



KfK 2857
September 1979

**Berechnungen zur
Wärmeentwicklung bei der
Lagerung und Verfestigung
von MAW / LAW in
großräumigen Kavernen
(Referenzsysteme A und B des
„in-situ-Projektes”)**

W. Hauser, E. Smailos, R. Köster
Abteilung Behandlung radioaktiver Abfälle

Kernforschungszentrum Karlsruhe

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Abteilung Behandlung radioaktiver Abfälle

KfK 2857

Berechnungen zur Wärmeentwicklung bei der Lagerung und
Verfestigung von MAW/LAW in großräumigen Kavernen
(Referenzsysteme A und B des "in-situ-Projektes")

W. Hauser, E. Smailos, R. Köster

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
ISSN 0303-4003

Bemerkung

Der vorliegende Bericht wurde erarbeitet im Rahmen des Projekts "Lagerung und Verfestigung von MAW/LAW in untertägigen Hohlräumen".

(BMFT-Forschungsvorhaben, Förderungskennz.: KWA 1839.5)

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurde untersucht, unter welchen Bedingungen die behälterlose Endlagerung flüssiger radioaktiver MAW/LAW-Abfälle ("in-situ-Projekt") aus dem nuklearen Entsorgungszentrum in 82 500 m³ - (bzw. 134 000 m³ -) Kavernen (Referenzsysteme A und B) ca. 1000 m unter der Erdoberfläche ohne Wärmeprobleme möglich ist.

Das über eine Fallrohrleitung beim Referenzsystem A in Schichten einzulagernde Abfallprodukt besteht aus zementiertem Granulat (Durchmesser ca. 10 mm) mit MAW/LAW-Konzentrat und einer mit Tritium-Abwässern angemachten Zement-Suspension als Zwickelfüllung. Beim Referenzsystem B ist das MAW/LAW-Konzentrat in 200/400 l-Einheiten verpackt. Als maximal zulässige Temperatur für das Abfallprodukt wurden aus Gründen der Produktqualität 90°C gewählt.

Es sind Berechnungen zur Temperaturentwicklung infolge der Zerfallswärme der Radionuklide und der Abbindewärme der Zemente in den Kavernen durchgeführt worden. Neben dem Aushärtungsgrad des vorkonditionierten Granulats sind die Berechnungen für Zemente unterschiedlicher Hydratationswärmen (Portlandzement 350 F, Hochofenzement), verschiedene Sandzuschläge in der Suspension sowie verschiedene Einlagerungsraten durchgeführt worden.

Es hat sich gezeigt, daß aus der Sicht der Wärmeentwicklung unter folgenden Voraussetzungen prinzipiell beide Referenzsysteme zur Einlagerung der hier betrachteten MAW/LAW-Abfälle geeignet sind:

- vollständige Aushärtung des Granulats vor der Befüllung
- hoher Sandgehalt in der Suspension
- Einlagerung der jährlich anfallenden Abfallproduktmenge in dünnen Schichten.

Calculations on Heat Generation and Temperature Rise during Storage and Solidification of MLW/LLW^{+) in Large Capacity Caverns (Reference Systems A and B of the In-Situ-Project)}

Abstract

In this work Investigations were made on the conditions under which the containerless final disposal of liquid radioactive MLW/LLW (in-situ project) from the back-end fuel cycle center in caverns of 82 500 m³ (and 134 000 m³, respectively) capacity (reference systems A and B) about 1 000 m below ground level will be feasible without involving problems of heating.

The waste product to be introduced by layers via a vertical pipeline in reference system A consists of a cemented granulated material (diameter about 10 mm) containing the MLW/LLW concentrate, and a cementitious grout mixed with tritium effluents, which serves as the filler material. In reference system B the cemented MLW/LLW concentrate is packed into 200-400 l units. The maximum permissible temperature for the waste product is fixed at 90⁰C for reasons of product quality.

Calculations have been performed on the temperature rise in the product due to the decay heat of radionuclides and the heat of setting of cements in the caverns. The calculations were related to the degree of solidification of the preconditioned granulated material and, in addition, to cements of different hydratation heats (Portland cement 350 F, blast-furnace cement), to different sand admixtures in the grout and to different rates of storing.

It could be shown that under the aspect of heat generation both reference systems are suited in principle for storing

+) Medium - /Low Level Waste

the MLW/LLW considered here, provided that following assumptions are made:

- complete setting of the granulated material prior to filling;
- high sand content in the grout;
- storage by thin layers of the waste product amount produced every year.

Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Problemstellung und Ziel der Berechnungen	1
2. Modellannahmen	2
2.1 Referenzsystem A	2
2.2 Referenzsystem B	3
3. Ergebnisse und Diskussion	6
3.1 Referenzsystem A	6
3.1.1 Vollständige Aushärtung der Pellets	6
3.1.2 40%-ige Aushärtung der Pellets	9
3.2. Referenzsystem B	11
4. Fehlerbetrachtung	13
5. Schlußfolgerungen	14
6. Literaturverzeichnis	16
Erklärung der verwendeten Abkürzungen	18
Tabellen und Diagramme	19 - 31

1. Problemstellung und Ziel der Berechnungen

Im Rahmen der Sicherheitsbetrachtungen zum Projekt "Lagerung und Verfestigung von MAW/LAW in untertägigen Hohlräumen (Kavernen)" wurden in der 1. Projektphase die Referenzsysteme 1, 2 und 3 hinsichtlich ihrer Eignung als Endlager für die aus dem Entsorgungszentrum anfallenden schwach- und mittelaktiven Abfälle untersucht /1/. Hierbei wurde über die Problematik der Wärmeentwicklung infolge des radioaktiven Zerfalls der Abfälle (Zerfallswärme) und insbesondere infolge des Abbindens von Zementen (Hydrationswärme) berichtet.

In der 2. Projektphase sollen nun zwei neue Referenzsysteme A und B (RSA, RSB) im Hinblick auf ihre Eignung als Endlager bewertet werden. Die beiden Referenzsysteme unterscheiden sich hauptsächlich bezüglich der Zusammensetzung des einzulagernden Abfallprodukts. Während beim RSA das Produkt aus vorkonditioniertem Granulat (Pellets) zur Aufnahme der betrachteten MAW/LAW-Konzentrate und einer mit Tritium-Abwässern angemachten Magerzement-Zwickelfüllung besteht, dienen beim RSB unabgeschirmte 200 bzw. 400 l-Fässer zur Aufnahme der einzementierten MAW/LAW-Abfälle. Als Zwickelfüllung ist auch hier ein mit Tritium-Abwässern angemachter Magerzement vorgesehen. Eine ausführliche Beschreibung beider Referenzsysteme findet sich in /2/.

Ziel der vorliegenden Arbeit ist, festzustellen, unter welchen Bedingungen die Lagerung der vorgegebenen MAW/LAW-Abfälle mit der Zusammensetzung 1.1 /2, 3, 4 / (vgl. Tab. 1) und dem in Tab. 2 dargestelltem Nuklidinventar in diesen Kavernen ohne Wärmeprobleme möglich ist. Als maximal zulässige Produkttemperatur wurde aus Gründen der Produktqualität 90°C vorgegeben /1, 2/, d.h. eine Temperatur, die etwas unterhalb des Siedepunktes des im Zementstein enthaltenen freien Wassers (HTO) liegt.

Das Ablaufschema für die Temperaturberechnungen für das RSA findet sich in Tab. 3. Neben dem Befüllungsgrad der Kaverne (65 Vol.-% bzw. 52 Vol.-% Pellets) und dem Aushärungsgrad des Pellets (vollständig bzw. 40% ausgehärtet) vor Befüllung der Kaverne und der verwendeten Zementsorte (Portlandzement PZ 350 F bzw. Hochofenzement HOZ) sind die Berechnungen für verschiedene Zusammensetzungen der Magerzement-Zwickelfüllung (Suspension Wasser/Zement-Verhältnis $W/Z = 0,4$, Sand/Zement-Verhältnis $S/Z = 1$ bis 3) durchgeführt worden. Als Zementsorte wurde hier HOZ vorgesehen.

