird für Feinheben ein Richtwert von $0,3 \text{ m min}^{-1}$ angegeben. Als Verweilzeit ergibt sich dann ein Wert von ca. 0,5 Stunden. Die Versagenshäufigkeit infolge eines Absturzes kann damit entsprechend den Überlegungen zum Ereignis 005 durch

$$h_{16} \approx h_{13} \cdot P_{14} \approx 8 \cdot 10^{-7} \text{ a}^{-1}$$

angenommen werden. Unberücksichtigt bleibt dabei, daß sich die Fallhöhe ständig verringert und damit ein Versagen immer unwahrscheinlicher wird, bzw. die Fallhöhe wegen schon eingelagerter DGF von vorne herein geringer ist und dann auch die Verweilzeit kürzer ist.

$$\begin{aligned} h_{007} &\approx h_{15} + h_{16} \\ &\approx 5 \cdot 10^{-5} \text{ a}^{-1} \end{aligned}$$

008 Mittlere DGF-Anzahl im Lager, die prinzipiell von einer Leckage betroffen sein können

$$\bar{N}_{\text{DGF}}^{\text{L}} = 648$$

009 Größere Leckage im Lagerbereich

Bei stationärer Lagerung gibt es keinen Grund eine spontane, rein zufällige Leckage an einer DGF anzunehmen, außer daß Materialfehler (Haarrisse, Schweißfehler an der Verbindungsschweißung DGF-Ventil) übersehen wurden und diese längerfristig durch die Druck- und Temperaturbelastung aufgeweitet werden oder me-

chanische Einwirkungen dazu führen. Material- und Schweißfehler werden repräsentativ mit jeweils $h_{17} \approx 10^{-5} \text{ a}^{-1}$ /32/ angenommen, während mechanische Einwirkungen (Absturz in einen Lagerschacht) bereits berücksichtigt sind.

$$h_{009} \approx 2 \cdot 10^{-5} \text{ a}^{-1}$$

Weiterhin sind damit Leckagen im Lagerbereich wegen der vorgesehenen Rückholung und Umfüllung von der Freisetzung her dem Bereich Beschickung und Umfüllung zugeordnet und werden deshalb in TRT 3 nicht mehr aufgeführt.

TRT 3: Freisetzung aus Lagerzellen

010 Zerplatzen oder Aufreißen einer DGF

Nach Auskunft der Fa. Linde ist ein spontanes Zerplatzen ohne Einwirkung von außen nur bei Wasserstoff-DGF beobachtet worden (Wasserstoffversprödung). Ähnliche Effekte (LME)* sind wegen des sich bildenden Rubidiums prinzipiell nicht auszuschließen /35/, /36/, /37/, /38/, allerdings nach längeren Standzeiten überhaupt erst möglich. In Ermangelung entsprechender Untersuchungsergebnisse, die den LME-Mechanismus bestätigen, wird hier auf die Wasserstoffdaten zurückgegriffen.

Bei einer Gesamtzahl von ca. $2,85 \cdot 10^5$ umlaufenden Wasserstoff-DGF versagten innerhalb von 20 Jahren 120 durch Versprödung.

$$h_{18} \approx \frac{120}{2,85 \cdot 10^5 \cdot 20 \text{ a}} \approx 2 \cdot 10^{-5} \text{ a}^{-1}$$

Absturz in einen Schacht oder die Blockage der Luftzufuhr mit nachfolgendem Temperatur- und Druckan-

*Liquid Metal Embrittlement

stieg machen ebenfalls ein Zerplatzen möglich. Entsprechend den Erläuterungen zu Ereignis 006 wird die Versagenshäufigkeit beim Absturz mit

$$h_{19} \approx 3 \cdot 10^{-8} \text{ a}^{-1}$$

angenommen.

Am Luftaustritt eines jeden Schachts befindet sich eine Temperaturmeßstelle, die in regelmäßigen Abständen abgefragt wird. Beim ersten Einlagerungsvorgang kann der Deckel, mit dem nicht belegte Schächte zur Vermeidung von Falschluchtströmungen versehen sind, versehentlich wieder aufgelegt werden und dadurch die Luftkonvektion durch den Schacht blockiert sein. Auch wenn der Temperaturanstieg im Schacht nicht bemerkt wird, ist bei nur einer DGF ein Versagen infolge des damit verbundenen Druckanstiegs auszuschließen. Versuche mit einem abgeschlossenen Schachtelement zeigten, daß sich bei Heizleistungen bis 350 W stationäre Wandtemperaturen von max. 60°C über Umgebungslufttemperatur einstellen /4/. Nimmt man den Maximalwert der Lufttemperatur (ca. 75°C bei voller Belegung der Lagerzelle), so bleibt die DGF-Wandtemperatur im Falle der Blockage mit ca. 135°C noch deutlich unter der Auslegungstemperatur von 200°C.

Beim Zerplatzen infolge eines Absturzes wäre das Inventar I_{FO} und infolge Versprödung eher das Inventar I_{FB} als Freisetzungsmenge heranzuziehen. Der Unterschied ist nicht gravierend. Weiter ist $h_{18} > h_{19}$, so daß als Inventar das mittlere Inventar $\bar{I}_{FB}$ angenommen wird. Die Häufigkeit, daß dieses freigesetzt werden kann, ergibt sich dann

$$h_{010} \approx \bar{N}_{DGF}^L \cdot h_{18} \approx 1,3 \cdot 10^{-2} \text{ a}^{-1}$$

011 Zerplatzen oder Aufreißen von vier DGF

Ursachen für das nahezu gleichzeitige Bersten von vier in einen Schacht eingelagerten DGF sind

- mögliche Materialversprödung,
- Folgereaktionen durch Splitterwirkung nach dem Bersten einer ersten DGF,
- Blockage der Kühlluftzufuhr,
- Folgeschäden durch Rubidium- oder Rubidium/Aktivkohlebrand nach dem Bersten einer ersten DGF.

Zerplatzen durch Versprödung kann als seltenes Ereignis angesehen werden, denn der Näherungswert für die Häufigkeitsdichte ist mit $\approx 2 \cdot 10^{-5} \text{ a}^{-1}$ klein gegen 1 a^{-1} . Um die Eintrittswahrscheinlichkeit für das Zerplatzen von mehr als einer DGF zu ermitteln, wird deshalb die Poisson-Verteilung herangezogen. Wesentlich für ihre Anwendung ist, daß das Versagen ein Zufallsprozeß ist und daß das Versagen der einzelnen DGF unabhängig ist von der Zahl der bereits geborstenen DGF. Diese Voraussetzung wurde bei den bisherigen Betrachtungen als erfüllt angenommen (s. Kap. 4.3.3.1).

Durch die diskrete Wahrscheinlichkeitsfunktion

$$P(x) = \frac{\mu^x e^{-\mu}}{x!} \quad (55) \quad x = 1, 2, 3 \dots \text{Anzahl der betrachteten Einheiten}$$

$$\mu > 0$$

ist die Poisson-Verteilung definiert und wird durch den Parameter μ (Erwartungswert) vollständig charakterisiert. Dieser beschreibt die Dichte von Zufallspunkten innerhalb eines gegebenen Zeitintervalls (hier: 1 Jahr). Als Näherungswert für μ gilt /39/, /40/:

$$\hat{\mu} \approx N \cdot P \quad (56)$$

Für N ist hier die mittlere DGF-Anzahl ($\bar{N}_{\text{DGF}}^L$) und für P ist der Zahlenwert von h_{18} einzusetzen. Ohne Hinweis auf die Poisson-Verteilung wurde diese Beziehung im Vorangegangenen schon häufiger benutzt.

Als Schätzwert für das Bersten einer DGF durch Versprödung ergibt sich

$$\hat{\mu} \approx 1,3 \cdot 10^{-2}$$

Die Wahrscheinlichkeit, daß genau vier DGF gleichzeitig versagen, läßt sich nun durch Gl. 55 mit

$$P(4) \approx 1 \cdot 10^{-9}$$

berechnen und als Schätzwert für die Versagenshäufigkeit von 4 DGF verwenden.

$$h_{20} \approx 1 \cdot 10^{-9} \text{ a}^{-1}$$

Beim Bersten irgendeiner DGF kann prinzipiell die jeweils benachbarte DGF im Schacht durch wegfliegende Bruchstücke (Schalenstücke, Schutzkappe, Ventil) in Mitleidenschaft gezogen werden. Inwieweit allerdings Bruchstücke in der Lage sind, die Wandung der benachbarten DGF zu durchschlagen und damit weitere Reaktionen einleiten, hängt von der Größe, Form und Auftreffgeschwindigkeit der Stücke ab und ist vom Mechanismus her nur schwer abschätzbar.

Die Auswertung von Berichten über aufgetretene Schäden an CO_2 -Flaschen ergab in 4 von 49 Schadensfällen ein Bersten in mehrere Bruchstücke und in einem Fall ein Ventilabriß /41/, /42/. In der Mehrzahl der Fälle sind Längsrisse mit Mantelaufweitung dokumentiert. Bei Berstversuchen (7) mit zylindrischen Probenbehältern aus Chrom- und Chrom-Nickel-Stählen traten in allen Fällen Längsrisse auf /43/, /44/.

Als Schätzwert für die Bildung von mehreren Bruchstücken wird gesetzt

$$P_B = \frac{5}{56} \approx 9 \cdot 10^{-2}$$

Die Wahrscheinlichkeit, daß die benachbarte DGF durch Bruchstücke beschädigt wird und zerplatzt, wird willkürlich mit

$$P_Z = 0,5$$

angenommen.

Dann ergibt sich weiter

$$h_{21} = h_{010} \cdot P_B^3 \cdot P_Z^3 \approx 1 \cdot 10^{-6} \text{ a}^{-1}$$

als Eintrittshäufigkeit für das Bersten von vier DGF infolge des Berstens irgendeiner DGF.

Die folgenden Abschätzungen sollen zeigen, daß auch bei voll belegtem Schacht und einer Blockage der Kühltluftzufuhr die zulässigen Betriebstemperaturen nicht erreicht werden und ein Bersten durch Aufheizung somit ausgeschlossen werden kann. Es werden folgende Annahmen getroffen:

- Vernachlässigung der Wärmekapazitäten von Transportgestell und Lagerschacht.
Dies führt zu einer kleineren Zeitkonstante τ des Aufheizvorgangs, d. h. real dauert die Aufheizung länger.
- Die dem Lagerschacht zugeführte Leistung wird nur durch Strahlungsaustausch empfangen bzw. an die Umgebung (übrige Lagerschächte) weitergegeben.
Bei Vernachlässigung von Wärmeleitung und Konvektion ergeben sich zu hohe Temperaturen.
- Die Umgebung wird als ideale Wärmesenke aufgefaßt, d. h. eine geringfügige Temperaturerhöhung durch Wärmeeinstrahlung vernachlässigt.
Am Strahlungsaustausch mit dem sich aufheizenden Schacht sind viele umliegende Schächte be-

teilt (≥ 16), so daß die Annahme gerechtfertigt erscheint.

- Das Emissionsvermögen der Oberflächen von DGF, Transportgestell und Schacht wird mit $\epsilon = 0,6$ angenommen /4/.
- Es wird der ungünstigste Schachtabschnitt (oberes Viertel mit höchster Temperatur) als repräsentativ angenommen.
- Die Längenschnitte der am Strahlungsaustausch beteiligten konzentrischen Ringflächen werden konservativ mit $L = 1$ m angenommen.

Die Differentialgleichung lautet dann:

$$\dot{Q}_O - \frac{\theta_{F,4}(t) - \theta_{S,4}}{R_{Str}} \approx m_F \cdot c_F \frac{d\theta_{F,4}(t)}{dt} \quad (57)$$

- $\dot{Q}_O$ = 314 W Wärmestrom (Inventar I_{FO})
- m_F = Masse der DGF in kg
- c_F = spez. Wärmekapazität in $J \cdot kg^{-1} \cdot ^\circ C$
- R_{Str} = Übergangswiderstand der Strahlung in $^\circ C \cdot W^{-1}$
- $\theta_{F,4}(t)$ = Temperatur der obersten DGF in $^\circ C$ als Funktion der Zeit
- $\theta_{S,4} \approx 115^\circ C$ /4/ stationäre Temperatur der umliegenden Schächte

Die allgemeine Lösung ergibt:

$$\theta_{F,4}(t) = K \cdot e^{-\frac{t}{\tau}} + \dot{Q}_O \cdot R_{Str} + \theta_{S,4} \quad (58)$$

- $\tau = m_F \cdot c_F \cdot R_{Str}$ Zeitkonstante in s
- K = Konstante in $^\circ C$

wobei die Konstante K durch Randbedingungen bestimmt werden kann. Es wird allerdings sofort der einge-

schwungene Zustand, also der Grenzwert der maximal erreichbaren Temperatur betrachtet.

$$\theta_{F,4}^*(t \rightarrow \infty) = \dot{Q}_O \cdot R_{Str} + \theta_{S,4} \quad (59)$$

Ohne den Übergangswiderstand der Strahlung explizit zu bestimmen, läßt sich das Problem als der durch 2 Strahlungsschilde [Transportgestell (TG) und Lager-schacht (LS)] behinderte Strahlungsaustausch der Quelle $\dot{Q}_O$ mit der Umgebung (U) im aufgeheizten stationären Fall lösen.

Dafür gilt

$$\dot{Q}_O = C_{W1} \cdot A_{W1} \left[\left(\frac{T_{S,4}^*}{100} \right)^4 - \left(\frac{T_{S,4}}{100} \right)^4 \right] \quad (60)$$

$$= C_{W2} \cdot A_{W2} \left[\left(\frac{T_{T,4}^*}{100} \right)^4 - \left(\frac{T_{S,4}^*}{100} \right)^4 \right] \quad (60a)$$

$$= C_{W3} \cdot A_{W3} \left[\left(\frac{T_F^*}{100} \right)^4 - \left(\frac{T_{T,4}^*}{100} \right)^4 \right] \quad (60b)$$

mit den Strahlungsaustauschfaktoren

$$C_{W1} = \frac{C_S}{\frac{1}{\epsilon} + \left(\frac{1}{\epsilon} - 1 \right) \frac{A_{W1}}{A_U}} \approx \epsilon \cdot C_S \quad \text{wegen } A_U \gg A_{W1}$$

$$C_{W2} = \frac{C_S}{\frac{1}{\epsilon} + \left(\frac{1}{\epsilon} - 1 \right) \frac{A_{W2}}{A_{W1}}}$$

$$C_{W3} = \frac{C_S}{\frac{1}{\epsilon} + \left(\frac{1}{\epsilon} - 1 \right) \frac{A_{W3}}{A_{W2}}}$$

der Strahlungskonstante $C_s = 5,775 \text{ WK}^{-4} \text{ m}^{-2}$ /45/ des schwarzen Strahlers und den Ringflächen

$A_{W1} = \pi D_S \cdot L$	Lagerschacht
$A_{W2} = \pi D_T \cdot L$	Transportgestell
$A_{W3} = \pi D_{DGF} \cdot L$	Druckgasflasche

Über die Bestimmung von $T_{S,4}^*$ und $T_{T,4}^*$ kann letztlich die maximal zu erwartende DGF-Wandtemperatur $T_{F,4}^*(\theta_{F,4}^*)$ berechnet werden. Diese liegt mit ca. 182°C unterhalb der zulässigen Betriebstemperatur von 200°C und bestätigt die eingangs aufgestellte Behauptung.

Zerplatzt eine DGF, so reagiert das durch den Kr-85-Zerfall entstandene Rubidium mit dem Luftsauerstoff unter Bildung von Rb_2O . Die spez. Reaktionswärme beträgt $q = 288 \text{ kJ mol}^{-1}$.

Entscheidend für die dem Schacht zugeführte Reaktionswärme ist die bei Ereigniseintritt zur Verfügung stehende Rb-Menge.

Die DGF in einem Schacht haben fast dasselbe Alter. Bei einer Beladungszeit der Zellen von ca. 2,5 Jahren beträgt das Inventar der zuerst eingelagerten DGF noch ca. 80 % des Inventars der zuletzt eingelagerten DGF, so daß näherungsweise alle DGF als gleich alt angesehen werden können.

Es wird angenommen, daß eine DGF nach einer Halbwertszeit zerplatzt. Dann ist einerseits das radioaktive Inventar und damit die Wärmeproduktion auf die Hälfte abgeklungen, so daß die DGF-Wandtemperaturen deutlich reduziert sind. Andererseits wird dann eine relativ große Rb-Menge von ca. 3 mol freigesetzt. Unter Annahme einer vollständigen Reaktion mit dem Luftsauerstoff wird eine Wärmemenge von $Q = 864 \text{ kJ}$ erzeugt. Nimmt man ferner an, daß diese Wärmemenge zum Aufheizen einer benachbarten DGF verbraucht wird, so liegt die Temperaturerhöhung bei ca. 11°C . Dieser Wert ist unkritisch und darüber hinaus äußerst konservativ.

Das Rubidium wird beim Zerplatzen sicher fein verteilt auf den umliegenden Stahlflächen niedergeschlagen werden und dann abreagieren.

Lokale Überhitzungen einer DGF sind dabei nicht zu befürchten. Versuche mit kleinen Rb-Mengen ($\leq 1,5$ g) ergaben, daß die Reaktion trotz Anblasens mit reinem Sauerstoff bei Aufgabe des Rb auf einen guten Wärmeleiter (V2A-Stahl Tiegel) wegen der guten Wärmeableitung wider Erwarten sehr langsam ablief und keine deutlich sichtbaren Spuren auf der Tiegeloberfläche hinterließ.

Ein Versagen benachbarter DGF durch Rb-Sprühen bzw. Rb-Reaktionen wird damit ausgeschlossen.

Auch für den Fall, daß zusätzlich Aktivkohle in die DGF eingefüllt war, sind Rückwirkungen auf benachbarte DGF kaum zu erwarten.

Das Rb wird, wie bereits beschrieben, größtenteils im Porenvolumen der Aktivkohle fixiert sein. Bei Luftsauerstoffzutritt wird die entstehende Reaktionswärme eine Aufheizung der Aktivkohle bewirken. Da der Zutritt von Luftsauerstoff wegen des ebenfalls noch im Porenvolumen vorhandene Krypton behindert, die Rb-Sauerstoff-Reaktion also über Desorptions-Adsorptions-Austauschvorgänge weiter verlangsamt wird, ist es fraglich, ob die Zündtemperatur der Aktivkohle erreicht werden kann und sekundär durch Aktivkohlebrand eine Wärmezufuhr erfolgt.

Versuche, die Aktivkohlesorten R 2030 bzw. Sorbonorit B4 durch Zugabe einer brennbaren Substanz bzw. mit einem Bunsenbrenner in Brand zu setzen, blieben ohne Erfolg. Jeweils 150 g Aktivkohle wurden dabei als lose Schüttung in eine Schale gegeben, mit Methanol (bis zu 200 g) durchtränkt und dann entzündet bzw. 5 min der Bunsenbrennerflamme ausgesetzt. Die Temperaturen in der Schüttung stiegen dabei auf ca. 140°C bzw. 260°C . Bis auf oberflächliche Glüh-effekte mit der Folge leichter Ascherückstände an einzelnen Körnern wurde keine selbsterhaltende Verbrennung eingeleitet.

Bei einem letzten Versuch wurde die Schüttung mit dem Bunsenbrenner bis zum Glühen (mittlere Temperatur in der Schüttung $\approx 500^{\circ}\text{C}$) aufgeheizt und dann sich selbst überlassen. Auch dabei entwickelte sich keine selbsterhaltende Verbrennung.

Selbst wenn man pessimistisch annimmt, daß die Aktivkohle in Brand gerät, wird keine DGF mit dem Brandherd direkt in Berührung stehen. Beim Bersten einer DGF fällt die Aktivkohle größtenteils nach unten auf den Boden des Raumes unterhalb des Lagergestells durch.

Die Wärme wird dann zum Teil durch Wärmeleitung in den Boden abgeführt und zum Teil durch Luftkonvektion und Strahlung zur Erwärmung darüberliegender Schächte führen. Der Temperaturanstieg wird wegen der großen vorhandenen Wärmekapazitäten (mehrere DGF, Transportgestelle und Schachtrohre) und der gleichzeitigen Wärmeabgabe an umliegende Schächte mit Sicherheit unkritisch bleiben.

Ein Versagen benachbarter DGF durch einen Aktivkohlebrand wird daher ebenfalls ausgeschlossen. Von den eingangs aufgeführten möglichen Ursachen für das Bersten von vier DGF werden daher nur die beiden erstgenannten weiter betrachtet. Als Häufigkeitsdichte ergibt sich dann

$$h_{011} \approx h_{20} + h_{21} \approx 10^{-6} \text{ a}^{-1}$$

012 Unterdruckhaltung ausgefallen

Die technische Auslegung des Lüftungssystems (Abluftanlage, Klappen, Unterdruckregelung etc.) liegt nicht vor, allerdings werden sich die Komponenten nicht wesentlich von sonst üblichen Lüftungstechnischen Einrichtungen unterscheiden. Es werden daher wiederum Ausfalldaten vergleichbarer Systeme angenommen, wobei das zu installierende System sicher nicht vollständig erfaßt wird.

Als Gesamtfehlerrate für das Versagen eines Klappensystems (Abluftklappen mit Steuerkette, Differenzdruckmessung, Regelung) wird in /46/ ein λ von $\approx 40 \cdot 10^{-6} \text{ h}^{-1}$ angegeben. Für den Ausfall eines Gebläses (Abluftgebläse) wird nach /27/ ein λ von $\approx 4 \cdot 10^{-6} \text{ h}^{-1}$ und für den Ausfall der Stromversorgung ein λ von 1 a^{-1} /47/ angenommen. Über ein ODER-Gatter ergibt sich

$$h_{012} \approx 1,4 \text{ a}^{-1}$$

Hierbei ist der Ausfall der Stromversorgung dominierend. Redundanzen (Notstromversorgung) sind nicht berücksichtigt.

013 Wärmetauschwand defekt

In Anlehnung an die Betrachtungen zu 002 wird hier gesetzt:

$$h_{013} \leq 10^{-3} \text{ a}^{-1}$$

014 Keine Einleitung der Zellenluft in die TTA

Dieses Ereignis wird nicht weiter aufgelöst.

4.3.4 Freisetzungsbaum für die Lagerphase

In der Lagerphase sind die Lagerzellen belegt. Einlagerungs- oder Umfüllvorgänge finden nicht mehr statt, und es ist nur noch die Freisetzung aus den Lagerzellen möglich. Für diesen Freisetzungspfad bleiben die Freisetzungskategorien

- Abluftkamin
- und Kühlluftschächte

bestehen.