Tabelle 4 zeigt das Ablaufschema für die Temperaturberechnungen für das RSB. Im Gegensatz zum RSA ist hier das Abfallprodukt (200 bzw. 400 l-Fässer) vor Befüllung der Kaverne vollständig ausgehärtet. Für die Zementsuspension wurden die gleichen Zusammensetzungen wie für das RSA gewählt.

2. Modellannahmen

Zur Berechnung der in den Referenzsystemen A und B auftretenden Temperaturen wurden folgende Rechenmodelle (vgl. Tab. 1 - 4) zugrunde gelegt.

2.1 Referenzsystem A

- Art der eingelagerten Abfälle: Granulat (Pellets) zur Aufnahme der MAW/LAW Abfallkonzentrate, mit Tritium-haltigen Abwässern angemachte Zementsuspension als Zwickelfüllung

- jährlich einzulagernde Endabfallmenge (vgl. Tab. 1):

Granulat	9 730 m ³ /a	(= 65 Vol.-%)
Zementsuspension	5 420 m ³ /a	(= 35 Vol.-%)
insgesamt ca.	15 000 m ³ /a	

bzw.

Granulat	9 730 m ³ /a	(= 52 Vol.-%)
Zementsuspension	9 020 m ³ /a	(= 48 Vol.-%)
insgesamt	18 750 m ³ /a	

- Einlagerungsdauer: 5 a bei 15 000 m³/a bzw. 4 a bei 18 750 m³/a
- Füllgrad der Kaverne: 90 Vol.-%; das Restvolumen von 10% soll mit inaktivem Zement verfüllt werden.
- Kavernenvolumen: 82 500 m³
- Dimensionierung der Kaverne: D/H = 0,6; daraus ergibt sich D = 39,8 m, H = 66,3 m
- Einlagerungsart der Abfälle: schichtenweise, 3 bis 18 Einlagerungskampagnen pro Jahr mit Schichthöhen von 5,02 m bis 0,67 m
- Pelletszusammensetzung: nach Akbar /5/, siehe Tab. 3
- Zusammensetzung der Suspension (HOZ): siehe Tab. 3, wobei für W/Z = 0,4 und

S/Z = 1: 16,6 Gew.-% Wasser
 41,7 Gew.-% Zement
 41,7 Gew.-% Sand

S/Z = 2: 11,8 Gew.-% Wasser
 29,4 Gew.-% Zement
 58,8 Gew.-% Sand

S/Z = 3: 9,1 Gew.-% Wasser
 22,7 Gew.-% Zement
 68,2 Gew.-% Sand

2.2 Referenzsystem B

- Art der eingelagerten Abfälle: unabgeschirmte 200 bzw. 400 l-Fässer zur Aufnahme der einzementierten MAW/LAW Abfallkonzentrate (evtl. Granulate), mit Tritium-haltigen Abwässern angemachte Zementsuspension als Zwickelfüllung.
- jährlich einzulagernde Endabfallmenge (vgl. Tab. 1):
 - 9 730 m³/a 200 bzw. 400 l-Einheiten (= 40 Vol.-%)
 - 14 595 m³/a Zementsuspension (= 60 Vol.-%)
 - insgesamt: 24 325 m³/a

- Einlagerungsdauer: 5 a
- Füllgrad der Kaverne: 90 Vol.-%; das Restvolumen von 10% soll mit inaktivem Zement verfüllt werden.
- Kavernenvolumen: 133 788 m³
- Dimensionierung der Kaverne: D/H = 0,6; daraus ergibt sich D = 46,8 m, H = 77,9 m
- Einlagerungsart der Abfälle: schichtenweise, 3 bis 18 Einlagerungskampagnen pro Jahr mit Schichthöhen von 4,72 bis 0,79 m
- Die Zusammensetzung der Suspension findet sich in Tab. 4.

Für die Berechnungen (RSA und RSB) wurden folgende Materialwerte zugrunde gelegt:

- Die aus dem Zerfall der Radionuklide resultierende spezifische Wärmeleistung für das Nuklidinventar der Abfallzusammensetzung 1.1 ist in Tab. 2 angegeben.
- Zur Erfassung des Beitrags der Hydratationswärme zur Temperaturerhöhung in der Kaverne wurde der gleiche Formalismus wie bei radioaktiven Zerfällen verwendet. Die integralen Hydratationswärmern Q_{∞}^H sowie die aus dem zeitlichen Verlauf der Hydratationswärme $Q^H(t)$ sich errechnenden "Anfangswärmeleistungen"

$$\dot{Q}_0 = \frac{d}{dt} Q^H(t=0)$$

wurden für die verwendeten Zementsorten dem Zementtaschenbuch /6/ entnommen. Es ergaben sich folgende Werte:

für PZ 350 F	$Q_{\infty}^H = 419 \text{ kJ/kg,}$	$\dot{Q}_0 = 7,95 \text{ kJ} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$
für HOZ	$Q_{\infty}^H = 356 \text{ kJ/kg,}$	$\dot{Q}_0 = 8,79 \text{ kJ} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$

Die "formalen Halbwertszeiten" wurden nach

$$T_{1/2} = \frac{Q_{\infty}^H}{Q_0} \cdot \ln 2$$

berechnet. Daraus ergab sich

$$\text{für PZ 350 F} \quad T_{1/2} = 36 \text{ h,}$$

$$\text{für HOZ} \quad T_{1/2} = 28 \text{ h.}$$

- Wärmeleitfähigkeit $\lambda = 1 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$, spez. Wärme $c_p = 0,96 \text{ J}\cdot\text{g}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ und Dichte $\rho = 2 \text{ g/cm}^3$ entsprechend den Werten für Zementstein.

Die Temperaturberechnungen wurden mit einem in /7/ beschriebenen eindimensionalen numerischen Rechenprogramm durchgeführt. Bei dieser Rechenmethode werden folgende Annahmen gemacht:

- Keine Belüftung der Sohle. Eine belüftete Sohle würde nur einen geringen Einfluß auf die Maximaltemperatur in der Kaverne ausüben.
- Keine Belüftung der Kaverne. Die Wärmeabfuhr erfolgt durch Wärmeleitung an das umgebende Salz und durch Wärmeübergang an die Luft oberhalb der jeweiligen Schicht ($\alpha = 2 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$ entsprechend freier Konvektion).
- Bei Temperaturen über 100°C keine Berücksichtigung der Verdampfungswärme des im Zementstein enthaltenen H_2O .
- Temperatur der Luft in der Kaverne und Temperatur des umgebenden Salzes konstant 40°C (entsprechend einer Tiefe von 1000 m).
- Alter der Abfälle zum Zeitpunkt der Einlagerung: 3 a.
- Totale Absorption der aus den Abfällen ausgesandten α -, β -, γ -Strahlung im Abfallprodukt.

3. Ergebnisse und Diskussion

Die Temperatur in der Kaverne setzt sich aus verschiedenen Temperaturbeiträgen zusammen. Zur Temperatur des Lagermediums Salz ($T_{\text{Salz}} = 40^{\circ}\text{C}$) kommen die Temperaturerhöhungen infolge der Hydratationswärme sowie der Zerfallswärme der Spaltprodukte und des Plutoniums. Daraus folgt

$$T = T_{\text{Salz}} + \Delta T_{\text{Hydr.}} + \Delta T_{\text{Sp. Prod.}} + \Delta T_{\text{Pu}} \quad (1)$$

Die Temperaturberechnungen haben gezeigt, daß das Temperaturmaximum in der Kaverne hauptsächlich durch den Beitrag der Hydratationswärme bestimmt wird. Die Temperaturbeiträge infolge der Zerfallswärme der Spaltprodukte und des Plutoniums (ca. 2°C) sind deutlich niedriger als der Beitrag aus der Hydratationswärme ($30^{\circ} - 130^{\circ}\text{C}$).

3.1 Referenzsystem A

Für das RSA wurde die Temperaturentwicklung in der Kaverne für verschiedene Aushärtungsgrade der Pellets vor Befüllung der Kaverne berechnet. Die mit Tritium-Abwässern ange-machte Zwickelfüllung wurde jeweils mit Wasserüberschuß hergestellt, betrachtet ($W/Z = 0,4$, $S/Z = 1$ bis 3).

3.1.1 Vollständige Aushärtung der Pellets

Geht man davon aus, daß zur Herstellung der Pellets ein Wasserunterschuß erforderlich ist, so kann die vollständige Aushärtung der Pellets dadurch erreicht werden, daß sie vor Befüllung der Kaverne einer Naßbehandlung mit anschließender Aushärtung unterzogen werden. Die Temperaturerhöhung infolge der Hydratationswärme in der Kaverne $\Delta T_{\text{Hydr.}}$ (vgl. Gl. 1) besteht damit nur aus einem Beitrag, der vom Abbindevorgang der Suspension herrührt.

Für diesen Fall sind die berechneten Maximaltemperaturen in der Kaverne bei einem Pelletanteil von 65 Vol.-% in Abbildung 1 dargestellt. Die angegebene Pelletzusammensetzung wurde aus den Werten von Akbar /5/ umgerechnet mit der Bedingung für vollständige Aushärtung (25 Gew.-% Wasser im Zementstein). Bei einem S/Z-Verhältnis in der Suspension von 1 und 3 Einlagerungskampagnen pro Jahr, wie von /2/ zunächst vorgesehen, liegt die Maximaltemperatur in der Kaverne bei 100°C. Sie liegt damit etwas über der maximal zulässigen Temperatur für die Abfallprodukte von 90°C.

Zur Reduzierung der Kavernentemperatur bieten sich zwei Möglichkeiten an:

Durch Erhöhung des S/Z-Verhältnisses und damit des Anteils an wärmeinertem Sandes in der Suspension kann die Maximaltemperatur in der Kaverne wesentlich gesenkt werden. Den Zusammenhang zwischen S/Z-Verhältnis und auftretender Maximaltemperatur zeigt Abb. 1. Man sieht, daß bei S/Z = 2 und 3 Einlagerungskampagnen pro Jahr die Maximaltemperatur mit 85°C unter der höchst zulässigen Produkttemperatur von 90°C liegt. Durch weitere Erhöhung des Sandanteiles auf S/Z = 3 wird die Maximaltemperatur in der Kaverne noch mehr gesenkt.

Eine andere Möglichkeit zur Erniedrigung der Produkttemperatur besteht darin, daß man die Zahl der jährlichen Einlagerungskampagnen (Einlagerungsrate) erhöht. Bei gleicher jährlich eingelagerter Menge an Endabfallprodukt bewirkt dies eine Verringerung der einzelnen Schichthöhen. Dadurch erhält man eine bessere axiale Wärmeabfuhr aus dem Produkt an die Luft.

Die Abhängigkeit der Maximaltemperatur in der Kaverne von der Anzahl der Einlagerungskampagnen pro Jahr für verschiedene S/Z-Werte ist ebenfalls in Abb. 1 dargestellt. Danach sinkt die Temperatur bei gleichem S/Z-Verhältnis mit steigender Zahl von Einlagerungskampagnen/a. Man erkennt, daß bei

$S/Z = 1$ zur Einhaltung der maximal zulässigen Produktemperatur von 90°C das jährliche Einlagerungsvolumen von ca. $15\ 000\ \text{m}^3$ in mindestens 12 Einlagerungskampagnen unterteilt werden muß. Dabei wird die Höhe einer Schicht von ursprünglich ca. 4 m bei 3 Kamp./a auf 1 m bei 12 Kamp./a reduziert.

Den zeitlichen Verlauf der Temperatur in der Kaverne am Beispiel $S/Z = 1$ mit 3 bzw. 12 Einlagerungskampagnen/a zeigt Abb. 2. Man erkennt, daß das Temperaturmaximum jeweils bei Beendigung der Einlagerung, nach 5 a, auftritt, (d.h. 9 Tage bei 3 Kamp./a und 4 Tage bei 12 Kamp./a nach Befüllung der obersten Schicht). Danach fällt die Temperatur stark ab. Für Zeiten $t > 10$ a wird die Temperatur in der Kaverne nicht mehr durch die Hydratations- sondern hauptsächlich durch die Zerfallswärme der Radionuklide bestimmt.

Den Temperaturverlauf entlang der Kavernenachse für $S/Z = 1$ und 12 Einlagerungskampagnen pro Jahr zeigt Abb. 3. Bei Beendigung der Einlagerung nach 5 a ist eine deutliche Temperaturspitze (90°C) in der obersten befüllten Schicht zu erkennen. In den benachbarten Schichten liegen die Temperaturen nur bei ca. 70% des Maximalwertes. Sie fallen zum Boden der Kaverne hin langsam ab. Nach 15 a (maximale Zerfallswärmeproduktion, $T = 54^{\circ}\text{C}$) erhält man ein zur Kavernenmitte symmetrisches Temperaturprofil.

Damit konnte gezeigt werden, daß im Falle der vollständigen Aushärtung der Pellets die Kavernenlagerung in dem beschriebenen RSA bei einem Befüllungsgrad von 65 Vol.-% Pellets ohne Wärmeprobleme möglich ist. Jedoch muß bei einer Einlagerungsrate von 3 Kampagnen/a $S/Z \geq 2$ in der Suspension sein oder bei $S/Z = 1$ die Einlagerungsrate ≥ 12 Kampagnen/a gewählt werden.

Für den Befüllungsgrad der Kaverne von 52 Vol.-% Pellets sind die berechneten Maximaltemperaturen in Abb. 4 dargestellt. In diesem Falle ergeben sich durch die Erhöhung des zur

Wärmeentwicklung in der Kaverne beitragenden Suspensionsanteils von 35 Vol.-% auf 48 Vol.-% Temperaturen, die etwa 20% höher als im vorher diskutierten Falle von 65 Vol.-% Pellets liegen. Die Einlagerung der radioaktiven Abfälle ist jedoch auch hier ohne Wärmeprobleme möglich, wenn in der Suspension $S/Z \geq 2$ gewählt wird. Während für Werte $S/Z \geq 3$ keine Einschränkung in der Einlagerungsrate gemacht werden muß, ist für $S/Z = 2$ eine Unterteilung der jährlich einzulagernden Abfallmenge in mindestens 12 Kampagnen/a erforderlich, damit die maximal zulässige Kavernentemperatur von 90°C nicht überschritten wird.

3.1.2 40%-ige Aushärtung der Pellets

Für den Fall, daß die Pellets bei Befüllung der Kaverne nur teilweise ausgehärtet sind, besteht die Temperaturerhöhung infolge der Hydratationswärme $\Delta T_{\text{Hydr.}}$ (vgl. Gl. 1) aus einem Beitrag der vom Abbinden der Suspension und zusätzlich einem Beitrag der vom weiteren Aushärten der Pellets herrührt. Für die von Akbar /5/ angegebene Pelletzusammensetzung (40%-ige Aushärtung der Pellets vor Befüllung der Kaverne) sind die berechneten Maximaltemperaturen bei einem Befüllungsgrad von 65 Vol.-% Pellets in Abb. 5 und 6 dargestellt. Berechnet wurde die Wärmeentwicklung bei zwei verschiedenen Pelletzusammensetzungen, die sich durch die verwendete Zementart (Abb. 5: PZ 350 F, Abb. 6: HOZ) und damit durch ihre Hydratationswärme unterscheiden.

Die Abhängigkeit der Maximaltemperatur in der Kaverne von der Anzahl der Einlagerungskampagnen für den Fall der Pelletzusammensetzung mit PZ 350 F zeigt Abb. 5. Bei $S/Z = 1$ in der Suspension und 3 Einlagerungskampagnen/a ergibt sich $T_{\text{Max}} = 165^{\circ}\text{C}$. Die berechnete Maximaltemperatur liegt somit über der vorgegebenen Grenztemperatur von 90°C . Man sieht, daß im Rahmen dieser Untersuchungen sowohl durch eine Erhöhung des Anteils an Sand in der Suspension als auch durch die Vergrößerung der Zahl der Einlagerungskampagnen, die Maximaltemperatur in der Kaverne nicht unter 90°C gesenkt werden kann. Im

günstigsten Fall ($S/Z = 3$, 18 Kamp./a) liegt die Maximaltemperatur immer noch bei ca. 110°C . Diese Variante zur Einlagerung der radioaktiven Abfälle scheidet somit aus Temperaturgründen aus.