Der Freisetzungsbaum (Abb. 36) beginnt mit "Freisetzung von Kr-85 in die Atmosphäre". Das TOP-Ereignis tritt ein, wenn Kr-85 in eine Lagerzelle freigesetzt wird. Eine Einleitung der

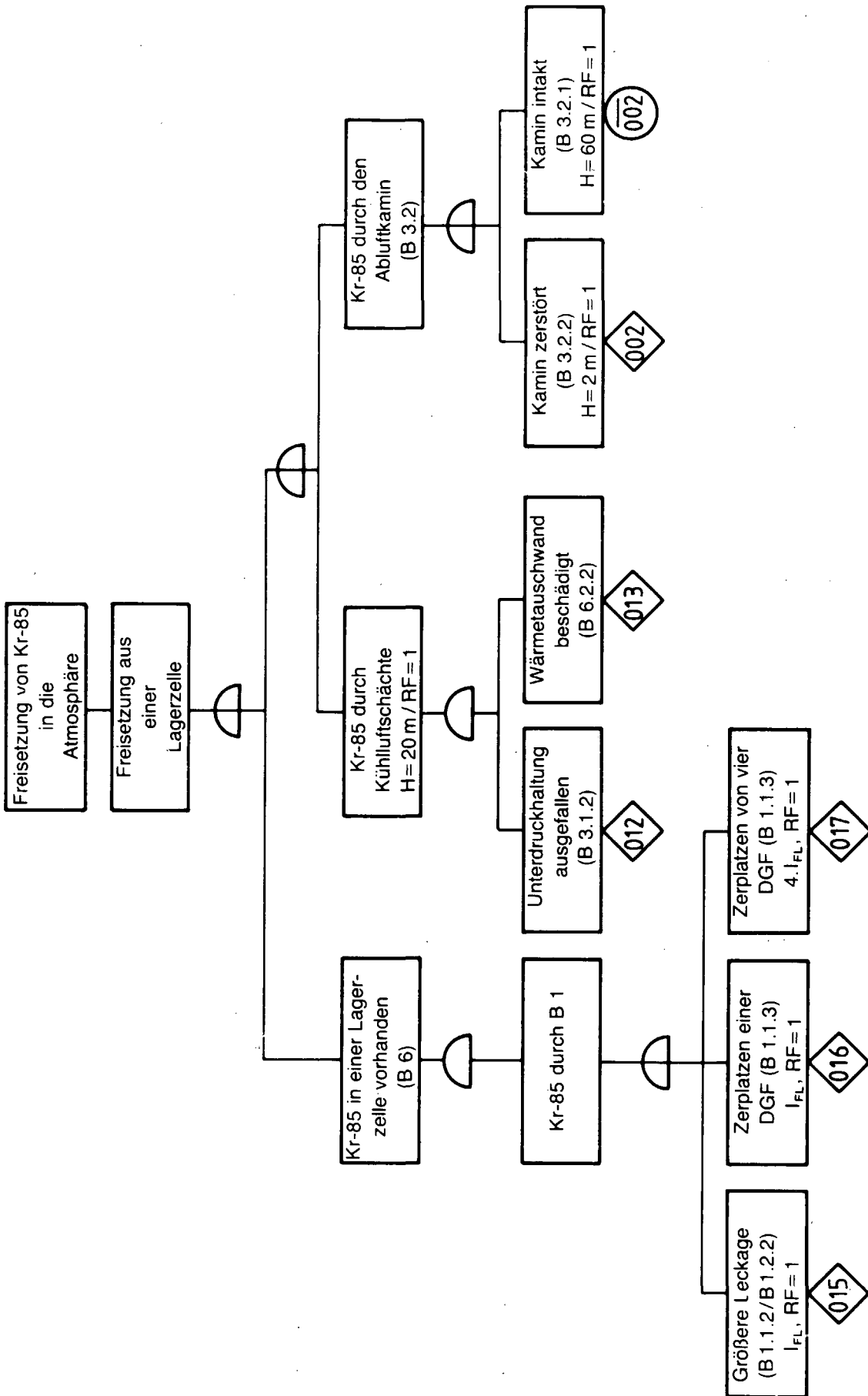


Abb. 36: Freisetzungsbaum für die Lagerphase

kontaminierten Luft der betroffenen Zelle in die TTA fällt aus, weil diese nicht mehr betrieben wird. Die Freisetzung erfolgt entweder über den Abluftkamin oder - bei einem Defekt in den Wärmetauschwänden und Ausfall der Unterdruckhaltung - über die Kühlluftschächte. Eine Freisetzung in eine Lagerzelle erfolgt durch das Versagen von primären Barrieren (DGF, B1), die nach Anzahl der versagenden Barrieren und den Versagenszuständen unterschieden werden und die Freisetzungsmengen bestimmen. Diese Basisereignisse finden über ein ODER-Gatter Eingang in das Ereignis "Krypton in Lagerzelle freigesetzt".

4.3.5 Fehlerbaumanalyse für die Lagerphase

Auf eine ausführliche Darlegung wird hier verzichtet. Viele Ausfallursachen bleiben auch bei stationärer Lagerung bestehen. Lediglich Handhabungsstörfälle kommen als Ursache nicht mehr in Betracht. Nicht von Handhabungsstörfällen beeinflusste Häufigkeitsdichten werden direkt aus Kapitel 4.3.3.2 in den TRT 4 übernommen. Das Lager ist in dieser Phase voll belegt, d. h. das die Häufigkeitsdichten für DGF-Versagen mit der gesamten DGF-Anzahl ($N_{DGF}^L = 1296$) modifiziert werden. Darüber hinaus wird beispielhaft (O15) gezeigt, daß es mit den zugrundeliegenden Annahmen zulässig ist, für einen Betrachtungszeitraum von 100 Jahren konstante Häufigkeitsdichten anzunehmen.

O15 Größere Leckage an DGF oder Ventil

$$h_{O15} = N_{DGF}^L \cdot h_{O09} \approx 3 \cdot 10^{-2} \text{ a}^{-1}$$

Danach ist bei einer 100-jährigen Lagerzeit mit dem Auftreten von drei Leckagen zu rechnen.

Setzt man die Exponentialverteilung der Ausfallwahrscheinlichkeit ($F(t)$) an, so gilt für die kumulierte Leckagehäufigkeit H_L (Anzahl der leckwerdenden DGF)

$$H_L = N_{DGF}^L (1 - e^{-\lambda_a(t_{LE} - t_B)}) \quad (61)$$

$$\lambda_a \approx 2 \cdot 10^{-5} \text{ a}^{-1}$$

$$t_{LE} - t_B = 100 \text{ a}$$

Die Auswertung ergibt einen Erwartungswert für Leckagen von $H_L \approx 2,6$; d. h. auch hier ist mit dem Leckwerden von 2 - 3 DGF zu rechnen.

016 Zerplatzen oder Aufreißen einer DGF

$$h_{016} \approx N_{DGF}^L \cdot h_{18} \approx 3 \cdot 10^{-2} \text{ a}^{-1}$$

Sofern die Versprödung des DGF-Werkstoffs durch Rubidium experimentell bestätigt wird, wäre mit dem Zerplatzen von 2 - 3 DGF zu rechnen.

017 Zerplatzen oder Aufreißen von vier DGF

$$h_{017} \approx N_{DGF}^L \cdot h_{18} \cdot p_B^3 \cdot p_Z^3 \approx 2,4 \cdot 10^{-6} \text{ a}^{-1}$$

4.4 Auswahl angenommener Störfälle und damit verbundene Freisetzungsmengen

Während der gesamten Betriebszeit (Betriebs- und Lagerphase) des Lagers stellen nur die DGF selbst ideale umschließende Barrieren dar. In der Betriebsphase sind die Lagerzellen als zweite ideale Barriere anzusehen, weil in dieser Phase die Möglichkeit besteht, in die Lagerzelle freigesetztes Kr-85 zu TTA zurückzuleiten und so eine Freisetzung in die Atmosphäre zu verhindern. Die übrigen Gebäudebarrieren führen je nach Zustand lediglich zu unterschiedlichen Freisetzungshöhen.

- Anlieferung und Inspektion

In diesen Räumen wird jeweils nur eine DGF ($I_{FO} = 7,4 \cdot 10^{15}$ Bq) gehandhabt. Versagt eine DGF (größere Leckage, $h_{005} \approx 5 \cdot 10^{-4} \text{ a}^{-1}$, Zerplatzen, $h_{006} \approx 3 \cdot 10^{-8} \text{ a}^{-1}$), erfolgt die Freisetzung des Inventars ($RF_{GL} \cdot I_{FO}$, I_{FO}) in diese Räume. Im Normalfall wird das jeweilige Inventar über den Abluftkamin ($H = 60 \text{ m}$) in die Atmosphäre freigesetzt. Ist beim Störfalleintritt allerdings gleichzeitig die 2. Barriere (Zellentor, Deckenstopfen) außer Funktion (beschädigt, $h_{004} \leq 10^{-3} \text{ a}^{-1}$; unbeabsichtigt geöffnet, $h_{003} \approx 5 \cdot 10^{-2} \text{ a}^{-1}$), erfolgt die Freisetzung direkt in die Umgebung ($H = 2 \text{ m}$).

- Umfüllung und Beschickung

Hier wird ebenfalls nur eine DGF manipuliert. Es liegt entweder schon eine Leckage vor (Umfüllvorgang) oder während der Einlagerung tritt eine Leckage ein. In beiden Fällen erfolgt der Austrag des freigesetzten Inventars ($\bar{I}_{FB} \cdot RF_{GL}$) über den Abluftkamin. Die Auswirkungen werden mit der oben beschriebenen Störfallmöglichkeit abgedeckt.

- Lagerzellen

Zu unterscheiden ist zwischen Betriebs- ($\bar{M}_{DGF}^Z = 108$, $\bar{I}_{FB} = 5,4 \cdot 10^{15}$ Bq) und Lagerphase ($N_{DGF}^Z = 216$, $\bar{I}_{FL} = 7,2 \cdot 10^{14}$ Bq).

Betriebsphase: Als möglicher Störfall wird das Zerplatzen einer DGF (Versprödung, $h_{010} \approx 1,3 \cdot 10^{-2} \text{ a}^{-1}$) angenommen. Auswirkungen (Umherfliegen von Bruchstücken) auf benachbarte DGF sind beim Zerplatzen einer DGF nicht auszuschließen. Als Folge eines plötzlichen Flaschenversagens ist daher auch das Zerplatzen von vier DGF (Folgereaktion, $h_{21} \approx 1 \cdot 10^{-6} \text{ a}^{-1}$) in Betracht zu ziehen.

Die erhöhte Radioaktivität in der betroffenen Lagerzelle wird in jedem Fall detektiert. Je nach freigesetzter Menge Q ($\bar{I}_{FB} \leq Q \leq 4 \cdot \bar{I}_{FB}$) kann dann entschieden werden, ob diese über den Abluftkamin ($H = 60 \text{ m}$) abgegeben oder zur TTA zurückgeleitet wird.

Tritt einer der möglichen Störfälle ein und werden gleichzeitig infolge äußerer Einwirkungen die Wärmetauschwände beschädigt

($h_{013} \leq 10^{-3} \text{ a}^{-1}$) sowie die Zwangsbelüftung in der Funktion beeinträchtigt ($h_{012} \approx 1,4 \text{ a}^{-1}$), so würde der Austrag der freigesetzten Radioaktivität über die Abluftschächte ($H = 20 \text{ m}$) erfolgen und zu größeren Dosiswerten führen.

Lagerphase: Beide für die Betriebsphase beschriebenen Störfallmöglichkeiten bleiben bestehen. Eine Einleitung der in eine Zelle freigesetzten Radioaktivitätsmenge Q ($\bar{I}_{FL} \leq Q \leq 4 \bar{I}_{FL}$, $3 \cdot 10^{-2} \text{ a}^{-1} \geq h \geq 2,4 \cdot 10^{-6} \text{ a}^{-1}$) in die TTA ist allerdings nicht mehr möglich. Der Austrag erfolgt entweder über den Abluftkamin oder im Falle der beschädigten Wärmetauschwand und dem gleichzeitigen Ausfall der Unterdruckhaltung über die Abluftschächte.

Darüber hinaus können hypothetische Störfälle definiert werden wie z. B. das Versagen aller DGF in einer Zelle (216) bzw. im Lager (1296) als Folge eines Temperaturanstiegs (z. B. Blockage der Kühlluftschächte), wodurch ein Druckanstieg in den DGF bis über die Festigkeitsgrenzen des Werkstoffs hinaus bewirkt werden könnte. Auslösende Ereignisse könnten große natürliche oder zivilisatorische Katastrophen sein. Sowohl deren Eintrittshäufigkeit als auch der Einwirkungsmechanismus auf das Lagergebäude entziehen sich einer quantifizierbaren Aussage.

Die radiologischen Auswirkungen des katastrophalen Versagens von 216 bzw. 1296 DGF wurden abgeschätzt und führen natürlich zu Dosiswerten, die über den Störfalldosisgrenzwerten liegen. Sie stellen damit obere Grenzwerte für eine mögliche Gefährdung dar.

4.5 Atmosphärische Ausbreitung und Dosisbelastung

Die Abschätzung der Dosiswerte aufgrund der angenommenen Störfallfreisetzungen wurde mit Hilfe des Gaußschen Ausbreitungsmodells durchgeführt. Hierbei wird von einer analytischen Lösung der Diffusionsgleichung ausgegangen /48/. Für Emissionshöhen $> 10 \text{ m}$ (Kamin) und längere Expositionszeiten $> 20 \text{ min}$ führt das zu einer realistischen Abschätzung mit einem Fehler $< 40 \%$. Für kleinere Emissionshöhen und Expositionszeiten sind z. Zt. keine experimentell verifizierten Modelle bekannt /49/.

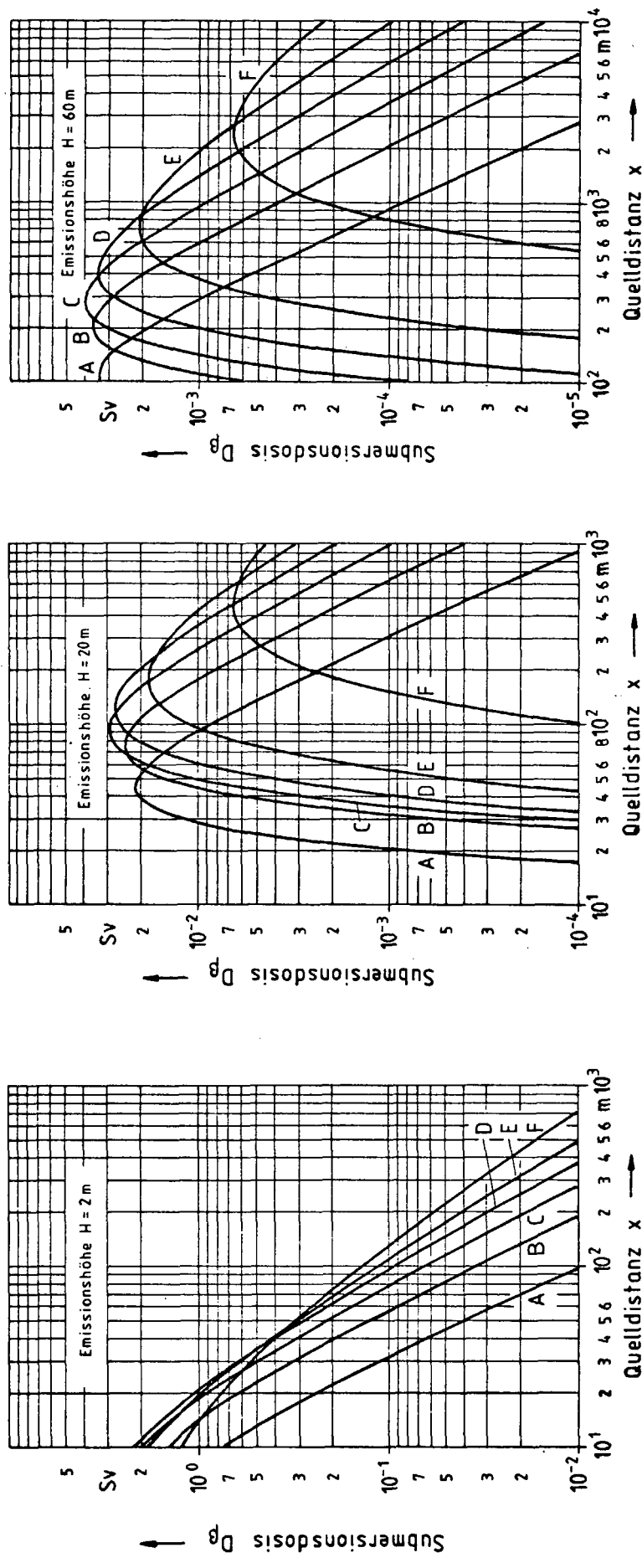
Die maximale individuelle Strahlenexposition als Folge einer Kr-85-Freisetzung (β -Submersionsdosis) berechnet sich nach /48/ zu

$$D_{\beta} = Q \cdot \hat{\chi} \cdot g_{\beta} \quad (61)$$

mit D_{β} = Störfalldosis durch β -Submersion in Sv
 Q = Freisetzungsmenge von Kr-85 in Bq
 $\hat{\chi}$ = Kurzzeit-Ausbreitungsfaktor für Einzel-
emission bei konstanten meteorologischen
Bedingungen in s/m^3
 g_{β} = Dosisfaktor für β -Submersion durch Kr-85
in $\text{Sv} \cdot \text{m}^3 / (\text{Bq} \cdot \text{s})$

In Abb. 37 sind die Dosiswerte D_{β} in Abhängigkeit von der Quelledistanz x und den Diffusionskategorien für bodennahe Emissionen ($H = 2 \text{ m}$), Abluftschachtemission ($H \approx 20 \text{ m}$) und Kaminemission ($H = 60 \text{ m}$) bei einer Freisetzung von $Q = 7,4 \cdot 10^{15} \text{ Bq}$ graphisch dargestellt. Dosis und Freisetzungsmenge sind linear miteinander verknüpft, so daß für die angenommenen größeren Störfallfreisetzungen die Dosiswerte um einen entsprechenden Faktor steigen.

In Tabelle 18 sind die angenommenen Störfälle, die damit verbundenen Freisetzungsmengen von Kr-85 und die maximalen Dosiswerte für die Diffusionskategorien C und F zusammengefaßt.



a) bodennahe Emission b) Abluftschachtemission c) Kaminemission

Abb. 37: β -Submersionsdosis als Funktion der Quelldistanz für die Diffusionskategorien A - F bei einer Freisetzung von $7,4 \cdot 10^{15}$ Bq Krypton-85

Tabelle 18: Angenommene Störfälle und daraus resultierende maximale β -Submersionsbelastungen im ungünstigsten Aufpunkt für die Diffusionskategorien C und F

Störfall	Quellstärke Q in Bq Kr-85	Emissions- höhe H in m	Diffusions-Kategorie C		Diffusions-Kategorie F		
			Quelldist. x in m	max. Dosis D ₈ in Sv	Quelldist. x in m	max. Dosis D ₈ in Sv	
Flaschenversagen bei der Anlieferung (I _{FO})	7,4 · 10 ¹⁵	2	9**	1,9	14**	0,8	
		60	280	4,0 · 10 ⁻³	2,4 · 10 ³	6,7 · 10 ⁻⁴	
Flaschenversagen in einer Lagerzelle							
Betriebsphase:							
1 Druckgasflasche (I _{FB})	5,4 · 10 ¹⁵	20	90	2,1 · 10 ⁻²	445	5,1 · 10 ⁻³	
		60	280	2,9 · 10 ⁻³	2,4 · 10 ³	4,9 · 10 ⁻⁴	
	4 Druckgasflaschen (4·I _{FB})	2,2 · 10 ¹⁶	20	90	8,6 · 10 ⁻²	445	2,1 · 10 ⁻²
			60	280	1,2 · 10 ⁻²	2,4 · 10 ³	2,0 · 10 ⁻³
Lagerphase:							
1 Druckgasflasche (I _{FL})	7,2 · 10 ¹⁴	20	90	2,8 · 10 ⁻³	445	6,3 · 10 ⁻⁴	
		60	280	3,9 · 10 ⁻⁴	2,4 · 10 ³	6,5 · 10 ⁻⁵	
	4 Druckgasflaschen (4·I _{FL})	2,9 · 10 ¹⁵	20	90	1,1 · 10 ⁻²	445	2,7 · 10 ⁻³
			60	280	1,6 · 10 ⁻³	2,4 · 10 ³	2,6 · 10 ⁻⁴
Hypothetisches Flaschenversagen							
Betriebsphase:							
108 Druckgasflaschen (I _{LZ})	1,2 · 10 ¹⁸	20	90	4,7	445	1,1	
		60	280	6,5 · 10 ⁻¹	2,4 · 10 ³	1,1 · 10 ⁻¹	
	648 Druckgasflaschen (I _{LB})	3,5 · 10 ¹⁸	20	90	13,7	445	3,3
			60	280	1,9	2,4 · 10 ³	3,2 · 10 ⁻¹
1296 Druckgasflaschen (I _{LBO})	6 · 10 ¹⁸	20	90	23,5	445	5,7	
		60	280	3,2	2,4 · 10 ³	5,4 · 10 ⁻¹	
Lagerphase:							
216 Druckgasflaschen (I _{LZL})	1,6 · 10 ¹⁷	20	90	6,3 · 10 ⁻¹	445	1,5 · 10 ⁻¹	
		60	280	8,6 · 10 ⁻²	2,4 · 10 ³	1,5 · 10 ⁻²	
	1296 Druckgasflaschen (I _{LL})	9,3 · 10 ¹⁷	20	90	3,6	445	8,8 · 10 ⁻¹
			60	280	5,0 · 10 ⁻¹	2,4 · 10 ³	8,4 · 10 ⁻²

**innerhalb des Betriebsgeländes der WAA

5. KONZEPT DER VERSENKUNG VON KRYPTON-85 IN DAS MEER

5.1 Basisdaten zur Konzeptauslegung

Die in Kapitel 2.1 beschriebene Ausgangssituation bildet auch hier die Grundlage, d. h. die nochmalige Darlegung der Basisdaten erübrigt sich.

5.2 Konzeptbeschreibung

5.2.1 Verfahrensablauf bei Versenkungsaktionen

Im folgenden werden die Verfahrensabläufe in ihrer zeitlichen Abfolge kurz beschrieben.

- Füllen der Druckgasflaschen

Die Fülltechnik selbst ist unabhängig von der später zu wählenden Sicherstellungsmethode. Bei einer wiederum zugrundeliegenden Gasgemischfüllmenge von ca. 88,6 mol besteht auch hinsichtlich des radioaktiven Inventars I_{FO} einer DGF und der Anzahl der pro Jahr zu beseitigenden DGF kein Unterschied zum vorher beschriebenen Konzept.

- Zwischenlagerung

Nach dem Füllen mit anschließender Dichtigkeitskontrolle werden jeweils vier DGF in Transportbehälter eingesetzt. Diese werden dann in einem gegen Einwirkung von außen geschütztes Sammelager zwischengelagert (Abb. 38). Es ist vorgesehen, einmal im Jahr eine Versenkungsaktion durchzuführen. Das Sammelager muß also mindestens 22 Transportbehälter aufnehmen können.

Konzipiert wurde es für die Aufnahme von 25 Transportbehältern.

- Transport zum Verladehafen

Die im Laufe eines Jahres beladenen Transportbehälter werden entweder als Sammeltransport per Bahn oder als Einzeltransporte per Güterkraftfahrzeug (GüKfz) zum Verladehafen befördert. Dazu

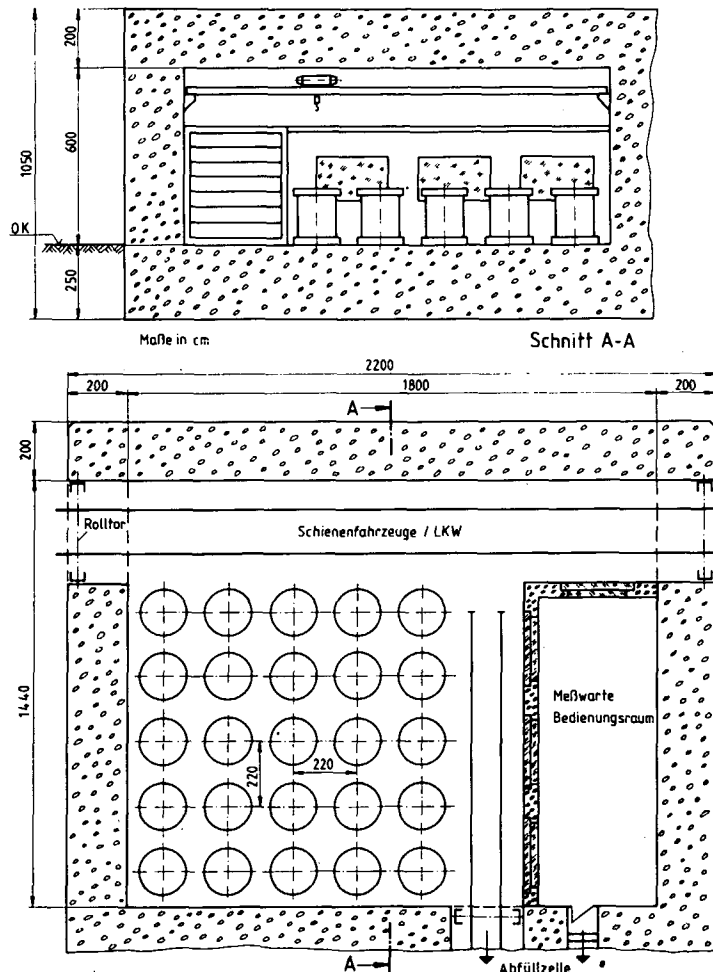


Abb. 38: Sammellager für mit jeweils vier DGF beladenen Transportbehälter

werden diese auf Transportpaletten gespannt, die ihrerseits auf Ladeflächen der Waggonen oder GÜKfz befestigt werden (Abb. 39).