Auch im Fall der Pelletzusammensetzung mit HOZ liegt T_{Max} in der Kaverne mit 172°C bei den Projektvorgabewerten ($S/Z = 1$, 3 Kamp./a) über der zugelassenen Grenztemperatur (Abb. 6). Bei $S/Z = 3$ und 18 Kamp./a ergibt sich eine maximale Kavernentemperatur von 115°C .

Damit ist auch diese Pellet- bzw. Suspensionszusammensetzung für eine Einlagerung in das RSA ungeeignet.

Vergleicht man die Berechnungen für Pellets aus PZ 350 F mit denen für Pellets aus HOZ, so stellt man folgendes fest:

Obwohl HOZ mit $Q_{\infty}^{\text{H}} = 356 \text{ kJ/kg}$ /6/ eine niedrigere integrale Hydratationswärme als PZ 350 F ($Q_{\infty}^{\text{H}} = 419 \text{ kJ/kg}$) hat, liegen die berechneten Maximaltemperaturen in der Kaverne für die Pelletzusammensetzung mit HOZ ca. 4% über den Werten für PZ 350 F. Der Grund hierfür liegt in der aus den Daten von /6/ berechneten kleineren "formalen Halbwertszeit" von 28 h bei HOZ ($T_{1/2} = 36 \text{ h}$ bei PZ 350 F). Damit findet die Wärmefreisetzung in kürzerer Zeit statt, woraus sich etwas höhere Temperaturen in der Kaverne bei Pellets aus HOZ ergeben. Es muß jedoch festgestellt werden, daß bedingt durch die Streuung der Ausgangsdaten /6/ keine eindeutige Unterscheidung zwischen PZ 350 F und HOZ bezüglich der Wärmeentwicklung durch Hydratation gemacht werden kann.

Sowohl der zeitliche (Temperaturmaximum nach 5 a) als auch der örtliche Verlauf (Temperaturmaximum jeweils in der obersten befüllten Schicht) der Temperaturen in der Kaverne ist für die hier diskutierten Fälle analog Abb. 2 bzw. Abb. 3.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, daß bei einer 40%-igen Aushärtung der Pellets übertage und anschließender

Befüllung der Kaverne, die auftretenden Maximaltemperaturen für die hier betrachteten Fälle ($1 \leq S/Z \leq 3$, $3 \leq$ Einlagerungsrate ≤ 18 Kamp./a) immer über der vorgegebenen Grenztemperatur liegen. Bezüglich der Maximaltemperaturen besteht kein eindeutiger Unterschied zwischen Pellets aus PZ 350 F und HOZ. Unter diesen Voraussetzungen ist also eine Einlagerung im RSA nicht möglich. Aus diesem Grunde wurde hier auf eine Temperaturberechnung für einen Befüllungsgrad von 52 Vol.-% Pellets verzichtet, da in diesem Falle die Temperaturen in der Kaverne noch höher als bei dem hier untersuchten Befüllungsgrad von 65 Vol.-% liegen würden.

3.2 Referenzsystem B

Beim RSB besteht das Abfallprodukt aus 200 bzw. 400 l-Fässern, die mit Granulat der in Tab. 1 angegebenen Zusammensetzung befüllt sind. Bezüglich der Wärmeentwicklung durch Hydratation kann dieses Abfallprodukt bei Befüllung der Kaverne als vollständig ausgehärtet betrachtet werden. Einen Beitrag zur Hydratationswärme in der Kaverne liefert damit nur noch die mit Tritium-Abwässern angemachte Zwickelfüllung (Suspension). Sie wird wie beim RSA wieder mit Wasserüberschuß hergestellt ($W/Z = 0,4$, $S/Z = 1$ bis 3) betrachtet.

Im Vergleich zum Kavernenvolumen beim RSA ($V = 82\,500\text{ m}^3$) ist beim RSB das Volumen der 5-Jahreskaverne auf ca. $134\,000\text{ m}^3$ erhöht worden. Dies ergibt sich daraus, daß der erreichbare Füllgrad mit den Faßeinheiten im RSB mit ca. 40 Vol.-% (abgeschätzter Wert) wesentlich niedriger liegt als mit dem Granulat beim RSA (65 Vol.-% bzw. 52 Vol.-%).

Die berechneten Maximaltemperaturen in der Kaverne für das RSB zeigt Abb. 7. Bei den ursprünglichen Vorgabewerten $S/Z = 1$ in der Suspension und 3 Einlagerungskampagnen/a erhält man eine Maximaltemperatur von 132°C . Somit liegt die Temperatur in der Kaverne über der zugelassenen Grenztemperatur (90°C).

Wie beim RSA gezeigt wurde, kann eine Erniedrigung der Kavernentemperatur durch Erhöhung des S/Z-Wertes in der Suspension bzw. durch Vergrößerung der Zahl der Einlagerungskampagnen/a erreicht werden.

Möchte man die Zahl der Einlagerungskampagnen/a bei 3 festhalten, so muß der S/Z-Wert in der Suspension auf mindestens 3 erhöht werden (Abb. 7), um die vorgegebene Grenztemperatur in der Kaverne zu unterschreiten. Durch eine Erhöhung der Einlagerungskampagnen/a kann erst für $S/Z \geq 2$ die Temperatur unter den Grenzwert 90°C gesenkt werden (Abb. 7). So ist bei $S/Z = 2$ eine Einfüllrate von 18 Kampagnen/a erforderlich. Bei $S/Z = 1$ kann die Maximaltemperatur in der Kaverne durch eine Erhöhung der Einfüllrate nicht unter 90°C gesenkt werden. Eine Suspension mit einem Verhältnis $S/Z = 1$ ist damit als Zwickelfüllung für die 200 bzw. 400 l-Abfallfässer im RSB ungeeignet.

Abbildung 8 zeigt die Zeitabhängigkeit der auftretenden Temperaturen im RSB am Beispiel $S/Z = 2$ in der Suspension bei 3 bzw. 18 Einlagerungskampagnen/a. Wie schon beim RSA gezeigt, tritt das Temperaturmaximum nach 5 a, also bei Beendigung der Einlagerung auf (bei 3 Kamp./a 9 Tage, bei 18 Kamp./a 4 Tage nach Befüllung der obersten Schicht).

Für den Fall $S/Z = 2$, 18 Kamp./a ist der Temperaturverlauf entlang der Kavernenachse (Höhe) in Abb. 9 dargestellt. Das Temperaturmaximum tritt nach Beendigung der Einlagerung in der zuletzt eingelagerten Schicht (Schichthöhe 0,79 m) auf. Zu diesem Zeitpunkt ist die Hydratationswärme in den Nachbarschichten schon deutlich abgeklungen, was durch den Temperatursprung zu erkennen ist. Nach 15 a stellt sich ein zur Kavernenmitte symmetrisches Temperaturprofil ein, das hauptsächlich von der Zerfallswärme der Radionuklide herrührt.

Damit wurde gezeigt, daß die Einlagerung im RSB mit den hier beschriebenen Parametern nur für die Fälle einer Suspensions-

zusammensetzung mit $S/Z = 2$ und einer Einlagerungsrate von mindestens 18 Kamp./a bzw. $S/Z \geq 3$ und Einlagerungsraten ≥ 3 Kamp./a möglich ist.

4. Fehlerbetrachtung

In die Berechnung der Kavernentemperaturen gehen folgende, für die Bedeutung der Aussagen zu berücksichtigende Fehler ein:

Aus den Literaturangaben /6/ für den zeitlichen Verlauf der Hydratationswärme ergeben sich statistische Fehler für die integralen Hydratationswärmen $m_{Q_\infty}^H = \pm 15\%$ und für die aus dem Differential (vgl. S. 4) sich ergebenden "Anfangswärmeleistungen" $m_{\dot{Q}_0} = \pm 20\%$. Diese relativ großen Fehler beruhen auf dem unterschiedlichen Abbindeverhalten verschiedener Chargen bei ein und derselben Zementsorte. Nach Anwendung des Gauß'schen Fehlerfortpflanzungsgesetzes /8/ erhält man den mittleren statistischen Fehler für die "formale Halbwertszeit" (vgl. S.5)

$$m_{T_{1/2}}^+ = \left\{ \left(\frac{Q_\infty^H}{\dot{Q}_0^2} \ln 2 \cdot m_{\dot{Q}_0} \right)^2 + \left(\frac{\ln 2}{\dot{Q}_0} \cdot m_{Q_\infty^H} \right)^2 \right\}^{1/2}$$

Daraus ergibt sich $m_{T_{1/2}} = \frac{m_{T_{1/2}}^+}{T_{1/2}} = \pm 25\%$.

Diese Fehler setzen sich fort in den berechneten Temperaturerhöhungen $\Delta T_{\text{Hydr.}}$ infolge der Hydratationswärme der Zemente. Je nach Charge kann damit $\Delta T_{\text{Hydr.}}$ um bis zu 30% variieren, womit die tatsächlichen Kavernentemperaturen T (Gl. 1) 10 - 20% höher oder niedriger als die hier berechneten Werte liegen können.

Der Abbindevorgang der Suspension in der Kaverne findet bei erhöhten Temperaturen statt. Bei diesen höheren Temperaturen bindet der Zement, entgegen den Werten aus /6/, in kürzerer Zeit ab (kein isothermer Vorgang!). Sollte dieser schnellere

Abbindevorgang nicht durch einen Verzögerer kompensiert werden, so muß ein daraus resultierender systematischer Fehler in den Kavernentemperaturen T , der experimentell zu bestimmen ist, berücksichtigt werden.

Eine Überprüfung des hier verwendeten Rechenmodells durch experimentell ermittelte Werte konnte wegen fehlender Daten bisher nicht vorgenommen werden. Da das Rechenmodell /7/ insbesondere für dünne Einlagerungsschichten (hauptsächlich axialer Wärmetransport), wie sie hier vorliegen, gemacht ist, ist dieser Fehler gegenüber den oben diskutierten Fehlern zu vernachlässigen.

5. Schlußfolgerungen

Die hier durchgeführten Untersuchungen haben gezeigt, daß vom Standpunkt der Wärmeentwicklung her gesehen, prinzipiell beide Referenzsysteme A und B zur Einlagerung der betrachteten radioaktiven Abfälle geeignet sind. Damit eine vorgegebene Grenztemperatur von 90°C in der Kaverne nicht überschritten wird, müssen jedoch folgende Einschränkungen gegenüber den Vorgabewerten / 2 / gemacht werden:

Für das Referenzsystem A:

- Das Abfallgranulat (Pellets) muß vor Befüllung der Kaverne vollständig ausgehärtet sein. Hierzu sind die Pellets nach der Herstellung gegebenenfalls einer Nachbehandlung, z.B. mit Wasserdampf, zu unterziehen.
- Bei einem Befüllungsgrad von 65 Vol.-% Granulat und 35 Vol.-% Zwickelfüllung ist die jährlich einzulagernde Endproduktmenge von ca. $15\ 000\ \text{m}^3$ (Einlagerungsdauer: 5 a) bei einem Sand/Zement-Verhältnis $S/Z = 1$ ($W/Z = 0,4$) in der Suspension in mindestens 12 Einlagerungskampagnen/a zu unterteilen. Für Werte $S/Z \geq 2$ ist auch die Einlagerung mit 3 Kamp./a (und mehr) möglich.

- Bei einem Befüllungsgrad von 52 Vol.-% Granulat und 48 Vol.-% Zwickelfüllung wird die Kaverne mit $82\,500\text{ m}^3$ Volumen infolge der größeren Endproduktmenge von $18\,750\text{ m}^3/\text{a}$ bereits in 4 a befüllt sein, d.h. in diesem Falle wird die insgesamt eingelagerte Abfallmenge kleiner als bei einem Befüllungsgrad von 65 Vol.-% sein. Hierbei muß in der Suspension $S/Z \geq 2$ ($W/Z = 0,4$) gewählt werden, wobei für $S/Z = 2$ die Einlagerungsrate ≥ 12 Kamp./a sein muß. Für $S/Z \geq 3$ ist auch die Einlagerung mit 3 Kamp./a (und mehr) möglich.

Für das Referenzsystem B:

Durch den im Vergleich zum RSA erreichbaren niedrigeren Füllgrad von 40 Vol.-% Fässern und 60 Vol.-% Suspension, erhöht sich bei gleichem Abfallvolumen die jährlich einzulagernde Endproduktmenge auf ca. $24\,000\text{ m}^3$. Für eine 5-Jahres-Kaverne erhöht sich damit das erforderliche Hohlraumvolumen auf ca. $134\,000\text{ m}^3$ (10 Vol.-% Restvolumen).

- Die jährlich einzulagernde Endproduktmenge (Fässer + Zwickelfüllung) kann nur mit einer Suspension der Zusammensetzung $S/Z \geq 2$ ($W/Z = 0,4$) eingelagert werden. Während bei $S/Z = 2$ eine Einfüllrate von mindestens 18 Kamp./a erforderlich ist, können für $S/Z \geq 3$ die Abfälle schon mit 3 Kamp./a (und mehr) in die Kaverne eingelagert werden.

Die Untersuchungen haben gezeigt, daß vom Standpunkt der Wärmeentwicklung her gesehen, infolge der Streuung der Literaturdaten /6/, keine eindeutige Aussage über die zu verwendende Zementsorte gemacht werden kann.

Vergleicht man die beiden Referenzsysteme, in denen bei den diskutierten Bedingungen eine Einlagerung ohne Wärmeprobleme möglich ist, so stellt man fest, daß im RSA wegen dem höheren Füllgrad, der mit dem Granulat zu erzielen ist, bei gleichem Abfallvolumen weniger Lagerraum benötigt wird. Unter diesem Gesichtspunkt dürfte deshalb das RSA kostengünstiger sein und sollte bevorzugt werden.

6. Literaturverzeichnis

- /1/ W. Hauser, E. Smailos, P. Vejmelka
in H. Krause (Hrsg.), Abteilung Behandlung
radioaktiver Abfälle, Jahresbericht 1978,
KfK-2749, (1979), S. 18-19
- /2/ R. Köster, R. Kraemer, R. Kroebe
Disposal and Fixation of Medium and Low Level
Liquid Wastes in Salt Caverns - In situ Solidification
Otaniemi/Finland, July 2-6, 1979
IAEA-SM-243/16, (1979)
- /3/ H. Kelm, R. Köster
Kernforschungszentrum Karlsruhe, (unveröffentlichte
Ergebnisse), (1978)
- /4/ G. Rudolph, R. Köster
Verfestigung von LAW-, MAW- und Tritiumabwässern
aus der Wiederaufarbeitung
Deutsches Atomforum e.V., Reaktortagung
Hannover 1978, Tagungsbericht S. 482-485
- /5/ A.H. Akbar, R. Köster, G. Rudolph
Kernforschungszentrum Karlsruhe, (unveröffentlichte
Ergebnisse), (1979)
- /6/ Verein Deutscher Zementwerke
Zementtaschenbuch 1976/77, 46. Ausgabe,
Bauverlag Wiesbaden, Berlin (1976)
- /7/ E. Smailos, W. Diefenbacher, E. Korthaus, W. Comper
Berechnungen zur Radiolysegasbildung und Wärmeent-
wicklung bei der Einlagerung von radioaktiven Bitumen-
und Zementprodukten in unterirdischen Lagerräumen.
KfK-2076, (1978)

/8/ R. Zurmühl

Praktische Mathematik für Ingenieure und Physiker
Springer, Göttingen (1963)

Erklärung der verwendeten Abkürzungen

RSA Referenzsystem A

RSB Referenzsystem B

W/Z Wasser/Zement Gewichtsverhältnis

S/Z Sand/Zement Gewichtsverhältnis

HOZ Hochofenzement

PZ 350 F Portlandzement 350 F

$Q_{\infty}^H = Q^H(t \rightarrow \infty)$ integrale Hydratationswärme

$Q^H(t=0)$ Hydratationswärme zum Zeitpunkt $t=0$

$\dot{Q}_0 = \frac{d}{dt} Q^H(t=0)$ "Anfangswärmeleistung" (Hydratation)

$T_{1/2} = \frac{Q_{\infty}^H}{\dot{Q}_0} \cdot \ln 2$ "formale Halbwertszeit" (Hydratation)

Tabelle 1:

Menge der fixierten radioaktiven Abfälle unter Berücksichtigung der Abfall-Parameter (Zementfixierung)

ca. 10 Gew.-% Salz im Endprodukt, W/Z = 0,4

(Abfallzusammensetzung 1.1 nach /2/).