- Schiffstransport zum Versenkungsort

Im Verladehafen werden die Transporteinheiten direkt in das für die Versenkungsaktion vorgesehene Frachtschiff verladen und dort sicher verankert.

- Versenkung der Druckgasflaschen

Nach Erreichen des festgelegten Versenkungsgebiets auf hoher See werden die DGF einzeln aus den Transportbehältern in eine

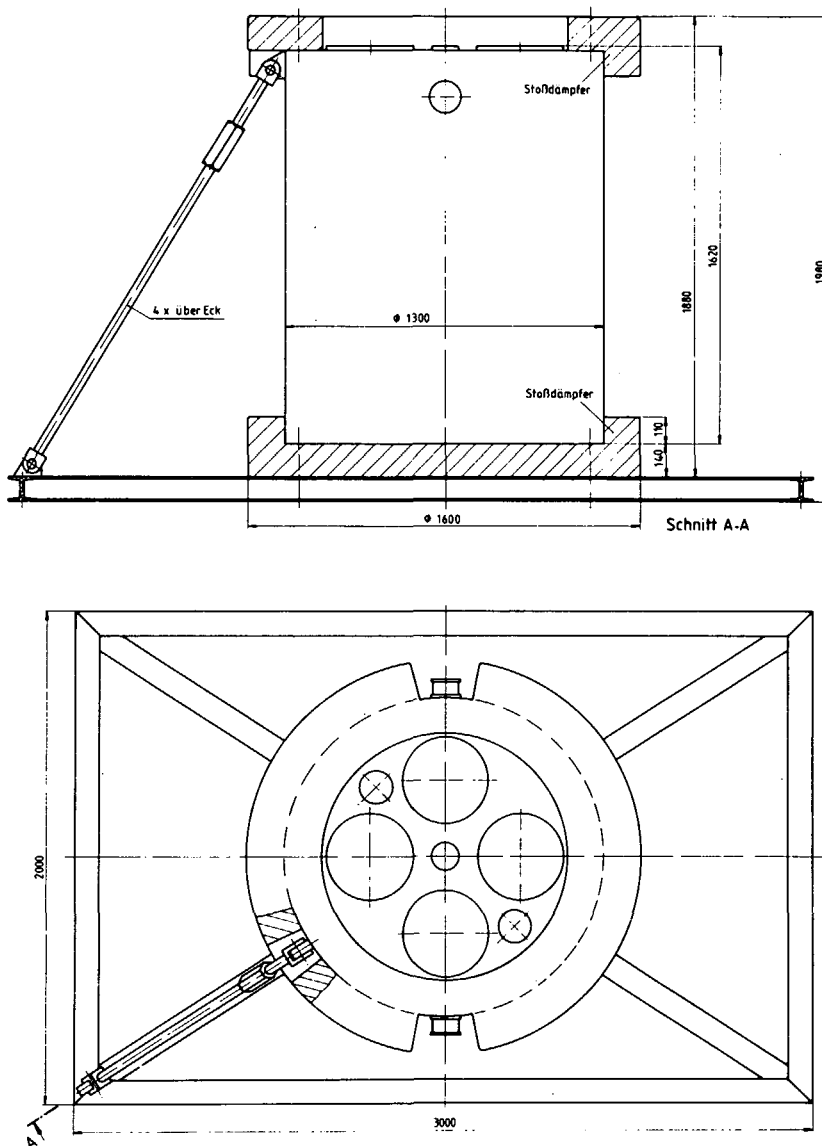


Abb. 39: Transporteinheit für den Überlandtransport per Bahn oder per GüKfz

am Ladegeschirr des Schiffes hängende Abschirmbüchse gezogen, die dann außenbords geschwenkt und entladen wird. Sowohl das Einziehen als auch das Entladen einer DGF erfolgt dabei über einen durch Seilzug betätigten Schieber im Boden der Abschirmbüchse. Bei einer mittleren Dichte der DGF von etwa $2,5 \text{ g cm}^{-3}$ ist das Absinken nach dem Eintauchen ins Wasser gewährleistet. Die vorgeschriebene Versenkungstiefe liegt bei $> 5000 \text{ m}$.

5.2.2 Auslegungsmerkmale wichtiger Komponenten

5.2.2.1 Druckgasflasche und Ventil

Als Kryptonbehälter wurde ebenfalls ein zylindrischer DGF gewählt, deren Auslegungsmerkmale aus Tabelle 19 zu ersehen sind.

Tabelle 19: Auslegungsmerkmale der DGF

<u>Druckgasflasche</u>	
Nennvolumen	30 l
Länge (ohne Ventil)	1070 mm
Außendurchmesser	230 mm
Wandstärke	15 mm*
Gewicht (ohne Ventil)	810 N
Werkstoff	austenitischer oder ferritischer Cr-Ni-Stahl
zul. Betriebsdruck	133 bar (bei 200°C)
zul. Betriebstemperatur	200 °C
zul. Füllmenge	
Kr-85	6,06 mol
Kr _{ges}	79,75 mol
Xe	8,87 mol
	88,62 mol
Wärmeleistung	314 W (bei zul. Füll- menge)

*Wandstärke unter Zugrundelegung der $R_{p0,2}$ -Grenze
des Werkstoffs 1.4439

Als möglicher DGF- und Ventilwerkstoff kommen nur für den Meerwassereinsatz entwickelte Stahlsorten in Betracht. Dies sind einige austenitische oder ferritische Chrom-Nickel-(Molybdän)-Stähle, die in Kapitel 6.3.1 näher spezifiziert werden.

Das speziell für die Versenkung entwickelte Ventil ist mit einer Druckausgleichsvorrichtung versehen (Abb. 40). Bei einer Wassertiefe von ca. 150 m dringt Wasser über das federvorgespannte

Kegelsitzventil (5) in das Ventilgehäuse ein.

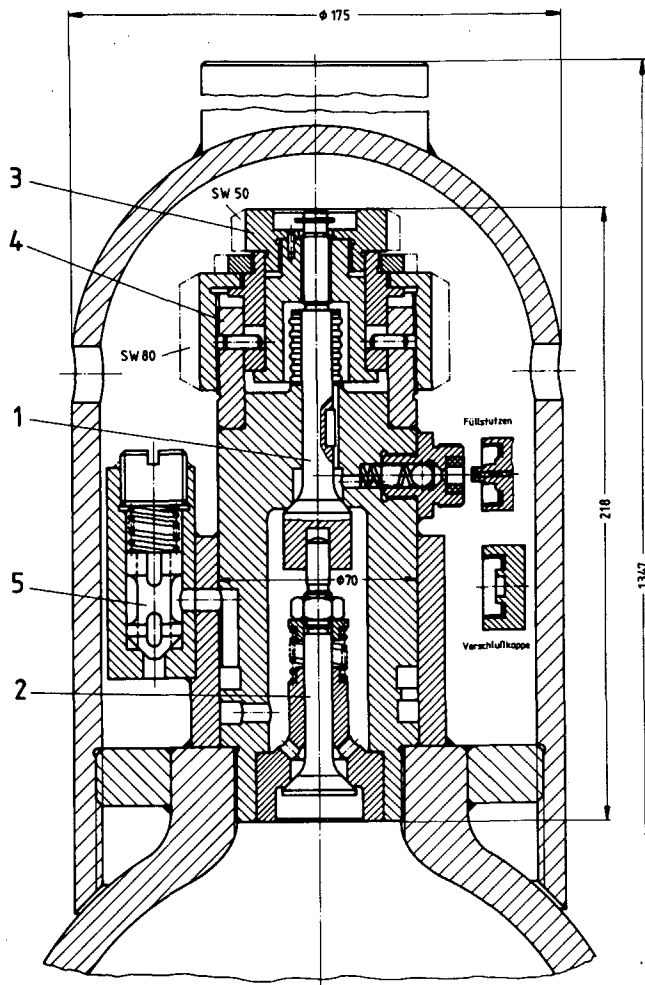


Abb. 40: Druckausgleichsventil (Patent angemeldet /50/)

Ab einer Tiefe von etwa 1100 m ist der Wasserdruck im Gehäuse und damit auf dem Ventilkegel (2) größer als die Federvorspannung und der Gasdruck, so daß Wasser in die DGF einströmt und der Druckausgleichsvorgang beginnt. Die gegenüber innerem Überdruck wesentlich kritischere Belastung der DGF durch äußeren Überdruck wird über die Vorspannung der beiden Federn auf zulässige Werte begrenzt. Die DGF braucht also nicht für einen äußeren Überdruck von > 500 bar ausgelegt zu werden.

5.2.2.2 Transportbehälter

Der für den Transport der Druckgasflaschen vorgesehene Behälter entspricht den in den "Regulations for the Safe Transport of Radioactive Materials" /51/ gestellten Anforderungen an einen Typ B(M)-Behälter und bedarf damit der multilateralen Genehmigung durch die vom Transport berührten Staaten.

Er nimmt als Sammelbehälter 4 Flaschen mit einer Gesamtradioaktivität von $2,96 \cdot 10^{16}$ Bq entsprechend einer Zerfallswärmeleistung von 1,26 kW auf und wiegt mit seinem Durchmesser von 1,3 m und seiner Höhe von 1,6 m ca. 8,8 t (Abb. 41).

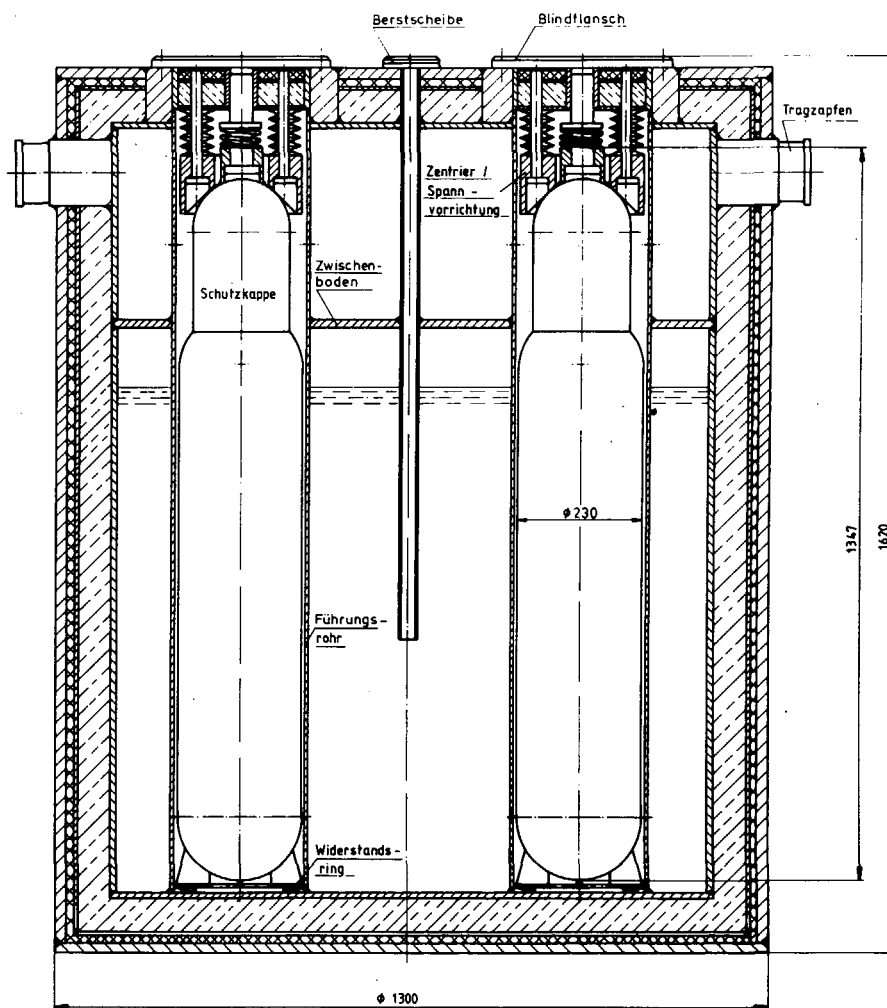


Abb. 41: Transportbehälter mit eingesetzten DGF

Die DGF werden durch eingeschweißte Rohre seitlich geführt und über eine Zentrier- und Spannvorrichtung gegen den Behälterboden gedrückt und axial fixiert.

Das die Rohre im unteren Teil des Behälters umgebende Wasser dient als Wärmeübertragungsmedium für die Abfuhr der Zerfallswärme und besitzt eine genügend große Wärmekapazität, um die während der Erhitzungsprüfung in den Behälter eindringende Wärme aufzunehmen. Der dabei entstehende Wasserdampf entweicht über das zur Behälteroberseite führende Rohr, an dessen Ende eine beim Überdruck von 2 bar öffnende Berstscheibe angebracht ist.

Der obere Teil des Behälterinnenraums dient als Puffervolumen zur Aufnahme des gesamten Gasinhaltes einer während des Transports eventuell undicht gewordenen DGF. Puffervolumen und Wasserbad sind durch den eingeschweißten Zwischenboden und die die DGF umgebenden Rohre gasdicht getrennt.

In die Behälteroberseite sind zwei Ventile eingelassen, die den Anschluß einer Schnüffelleitung zur Dichtheitskontrolle während der Zwischenlagerung sowie eine Druckentlastung und Spülung des Puffervolumens vor der Versenkung der DGF ermöglichen.

Zum Schutz des Behälters gegen Zerstörung durch die bei Unfällen eventuell auftretenden mechanischen Beanspruchungen werden für den Transport auf seine Ober- und Unterseite Ringe aus geschichtetem Buchenholz aufgeschraubt.

5.2.2.3 Abschirmbüchse

Die Abschirmbüchse (Abb. 42) hat ein Gesamtgewicht von ca. 1,5 t und gewährleistet sowohl die erforderliche Strahlenabschirmung und den Schutz gegen äußere Beschädigung der DGF als auch die leichte Entladung der Transportbehälter auf hoher See. Diese bleiben nämlich während der Entladung im Frachtraum des Schiffes oder auf dem Ladendeck fest verankert. Nach Entfernen des jeweiligen Blindflansches wird die Abschirmbüchse auf den Transportbehälter aufgesetzt, der Schieber geöffnet und die mit der Zentrier- und Spannvorrichtung über einen Verriegelungsbolzen verbundene DGF in die Abschirmbüchse gezogen. Danach wird der

Schieber geschlossen und die DGF von der Spannvorrichtung entkoppelt, so daß die DGF frei in der Abschirmbüchse steht. Nach dem Ausschwenken der Abschirmbüchse wird der Schieber über einen Seilzug wieder geöffnet, und die DGF fällt ins Wasser.

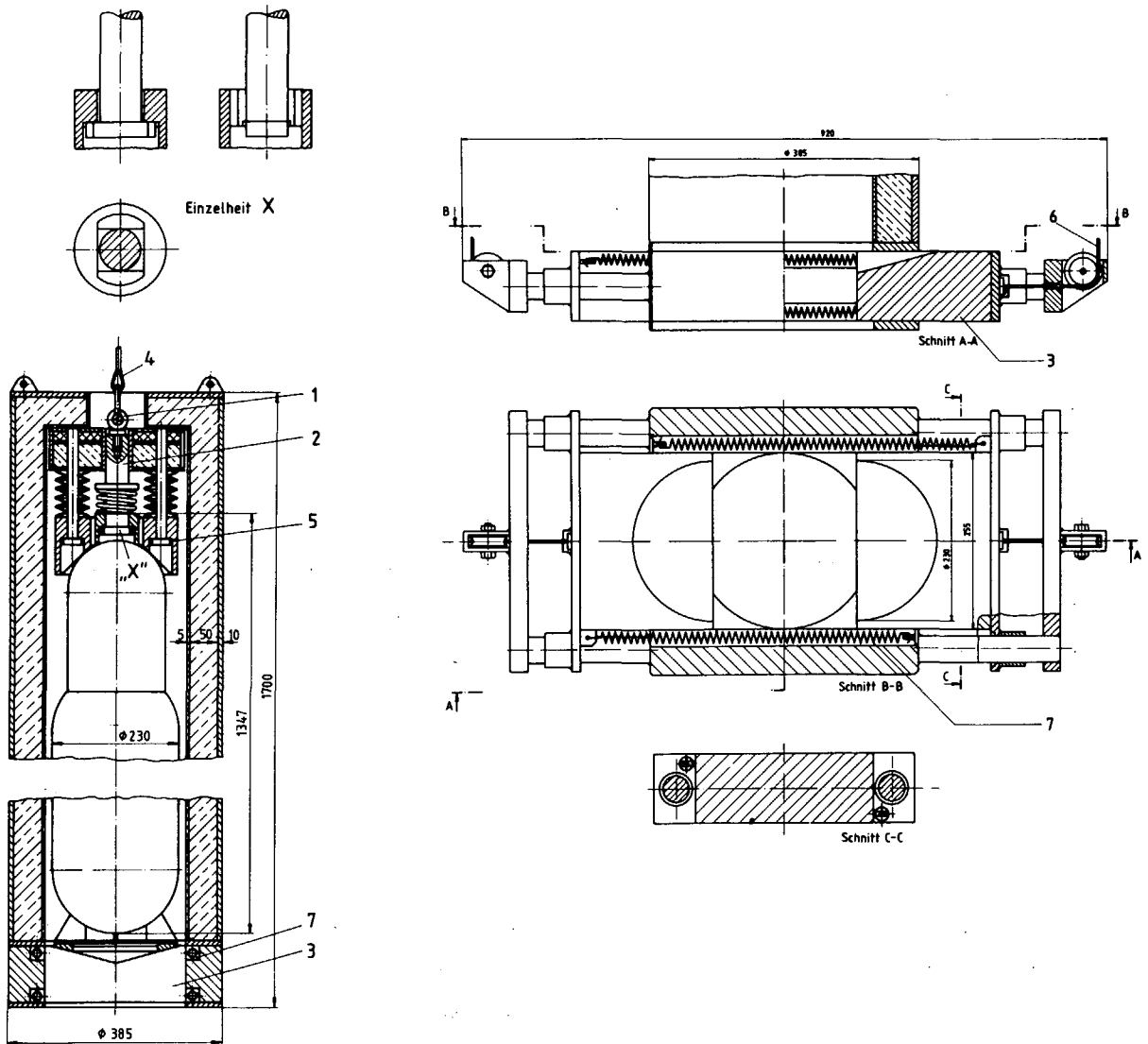


Abb. 42: Abschirmbüchse mit eingezogener DGF

6. SICHERHEITSTECHNISCHE PROBLEME BEI DER VERSENKUNG

6.1 Anforderung an den Flaschen- und Ventilwerkstoff

Der Flaschen- und Ventilwerkstoff wird sehr unterschiedlichen Beanspruchungen ausgesetzt, so daß er folgende Forderungen erfüllen soll:

- Ausreichende Kerbschlagzähigkeit bei tiefen Temperaturen, sofern die DGF kryogen befüllt werden.
- Ausreichende Festigkeit bei Temperaturen bis zu 200°C.
- Gute Schweißbarkeit.
- Korrosionsbeständigkeit gegenüber Rubidium (Zwischenlagerung).
- Sehr gute Korrosionsbeständigkeit in Meerwasser (Standzeiten von 80 Jahren - 100 Jahren sind wünschenswert).

Die letzte Forderung stellt eine über das übliche hinausgehende Forderung dar, die auch von den für kurze Standzeiten (einige Jahre) als beständig anzusehenden und im weiteren als geeignet erscheinenden Stählen nicht mit Sicherheit erfüllt werden kann.

Bei einer Zwischenlagerzeit von maximal einem Jahr stellt die Rb-Korrosion aufgrund der durchgeführten Experimente und der in Kapitel 3.2.4 diskutierten Ergebnisse kein Problem dar.

6.2 Korrosionsverhalten von hochlegierten austenitischen Stählen in Meerwasser

Das Korrosionsverhalten dieser chemische beständigen Stähle in Meerwasser wird weniger durch einen gleichmäßigen Korrosionsangriff als vielmehr durch lokale Korrosionsarten wie Lochfraß-, Spalt-, Spannungsriß- und interkristalline Korrosion bestimmt.

6.3 Korrosionsbeeinflussende Faktoren

Untersuchungen über die Mechanismen und Einflußgrößen des örtlichen Korrosionsangriffs bei hochlegierten austenitischen Stählen sind in einer Vielzahl vorhanden. Die gefundenen Untersuchungsergebnisse ergeben aber kein einheitliches Bild der Lokalkorrosion und der Abhängigkeit von den verschiedenen Einflußgrößen /52/.

6.3.1 Angriffsmitteleitige Parameter

Die in Tabelle 20 zusammengestellten korrosiven Eigenschaften von Meerwasser werden durch chemische, physikalische und biologische Faktoren bestimmt.

Tabelle 20: Korrosionsfaktoren des Meerwassers /53/

Chemical	Physical	Biological
<u>Dissolved Gases</u> Oxygen Carbon dioxide	<u>Velocity</u> Air bubbles Suspended silt	<u>Biofouling</u> Hard-shell types Types without hard shells Mobile and semimobile types
<u>Chemical Equilibrium</u> Salinity pH Carbonate solubility	<u>Temperature</u> <u>Pressure</u>	<u>Plant Life</u> Oxygen generation Carbon dioxide consumption <u>Animal Life</u> Oxygen consumption Carbon dioxide generation

Diese sind von Ort zu Ort verschieden, und hier liegt sicher ein Grund, warum ein bestimmter Stahl bei Naturrostversuchen an verschiedenen Orten ein unterschiedliches Verhalten zeigt /53/, /54/, /55/. Im folgenden sollen die Einflüsse des Sauerstoffs, des Salzgehaltes, der Temperatur, der Strömungsgeschwindigkeit, des pH-Wertes sowie der Einfluß von biologischen Faktoren in ihrer Tendenz auf das Korrosionsverhalten hochlegierter austenitischer Edelstähle beschrieben werden.

Sauerstoff: Bei einem Chromgehalt der Stähle von mindestens 12 % sind diese passivierbar, d. h. es bildet sich bei An-

wesenheit von Sauerstoff eine Passivoxidschicht /56/. Diese schützt dann gegen einen weiteren Korrosionsangriff. Fehlstellen und Defekte in der Passivschicht werden bei ausreichendem Sauerstoffangebot wieder ausgeheilt, so daß einsetzende Lokalkorrosion an diesen Stellen wieder gestoppt wird. Im Atlantischen Ozean ist der Sauerstoffgehalt relativ hoch. Dieser schwankt jahreszeitlich bedingt, nimmt mit zunehmender Tiefe zu und wird mit einer Größenordnung von 6 ml/l_{H₂O} - 11 ml/l_{H₂O} angegeben /53/, /54/.

Salzgehalt: Der Salzgehalt liegt bei ca. 3,5 %. Eine typische Zusammensetzung ist in Tabelle 21 gegeben.

Tabelle 21: Zusammensetzung und Ionengehalt des Meerwassers /53/

Constituent	of Water of Salinity 35 o/oo	Cations, percent		Anions percent	
Chloride	19.353	Na ⁺	1.056	Cl ⁻	1.898
Sodium	10.76	Mg ⁺⁺	0.127	SO ₄	0.265
Sulphate	2.712	Ca ⁺⁺	0.040	HCO ₃ ⁻	0.014
Magnesium	1.294	K ⁺	0.038	Br ⁻	0.0065
Calcium	0.413	Sr ⁺⁺	<u>0.001</u>	F ⁻	<u>0.0001</u>
Potassium	0.387				
Bicarbonate	0.142	Total	1.262	Total	2.184
Bromide	0.067				
Strontium	0.008				
Boron	0.004				
Fluoride	0.001				

Für einen Korrosionsangriff entscheidend sind die Halogen-Ionen (Cl⁻, Br⁻, J⁻), wobei der hohe Cl⁻-Anteil dominierend ist. Ionen werden an diskreten Stellen der Passivschicht adsorbiert. Nach einer Inkubationszeit kann die Passivschicht durchdrungen und Lochfraßkorrosion eingeleitet werden /56/, /57/.

Temperatur: Die Reaktionsgeschwindigkeit chemischer Prozesse nimmt mit sinkender Temperatur ab und die Sauerstofflöslichkeit zu, so daß die niedrigen Temperaturen in großen Tiefen (> 5000 m) sich günstig auf das Korrosionsverhalten auswirken können.