Befüllungsgrad der Kaverne:

RSA: 65 Vol.-% bzw. 52 Vol.-% ^{+) Granulat mit MAW/LAW}

35 Vol.-% bzw. 48 Vol.-% ^{+) Zementsuspension als Zwickelfüllung}

RSB: 40 Vol.-% 200 bzw. 400 l-Fässer mit LAW/MAW

60 Vol.-% Zementsuspension als Zwickelfüllung

zementiertes Endabfallprodukt	jährliches Endproduktvolumen (m ³ /a)	
	Referenzsystem A (Granulat)	Referenzsystem B (200/400 l-Fässer)
LAW wässrig	2 716	2 716
MAW wässrig	5 307	5 307
Aschen	140	140
Kugelharze	750	750
Pulverharze und Verd.-Konzentr.	817	817
Mit Tritium-haltigen Abwässern angemachte Zementsuspension	5 425(9 020)	14 595
Summe	15 155(18 750)	24 325

^{+) Werte in ().}

Tabelle 2:

Nuklidinventar der Abfallzusammensetzung 1.1
(15 155 m³ Endprodukt pro Jahr) und berechnete spezifische Aktivität und Wärmeleistung des Abfallproduktes
(umgerechnete Werte aus /3/).

Nuklid	Spez. Aktivität (Ci/l _{Prod.})	Spez. Wärmeleist. (W/l _{Prod.})	Wärmeleistung auf 1 normiert
Co-60	6,0 E-05	9,0 E-07	2,7 E-03
Ru-106	1,2 E-02	8,5 E-07	2,4 E-03
Rh-106	1,2 E-02	8,81 E-05	2,61 E-01
Sb-125	3,53 E-03	1,03 E-05	3,04 E-02
Te-125m	1,47 E-03	2,4 E-08	7,0 E-05
Cs-134	4,5 E-03	4,67 E-05	1,38 E-01
Cs-137	1,6 E-02	1,75 E-05	5,17 E-02
Ba-137m	1,5 E-02	5,06 E-05	1,5 E-01
Ce-144	5,03 E-03	3,33 E-06	9,9 E-03
Pr-144	5,03 E-03	3,83 E-05	1,13 E-01
Sr-90	1,0 E-02	1,11 E-05	3,28 E-02
Y-90	1,0 E-02	4,68 E-05	1,39 E-01
Eu-154	2,0 E-05	8,4 E-07	2,5 E-03
Eu-155	1,0 E-04	6,2 E-07	1,8 E-03
Zr-95	1,0 E-04	1,04 E-07	3,0 E-04
Nb-95	1,0 E-03	4,7 E-07	1,4 E-03
H-3	4,0 E-02	1,4 E-06	4,1 E-03
Pu-238	3,35 E-04	1,09 E-05	3,22 E-02
Pu-239	3,31 E-05	1,01 E-06	3,0 E-03
Pu-240	5,67 E-05	1,73 E-06	5,2 E-03
Pu-241	1,53 E-02	6,3 E-07	1,9 E-03
Am-241	1,08 E-04	3,5 E-06	1,04 E-02
Am-243	2,48 E-06	8,0 E-08	2,0 E-04
Cm-242	7,77 E-08	3,0 E-09	9,0 E-06
Cm-244	6,54 E-05	2,24 E-06	6,6 E-03
Summe	1,52 E-01	3,38 E-04	1,0

Tabelle 3:

Ablaufschema zur Berechnung der aus der Hydratations- bzw. Zerfallswärme der Abfallprodukte auftretenden Temperaturen für die Bewertung von Referenzsystem A.

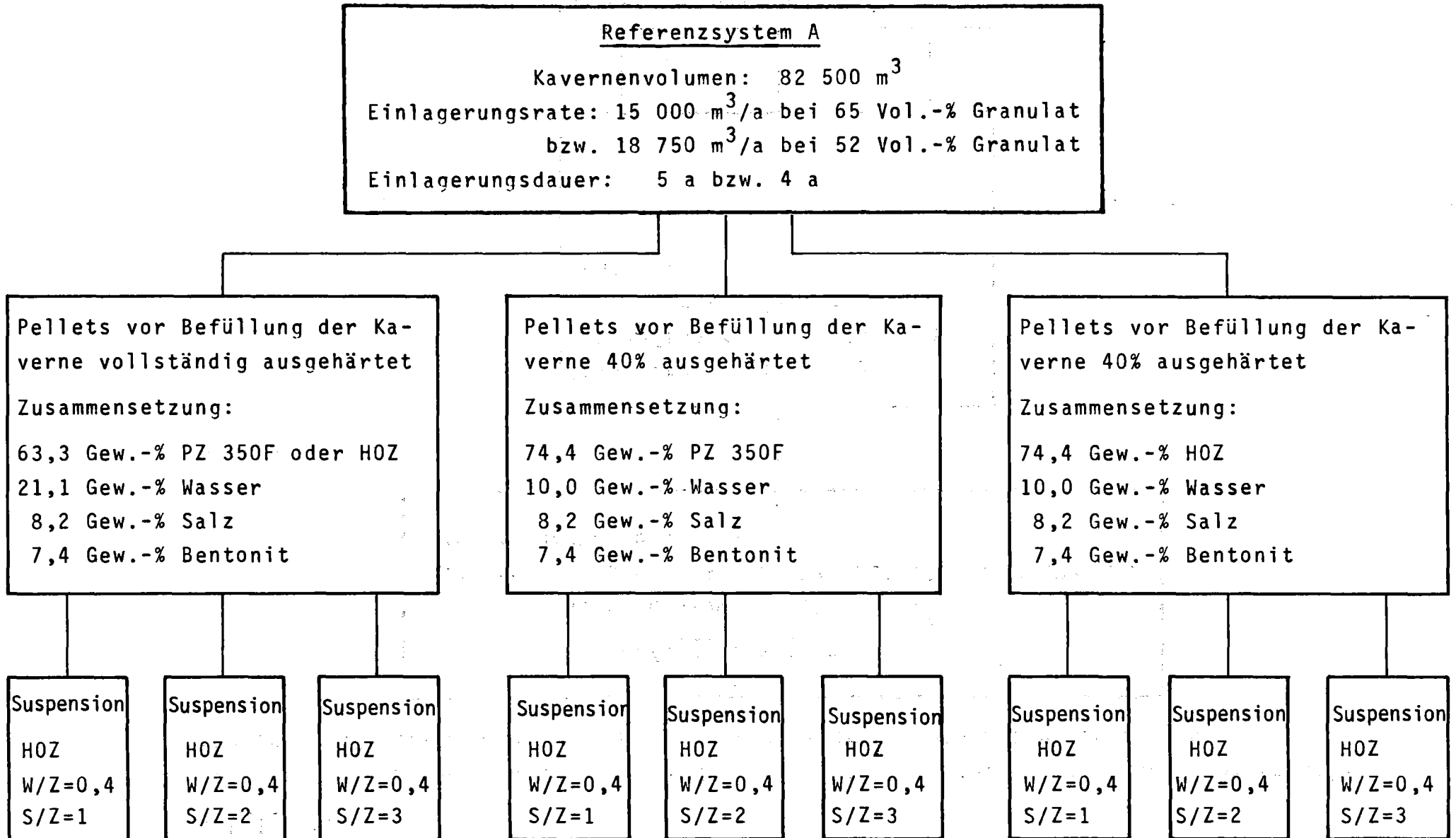
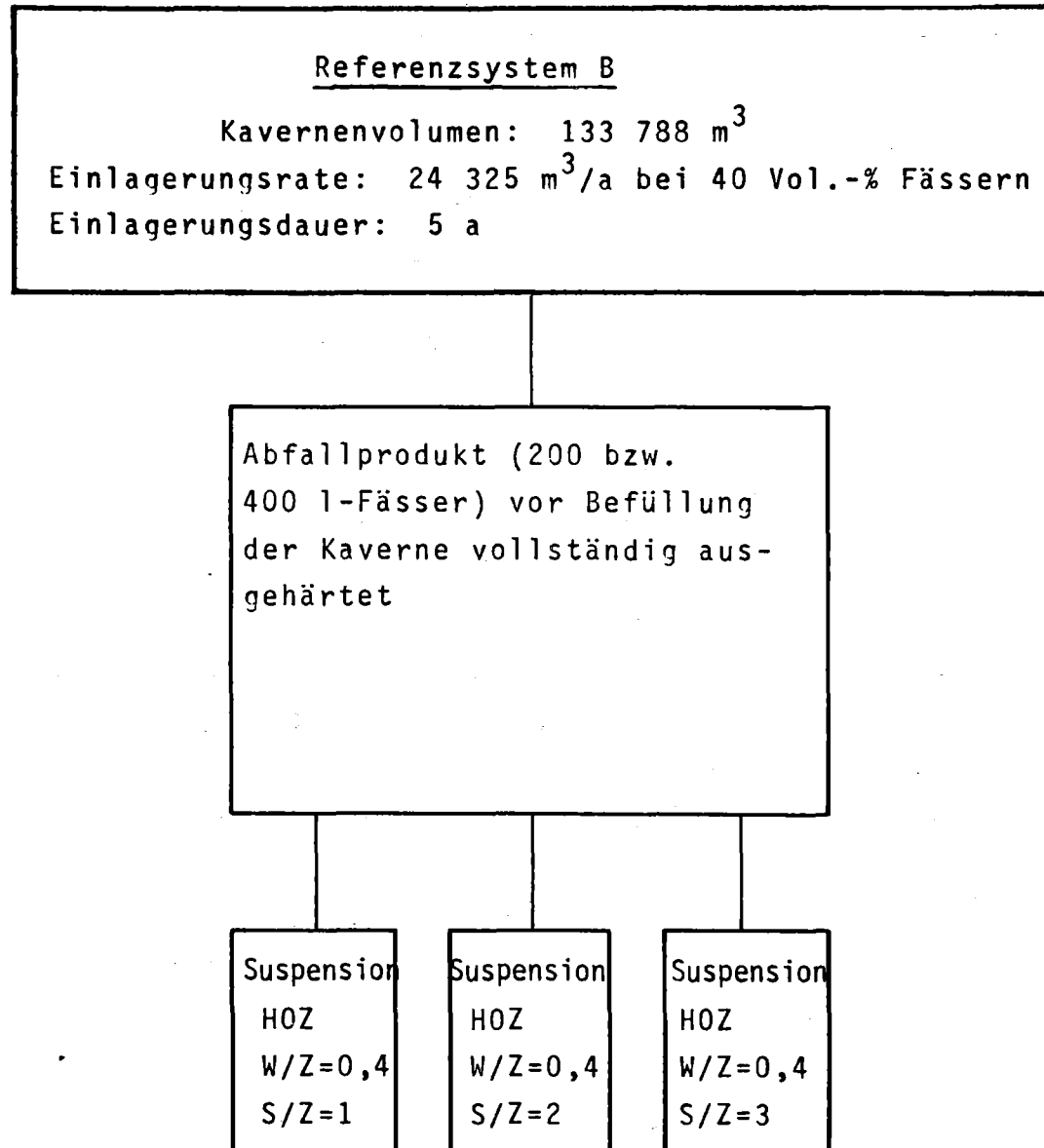