Strömungsgeschwindigkeit: Hohe Strömungsgeschwindigkeiten sind mit einem schnellen Transport von gelöstem Sauerstoff verbunden, der die Aufrechterhaltung der Passivschicht bewirkt. In Tiefen > 5000 m sind Wasserbewegungen vernachlässigbar klein, so daß die stagnierenden Bedingungen sich ungünstig auf das Korrosionsverhalten auswirken können /53/.

pH-Wert: Meerwasser ist leicht basisch, d. h. der pH-Wert liegt bei ca. 8. Mit zunehmendem Druck, also zunehmender Tiefe, nimmt der pH-Wert ab, so daß in großen Tiefen eine geringere Tendenz zur Bildung von Karbonatschutzschichten besteht. Insgesamt bleibt der pH-Wert in größeren Tiefen > 7, damit wird ein pH-Wert < 3, der neben einer Temperatur > 50°C als Voraussetzung für das Auftreten von Spannungsrißkorrosion gegeben sein muß, nicht erreicht /62/.

Biologische Faktoren: Meerwasser und Sedimente des Meeresbodens enthalten Bakterien und Mikroorganismen, die zum größten Teil fakultativ anaerob sind, d. h. ihre Stoffwechselvorgänge laufen sowohl mit als auch ohne freien Sauerstoff ab. Es ist daher wahrscheinlich, daß nicht nur die sulfatreduzierenden Bakterien Korrosion einleiten können, sondern auch andere Bakterien /53/, /58/. Bakterien Schleime und Mikroorganismen bilden im allgemeinen den Erstbewuchs auf glatten Metalloberflächen und erleichtern den Bewuchs mit Sekundärorganismen wie Schalentiere, Schwämme, Seepocken etc. Durch Bewuchs entstehen Spalte, in denen Spaltkorrosion auftreten kann, da hier der Sauerstofftransport zur Ausheilung von Defektstellen in der Passivschicht behindert wird.

6.3.2 Werkstoffseitige Parameter

Zum Schutz gegen örtlichen Korrosionsangriff sind im Zusammenhang mit der Versenkung von Druckgasflaschen nur werkstoff-

seitige und sonstige Maßnahmen (kathodischer Schutz) sinnvoll. Medienseitige Maßnahmen scheiden wegen der natürlichen Gegebenheiten am Versenkungsort aus. Maßgeblich für die Korrosionsbeständigkeit der hier betrachteten Edelstähle sind deren chemische Zusammensetzung sowie Gefüge- und Oberflächenbeschaffenheit.

Chemische Zusammensetzung: Für die Beständigkeit gegen Lochfraß- und Spaltkorrosion sind vor allem die beiden Legierungselemente Chrom und Molybdän verantwortlich. Ein zu hoher Molybdängehalt ($> 3,5 \%$) verstärkt jedoch die Neigung zur Ausscheidung von intermetallischen Phasen, was speziell beim Schweißen die Korrosionsbeständigkeit im Schweißnahtbereich herabsetzt. Durch Zulegieren von Stickstoff ($\approx 0,15 \%$) wird eine Ausscheidung verhindert, so daß sich Stickstoff auch günstig auf die Korrosionsbeständigkeit auswirkt /59/.

Als Maß für die Lochfraßempfindlichkeit und parallel dazu für die Spaltkorrosionsempfindlichkeit wird das sog. Lochfraßpotential herangezogen. Aus Abb. 43a, b ist die Abhängigkeit des Lochfraßpotentials von der Wirksumme ($W = \% \text{Cr} + 3,3 \cdot \% \text{Mo}$) der beiden Legierungselemente Chrom und Molybdän ersichtlich, wobei aufgrund unterschiedlicher Meßverfahren die ermittelten Potentiale geringfügig differieren.

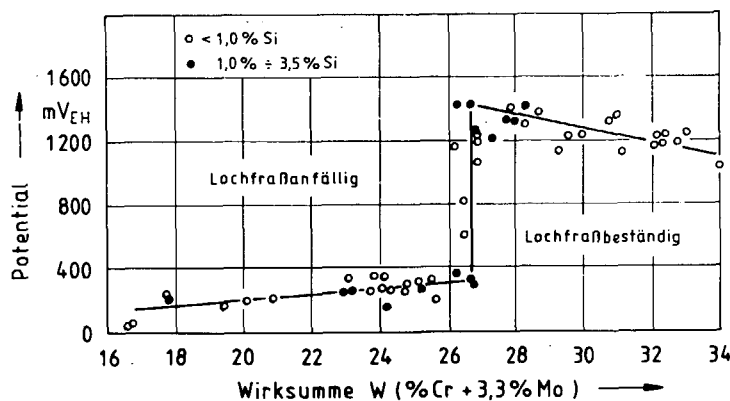


Abb. 43a: Einfluß von Chrom- und Molybdängehalt auf das Potential von austenitischen Chrom-Nickel-Stählen mit unterschiedlichem Siliziumgehalt bei galvanostatischer Prüfung ($30 \mu\text{A}/\text{cm}^2$) im belüfteten künstlichen Meerwasser bei 20°C /60/

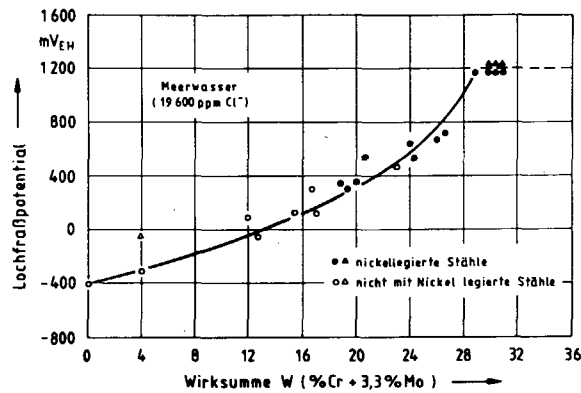


Abb. 43b: Einfluß von Chrom- und Molybdängehalt auf das potentio-kinetisch ermittelte Lochfraßpotential ferritischer und halbferritischer Stähle sowie austenitischer Legierungen in künstlichem Meerwasser bei 20°C /60/

Neben rein werkstoffseitigen Faktoren hängt das Lochfraßpotential auch von angriffsmittelseitigen Faktoren wie Temperatur, pH-Wert und Cl^- -Konzentration ab (Abb. 44a-c). Eine ca. 0,55-normale NaCl-Lösung hat eine dem Meerwasser entsprechende Cl^- -Konzentration von ca. 19.600 ppm. In die Diagramme ist die ungefähre Lage des Lochfraßpotentials in Meerwasser für den zu erwartenden Temperatur- und pH-Bereich eingezeichnet.

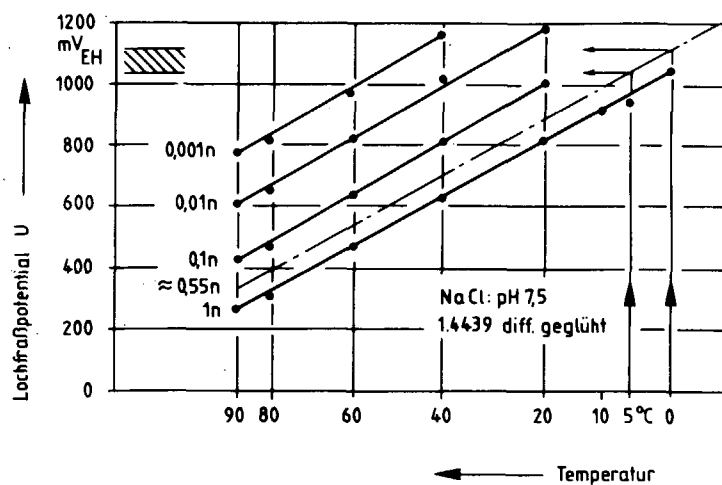


Abb. 44a: Temperaturabhängigkeit der Lochfraßpotentiale U_L von X 3 CrNiMoN 17 13 5, W.Nr. 1.4439, diffusionsgeglüht, in NaCl-Lösungen /57/

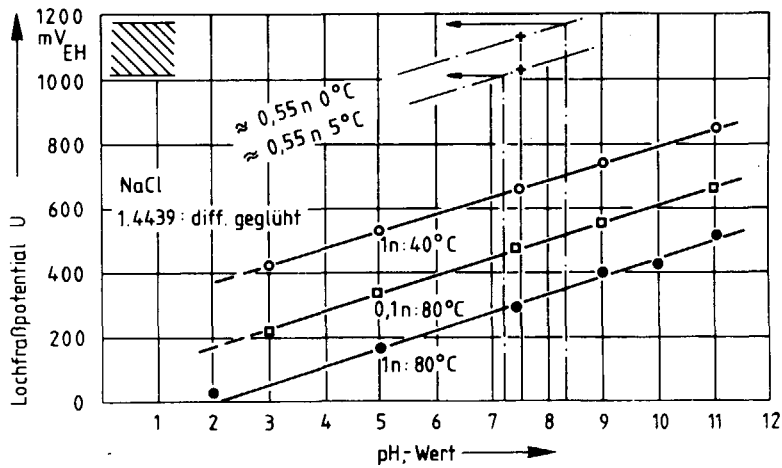


Abb. 44b: pH-Abhängigkeit der Lochfraßpotentiale U_L , von X 3 CrNiMoN 17 13 5, W.Nr. 1.4439, diffusionsgeglüht, in NaCl-Lösungen /57/

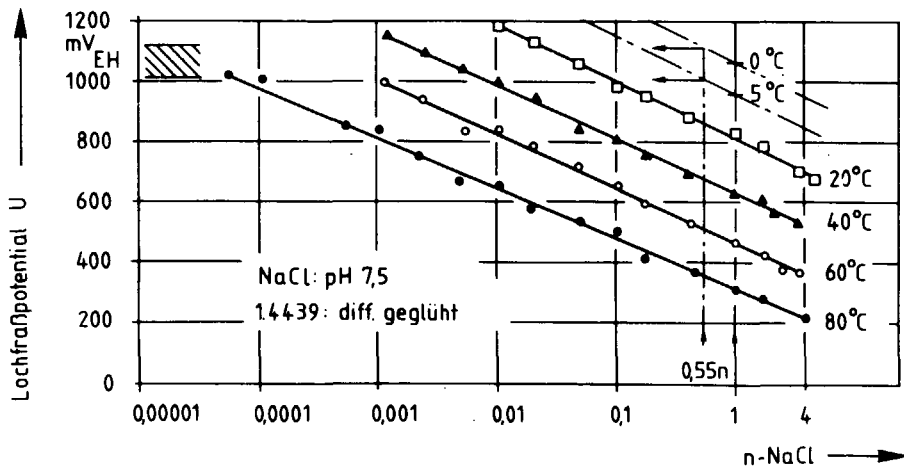


Abb. 44c: Lochfraßpotentiale U_L von X 3 CrNiMoN 17 13 5, W.Nr. 1.4439, diffusionsgeglüht, in NaCl-Lösungen in Abhängigkeit von der Chlorionenaktivität und der Temperatur /57/

Gefüge- und Oberflächenbeschaffenheit: Einschlüsse, Ausscheidungen und Mikroseigerungen führen häufig zu unedleren Lochfraßpotentialen. Durch legierungstechnische Maßnahmen und entsprechende Wärmebehandlung lassen sich Gefügeheterogenitäten meist beseitigen.

Wie Tabelle 22 zeigt, nimmt die Lochfraßanfälligkeit mit zunehmender Oberflächengüte ab.

Tabelle 22: Abhängigkeit des Lochfraßpotentials von der Oberflächenvorbehandlung in 5 %iger NaCl-Lösung bei 20°C /52/

Oberflächenvorbehandlung	Lochfraßpotential in mV _{EH}
gesandstrahlt/passiviert	- 30
geschliffen/passiviert	+ 310
gebeizt/passiviert	+ 360
mechanisch poliert/passiviert	+ 420

Die anfangs vorhandene Oberflächengüte spielt aber bei zu versenkenden Druckgasflaschen eine untergeordnete Rolle, da durch Ablagerungen, Bewuchs und Inkrusten, also Verschmutzungen, dieser Effekt zunichte gemacht wird. Andererseits hat sich gezeigt, daß dadurch ein Angriff durch Lochfraß erschwert wird /67/.

6.4 Auswahl eines geeigneten Flaschen- und Ventilwerkstoffs

Bei guter Beständigkeit gegen gleichmäßige Flächenkorrosion können passive nichtrostende austenitische CrNiMo-Stähle unter der Voraussetzung einer einwandfreien Gefügebesechaffenheit durch Chloride lokal angegriffen werden. Beständigkeit gegen die Lokalkorrosion (Lochfraß- und Spaltkorrosion) ist nur durch einen hinreichend hohen Molybdängehalt ($\approx 4\%$ Mo) in Verbindung mit einem hohen Chromgehalt ($\approx 18\%$ Cr), d. h. mit einer Wirksumme $W \geq 30$, zu erreichen. Interkristalline sowie Spannungsrißkorrosion (inter- und transkristallin) können nach vorliegenden Untersuchungen für austenitische Stähle bei Temperaturen, die unter Raumtemperatur liegen, ausgeschlossen werden /56/, /59-68/.

Auf der Grundlage dieser Überlegungen ist der bereits in Kapitel 3.2.1 näher spezifizierte Stahl (Werkstoff-Nr. 1.4439) mit einer

Wirksumme $W > 30$ als DGF- und Ventilwerkstoff als geeignet anzusehen.

Schweißbarkeit: Der Stahl läßt sich mit einem artgleichen voll-austenitischen Schweißzusatzwerkstoff schweißen, er zeigt keine Warmrissigkeit und keine Ausscheidungen in der Schweißzone. Darüber hinaus weichen die Festigkeitskennwerte (Gewährleistungswerte) der Verbindungsschweiße nicht wesentlich von denen des Grundwerkstoffes ab /59/.

Korrosionsverhalten: Zur Lochfraß- und Spaltkorrosionsbeständigkeit dieses Stahls kann aufgrund elektrochemischer Messungen in Meerwasser gefolgert werden, daß dieser als beständig anzusehen ist. Der Stahl zeigt in Meerwasser bis zum Potential der Sauerstoffbildung bei ca. $1200 \text{ mV}_{\text{EH}}$ keinen Durchbruch. Da bisher in Meerwasser gemessene Redoxpotentiale bei ca. $400 \text{ mV}_{\text{EH}}$ liegen und eine Anhebung auf über $600 \text{ mV}_{\text{EH}}$ unwahrscheinlich ist, kann das Lochfraßpotential des Stahls von etwa $1100 \text{ mV}_{\text{EH}}$ nicht erreicht werden (Abb. 45).

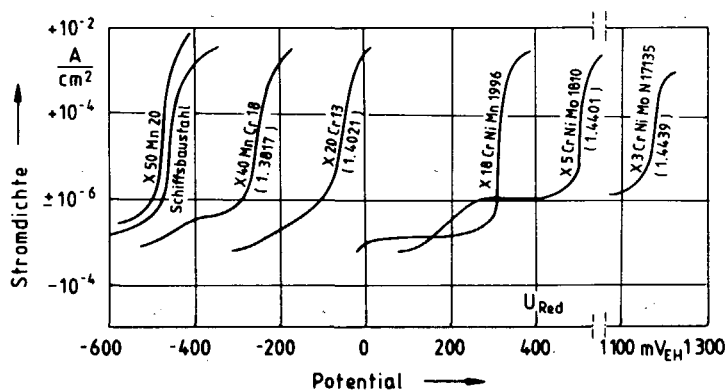


Abb. 45: Stromdichte-Potential-Kurven einiger Stähle in Seewasser bei Raumtemperatur /59/

Abbildung 46 zeigt, daß der Potentialabfall im Schweißnahtbereich mit ca. $20 \text{ mV}_{\text{EH}}$ sehr gering gegenüber dem Grundwerkstoff ist, so daß im praktischen Einsatz kein Unterschied im Korrosionsverhalten von Schweißnaht und Grundwerkstoff zu erwarten ist.

Dies wird auch durch Naturrostversuche in der Nordsee (3a) bzw. durch Betriebserfahrungen ($> 3a$) mit diesem Stahl bestätigt. Bei

Elektrolyt 1 Teil 0,01 n HCl
9 Teile Methanol
Potentialvorschub 0,5 mm/min
Anodische Polarisation 0,2 mA/cm²

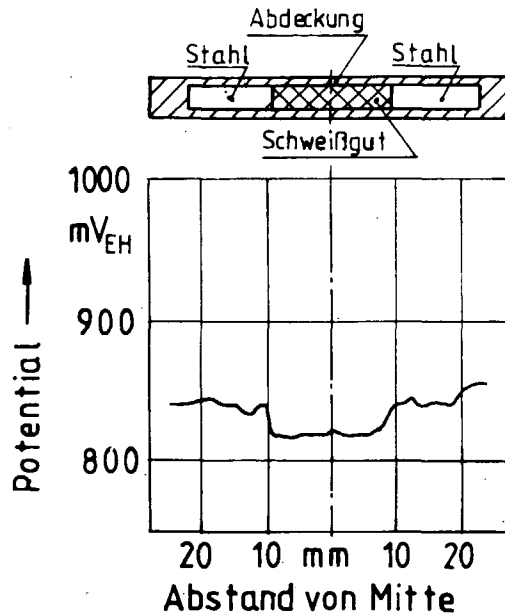


Abb. 46: Potential-Sondenkurve im Schweißnahtbereich des
Stahls X 3 CrNiMoN 17 13 5, artgleich geschweißt
/59/

den Korrosionsexperimenten in der Nordsee wurden Proben dieses Stahls in 100 m Tiefe eingesetzt. Neben den eigentlichen Proben war auch das Probengestell aus diesem Stahl. Weder die Proben noch die Winkelprofile und Schweißnähte des Probengestells zeigten nach 2,5jährigem Einsatz Korrosionsschäden. Die Proben waren dabei an das Probengestell angeschraubt. Weder unter den Unterlegscheiben aus Metall und PVC noch unter Basalplatten von Seepocken war Spaltkorrosion aufgetreten.

Zusätzlich wurden auch Drahtseile aus diesem Werkstoff eingesetzt. Die Drahtseile stellen eine besonders geeignete Probenform für Spaltkorrosionsuntersuchungen dar. Weiterhin wurde dabei gleichzeitig der Einfluß hoher Zugspannungen geprüft. Die Einzeldrähte der Seile wurden auf rund 1700 N/mm² Zugspannung vorgespannt; dabei wurden einige Seile verknotet und die Knoten bis zum Auftreten von plastischer Verformung zugezogen. Auch hierbei war kein Anzeichen für einen Korrosionsangriff zu er-

kennen.

Das Probengestell wurde aufgrund der positiven Ergebnisse bei der Fortführung der Versuchsserie "Nichrostende Stähle" zusammen mit verschiedenen Stahlproben wieder eingesetzt.

1975 wurde an einer Probe des Werkstoffs 1.4439 Hinweise auf leichte Spaltkorrosion unter Metallscheiben gefunden. Die eingehende Untersuchung der Probe ergab, daß eine leichte Aktivierung durch Seigerungen in der Probe stattgefunden haben dürfte. Irrtümlich wurden auch Unterlegscheiben aus nichtwärmebehandeltem Stahl (1.4439) verwendet. Dabei war bereits nach einjähriger Auslagerung ein starker Korrosionsangriff zu verzeichnen, so daß die Wärmebehandlung bzw. die Gefügehomoogenität von entscheidendem Einfluß zu sein scheint /59/, /62/, /63/.

Unter Beachtung dieser Befunde wird dieser Stahl uneingeschränkt für den Meerwassereinsatz empfohlen /63/.

Neben diesem Stahl, der aufgrund der Ergebnisse als geeignet erscheint, wird in /57/ auch der Stahl X 2 CrNiMoN 25 25 (1.4465) genannt. Weiterhin wurden von schwedischen Firmen speziell für den Meerwassereinsatz Stähle entwickelt. Dabei handelt es sich um die Stähle "UHB Stainless 984 LN" (20 Cr 18 Ni 6,1 Mo 0,7 Cu 0,2 N $\leq$ 0,02 C) und "Monit" (25 Cr 4 Ni 4 Mo Ti) der Firma Uddeholm AB, Hagfors, und um den Stahl "Sanicro 28" (X 1 NiCrMoCu 31 27 4) der Firma Sandvik, Sandviken /64/, /65/. Es ist zur Zeit nicht bekannt, ob bereits Ergebnisse von langjährigen Naturkorrosionsversuchen vorliegen.

Insgesamt ist zur Meerwasserkorrosion zu bemerken, daß für keinen der zur Auswahl stehenden Stähle (Tab. 23) eine hinreichende Gewähr gegeben werden kann, Standzeiten von 80a - 100a ohne Korrosionsangriff zu überdauern.

Allerdings kann der einzusetzende Werkstoff durch kathodischen Schutz, d. h. durch Anbringen einer Opferanode aus unedlerem Material, sehr lange Zeit geschützt werden.

Als mögliche Opfermaterialien bieten sich unlegierte Stähle und Zink an /66/, /67/, /68/. Ergebnisse von Naturrostversuchen zeigen, daß dann bei sonst nicht beständigen Cr-Ni-Stählen ($W < 30$) Lochfraß- oder Spaltkorrosion nicht mehr auftreten.

Tabelle 23: Auswahl für den Meerwassereinsatz geeigneter Stähle

BE- ZEICHNUNG	KURZNAME	LEGIERUNGSBESTANDTEILE [%]								
		C	Si	Mn	Cr	Ni	Ti	Mo	N	Cu
1.4439	X 3 CrNiMoN 17 13 5	≤0,04	≤1,0	≤2,0	$\frac{16,5}{18,5}$	$\frac{12,5}{14,5}$	-	$\frac{4,0}{5,0}$	$\frac{0,1}{0,2}$	-
1.4465	X 2 CrNiMoN 25 25	≤0,03	≤1,0	≤2,0	$\frac{24,0}{26,0}$	$\frac{22,0}{25,0}$	-	$\frac{2,0}{2,5}$	$\frac{0,08}{0,16}$	-
UHB Stain- less 984 LN	-	≤0,02	-	-	20	18	-	6,1	0,2	0,7
Monit	-	≤0,025	≤0,5	≤0,5	$\frac{24,5}{26,0}$	$\frac{3,5}{4,5}$	$\frac{0,3}{0,6}$	$\frac{3,8}{4,3}$	≤0,025	-
Sanicro 28	X 1 NiCrMoCu 31 27 4	≤0,02	≤1,0	-	27	31	-	3,5	-	1,0

So war z. B. der Stahl AISI* 316 (W < 27) nach 16jähriger Auslagerung in Meerwasser durch Anbringen einer Opferanode aus einfachem C-Stahl nicht korrodiert worden, während eine ungeschützte Probe (Platte 230 x 230 x 60) bereits nach einem Jahr penetriert war /55/.

Bei den zu versenkenden DGF könnten z. B. die Schutzkappe und der DGF-Fuß (Widerstandsrings) aus einfachem C-Stahl gefertigt werden, die dann die Funktion von Opferanoden hätten und somit die DGF und das Ventil langfristig vor einem möglichen Korrosionsangriff schützen würden.

Einfluß des Rubidiums auf die Korrosion im Meerwasser: Das beim radioaktiven Zerfall des Kr-85 entstehende Rubidium reagiert mit dem Wasser in der Flasche zu Rubidiumhydroxid. Auch in der Flasche

*AISII = American Iron and Steel Institute

vorhandene, durch Sauerstoffverunreinigungen gebildete Rb-Oxide werden in Wasser hydrolysiert /69/. Durch das entstehende Rubidium wird also die Hydroxid-Konzentration (RbOH), d. h. die Basizität und damit der pH-Wert des Wassers in der Flasche erhöht. Dies wiederum ist mit einer Anhebung des Lochfraßpotentials verbunden, so daß die Gefahr eines Korrosionsangriffs von innen vermutlich herabgesetzt wird.

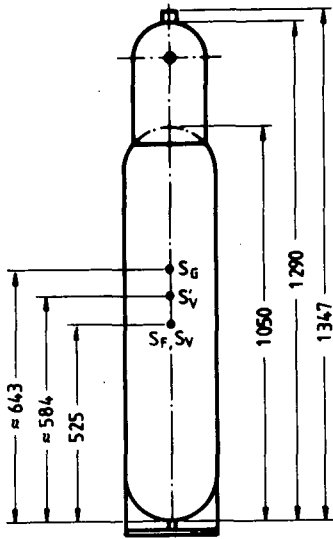
6.5 Lage und Geschwindigkeit der Druckgasflasche während ihres Sinkens auf dem Meeresboden

Um beim Öffnen des Druckausgleichsventils ein Entweichen des Gases aus der Flasche zu verhindern, muß die Flasche mit dem Ventil nach unten absinken. An Hand von Stabilitätsbetrachtungen soll gezeigt werden, daß dies tatsächlich der Fall ist.