Tabelle 4:

Ablaufschema zur Berechnung der aus der Hydratations- bzw. Zerfallswärme der Abfallprodukte auftretenden Temperaturen für die Bewertung von Referenzsystem B.



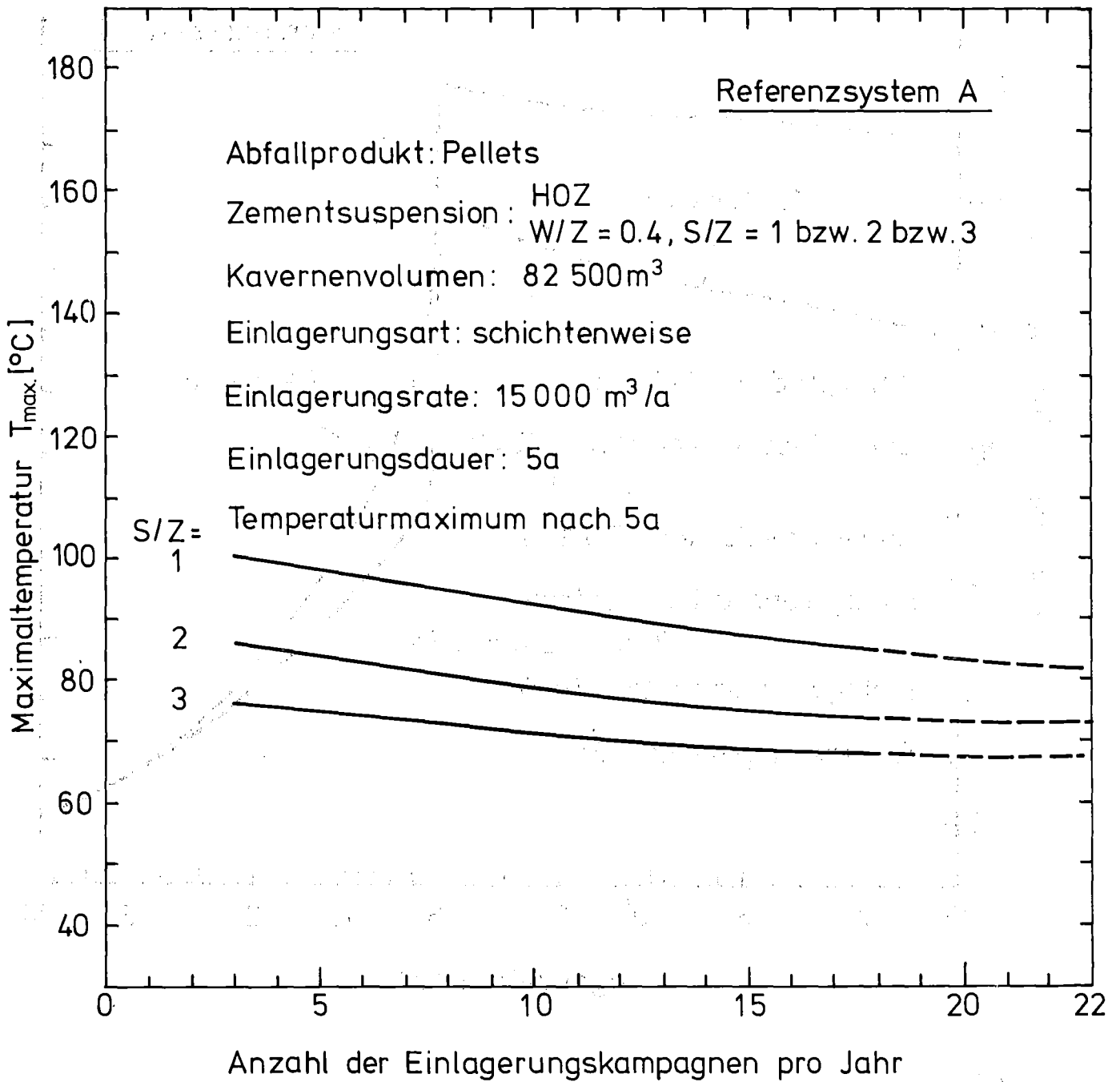


Abb. 1:

Abhängigkeit der Maximaltemperatur von der Anzahl der Einlagerungskampagnen pro Jahr bei der Lagerung von vollständig ausgehärtetem Abfallprodukt (Pellets) und Zementsuspension im Referenzsystem A (65 Vol.-% Pellets).