Die Flasche mit Ventil, Schutzkappe und Widerstandsrings hat ein Gewicht $F_G \approx 1080 \text{ N}$ und verdrängt ein Wasservolumen $V_D \approx 43 \text{ l}$. Aus der Wasserverdrängung resultiert eine Auftriebskraft $F_A \approx 430 \text{ N}$. Durch das Ventil und die Schutzkappe wird bei Vernachlässigung der Masse des Widerstandsrings der Massenschwerpunkt von S_F nach S_G verschoben, ebenso der Verdrängungsschwerpunkt von S_V nach S'_V . Abb. 47 zeigt die Lage der Schwerpunkte.

Im statischen Fall ($F_A = F_G$) ist aus Abb. 48a und b ersichtlich, daß die Flasche nur dann im stabilen Gleichgewicht ist, wenn der Massenschwerpunkt S_G unterhalb des Verdrängungsschwerpunktes S'_V liegt, weil nur dann ein aufrichtendes Moment $\bar{M}_A$ besteht. Zeigt die schwere Seite (Ventil und Schutzkappe) der Flasche nach oben, so liegt der Massenschwerpunkt S_G über dem Verdrängungsschwerpunkt S'_V , und die Flasche befindet sich im labilen Gleichgewicht. Eine kleine Auslenkung ϕ wird durch das Moment $\bar{M}_\phi$ verstärkt (Abb. 48c und d). Die Flasche dreht sich aus der labilen in die stabile Lage /70/, /71/, /72/.

Betrachtet man nun, daß die DGF absinkt ($F_G > F_A$) und daß infolgedessen eine Strömungskraft F_W (Form- und Reibungswiderstand) induziert wird, so greift dadurch ein dynamisches Moment ($\bar{M}_A, \bar{M}_\phi$) an. Die Drehrichtung dieses Moments hängt von der Lage des Druckpunktes (Angriffspunkt von F_W) ab. Dieser wandert bei der Auslenkung längs



S_F = Massenschwerpunkt d. Flaschenkörpers

S_V = Verdrängungsschwerpunkt d. Flaschenkörpers

S_G = Massenschwerpunkt d. Flasche mit Ventil und Schutzkappe

S'_V = Verdrängungsschwerpunkt d. Flasche mit Ventil und Schutzkappe

Abb. 47: Änderung des Massen- und Verdrängungsschwerpunktes des Flaschenkörpers durch Ventil und Schutzkappe

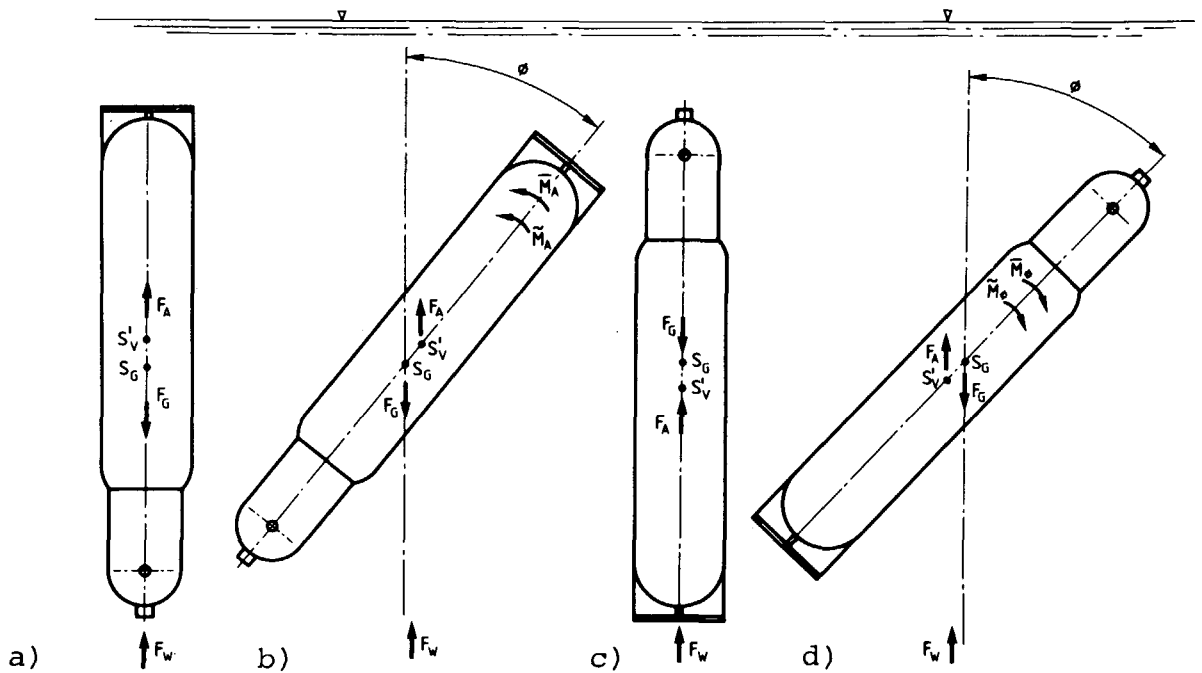


Abb. 48: Stabile (a und b) und labile (c und d) Lage der Druckgasflasche beim Absinken (qualitativ)

der DGF-Kontur.

In Fall a, b (Abb. 48) wirkt das angreifende Moment $\tilde{M}_A$ anfangs entgegengesetzt zu $\bar{M}_A$, wechselt dann aber seine Richtung und

verstärkt dieses. Im Fall c, d (Abb. 48) wirkt das angreifende Moment $\tilde{M}_\phi$ sofort in Richtung von $\bar{M}_\phi$. Das bedeutet aber, daß sich nur die in Abb. 48a, b dargestellte Sinklage einstellen kann.

Nach dem Eintauchen der Flasche ins Wasser stellt sich eine stationäre Sinkgeschwindigkeit ein, die solange konstant bleibt, bis der Druckausgleichsvorgang beginnt. Wenn man vernachlässigt, daß der Ventilinnenraum schon bei einer Tiefe von 150 m - entsprechend dem Öffnungsdruck von ca. 15 bar - mit Wasser gefüllt wird und die Auftriebskraft F_A sich dadurch nur unwesentlich ändert, so wird ab einer Tiefe von ca. 1000 m mehr und mehr Wasser einströmen. Dies führt zu einer ständigen Reduzierung der Auftriebskraft F_A und damit zu einer höheren Sinkgeschwindigkeit v , wie die folgende Gleichung für v aus einer Kräftebilanz mit z als Wassertiefe und ρ_W als der Dichte von Wasser zeigt:

$$0 = F_G - F_A(z) - F_W \quad (62)$$

$$F_W = c_W \frac{\rho_W \cdot v^2}{2} A_P \quad (63)$$

c_W = Widerstandbeiwert

v = stationäre Sinkgeschwindigkeit

A_P = Projektionsfläche senkrecht zur Strömungsrichtung

$$v = \sqrt{\frac{(F_G - F_A(z)) \cdot 2}{c_W \cdot A_P \cdot \rho_W}} \quad (64)$$

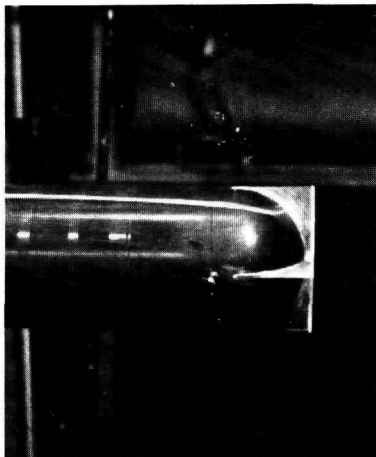
Da der Druckausgleich stoßweise erfolgt, kann zwischen zwei Ausgleichsvorgängen von einer quasistationären Geschwindigkeit ausgegangen werden. Die Tiefendifferenz zwischen zwei Ausgleichsvorgängen wird durch die konstruktive Auslegung des Ventils bestimmt und ist theoretisch schwer abschätzbar.

Um die Geschwindigkeit bei Erreichen des Meeresbodens abzuschätzen, wird angenommen, daß die Versenkungstiefe ca. 5000 m beträgt und der letzte Druckausgleich bei ca. 4900 m erfolgt ist. Dann herrscht in der Flasche ein Druck von ca. 475 bar.

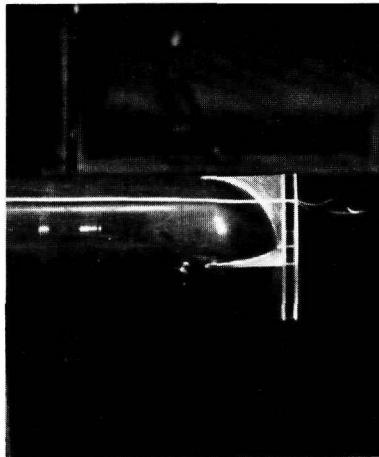
Das Gas wird dabei auf ein Volumen von ca. 4,3 l komprimiert, d. h., es sind ca. 25,7 l Wasser eingeströmt. Daraus resultiert eine Restauftriebskraft F_A von ca. 190 N.

Der Widerstandsbeiwert der Flasche wurde durch Strömungsversuche mit einem Modell (1 : 1,4) zu $c_W \approx 0,3$ ermittelt. Daraus ergäbe sich eine Sinkgeschwindigkeit von ca. 15 m/s, die dem freien Fall der Flasche aus ca. 11 m Höhe entspricht. Damit wäre die Beschädigung der Flasche beim Aufprall auf den Meeresboden je nach dessen Beschaffenheit nicht auszuschließen. Zur Herabsetzung der Sinkgeschwindigkeit wurden Strömungsversuche mit dem Ziel durchgeführt, durch Anbringen von Widerstandskörpern am Boden der Flasche den c_W -Wert weiter zu erhöhen.

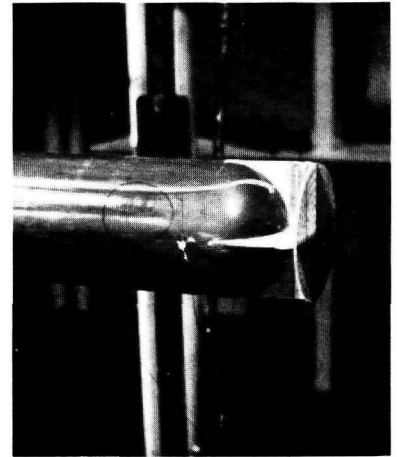
Unter der Bedingung, daß der DGF-Durchmesser vorgegeben und die maximal mögliche Verlängerung der DGF durch die Höhe im Transportbehälter begrenzt war, erwies sich im Rahmen der Strömungsversuche eine am Boden der DGF angebrachte kreisförmige Platte, mit auf der Anströmseite versehenen Sackbohrungen, als der Widerstandskörper mit dem höchsten c_W -Wert (Abb. 49 c).



a) Kreisscheibe



b) 2 Kreisringe



c) Kreisscheibe
mit Sackbohrungen

Abb. 49: Widerstandskörper zur Herabsetzung der Sinkgeschwindigkeit einer DGF

Dabei wurde zusätzlich das Verhältnis Abstand S der Platte/ Durchmesser D der DGF variiert. Abb. 50 zeigt die gemessenen c_W -Werte.

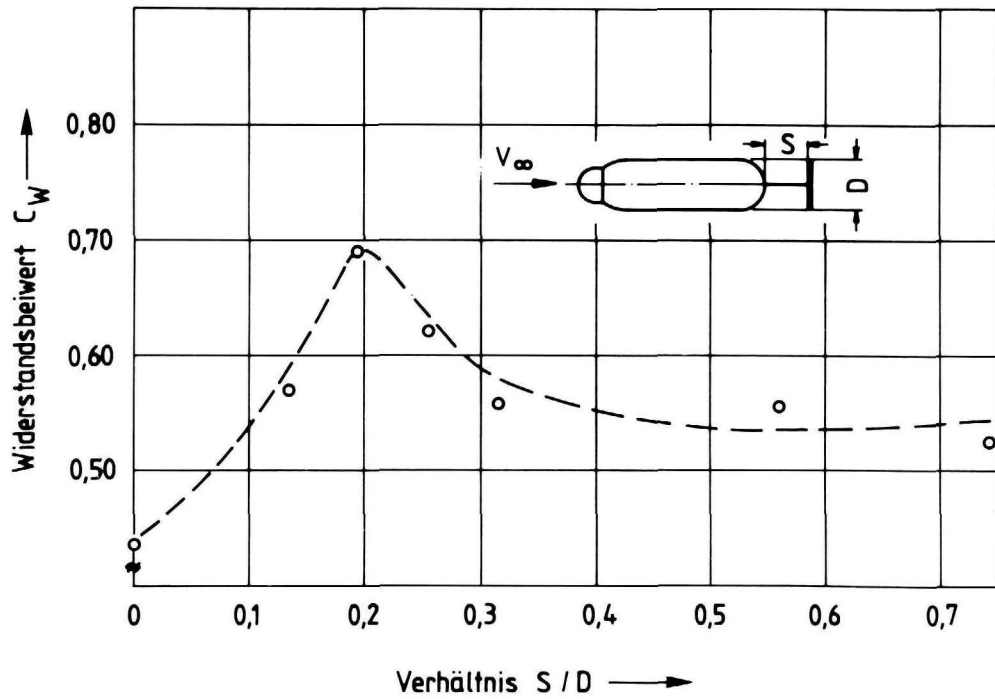


Abb. 50: Widerstandsbeiwert einer mit kreisförmiger Platte versehenen DGF als Funktion von S/D

Daraus ist ersichtlich, daß bei $S/D \approx 0,2$ der höchste c_W -Wert ($\approx 0,7$) erreicht wird. Für diese günstigste Geometrie wurde dann in Abhängigkeit von der Auslenkung ϕ neben dem c_W -Wert auch der Momentenbeiwert c_M bestimmt (Abb. 51). Dieser ist direkt proportional zum angreifenden Moment $\tilde{M}$. Der Verlauf der Kurve

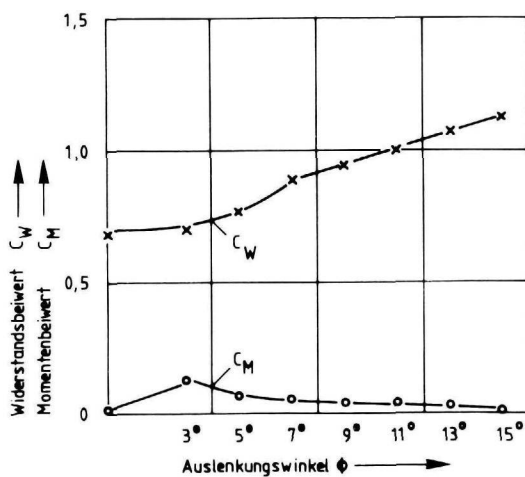


Abb. 51: Widerstandsbeiwert c_W und Momentenbeiwert c_M einer mit kreisförmiger Platte versehenen DGF als Funktion der Auslenkung ϕ

bestätigt die qualitativen Betrachtungen zur Stabilität der Sinklage (Abb. 48).

Die DGF wird somit beim Absinken mit abnehmender Amplitude um die stabile Lage pendeln, so daß der c_W -Wert nicht konstant ist. Mit dem Minimalwert ($c_W \sim 0,7$) ergibt sich eine Sinkgeschwindigkeit von etwa 6 m s^{-1} . Das entspricht einer Freifallhöhe von etwa 1,8 m. Es ist anzunehmen, daß die DGF den daraus resultierenden Belastungen beim Aufprall standhält (siehe Kapitel 4.3.3.2).

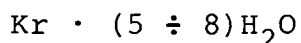
6.6 Verhalten des Krypton-85 in der Tiefsee

6.6.1 Krypton-Hydratbildung

Das normalerweise chemisch inerte und nicht kristallisierbare Krypton bildet unter bestimmten Druck- und Temperaturverhältnissen mit Wasser eine kristalline Additionsverbindung, das Krypton-Hydrat. Dieses kristallisiert in einer kubischen Elementarzelle mit der Gitterkonstanten von etwa 1,2 nm.

Hierbei bilden im Idealfall 48 Wassermolekeln das H_2O -Gerüst (Eismodifikation) mit 8 Hohlräumen, in die die Edelgasatome eingebaut werden.

Bei der experimentellen Darstellung des Hydrats wurden je nach Versuchsbedingungen Kristalle mit unterschiedlichen Wassergehalten gefunden, so daß die in der entsprechenden Literatur angegebene molare Zusammensetzung des Addukts nicht einheitlich ist und Molverhältnisse von



angegeben werden.

Vorliegende Untersuchungen zur Darstellung von Krypton-Hydrat zeigen, daß das Hydrat bei einer Temperatur von 0°C und einem Kryptondruck von 14,65 bar aus H_2O auskristallisiert, wenn Eiskristalle als Kristallisationskeime vorhanden sind. Diese können durch Kühlung der Reaktionsgefäßwand erzeugt werden /73/, /74/, /75/, /76/.

Bei ausreichend hohem Druck bleibt das Hydrat bis zu einer Temperatur von $12,1^{\circ}\text{C}$ stabil. Oberhalb dieser Temperatur ist das Hydrat auch bei sehr hohen Drücken nicht mehr existenzfähig und zersetzt sich. In Tabelle 24 sind die experimentell in Abhängigkeit von der Temperatur gemessenen Dissoziationsdrücke zusammengefaßt /73/.

Tabelle 24: Dissoziationsdrücke von Krypton-Hydrat

$\theta/^{\circ}\text{C}$	-27,8	0	6,1	8,1	12,1
p/bar	1,01	14,65	26,06	31,65	46,16

Ob für die Bildung des Hydrats die Existenz von Kristallisationskeimen in Form von Eiskristallen notwendig ist oder ob ein genügend hoher Druck (> 500 bar) und eine tiefe Temperatur (0 bis -2°C), wie das in Meerestiefen größer 5000 m der Fall ist /77/, ausreichen, kann anhand der vorliegenden Untersuchungen nicht beantwortet werden.

Denkbar wäre, daß andere im Meerwasser gelöste Stoffe die Funktion der Kristallisationskeime übernehmen.

Nimmt man an, daß sich Hydrat bildet, wäre es bei den Druck- und Temperaturverhältnissen in der Tiefsee stabil, vermutlich solange kein Krypton-85-Atom in das Folgeprodukt Rubidium zerfällt. Rubidium reagiert heftig unter Zersetzung des Wassers und Bildung von Rubidiumhydroxid RbOH . Zusätzlich zu der dabei entstehenden lokalen Reaktionswärme sind die Bindungskräfte im Rubidiumhydroxid sehr viel stärker als die nur auf van der Waals'schen Kräften beruhenden Bindungskräfte des Hydrats, so daß dieses zerstört wird.

Experimentelle Untersuchungen, die Aufschluß über die Krypton-Hydratbildung unter Tiefseebedingungen geben sollen, werden zur Zeit am Institut für Chemische Technologie der KFA-Jülich durchgeführt /78/.

6.6.2 ----- Ausbreitung des Kryptons in der Tiefsee

Nach der Versenkung (Tiefe ≥ 5000 m) liegt in einer DGF ein Dreiphasensystem (Krypton-Xenon-Wasser) vor. Versagt eine DGF oder ein Ventil, hängt die Ausbreitung des dann freigesetzten Inventars wesentlich von der chemisch-physikalischen Form der Edelgase ab.

Bildet sich Krypton- bzw. Xenon-Hydrat, so ist die beim Druckausgleichsvorgang eingedrungene Wassermenge (etwa $1,4 \text{ kmol H}_2\text{O}$) ausreichend, das Gas in Hydratform zu überführen. Dies trifft selbst dann zu, wenn bezüglich der zur Hydratbildung notwendigen Wassermenge die ungünstigsten Molverhältnisse ($1 \text{ mol Kr}/8 \text{ mol H}_2\text{O}$; $1 \text{ mol Xe}/8 \text{ mol H}_2\text{O}$) angenommen werden.

Bilden sich keine Hydrate, so ist die Löslichkeit der Edelgase von Bedeutung. Beide Edelgase werden schon bei Normaldruck relativ gut gelöst ($L_{\text{Kr}} = 0,11 \text{ ml Kr}/100 \text{ ml H}_2\text{O} (0^\circ\text{C})$; $L_{\text{Xe}} = 0,19 \text{ ml Xe}/100 \text{ ml H}_2\text{O} (0^\circ\text{C})$ /79/, /80/). Nimmt man an, daß die Löslichkeit proportional zum Druck steigt (Henrysches Gesetz), so gehen etwa 56 mol Kr und etwa $9,5 \text{ mol Xe}$ in Lösung. Experimentell abgesichert ist das Henrysche Gesetz allerdings nur bis zu Drücken von 50 bar /79/. Unter diesem Vorbehalt wird das vorhandene Xenon ($\approx 8,8 \text{ mol}$) ganz und das vorhandene Krypton ($\approx 79,8 \text{ mol}$) nur zum Teil gelöst. Berücksichtigt man, daß durch den Lösungsvorgang der Druck in der Gasblase herabgesetzt und damit erneut ein Druckausgleich (Erhöhung des Wasservolumens auf etwa $29,3 \text{ l}$) eingeleitet wird, so werden etwa 67 mol Krypton gelöst.

Die Freisetzung erfolgt also entweder als Hydrat oder größtenteils ($\approx 84 \%$) direkt in gelöster Form. Das in der Restgasblase ($\approx 0,7 \text{ l}$) vorhandene Krypton wird dann in Abhängigkeit von der aufsteigenden Blasenkonfiguration sehr schnell gelöst. Die Steighöhe der Blasen bis zur vollständigen Auflösung ist dabei unter anderem abhängig von den anfangs vorhandenen Blasengrößen.

Unter der Voraussetzung, daß in Tiefen $\geq 5000 \text{ m}$ Strömungen vernachlässigbar klein sind, erfolgt die Ausbreitung nach einer möglichen Freisetzung durch Diffusion des Hydrats oder des gelösten Gases.

Für den Diffusionskoeffizienten molekularer Teilchen sind sowohl die Masse als auch das Volumen von Einfluß. Als Grenzfälle können der Rieckesche Ansatz

$$D = \frac{C_R \cdot T}{\eta \cdot m_T} \quad (65)$$

für den Masseneinfluß bzw. der Stokessche Ansatz

$$D = \frac{C_{St} \cdot T}{6 \pi \cdot \eta \cdot r_T} \quad (66)$$

für den Volumeneinfluß betrachtet werden /81/, /82/. Hierbei ist η die dynamische Viskosität der Flüssigkeit, m_T die Masse des Teilchens, r_T der Radius des Teilchens und C_R , C_{St} Konstanten. Unabhängig davon, welcher der beiden Einflüsse überwiegt, wird die Diffusion des Hydrats langsamer ablaufen als die Diffusion des gelösten Gases, denn sowohl Masse als auch das Volumen eines Hydratmolekels sind größer als die Masse und das Volumen eines Kryptonatoms.

Aus der Literatur sind verschiedene Ausbreitungsmodelle bekannt, die alle von der allgemeinen Lösung der Diffusionsgleichung /83/

$$C(t, x, y, z) = \frac{Q \cdot e^{-\lambda(t-t_0)}}{8 \cdot (\pi \cdot t)^{3/2} \cdot (D_x \cdot D_y \cdot D_z)^{1/2}} \cdot \exp - \left(\frac{x^2}{4D_x t} + \frac{y^2}{4D_y t} + \frac{z^2}{4D_z t} \right) \quad (67)$$

mit $C(t, x, y, z)$	=	augenblickliche orts- und zeitabhängige Konzentration
Q	=	freigesetzte Kr-85 Menge
$D_{x, y, z}$	=	Diffusionskoeffizienten in x, y, z-Richtung
t	=	Zeit nach der Freisetzung
t_0	=	Freisetzungszeitpunkt
λ	=	Zerfallskonstante von Krypton

ausgehen. Da experimentelle Daten über den Diffusionskoeffizienten

nicht vorliegen, kann die Radioaktivitätskonzentration in dem den Menschen zugänglichen Oberflächenwasser (Fischfang) nur über weitere Modellannahmen abgeschätzt werden. Nach /84/ ergeben sich je nach den getroffenen Modellannahmen ohne Berücksichtigung einer möglichen Hydratbildung Gleichgewichtskonzentrationen von $0,2 \text{ Bq m}^{-3}$ - 481 Bq m^{-3} im Oberflächenwasser.

7. SICHERHEITSUNTERSUCHUNGEN - STÖRFALLANALYSE

7.1 Methodik

Ziel der Sicherheitsanalyse ist es, auch hier für die Handhabung, die Zwischenlagerung und den Transport der Druckgasflaschen die beim Auftreten eines Störfalls möglichen Einwirkungen auf die Umwelt aufzuzeigen. Die Auswirkungen des Störfalls werden durch die Angabe der resultierenden maximalen Hautdosis (β -Submersionsdosis) am ungünstigsten Aufpunkt beschrieben. Auswirkungen auf das Betriebspersonal und auf den betrieblichen Ablauf werden nicht betrachtet.

Die Untersuchungen werden prinzipiell unabhängig von den zu erwartenden Eintrittshäufigkeiten angestellt, d. h., der Eintritt eines bestimmten Störfalls wird unterstellt, und seine Auswirkungen werden analysiert. Um dennoch eine Vorstellung über die Häufigkeit solcher Störfälle zu vermitteln, werden ebenfalls statistische Daten über die Eintrittshäufigkeiten von Transportunfällen angegeben.

7.2 Barrierenbeschreibung

Im folgenden werden die während der Zwischenlagerung und des Transports vorhandenen Barrieren beschrieben.

B1-Druckgasflasche

Die DGF umschließt das Inventar $I_{FO} = 7,4 \cdot 10^{15} \text{ Bq}$. Sie besteht aus den zwei parallel liegenden Teilbarrieren Flaschenkörper B 1.1 und Flaschenventil B 1.2.

Im Normalfall stellt der Flaschenkörper eine absolute Barriere ohne Freisetzung dar. Das Flaschenventil hat im Normalfall eine maximale Leckrate von 10^{-8} mbar · l/s.

B2-Transportbehälter

Der Transportbehälter umschließt das Inventar $I_{FO} = 29,6 \cdot 10^{15}$ Bq. Er besteht aus den parallel liegenden Teilbarrieren Behälterwand B 2.1, Behälterdeckeln B 2.2 sowie Ventilen B 2.3.

Im Normalzustand stellt der Transportbehälter eine absolute Barriere ohne Freisetzung dar. Inwieweit die Integrität dieser Barrieren beeinträchtigt werden kann, hängt davon ab, ob beim Transport Unfallsituationen auftreten, bei denen die Belastungen des Behälters über diejenigen hinausgehen, die in /51/ festgelegt sind.

B3-Abfüllzelle

Die Abfüllzelle befindet sich in dem gegen Einwirkungen von außen geschützten Gebäudekomplex der Abgasreinigungsanlage. Ihre Barrieren und Barrierenzustände sind für eine Sicherheitsanalyse der Abgasreinigungsanlage selbst von Bedeutung, die nicht Gegenstand dieser Untersuchung sind.

B4-Zwischenlager

Die Zwischenlagerzelle grenzt an den Gebäudekomplex der Abgasreinigungsanlage an und ist ebenfalls gegen Einwirkungen von außen geschützt. Im Gegensatz zur Abfüllzelle - dort werden ungeschützte Druckgasflaschen gehandhabt - erfolgt die Zwischenlagerung in Typ B-Transportbehältern, die ihrerseits eine sichere Umschließung der Druckgasflaschen gewährleisten. Durch angeschlossene Schnüffelleitungen werden Kr-Leckagen in den Transportbehältern entdeckt, die Entlüftung des Transportbehälters kann dann über die Abgasreinigungsanlage erfolgen.

Auf eine Beschreibung von Störfällen in der Zwischenlagerzelle wird daher an dieser Stelle verzichtet.

7.3 Unfallhäufigkeiten und -ursachen

Über Unfallhäufigkeiten liegen im allgemeinen statistische Daten vor. Allerdings sind Aussagen über die Unfallursache nicht ohne weiteres möglich, denn bei der Unfalluntersuchung steht die Schuldfrage und nicht die Kausalverkettung, die zum Unfall führte, im Vordergrund. Die Schadensschwere eines Unfalls wird in der Regel nach der monetären Schadenshöhe bemessen. Angaben über die Belastungen beim Unfall und über den Grad der Beschädigung von Ladung und Fahrzeug, d. h. den Grad der technischen Unfallschwere, lassen sich daraus nicht ohne weiteres ableiten.

7.3.1 ----- Straßenverkehr

Aus den Unfallhäufigkeiten, bezogen auf die Fahrleistung für Güterkraftfahrzeuge (GÜKfz) mit einem Gesamtgewicht > 17 t, lassen sich Erwartungswerte für die Unfallbeteiligung dieser Transportfahrzeuge ableiten. Besser noch ließe sich bei festliegendem Standort einer Wiederaufarbeitungsanlage die Unfallgefährdung von Kr-85-Transporten längs des Transportweges ermitteln, indem man die Anzahl der Unfälle und die Unfallursachen erfaßt und daraus Erwartungswerte für die Unfallbeteiligung abschätzt. Durch eine gezielte Untersuchung der Unfallursachen nach Art und Häufigkeit könnten Prioritäten für die Beseitigung von Unfallursachen abgeleitet werden, so daß insgesamt der Erwartungswert für die gegebene Strecke herabgesetzt würde.

Unabhängig vom Standort einer zukünftigen Wiederaufarbeitungsanlage sind in Tabelle 25 mittlere Erwartungswerte (Basis 1975) für die Unfallbeteiligung von Transportfahrzeugen angegeben, wobei unterschiedliche Anteile von Ortsdurchfahrten und freier Strecke angenommen wurden.

Zu beachten ist dabei, daß zwar die Erwartungswerte innerorts um den Faktor ≈ 4 größer sind als außerorts, daß aber die Folgen eines Unfalls auf die Ladung innerorts wegen der niedrigeren Fahrgeschwindigkeit wahrscheinlich geringer sind als außerorts. Nicht unerscheiden läßt sich anhand der Erwartungswerte, ob die

Tabelle 25: Erwartungswerte für die Unfallbeteiligung (Personen- oder Sachschaden > 1000 DM) von GÜKfz > 17 t pro Fahrzeug-Kilometer /86/

Fahrzeugtyp und Strecke	Unfallhäufigkeiten pro Fahrzeug-Kilometer
> 17 t im Mittel über alles	$5,3 \cdot 10^{-6}$
innerorts	$10,3 \cdot 10^{-6}$
außerorts	$2,7 \cdot 10^{-6}$
30 % Ortschaft + 70 % freie Strecke	$4,9 \cdot 10^{-6}$
15 % Ortschaft + 85 % freie Strecke	$3,8 \cdot 10^{-6}$

Unfälle durch die Schwerlastfahrzeuge aktiv verursacht wurden oder dadurch, daß diese von anderen Verkehrsteilnehmern angefahren wurden. Im letzteren Fall sind die Folgen für die Ladung wahrscheinlich ebenfalls gering.

Wegen des Fehlens deutscher Daten über die technische Unfallschwere, die Rückschlüsse auf die Folgen für die Ladung zuläßt, sollen hier amerikanische Daten herangezogen werden. Da die mittleren Erwartungswerte für die Unfallbeteiligung von Schwerlastwagen in der gleichen Größenordnung liegen (USA: $\approx 1 \cdot 10^{-6}$ Unfälle pro Fahrzeug-Kilometer; Bundesrepublik Deutschland: $\approx 5,3 \cdot 10^{-6}$ Unfälle pro Fahrzeug-Kilometer), sollte dies zulässig sein.

Besonders kritisch im Hinblick auf Krypton-Transporte ist das Auftreten von Feuer oder der Aufprall der Ladung auf feststehende Objekte. Nach /87-89/ treten Feuer in 1,6 % und der Aufprall auf feststehende Objekte in 14 % aller Unfälle auf. Unterscheidet man hierbei noch zwischen Feuern, die länger oder kürzer als eine halbe Stunde dauern, und Aufprallgeschwindigkeiten, die größer oder kleiner als ca. 50 km/h ($\hat{=}$ Endgeschwindigkeit beim freien Fall aus 9 m Höhe) sind, so lassen sich grob mittlere Erwartungswerte von ca. $9 \cdot 10^{-9}$ (Auftreten von Feuer $t \geq 0,5$ h) und $6 \cdot 10^{-7}$ (Aufprall bei Fahrgeschwindigkeiten > 50 km/h) pro Fahrzeugkilometer abschätzen.

7.3.2 Schienenverkehr

Die Unfallstatistiken der Deutschen Bundesbahn (DB) sind in bezug auf die Analyse des Unfallgeschehens detaillierter. So lassen sich die weniger aussagefähigen Personenunfälle von denen der Sachschäden (Bahnbetriebsunfälle) trennen, und es werden die Unfälle bzw. die Unfallursachen nach Art und Häufigkeit aufgeschlüsselt. Tabelle 26 zeigt die Unfallerwartungswerte für verschiedene Unfallarten (Basis 1975).

Tabelle 26: Unfallerwartungswerte für Bahnbetriebsunfälle pro Zug-Kilometer /86/

Unfallart	Unfälle pro Zug-km
Entgleisungen	$5,4 \cdot 10^{-6}$
Zusammenstöße	$2,4 \cdot 10^{-6}$
Aufpralle	$1,5 \cdot 10^{-6}$
Zusammenstöße an Bahnübergängen	$0,7 \cdot 10^{-6}$
Sonstige Unfälle	$0,4 \cdot 10^{-6}$
Gesamt	$10,4 \cdot 10^{-6}$

Über die Folgen eines Unfalls auf die Ladung geben die Erwartungswerte keine direkten Anhaltspunkte. Mit Ausnahme von unfallbedingten Bränden sind qualitativ schwere Schäden an der Ladung wahrscheinlich um so eher zu erwarten, je höher die Fahrgeschwindigkeit zum Zeitpunkt des Unfalls war. Hohe Geschwindigkeiten (≥ 50 km/h) werden aber in der Regel nur auf freier Strecke gefahren, so daß schwere Schäden aufgrund der Geschwindigkeit nicht im Rangierbetrieb und damit nur in 16 % aller Bahnbetriebsunfälle zu erwarten sind (Abb. 52).

Weiterhin werden im allgemeinen bei einem Zugunglück nur wenige Wagen in Mitleidenschaft gezogen. Berücksichtigt man dies, so ändert sich nach amerikanischen Untersuchungen der mittlere Unfallerwartungswert um etwa eine Größenordnung (von $6,2 \cdot 10^{-6}$ Unfällen pro Zugkilometer auf $8,8 \cdot 10^{-7}$ Unfälle pro Waggonkilo-

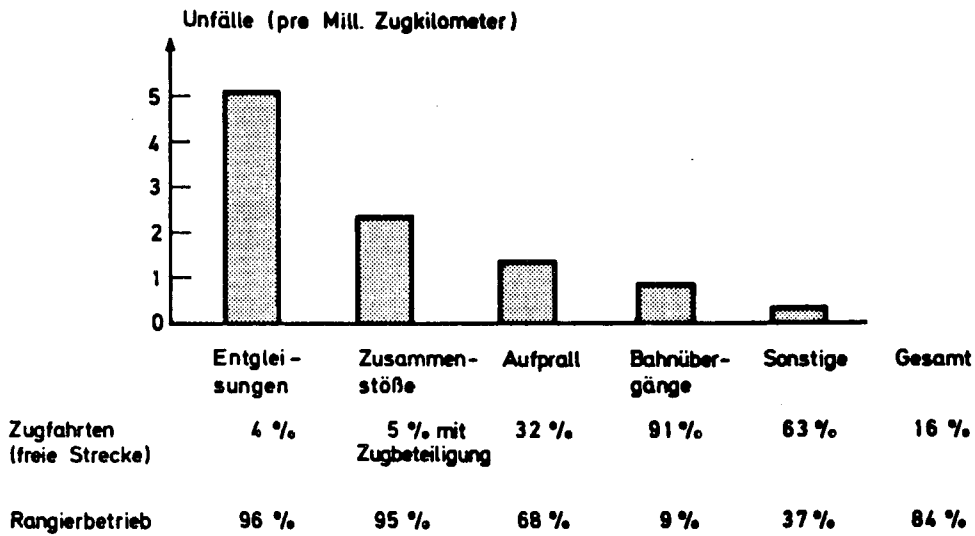


Abb. 52: Relative und prozentuale Verteilung der Bahnbetriebsunfälle /86/

meter). Hierbei wurde eine mittlere Zuglänge von 70 Waggons und eine mittlere Unfallbeteiligung von 10 Waggons pro Zug zugrunde gelegt /86/, /88/, /89/. Der Rückgriff auf amerikanische Untersuchungen scheint gerechtfertigt, wenn man die mittleren Unfallerwartungswerte (USA: $6,2 \cdot 10^{-6}$ Unfälle pro Zugkilometer; Bundesrepublik Deutschland: $10,4 \cdot 10^{-6}$ Unfälle pro Zugkilometer) miteinander vergleicht.

Bedenkt man ferner noch, daß Unfälle an Bahnübergängen in der Regel kaum zu ernststen Schäden an Zug und Ladung führen, so läßt sich ein Erwartungswert von $2 \cdot 10^{-7}$ pro Waggonkilometer für eine schwere Beschädigung der Ladung abschätzen.

Im Zusammenhang mit Krypton-Bahntransporten stellen Brände als Folge von Unfällen ebenfalls eine starke Gefährdung dar. Nach /88/, /89/, /91/ ziehen 1,5 % aller Unfälle Feuer nach sich, wobei 85 % dieser Brände kürzer als eine halbe Stunde, 14 % zwischen einer halben Stunde und einer Stunde und 1 % länger als eine Stunde dauern. Berücksichtigt man alle Brände, die länger als eine halbe Stunde dauern, so ergibt sich ein Erwartungswert von $3,3 \cdot 10^{-9}$ (Feuer $t > 0,5$ h) pro Waggonkilometer.

7.3.3 Schiffsverkehr

Die meisten Schiffsunfälle ereignen sich auf den stark befahrenen küstennahen Seewasserstraßen. Dabei führen im allgemeinen Kollisionen öfter als andere Unfälle zu schweren Schäden. Über die Kollisionshäufigkeiten auf wichtigen europäischen Seewasserstraßen liegen Angaben nach Tabelle 27 vor.

Tabelle 27: Kollisionshäufigkeiten auf wichtigen küstennahen Seewasserstraßen (Basis 1970 - 1973) /86/

Wasserstraße	Unterelbe	Unterweser	Straße von Dover
Kollisionshäufigkeit pro Schiffstag	$8,2 \cdot 10^{-7}$	$8,2 \cdot 10^{-7}$	$6,8 \cdot 10^{-7}$

Bei 10 % aller Kollisionen (Unterelbe) werden als Folge mittlere bis schwere Schäden, bei 2 % aller Kollisionen (Straße von Dover) Brände als Folge angegeben /86/. Inwieweit sich die Schadensangaben auf die Ladung beziehen bzw. welche Schäden an der Ladung durch die Brände verursacht wurden, wird nicht näher ausgeführt. Nach amerikanischen Untersuchungen /87/ wird in 8 % ein mittlerer und in 2 % aller Unfälle ein schwerer Schaden an der Ladung abgeschätzt. Brände wurden dabei in 0,7 % aller mittleren und in 7 % aller schweren Unfälle angenommen. Der Anteil von Kollisionen an der Gesamtzahl der Unfälle wird nicht angegeben, so daß eine Übertragung auf die europäischen Küstengewässer nicht ohne weiteres möglich ist. Nimmt man aber an, daß die Brandhäufigkeiten (USA: ca. $2 \cdot 10^{-3}$ Brände pro Unfall; Europa: ca. $2 \cdot 10^{-2}$ Brände pro Kollision) jeweils typisch und vergleichbar sind, ist aus diesem Vergleich eine Kollisionshäufigkeit von 10^{-1} pro Unfall zu erwarten. Dieser Wert ist wahrscheinlich für die stark befahrenen Seewasserstraßen Europas zu niedrig, d. h. ein mit dieser Relation und den vorliegenden Kollisionshäufigkeiten (Tabelle 27) abgeschätzter Unfallerwartungswert ist konservativ.

Es wird eine Versenkungsoperation pro Jahr durchgeführt. Das Schiff für den Krypton-Transport wird je nach Ausgangshafen 3 - 4 Tage durch küstennahes Gewässer und nochmals 4 - 6 Tage durch den offenen Atlantik fahren. Nimmt man für den gesamten Schiffsweg eine Kollisionshäufigkeit von $8 \cdot 10^{-7}$ pro Schiffstag, so ergibt sich durch obigen Vergleich eine Unfallhäufigkeit von $8 \cdot 10^{-6}$ pro Schiffstag.

Für den etwa 10tägigen Schiffstransport läßt sich damit ein Erwartungswert für eine schwere Beschädigung der Ladung von ca. $1,6 \cdot 10^{-6}$ pro Transport bzw. Jahr abschätzen. Die besonderen Eigenschaften der Typ B-Verpackung sind dabei nicht berücksichtigt.

7.3.4 ----- Ergebnisse für das Transportkonzept

Die Ergebnisse für das hier untersuchte Transportkonzept für Kr-85 sind in Tabelle 28 zusammengefaßt. Danach liegen die mittleren Erwartungswerte für Unfälle mit einer "schweren Beschädigung" der Ladung bei 10^{-3} bis 10^{-6} Unfällen pro Jahr. "Schwere Beschädigung" berücksichtigt nicht die besonderen mechanischen und thermischen Eigenschaften der Typ B-Verpackung, sondern bezieht sich auf normale Industrieverpackungen.

Eine Reduzierung ist durch administrative Maßnahmen wie z. B. eine besondere Auswahl des Transportweges möglich.

Tabelle 28: Mittlere Erwartungswerte für schwere Unfälle beim Transport des in einer 1400 jato-Wiederaufarbeitungsanlage anfallenden Krypton-85 (ohne Berücksichtigung der Typ B-Eigenschaften der Verpackung!)

Transportweg	Unfallhäufigkeit in a ⁻¹
<u>Straße</u> ¹⁾ Unfall ohne Feuer (v > 50 km/h) Unfall mit Feuer (t _F > 0,5 h)	 4 · 10 ⁻³ 6 · 10 ⁻⁵
<u>Schiene</u> ²⁾ Unfall ohne Feuer (v > 50 km/h) Unfall mit Feuer (t _F > 0,5 h)	 1 · 10 ⁻³ 2 · 10 ⁻⁵
<u>Schiff</u> ³⁾ Unfall mit Feuer (t _F > 0,5 h)	 2 · 10 ⁻⁶
1) 300 km; 21 Transporte pro Jahr 2) 300 km; 1 Transport pro Jahr 3) 10tägiger Schiffstransport; 1 Transport pro Jahr	

7.4 Unfallszenarien

Bei der Handhabung, dem Transport und der Beseitigung (Versenkung) von Kr-85 in Druckgasflaschen müssen Störfälle in Betracht gezogen werden, wobei hier zum Zweck der Analyse unabhängig von der Eintrittshäufigkeit solcher Störfälle für alle Freisetzungsmechanismen ein Versagen der umschließenden Barrieren vorausgesetzt wird. Da es sich um ein Edelgas unter Druck

handelt, bedeutet das Versagen der umschließenden Barrieren (z. B. Druckgasflasche und Transportbehälter), daß der gesamte Inhalt plötzlich freigesetzt wird. Für die einzelnen Teilsysteme werden die folgenden Störfälle untersucht:

Zwischenlager

Die Zwischenlagerung erfolgt in Typ B-Behältern innerhalb des gegen Einwirkungen von außen geschützten Gebäudes. Störfälle während der maximal einjährigen Zwischenlagerung werden daher nicht betrachtet.

Straßentransport

Zum Zweck der Analyse wird angenommen, daß infolge einer starken mechanischen Belastung ein Leck am Transportbehälter und an einer Druckgasflasche (Freisetzung eines Flascheninhalts) entsteht oder daß ein Transportbehälter einem lang andauernden Feuer ausgesetzt wird, so daß der Inhalt aller vier Druckgasflaschen in den Transportbehälter und in die Umgebung gelangt. Das führt zu einer Freisetzung von $7,4 \cdot 10^{15}$ Bq bzw. $2,96 \cdot 10^{16}$ Bq Kr-85 in Bodennähe.

Schienentransport

Als größter Störfall wird zum Zweck der Analyse angenommen, daß ein Transportbehälter und die darin befindlichen Druckgasflaschen so stark beschädigt werden, daß der gesamte Radioaktivitätsinhalt ($2,96 \cdot 10^{16}$ Bq) als Folge eines Feuers freigesetzt wird.

Seetransport

Es wird angenommen, daß während der Versenkungsaktion, bei der die Druckgasflaschen einzeln aus dem Transportbehälter in die Abschirmbüchse gezogen und dann mittels Ladegeschirr außenbords geschwenkt werden, eine Flasche abstürzt und so schwer beschädigt wird, daß ihr Inhalt ($7,4 \cdot 10^{15}$ Bq) in die Umgebung freigesetzt wird.

Beim Transport selbst kann in aller Regel davon ausgegangen werden, daß die Transportbehälter bei einem Unfall nicht über die Typ B-Belastungsspezifikationen hinaus beansprucht werden. Das trifft für mechanische Einwirkungen auf die Behälter zu, die beim Überschreiten bestimmter Grenzwerte zu einem Bruch der Halterungen ohne wesentliche Beschädigung der Behälter selbst führen sollten. Das trifft aber auch für Brände zu, deren Auswirkungen auf die Transportbehälter normalerweise beherrscht werden können (die Behälter überstehen ein mehrstündiges Feuer mit nachfolgender Kühlung).

Das Absinken eines Transportbehälters auf den Meeresboden hat keine über die normale Versenkung hinausgehenden radiologischen Folgen: In etwa 20 m Tiefe bricht die Berstscheibe, und Seewasser dringt in den Transportbehälter ein. In etwa 1000 m Tiefe beginnt dann der planmäßige Druckausgleich in den Druckgasflaschen. Störfallfreisetzungen während der Fahrt zum Versenkungsort werden daher im Rahmen dieser Analyse nicht betrachtet.

Versenkung

Störfälle nach dem eigentlichen Versenkungsvorgang, die zu einer Freisetzung von Kr-85 am Meeresboden führen (z. B. durch Beschädigung der Druckgasflasche beim Aufprall oder durch Korrosion), können im Rahmen dieser Untersuchung nicht abschließend beurteilt werden, da experimentell verifizierte Angaben über das Verhalten von Kr unter Tiefseebedingungen noch fehlen.

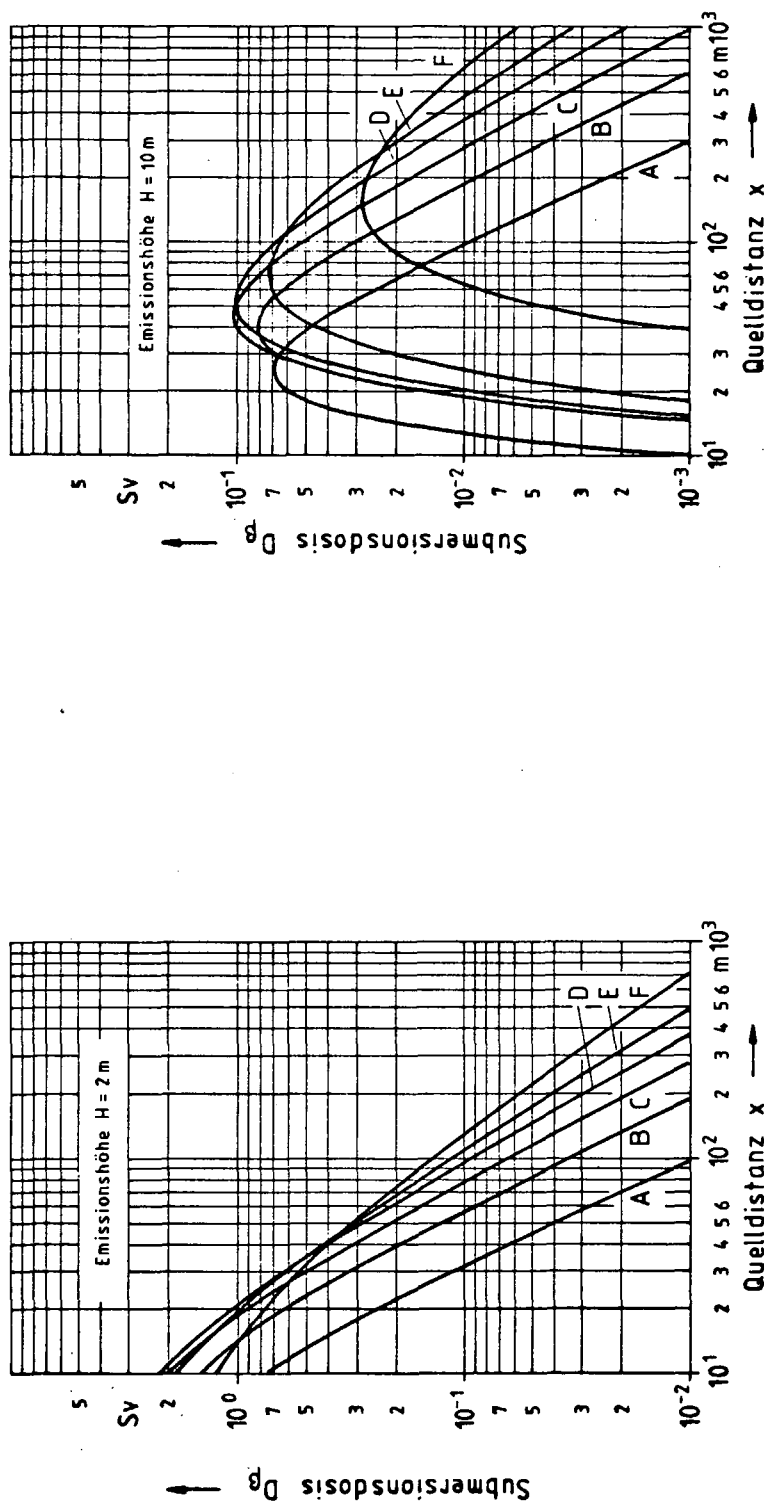
7.5 Atmosphärische Ausbreitung und Dosisbelastung

Die Abschätzung der Dosiswerte erfolgt ebenfalls mit Hilfe des Gaußschen Ausbreitungsmodells, so daß hier auf die in Kapitel 4.5 dargelegten Einschränkungen bezüglich der Belastbarkeit der Daten verwiesen wird.

In Abb. 53a, b sind die Dosiswerte D_g in Abhängigkeit von der Quelldistanz x und den Diffusionskategorien für bodennahe

Emissionen ($H = 2 \text{ m}, 10 \text{ m}$) bei einer Freisetzung von $Q = 7,4 \cdot 10^{15} \text{ Bq}$ graphisch dargestellt. Dosis und Freisetzungsmenge sind linear miteinander verknüpft, so daß für die angenommenen größeren Störfallfreisetzungen die Dosiswerte um einen entsprechenden Faktor steigen.

In Tabelle 29 sind die angenommenen Störfälle, die damit verbundenen Freisetzungsmengen von Kr-85 und die maximalen Strahlenbelastungen für die Diffusionskategorien C und F zusammengefaßt. Die angegebenen Strahlenbelastungen stellen die maximale individuelle Strahlenexposition eines Mitglieds der kritischen Bevölkerungsgruppe für den relevanten Expositionspfad an der ungünstigsten Einwirkungsstelle dar.



a) bodennahe Emission

b) Emissionshöhe $H = 10\text{ m}$

Abb. 53: β -Submersionsdosis als Funktion der Quelldistanz für die Diffusionskategorien

A - F (Quellstärke $Q = 7,4 \cdot 10^{15}\text{ Bq Krypton-85}$)

Tabelle 29: Angenommene Störfälle und daraus resultierende maximale Submersionsdosisbelastungen im ungünstigsten Aufpunkt für die Diffusionskategorien C und F

Störfall	Quellstärke Q in Bq Kr-85	Emissionshöhe H in m	Diffusionskategorie C		Diffusionskategorie F	
			Quelldistanz max. x in m	Dosis max. D _β in Sv	Quelldistanz max. x in m	Dosis max. D _β in Sv
Flaschenversagen beim Straßentransport (1 Flasche)	7,4 · 10 ¹⁵	2	9	1,9	14	0,8
Flaschenversagen* beim Straßentransport oder Schienentransport (4 Flaschen)	3,0 · 10 ¹⁶	10**	45	4,1 · 10 ⁻¹	160	1,1 · 10 ⁻¹
Flaschenversagen bei der Versenkung	7,4 · 10 ¹⁵	2	9	1,9	14	0,8

* Feuer

**angenommene thermische Überhöhung

8. ZUSAMMENFASSUNG

Auf der Grundlage der in /4/ für beide Kr-85 Beseitigungsmethoden entwickelten und beschriebenen technischen Konzepte, werden in der vorliegenden Arbeit sicherheitstechnische Probleme und die zu erwartende Umweltgefährdung bei der Realisierung der beiden Konzepte aufgezeigt.

Lagerung in einem oberirdischen Gebäude

Nach dem vorliegenden Konzept werden 50 l-Druckgasflaschen, in Transportgestellen arretiert, in ein Lagergebäude eingelagert und dort für einen Zeitraum von etwa 115 a sichergestellt.

Das Lagergebäude schützt die Druckgasflaschen gegen Einwirkungen von außen und gliedert sich in 6 verschiedene Lagerzellen, in denen die Druckgasflaschen vierfach übereinander in rohrförmig ausgebildeten Schächten stehen. Die Lagerzellen sind durch die sie umgebenden Wände und Decken von der Umwelt abgeschlossen und stellen eine zweite Barriere gegen die Freisetzung von Radioaktivität dar.

Die beim Zerfall des Kr-85 in den Druckgasflaschen erzeugte Wärme wird durch natürliche Konvektion der in den Lagerzellen zirkulierenden Luft abgeführt. Die sich an den Flaschen erwärmende Luft steigt dabei in den Lagerschächten nach oben und kühlt sich beim anschließenden Abstieg entlang den als Wärmeaustauschflächen ausgebildeten, seitlichen Trennwänden der Lagerzellen wieder ab. Die Trennwände werden ihrerseits durch natürliche Konvektion der Umgebungsluft gekühlt.

Aus jeder Lagerzelle muß eine Zerfallswärmeleistung von maximal 63 kW abgeführt werden. Anhand einer Berechnung der Temperatur- und Strömungsverhältnisse in der Lagerzelle, die sich auf experimentell ermittelte Daten zum Wärmeübergang im einzelnen Lagerschacht abstützt, wird gezeigt, daß die Zerfallswärme bei einer Wandtemperatur der Druckgasflaschen von 125°C abgeführt werden kann. Die Übertemperatur des sich selbst erhitzenden Gases liegt etwa 16°C höher als die Wandtemperatur der Druckgasflaschen. Der Druck beträgt dabei etwa 61 bar.

Als Flaschen- und Ventilwerkstoff wurden verschiedene austenitische Chrom-Nickel-(Molybdän)-Stähle in Betracht gezogen. Zur Untersuchung der Korrosionsbeständigkeit der ausgewählten Stähle gegenüber dem Zerfallsprodukt Rubidium wurden Versuche mit Standzeiten bis zu 3500 h und Temperaturen von 200°C und 500°C durchgeführt. Dabei waren die Werkstoffproben ohne und mit aufgeprägter Spannung eingesetzt.

Die metallografische Auswertung der 200°C-Proben ergab, daß in Abhängigkeit von Werkstoff und Einsatzbedingungen mehr oder weniger deutliche Korrosionseffekte an der Oberfläche der eingesetzten Proben aufgetreten sind, ohne daß eine Tiefenwirkung nachweisbar ist. Die zum Vergleich durchgeführten Korrosionsversuche bei 500°C - einer Temperatur, die weit oberhalb der für die Lagerung zulässigen Maximaltemperatur von 200°C liegt - zeigen demgegenüber eine Tiefenwirkung der Korrosionseffekte in Form von Korrosionszonen. Die weitere Untersuchung dieser Proben mit Hilfe der Rasterelektronenmikroskopie (SEM), der energiedispersiven Röntgenanalyse (EDAX) und der Ionenmikrosonde (SIMS) zeigt, daß es sich hier um Korngrenzenangriffe handelt, die mit einer Verarmung der Legierungsbestandteile Cr und Ni an der Oberfläche einhergehen. Gleichzeitig diffundiert Rubidium in den Werkstoff. Als maximale Eindringtiefen wurden Werte kleiner 1 µm nachgewiesen.

Zugversuche mit DIN-Zugproben, die unter Spannung bei 200°C eingesetzt waren, ergaben Festigkeitskennwerte, die alle im Rahmen des Gewährleistungsbereichs der jeweiligen Werkstoffe lagen. Es traten auch keine Anomalien im Bruchverhalten der Zugproben auf. Die Bruchform und -fläche der Proben zeigt makroskopisch bzw. mikroskopisch den für duktile Werkstoffe typischen Einschnürbruch bzw. grübchenflächigen Bruch.

Insgesamt zeigen die Ergebnisse, daß bei allen untersuchten Werkstoffen ein die Sicherheit mindernder Korrosionsangriff auch bei einer notwendigen Standzeit von größer 115 Jahren kaum zu befürchten ist.

Experimente, durch Adsorption des Gases den Druck in einer Druckgasflasche herabzusetzen, ergaben, daß mit Aktivkohle als Adsorbens Druckabsenkungen um den Faktor 2 erreichbar sind. Darüber

hinaus bietet die adsorptive Befüllung der Druckgasflaschen den zusätzlichen Vorteil, daß bei einem Oberflächenverhältnis Adsorbens/Druckgasflasche von größer 10^7 die Kontamination und damit ein Korrosionsangriff durch Rubidium auf ein Minimum reduziert wird. Das Rubidium bleibt in den Poren der Aktivkohle fixiert und wird selbst bei Temperaturen bis 400°C nicht desorbiert.

Versuche, die in extrudierter Form vorliegenden Aktivkohlestäbchen zu entzünden, blieben ohne Erfolg, so daß größere Störfallauswirkungen durch einen Aktivkohlebrand nach einem möglichen Druckgasflaschenversagen ausgeschlossen werden können.

Die adsorptive Füllung der Druckgasflaschen hat somit gegenüber der reinen Druckgasfüllung deutliche Vorteile und ist deshalb eine geeignete Alternative bei der oberirdischen Lagerung.

Die sicherheitstechnische Analyse des Lagerkonzepts wurde auf der Basis von Barrierendiagrammen, Freisetzungsbäumen und ansatzweise von Fehlerbäumen durchgeführt. Danach ist mit einigen Leckagen und sofern Versprödung stattfindet auch mit dem Zerplatzen von einigen Druckgasflaschen zu rechnen. Die daraus abgeleiteten Störfallfreisetzungsmengen führen zu Strahlenbelastungen, die weit unter dem Grenzwert von $0,3\text{ Sv}$ nach § 28 StrlSchV liegen. Nur für die mehr hypothetischen Störfälle (Freisetzung des gesamten Lagerinventars) ergeben sich über dem Grenzwert liegende Strahlenbelastungen.

Versenkung von Kr-85 in das Meer

Nach dem vorliegenden Konzept werden jeweils 4 30 l-Druckgasflaschen in einen wassergefüllten Typ B(M)-Transportbehälter eingesetzt, in dem sie bis zum Zeitpunkt ihrer Versenkung verbleiben. Die in der Zeit zwischen den einmal im Jahr durchgeführten Versenkungsaktionen beladenen Behälter werden in einem an die Abfüllzelle angrenzenden Lager zwischengelagert, das insgesamt 25 Transportbehälter aufnehmen kann.

Die Beförderung der im Laufe eines Jahres beladenen Behälter zum Verladehafen erfolgt entweder als Straßentransport oder als Sammeltransport per Schiene. Zu diesem Zweck werden die mit Stoßdämpfern versehenen Transportbehälter auf einer Transport-

palette befestigt. Im Verladehafen werden die Behälter ohne weitere Zwischenlagerung auf das für die Versenkungsaktion vorgesehene Frachtschiff verladen. Die Versenkung der Druckgasflaschen auf hoher See wird unter Verwendung einer im Vergleich zum Transportbehälter leichten Abschirmbüchse durchgeführt.

Die Druckgasflasche ist mit einem Ventil versehen, das den Druckausgleich in der Flasche während des Sinkens auf den Meeresboden ermöglicht, ohne daß dabei radioaktives Krypton-85 austritt. Prinzipiell trifft das für jede beliebige Sinklage der Druckgasflasche zu.

Stabilitätsbetrachtungen bzw. Ergebnisse von Strömungsversuchen zeigen aber, daß die Druckgasflasche auf jeden Fall mit dem Ventil nach unten absinkt. Ein Gasaustritt kann mit Sicherheit ausgeschlossen werden, denn das Wasser tritt damit von unten in die Flasche ein und komprimiert das Gas gegen den Flaschenboden.

Der bei den Strömungsversuchen für ein Druckgasflaschenmodell ermittelte Widerstandsbeiwert erlaubt es, die Größe der Aufprallgeschwindigkeit auf den Meeresboden zu bestimmen. Sie wird bei etwa 6 m s^{-1} liegen. Das entspricht einer Freifallhöhe von ca. 1,8 m. Es ist anzunehmen, daß die Schutzkappe bzw. die Druckgasflasche den Aufprall ohne ernste Schäden übersteht.

Auf der Basis einer eingehenden Literaturstudie wird als Flaschen- und Ventilwerkstoff ein CrNiMo-Stahl (Werkstoff-Nr. 1.4439) vorgeschlagen, der aufgrund seines hohen Lochfraßkorrosionspotentials in Meerwasser auch längerfristig als loch- und spaltkorrosionsbeständig angesehen werden kann. Wie Naturrostversuche und Betriebserfahrungen zeigen, wurde dieser Stahl unter der Voraussetzung einer einwandfreien Gefügehomoogenität bei Einsatzzeiten in Meerwasser von ≥ 3 Jahren nicht korrodiert.

Schützt man diesen Stahl noch kathodisch indem man z. B. die Schutzkappe und den Widerstandskörper am Boden der Flasche aus einfachem C-Stahl fertigt, so daß diese als Opferanoden wirken, ist für einen Zeitraum von 20 - 30 Jahren ein Korrosionsangriff mit Sicherheit auszuschließen.

Das im Rahmen einer Literaturstudie untersuchte Verhalten des Krypton-85 in der Tiefsee führt zu dem Ergebnis, daß die Bildung von Krypton-Hydrat unter den gegebenen Temperatur- und

Druckbedingungen als wahrscheinlich angesehen werden kann. Da die Bildung des Hydrats bei Versagen der Druckgasflasche von Bedeutung für die Ausbreitungsgeschwindigkeit des Krypton-85 ist, müssen experimentelle Untersuchungen zum Nachweis der Hydratbildung noch durchgeführt werden.

Als wahrscheinlicher Ausbreitungsmechanismus ist die Diffusion anzusehen. Die dabei zu erwartenden Radioaktivitätskonzentrationen in dem über Fischfang dem Menschen zugänglichen Oberflächenwasser sind unkritisch.

Die bei der Sicherheitsanalyse anhand von statistischen Daten abgeschätzten Unfallhäufigkeiten ergeben, daß beim Überlandtransport für eine "schwere Beschädigung" der Ladung mit Erwartungswerten von 10^{-3} - 10^{-6} pro Jahr zu rechnen ist. Der Begriff "schwere Beschädigung" wird in den Statistiken bereits verwendet, wenn der monetäre Schaden an Fahrzeug und Ladung größer als 1000 DM ist.

Die Erwartungswerte berücksichtigen nicht unbedingt die besonderen mechanischen und thermischen Eigenschaften der Typ B-Verpackung der Druckgasflaschen und relativieren insofern mögliche Störfallfreisetzungen, die wegen der bodennahen Ausbreitung zu über dem Grenzwert nach StrlSchV liegenden maximalen Störfalldosiswerten führen.

9. VERGLEICHENDE BEWERTUNG UNTER DEM ASPEKT VON
SICHERHEIT UND KOSTEN

Anhand der vorliegenden Arbeit konnte gezeigt werden, daß die mit der Kr-85 Beseitigung verbundene Gefährdung der Umwelt sowohl bei der oberirdischen Lagerung als auch bei der Tiefseelagerung in vertretbaren Grenzen gehalten werden kann.

Bedenkt man aber, daß die geschätzten Kosten für eine oberirdische Lagerung mit etwa 365 Millionen DM und die für die Tiefseelagerung mit etwa 40 Millionen DM anzusetzen sind /4/, so ist der Tiefseelagerung der Vorzug zu geben.

Weitere Gründe, die gegen eine oberirdische Lagerung sprechen, liegen auf der Hand. So muß das Lagergebäude nach der Stilllegung der Wiederaufarbeitungsanlage für einen Zeitraum von etwa 100 Jahren überwacht und gesichert werden und danach bleibt die Frage nach der Beseitigung des bunkerähnlichen Gebäudes bestehen. Der monetäre Nutzen aus der Wiedergewinnung von Krypton und Xenon dürfte dabei von den Abrißkosten aufgezehrt werden.

Bleibt bei den hier zur Auswahl stehenden Konzepten also festzustellen, daß die Tiefseelagerung die bessere Beseitigungsmethode ist.

Fragen, die bei Realisierung dieses Konzepts noch untersucht werden müssen, sind:

- die sichere Funktion des Druckausgleichsventils (Bau und Erprobung),
- das Verhalten des Kryptons unter Tiefseebedingungen,
- Optimierung des kathodischen Schutzes, um auch für Zeiträume von 80 - 100 Jahren ein durchkorrodieren der Druckgasflaschen zu verhindern.

Die angesprochenen Fragen sind bis zur Errichtung einer großen Wiederaufarbeitungsanlage lösbar.

NOMENKLATUR

Verzeichnis der Abkürzungen

a	<u>a</u> nno (Jahr)
AISI	<u>A</u> merican <u>I</u> nstitute for <u>S</u> teel and <u>I</u> ron
AKK	<u>A</u> rbeits <u>k</u> reis <u>K</u> ohlenstoff der Deutschen Keramischen Gesellschaft
AS	<u>A</u> tomabsorptionss <u>s</u> pektrometrie
AVR	<u>A</u> rbeitsgemeinschaft <u>V</u> ersuchs <u>r</u> eaktor GmbH
B	<u>B</u> arriere
BE	<u>B</u> rennelement, <u>B</u> asis <u>e</u> reignis
BET	nach <u>B</u> runauer, <u>E</u> mmett, <u>T</u> eller benannte Methode zur Messung von Oberflächen durch Gasadsorption
DB	<u>D</u> eutsche <u>B</u> undesbahn
DF	<u>D</u> ekontaminations <u>f</u> aktor
DGF	<u>D</u> ruckgas <u>f</u> lasche
DIN	<u>D</u> eutsche <u>I</u> ndustrie <u>N</u> orm
DZ	<u>D</u> ruck <u>z</u> one
EDAX	<u>E</u> nergie- <u>D</u> ispersion <u>X</u> -ray <u>A</u> nalysis (Energiedispersive Röntgenanalyse)
EVA	<u>E</u> inwirkung von <u>a</u> ußen
EG	<u>E</u> uropäische <u>G</u> emeinschaft
FT	<u>F</u> ault <u>T</u> ree (Fehlerbaum)
GüKfz	<u>G</u> üter <u>k</u> raft <u>f</u> ahr <u>z</u> ug
h	<u>h</u> our (Stunde)
I	<u>I</u> nventar
IAEA	<u>I</u> nternational <u>A</u> tomie <u>E</u> nergy <u>A</u> gency
ICT	<u>I</u> nstitut <u>C</u> hemische <u>T</u> echnologie der KFA
KFA	<u>K</u> ern <u>f</u> orschungs <u>a</u> nlage Jülich GmbH
KFK	<u>K</u> ern <u>f</u> orschungszentrum <u>K</u> arlsruhe
KTA	<u>K</u> ern <u>t</u> echnischer <u>A</u> usschuß

LS	<u>L</u> agers <u>s</u> chacht
LWR	<u>L</u> eicht <u>w</u> asser <u>r</u> eaktor
MS	<u>M</u> olekular <u>s</u> ieb
RF	<u>R</u> elease <u>F</u> raction (Freisetzungsbruchteil)
RSK	<u>R</u> eaktor- <u>S</u> icherheits <u>k</u> ommission
RT	<u>R</u> elease <u>T</u> ree (Freisetzungsbaum)
SEM	<u>S</u> canning <u>E</u> lektron <u>M</u> icroscopy (Rasterelektronen- mikroskopie)
SIMS	<u>S</u> ekundärionenmassenspektrometrie
SSK	<u>S</u> trahlenschutz <u>k</u> ommission
T	<u>T</u> eil- (Fehler- oder Freisetzungsbaum)
TG	<u>T</u> ransport <u>g</u> estell
TOP	Spitze eines Freisetzungs- oder Fehlerbaumes
TTA	<u>T</u> ieft <u>e</u> mperratur <u>r</u> ektifikations <u>a</u> nlage
U	<u>U</u> mgebung
W	<u>W</u> irksumme
WAA	<u>W</u> iederaufarbeitungs <u>a</u> nlage

Formelzeichen und Symbole

A	Bruchdehnung in %
$A_{\text{Kr-85}}$	spezifische Radioaktivität in $\text{Bq} \cdot \text{g}^{-1}$
$A_{\text{ö}}$	Öffnungsquerschnitt eines Lecks in m^2
A_{p}	Projektionsfläche in m^2
A_{S}	spezifische Oberfläche (BET) in $\text{m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$
$A_{\text{W1,3}}$	Wärmetauschflächen in m^2
$a_{\text{O,3}}$	Anpassungsparameter
B	Anpassungsparameter in $\mu\text{mol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{bar}$
$C_{\text{W1,3}}$	Strahlungsaustauschfaktoren in $\text{W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{K}^{-4}$
$C_{1,2}$	Umrechnungsfaktoren in $\text{g}_{\text{Adsorbens}} \cdot \text{mol}_{\text{Kr}}^{-1} \cdot \text{g}_{\text{Kr}}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$
C_{R}	Riecksche Konstante

C_S	Strahlungskonstante des schwarzen Strahlers in $W \cdot m^{-2} \cdot K^{-4}$
C_{St}	Stokessche Konstante
c_F	spezifische Wärmekapazität in $J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$
$c(t, x, y, z)$	orts- und zeitabhängige Radioaktivitätskonzentration in $Bq \cdot m^{-3}$
D	Diffusionskonstante in $m^2 \cdot s^{-1}$
D_β	β -Submersionsdosis in Sv
D_{DGF}	Durchmesser einer DGF in m
D_T	Durchmesser eines Transportgestells in m
D_S	Durchmesser eines Lagerschachtes in m
d_A	Atomdurchmesser in m
d_{Kr}	Atomdurchmesser von Kr in m
d_ϕ	Öffnungsdurchmesser eines Lecks in m
$E_\beta \text{ eff}$	effektive β -Energie des Kr-85-Zerfalls in MeV
$E_\beta \text{ max}$	maximale β -Energie des Kr-85-Zerfalls in MeV
E_γ	γ -Energie des Kr-85-Zerfalls in MeV
$E\{T_L\}$	Erwartungswert der Lebensdauer T_L in h(a)
g_β	Dosisfaktor für β -Submersion in $Sv \cdot m^3 \cdot Bq^{-1} \cdot s^{-1}$
F_A	Auftriebskraft in N
F_G	Gewichtskraft in N
F_W	Widerstandskraft in N
$F(t)$	Ausfallwahrscheinlichkeitsfunktion
f_D	Druckabsenkungsfaktor
f_S	Speicherfaktor
$f(t)$	Ausfallwahrscheinlichkeitsfunktion in h^{-1} (a^{-1})
H	Höhe in m
H	kumulierte Häufigkeit (Summenhäufigkeit)
h	Häufigkeitsdichte in a^{-1}
I_{Fa}	jährlich einzulagerndes Inventar in $Bq \cdot a^{-1}$
I_{FO}	Inventar einer frisch gefüllten DGF in Bq
$\bar{I}_{FB}$	mittleres Inventar einer DGF (Betriebsphase) in Bq
$\bar{I}_{FL}$	mittleres Inventar einer DGF (Lagerphase) in Bq
$I_F(t)$	zeitabhängiges Inventar einer DGF in Bq

I_{GL}	im Störfall freigesetztes Inventar (größere Leckage) in Bq
I_{LB0}	Anfangsinventar des vollbelegten Lagers in Bq
$\bar{I}_{LB}$	mittleres Inventar des Lagers (Betriebsphase) in Bq
$\bar{I}_{LL}$	mittleres Inventar des Lagers (Lagerphase) in Bq
I_{LN}	im Normalbetrieb freigesetztes Inventar (pro Jahr) in Bq
$I_L(t)$	zeitabhängiges Inventar des Lagers in Bq
I_{LZO}	Anfangsinventar einer vollbelegten Zelle in Bq
$\bar{I}_{LZB}$	mittleres Inventar einer Zelle (Betriebsphase) in Bq
$\bar{I}_{LZL}$	mittleres Inventar einer Zelle (Lagerphase) in Bq
$I_{LZ}(t)$	zeitabhängiges Inventar einer Zelle in Bq
K	Konstante in $^{\circ}C$
K	Boltzmannkonstante in $J \cdot K^{-1}$
K	Anpassungsparameter in $\mu mol \cdot m^{-2} \cdot bar^{-2}$
L	Länge in m
$L(t)$	zeitabhängige Leckrate in $mbar \cdot l \cdot s^{-1}$
L_V	Leckrate des Ventils in $mbar \cdot l \cdot s^{-1}$
$L_{Xe,Kr}$	Löslichkeit der Gase in $ml_{Xe,Kr} \cdot ml_{H_2O}^{-1}$
M	Gesamtgasmasse in kg
$\tilde{M}$	Molmenge in mol
$\bar{M}_A$	statisches Aufrichtmoment in Nm
$\tilde{M}_A$	dynamisches Aufrichtmoment in Nm
$\bar{M}_\phi$	statisches Auslenkungsmoment in Nm
$\tilde{M}_\phi$	dynamisches Auslenkungsmoment in Nm
$M_{Kr,p}$	Kryptongesamtmasse im Porenvolumen in g
m^σ	adsorbierte Überschußmasse in g
m_A	Adsorbensmasse in g
m_F	DGF-Masse in kg
$\dot{m}_g$	Gasmassenstrom in $kg \cdot s^{-1}$
$\dot{m}_{max}$	maximaler Gasmassenstrom in $kg \cdot s^{-1}$
m_{max}	maximal ausgeströmte Gasmasse in kg
m_D^σ	Kryptonüberschußmasse pro Masseneinheit Adsorbens (berechnet) in $mg \cdot g^{-1}$
m_e^σ	Kryptonüberschußmasse pro Masseneinheit Adsorbens (experimentell) in $mg \cdot g^{-1}$

m_M^σ	massenspezifischer Adsorptionsüberschuß in $\text{mg} \cdot \text{g}^{-1}$
m_V^σ	volumenspezifischer Adsorptionsüberschuß in $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$
N_A	Anforderungen pro Jahr in a^{-1}
N_a	Anzahl der pro Jahr einzulagernden DGF in a^{-1}
N_{DGF}	Gesamtanzahl der einzulagernden DGF
$\bar{N}_{\text{DGF}}$	mittlere DGF-Anzahl im Lager (Betriebsphase)
N^σ	spezifischer Grenzflächenüberschuß in $\mu\text{mol} \cdot \text{m}^{-2}$
n	Teilchendichte in m^{-3}
n_b^σ	massenspezifische Überschußmenge in $\mu\text{mol} \cdot \text{g}^{-1}$ (berechnet)
n_e^σ	massenspezifische Überschußmenge in $\mu\text{mol} \cdot \text{g}^{-1}$ (gemessen)
$n_{\text{Kr-85}}$	Kr-85 Menge in einer DGF in mol
$n_{\text{Kr ges}}$	Kryptongesamtmenge in einer DGF in mol
$n_{v,o}$	molare Dichte in mol l^{-1}
$n_{v,r}$	radiusabhängige molare Dichte in $\text{mol} \cdot \text{l}^{-1}$
$n_{v,w}$	molare Dichte an der DGF-Wand in $\text{mol} \cdot \text{l}^{-1}$
$n_{v,z}$	molare Dichte im Zentrum der DGF in $\text{mol} \cdot \text{l}^{-1}$
P	Wahrscheinlichkeit
P_A	Versagenswahrscheinlichkeit pro Anforderung
p	Druck (allgemein) in bar
p_o	Anfangsdruck in einer DGF in bar
p_L	Lavaldruck in bar
p_i	Druck im i-ten Zeitintervall in bar
Q	Emissionsquellstärke in Bq
$\dot{Q}$	Wärmestrom in W
q	spezifische Reaktionswärme in $\text{kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$
R	Risiko
$\bar{R}$	gemittelte Gaskonstante in $\text{J} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$
R_{DGF}	DGF-Radius in m
R_m	Zugfestigkeit in N mm^{-2}
$R_{po,2}$	Streckgrenze in N mm^{-2}
R_{Str}	Wärmeübergangswiderstand in $^\circ\text{C} \cdot \text{W}^{-1}$ (KW^{-1})
$R(t)$	Zuverlässigkeitsfunktion
r	Radius (allgemein) in m

r_T	Teilchenradius in m
S	Schaden
S_O	Querschnitt in mm^2
$S_{G,F}$	Massenschwerpunkt
S_V	Verdrängungsschwerpunkt
T	absolute Temperatur in K
T_L	Lebensdauer in a
$T_{1/2}$	Halbwertszeit in a
t	Zeit in h (a)
t_O	Freisetzungszeitpunkt in a
t_B	Betriebszeit in a
t_E	Einlagerungszeitpunkt in a
t_H	Handhabungszeit in h
t_{LE}	Lagerzeitende in a
t_{ZAi}	Belegungsanfang der i-ten Zelle in a
t_{ZEi}	Belegungsende der i-ten Zelle in a
V_{DGF}	DGF-Volumen in l
V_F	Festkörpervolumen in l
V_K	Kornvolumen in l
V_P	Porenvolumen in l
V_{ZK}	Zwischenkornvolumen in l
v_{int}	integrale flächenbezogene Massenverlustrate in $\text{g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$
v_∞	Strömungsgeschwindigkeit in $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$
$X_{\text{Kr-85}}$	Kr-85-Anteil
x_m	Quelldistanz in m
ΔM_{Kr}	Adsorptionsüberschuß in g
Δm_a	flächenbezogener Massenverlust in $\text{g} \cdot \text{cm}^{-2}$
Δm_i	Gasverlust im i-ten Zeitintervall in g
Δm_M	Adsorptionsüberschuß pro Masseneinheit in $\text{mg} \cdot \text{g}^{-1}$
Δm_V	Adsorptionsüberschuß pro Volumeneinheit in $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$
Δt_i	Zeitintervall in h
ϵ	Emissionsverhältnis

η	dynamische Viskosität Pa·s
θ	Temperatur in °C
κ	Isentropenexponent
λ	Zerfallskonstante, Ausfallrate in a^{-1} (h^{-1})
λ_e	effektive Wärmeleitfähigkeit in $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$
λ_G	freie Weglänge in m
$\bar{\mu}$	Mittelwert
π	Produkt
ρ	Dichte in $g \cdot cm^{-3}$
τ	Zeitkonstante in s
ϕ	Auslenkungswinkel in °
ϕ_0	Leistungsdichte in $W \cdot l^{-1}$
$\bar{\chi}$	Kurzzeit-Ausbreitungsfaktor in $s \cdot m^{-3}$
ψ	Durchflußfunktion

LITERATUR

- /1/ Sicherheitstechnische Fragestellungen zum Entsorgungszentrum
Stand der Beratungen der RSK und der SSK
Empfohlene F&E Arbeiten und Untersuchungen
Geschäftsstelle der RSK, Köln, 1978

- /2/ 40 CFR 190; Environmental Radiation Protection
Requirements for Normal Operations of Activities
in the Uranium Fuel Cycle
Environmental Protection Agency 520/4-76-016 (1976)

- /3/ Deutsche Strahlenschutzkommission;
Empfehlungen zur Abtrennung von Krypton-85 aus den
Abgasen der Wiederaufarbeitungsanlagen
Bundesanzeiger Nr. 132, 23. Juli 1975

- /4/ Nommensen, O.; Beseitigung des aus dem Auflöserabgas
einer Wiederaufarbeitungsanlage für LWR-Kernbrennstoffe
abgetrennten Krypton-85

- /5/ Pinchback T.R.; Materials Screening Tests for the
Krypton-85 Storage Development Program, TREE-1291
(1979)

- /6/ Pinchback T.R.; Materials Screening Tests for the
Krypton-85 Storage Development Program - Final Report
ENICO-1081 (1981)

- /7/ KFK unveröffentlichter Bericht (Noppel et al., Institut
für Radiochemie) (1979)

- /8/ Hoven H.; Persönliche Mitteilung, Inst. für Reaktorwerkstoffe
der Kernforschungsanlage Jülich (1980)

- /9/ Fischer J., Specovius J., Findenegg G.H.; Quantitative
Beschreibung der Adsorption von Gasen bei erhöhten
Drücken, Chem. Ing. Tech. 50 1 (1978) S. 41/42

- /10/ Specovius J., Findenegg G.H.; Physical Adsorption of Gases at High Pressures, Bericht der Bunsen-Gesellschaft für Phys. Chemie 82, Verlag Chemie, Weinheim (1978) 174
- /11/ Ozawa S., et al.; Physical Adsorption of Gases at High Pressure, Journal of Colloid and Interface Science 56 1 (1976)
- /12/ Menon P.G.; Adsorption at High Pressures, Chemical Review 68 (1968)
- /13/ Specovius J.; Untersuchungen zur Adsorption verdichteter Gase an homogenen Festkörperoberflächen, Dissertation Ruhr-Universität Bochum (1978)
- /14/ Köster F.W.; Gravimetrische Gasadsorptionsmessungen bei erhöhten Drücken, Diplomarbeit Ruhr-Universität Bochum (1980)
- /15/ Findenegg G.H.; Persönliche Mitteilung, Ruhr-Universität Bochum (1980)
- /16/ Henrion P.N., et al.; Stockage dans de cylindres pressurisés du Krypton adsorbé sur du charbon actif. Aspects fondamentaux, European Appl. Research Reports 1 5 (1979) p. 1181/1224
- /17/ Winkel, J.; Persönliche Mitteilung, Firma Norit-Adsorptions-GmbH (1980)
- /18/ Yamamoto Y., et al.; Long-Term Storage of Radioactive Krypton Using Adsorbent and a Double Cylinder, 16th DOE Nuclear Air Cleaning Conference (1980)
- /19/ Arbeitskreis Kohlenstoff (AKK) der Deutschen Keramischen Gesellschaft, Prüfung von Kohlenstoffmaterialien DIN 53194 (Entwurf 1978)
- /20/ Farmer F.R.; Reactor Safety and Siting: A Proposed Risk Criterion, Nuclear Safety 8 (1967) 539-548

- /21/ Baehr H.D.; Thermodynamik, Springer-Verlag
Berlin/Göttingen/Heidelberg (1962)
- /22/ Wutz M.; Theorie und Praxis der Vakuumtechnik
Friedr. Vieweg u. Sohn, Braunschweig (1965)
- /23/ Bomelburg H.; Estimation of Gas Leak Rates
Through Very Small Orifices and Channels
BNWL-2223 (1977)
- /24/ Fürst W., Glupe G.; Absturzhäufigkeit von Flugzeugen
auf Kernkraftwerke, TÜ 15 4 (1974)
- /25/ Deutsche Risikostudie Kernkraftwerke, Hauptband
Verlag TÜV Rheinland GmbH, Köln (1979)
- /26/ Canvey; an investigation of potential hazards from
operations in the Canvey Island/Thurrock area, Her
Majesty's Stationery office, London (1978)
- /27/ Balfanz H.P.; Ausfallratensammlung, IRS-W-8 (1973)
- /28/ Powers, Tompkins; Fault Tree Synthesis for Chemical
Processes AIChE Journal, Vol. 20, No. 2 (1974)
- /29/ Miese G.; Zuverlässigkeitsanalyse komplexer Systeme
mit Hilfe der Fehlerbaummethode, Kerntechnik 12 (1970)
- /30/ MFRP-Design and Analysis, Docket 50268-1 (1966)
- /31/ Profos P.; Handbuch der industriellen Meßtechnik,
Vulkan Verlag Essen (1974)
- /32/ Bödege R., Clauss J.; Sind die Behälter für den Transport
von Brennelementen sicher?, Atom und Strom 236 (1977)
- /33/ Müller B.; Persönliche Mitteilung, Institut f. Chemische
Technologie der KFA Jülich (1981)
- /34/ Zebisch H.J.; Fördertechnik 1 Hebezeuge, Vogel-Verlag
Würzburg (1975)

- /35/ Chalmers B. et al.; Progress in materials science, Vol. 15 Pergamon Press, Oxford New York Toronto (1973)
- /36/ Nicholas M.G.; Some recent literature describing liquid metal embrittlement, AERE-R 9199, Harwell/Oxfordshire (1979)
- /37/ Nicholas M.G. et al.; A summary of the literature describing liquid metal embrittlement, AERE-R 9199, Harwell/Oxfordshire (1978)
- /38/ Nicholas M.G., Old C.F.; Review Liquid metal embrittlement, Journal of Materials Science 14 (1979), 1-18
- /39/ Kreyszig E.; Statistische Methoden und ihre Anwendungen Vandenhoeck u. Ruprecht, Göttingen (1965)
- /40/ Sachs L.; Angewandte Statistik, Springer-Verlag Berlin/Heidelberg/New York (1974)
- /41/ Kunze; Schadenursachen bei CO₂-Flaschen, 1. Zwischenbericht zum Forschungsvorhaben Nr. 89, Institut für Materialprüfung und Chemie-Techn. Überwachungsverein (TÜV) Rheinland, Köln (1976)
- /42/ Nowak, Kunze; Schadensursachen bei CO₂-Flaschen, 2. Zwischenbericht zum Forschungsvorhaben Nr. 89, Institut für Materialprüfung und Chemie, TÜV-Rheinland, Köln (1977)
- /43/ Litzkendorf M.; Über den Zusammenhang zwischen Korrosions-Festigkeitsverhalten hochlegierter Chrom- und Chrom-Nickel-Stähle. Untersuchung der Schädigung durch Lochfraß und interkristalliner Korrosion, Dissertation D17, Darmstadt (1974)
- /44/ Litzkendorf M.; Persönliche Mitteilung, Rheinisch-Westfälischer TÜV, Essen (1981)
- /45/ Stelzer F.; Wärmeübertragung und Strömung Verlag Thiemig, München (1971)

- /46/ Brücher H.; Risikoanalyse des Modells einer Anlage zur Verfestigung hochradioaktiver Spaltproduktlösung Kernforschungsanlage Jülich, Jül-1392 (1977)
- /47/ Kritischer Bericht zur Reaktorsicherheitsstudie (WASH1400), Institut für Reaktorsicherheit der TÜV E.V., Interner Bericht IRS-I-87, Köln (1976)
- /48/ Allgemeine Berechnungsgrundlagen für die Bestimmung der Strahlenexposition durch Emission radioaktiver Stoffe mit der Abluft (Empfehlung der Strahlenschutzkommission), Der Bundesminister des Innern, Hrsg. von der Gesellschaft für Reaktorsicherheit mbH, Köln (1977)
- /49/ Geiss H.; Persönliche Mitteilung, Zentralabteilung für Strahlenschutz der Kernforschungsanlage Jülich (1980)
- /50/ Beaujean H., Kamphausen O., Niephaus D., Nommensen O.; Druckabsperrrventil und damit versehene Gasflasche Patentanmeldung P 3002 768.0-12 (1980)
- /51/ Regulations for the Safe Transport of Radioactive Materials (Revised Edition), International Atomic Energy Agency, Safety Series No. 6, STI/PUB/323, IAEA, Wien (1973)
- /52/ Horn E.M., et al.; Lochkorrosion an passiven Legierungssystemen der Elemente Eisen, Chrom und Nickel, Zeitschrift für Werkstofftechnik 8 2 (1977)
- /53/ Schumacher M.; Seawater Corrosion Handbook, Noyes Data Corporation, Park Ridge/New Jersey (1979)
- /54/ Lennox T.J., et al.; Corrosion Resistance and Cathodic Protection of Recently Developed Stainless Steel Alloys in Sea Water, Materials Performance 15 6 (1976)
- /55/ Southwell C.R., et al.; Corrosion of Metals in Tropical Environments-Final report of 16-years exposures, Materials Performance 15 7 (1976)

- /56/ Herbsleb G.; Korrosionsverhalten von hochlegierten, nichtrostenden Stählen bei der Anwendung im Stahlbau, Der Stahlbau 9 (1978)
- /57/ Das Verhalten mechanisch beanspruchter Werkstoffe und Bauteile unter Korrosionseinwirkung (VDI-Tagung Lindau/Bodensee, 1975), VDI-Berichte 235, VDI-Verlag, Düsseldorf (1975)
- /58/ Ellert I., Pantke M.; Der Einfluß von Bakterien auf die Korrosion in Brack- und Meerwasser, Werkstoffe und Korrosion 23 3 (1972)
- /59/ Bäuml A., et al.; Entwicklung, Verarbeitung und Einsatz des stickstofflegierten, hochmolybdänhaltigen Stahls X 3 CrNiMoN 17 13 5, Werkstoffe und Korrosion 23 11 (1972)
- /60/ Lorenz K., Medawar G.; Über das Korrosionsverhalten austenitischer Chrom-Nickel-(Molybdän-)Stähle mit und ohne Stickstoffzusatz unter besonderer Berücksichtigung ihrer Beanspruchbarkeit in chloridhaltigen Lösungen, Thyssen Forschung 1 3 (1967)
- /61/ Kohl H.; Inter- und transkristalline Spannungsrißkorrosion austenitischer Mn- und CrNi-Stähle in Meerwasser, Werkstoffe und Korrosion 23 11 (1972)
- /62/ Bäuml A., Kügler A.; Meerwasserkorrosionsversuche an nichtrostenden Stählen in der Nordsee, Stahl und Eisen 95 22 (1975)
- /63/ Kügler A., Lennartz G.; Natur-Korrosionsversuche mit nichtrostenden Stählen auf Helgoland, Stahl und Eisen 96 (1976) Nr. 1
- /64/ Katz W.; Achema '79-Teil 2: Kurzer Überblick über Werkstoffe und Werkstoffprobleme, Werkstoffe und Korrosion 30 9 (1979)

- /65/ Monit-der neue Stahl für extrem hohe Korrosions-
 forderungen, Werkschrift der Fa. Nyby Uddeholm AB,
 Hagfors
- /66/ Lennartz G.; Das Verhalten hochlegierter Stähle in
 Meerwasser, Schiff und Hafen, Heft 6/1981, 33. Jahr-
 gang
- /67/ Drodten P., Lennartz G., Schwenk W.; Korrosion und
 Korrosionsschutz von Stahl in Meerwasser, Schiff
 und Hafen, Heft 7/1978, 30. Jahrgang
- /68/ Rahmel A., Schwenk W.; Korrosion und Korrosions-
 schutz von Stählen, Verlag Chemie Weinheim (1977)
- /69/ Cotton F.A., Wilkinson G.; Anorganische Chemie, Verlag
 Chemie, Weinheim (1968)
- /70/ Eck B.; Technische Strömungslehre, 7. Auflage, Springer-
 Verlag, Berlin/Heidelberg/New York (1966)
- /71/ Tietjens O.; Strömungslehre, Bd. 1, Springer-Verlag,
 Berlin/Göttingen/Heidelberg (1960)
- /72/ Truckenbrodt E.; Strömungsmechanik, Springer-Verlag,
 Berlin/Heidelberg/New York (1968)
- /73/ Edelgasverbindungen, Gmelins Handbuch, Ergänzungswerk
 zu Bd. 1, 8. Auflage, Syst.-Nr. 1, Springer-Verlag,
 Berlin/Heidelberg/New York (1970)
- /74/ v. Stackelberg M.; Feste Gashydrate, Die Naturwissen-
 schaften, Heft 11 (1949)
- /75/ v. Stackelberg M., Müller H.R.; Feste Gashydrate II,
 Zeitschrift für Elektrochemie 58 1 (1954)
- /76/ Hoppe R.; Chemie der Edelgasverbindungen, Fortschritte
 in der chem. Forschung 5 2 (1965)
- /77/ U.S Department of Commerce, Radioactive-Waste Disposal
 in the Ocean, National Bureau of Standard Handbook 58,
 Washington DC (1954)

- /78/ Simonis R., Brücher H.; Verhalten von radioaktivem Krypton-85 in der Tiefsee, Forschungsvorhaben der Kernforschungsanlage Jülich, vom Bundesminister des Inneren gefördert unter dem Kennzeichen St.Sch. 809, Jülich (1980)
- /79/ Lösungsgleichgewichte, Landolt-Börnstein, 6. Auflage Bd. II/2b, Springer-Verlag, Berlin/Göttingen/Heidelberg (1962)
- /80/ D'Ans/Lax: Taschenbuch für Chemiker und Physiker, Band 1, Berlin 1967
- /81/ Wirtz K.; Zur Theorie der Wanderungsvorgänge in Flüssigkeiten, Zeitschrift für Elektrochemie 58 2 (1954)
- /82/ Spornol A., Wirtz K.; Zur Mikrореibung in Flüssigkeiten, Zeitschrift Naturforschung 8a (1953)
- /84/ Webb G.A.M., Grimwood P.D.; A Revised Oceanographic Model to Calculate the Limiting Capacity of the Ocean to Accept Radioactive Waste, National Radiological Protection Board Rep. NRPB-R58 (1976)
- /85/ van Dalen A., et al.; Study on Possibility of Sea Disposal of Krypton-85, International Symposium on Management of Gaseous Wastes from Nuclear Facilities, IAEA-SM-245/1, Vienna (1980)
- /86/ Schwachstellen und Risikoabschätzung beim Transport radioaktiver Materialien (Bericht f. d. Bundesminister des Innern, RS I 1-510321/85-SR58), Battelle Inst., Frankfurt (1978)
- /87/ Brobst W.A.; Transportation Accidents: How Probable? Nuclear News (May 1973)
- /88/ Nielsen C.W.; Safety Analysis Report for Packaging Krypton Shipping Container, Idaho Chemical Programs Rep. ICP 1077 (1975)

- /89/ Shappert L.B., et al.; Probability and Consequences of Transportation Accidents Involving Radioactive-material Shipments in the Nuclear Fuel Cycle, Nuclear Safety 14 6 (1973)
- /90/ Clarke R.K., et al.; The Quantitative Analysis of Transportation Accident Environments, Sandia Lab. Rep. SAND74-5382 (1974)
- /91/ Murphy E.S., Winegardner W.K.; Safety Analysis of Transportation of High-Level Radioactive Waste, Battelle Pacific Northwest Lab. Rep. BNWL-SA 5314 (1975)

DANKSAGUNG

Die vorliegende Arbeit wurde am Institut für Chemische Technologie der Kernforschungsanlage Jülich angefertigt.

Dem Institutsdirektor, Herrn Prof. Dr. E. Merz, danke ich, daß er diese Arbeit ermöglichte und unterstützte.

Herrn Prof. Dr. H. Nickel danke ich für sein Interesse an der Arbeit und für die Übernahme des Korreferats.

Besonders danke ich Herrn Dr. H. Brücher für klärende Diskussionsbeiträge und für die kritische Durchsicht der Niederschrift sowie Herrn Ing. (grad.) H. Wynands und G. Dickmeis, die mir bei den experimentellen Arbeiten zur Seite standen.

Mein Dank gilt auch Fr. B. Hanke, die die Reinschrift dieser Arbeit anfertigte.

Darüberhinaus möchte ich auch folgenden anderen Institutionen zugehörigen Herren danken:

Prof. Dr. G.H. Findenegg,	Ruhruniversität Bochum
Prof. H.J. Gerhardt, M.Sc.,	Fachhochschule Aachen
Dr. Ing. H. Reimann,	Technische Hochschule Aachen
Dr. Ing. W.G. Burchard,	Gemeinschaftslabor für Elektronenmikroskopie, TH-Aachen
Prof. Dr. K. Koizlik,	Institut für Reaktorwerkstoffe der KFA-Jülich
Ing. (grad.) H. Hoven,	Institut für Reaktorwerkstoffe der KFA-Jülich
Dr. H. Beske,	Zentralabteilung Chemische Analyse der KFA-Jülich
Ing. (grad.) H. Holzbrecher	Zentralabteilung Chemische Analyse der KFA-Jülich
Dipl.-Phys. H. Geiß	Abteilung Sicherheit und Strahlenschutz (Umweltschutz) der KFA-Jülich