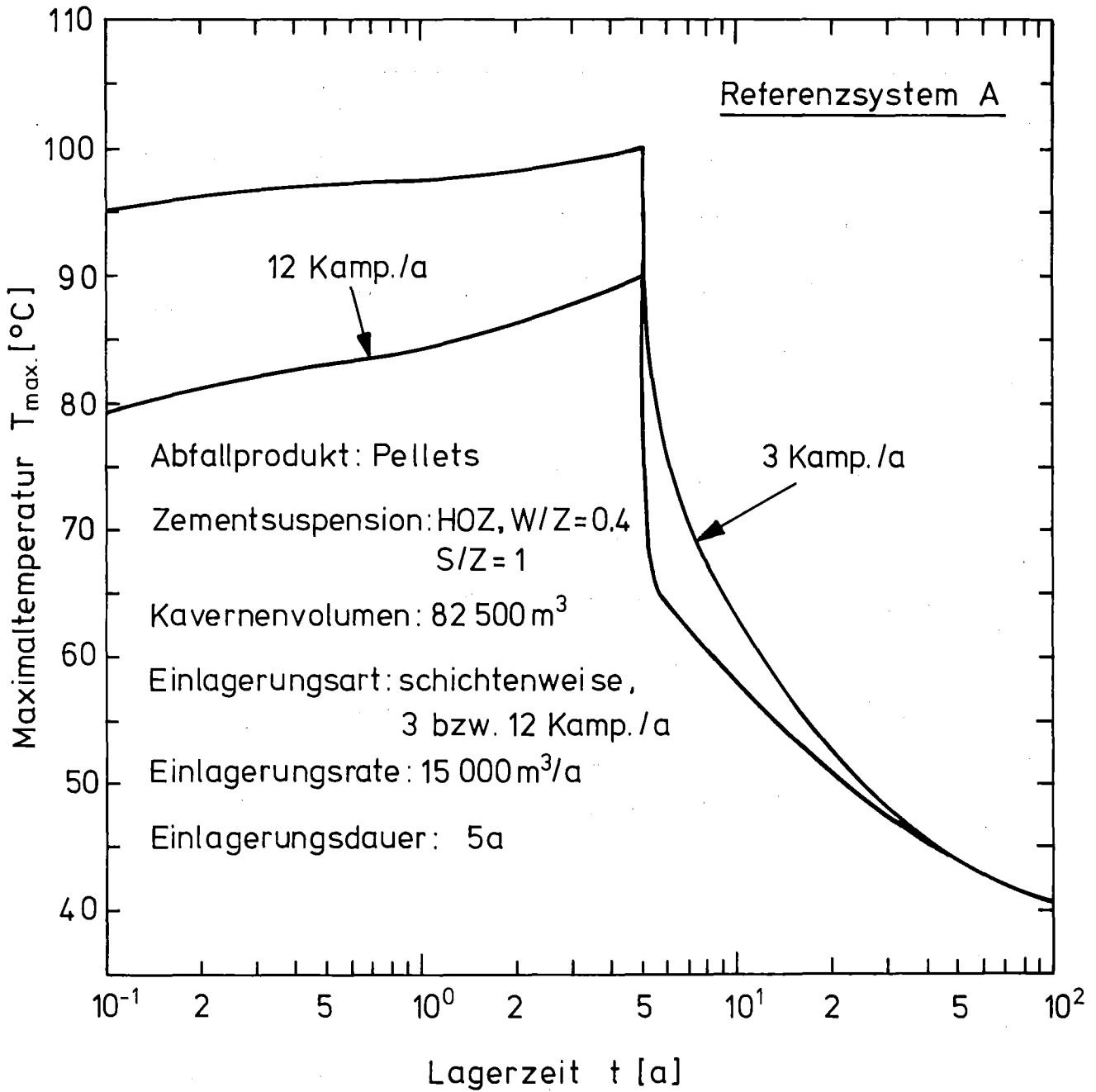


Abb. 2:

Zeitlicher Verlauf der Maximaltemperatur bei der Lagerung von vollständig ausgehärtetem Abfallprodukt (Pellets) und Zementsuspension im Referenzsystem A (65 Vol.-% Pellets).

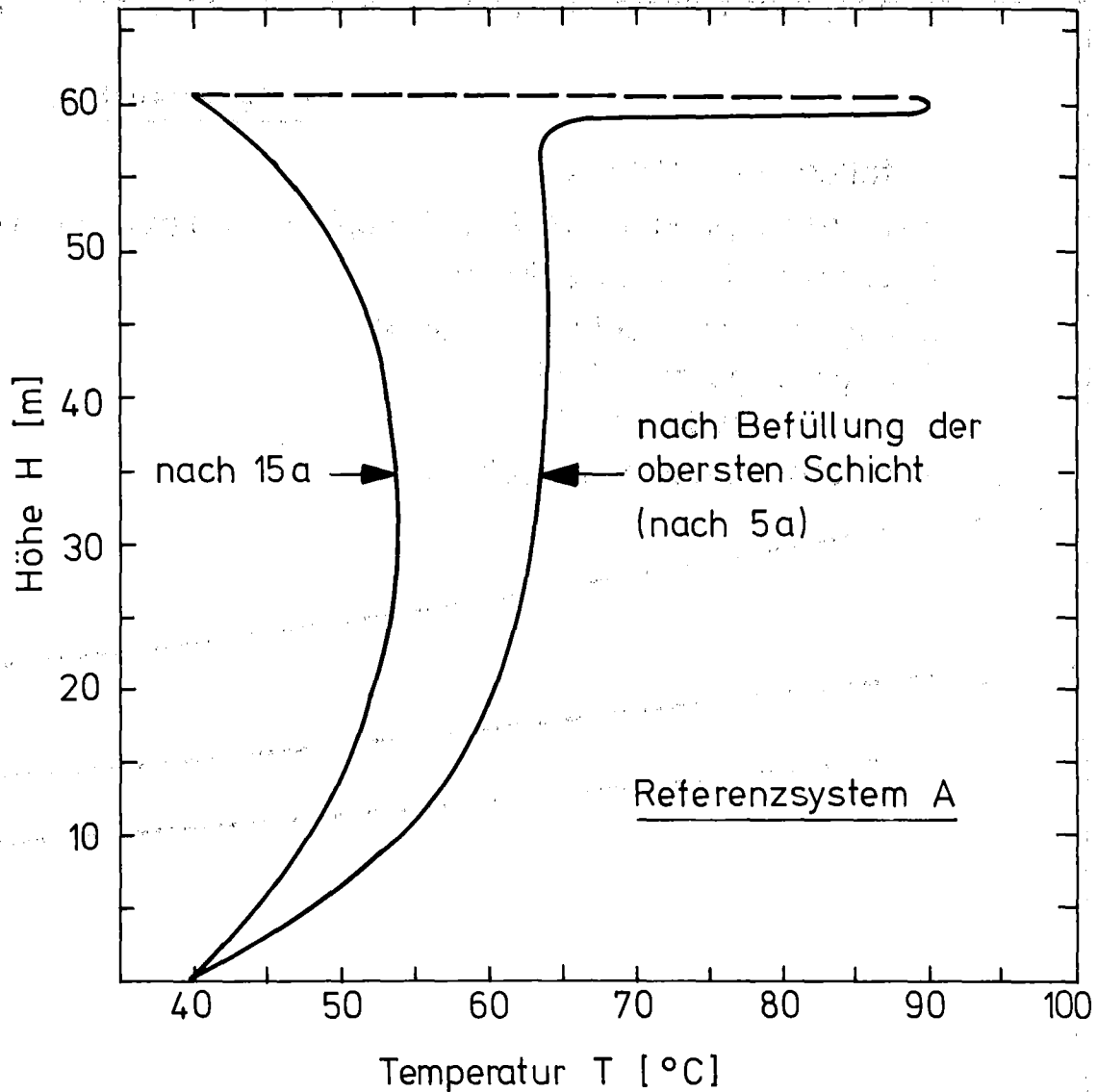


Abb. 3:

Temperaturverlauf entlang der Kavernenachse (Höhe) bei der Lagerung von vollständig ausgehärtetem Abfallprodukt (Pellets) und Zementsuspension im Referenzsystem A (65 Vol.-% Pellets).

Zementsuspension: HOZ, W/Z = 0,4, S/Z = 1

Kavernenvolumen : 82 500 m³

Einlagerungsart : Schichtenweise, 12 Schichten/a

Höhe einer Schicht: 1 m

Einlagerungsrate: 15 000 m³/a

Einlagerungsdauer: 5 a

Temperaturmaximum nach 5 a

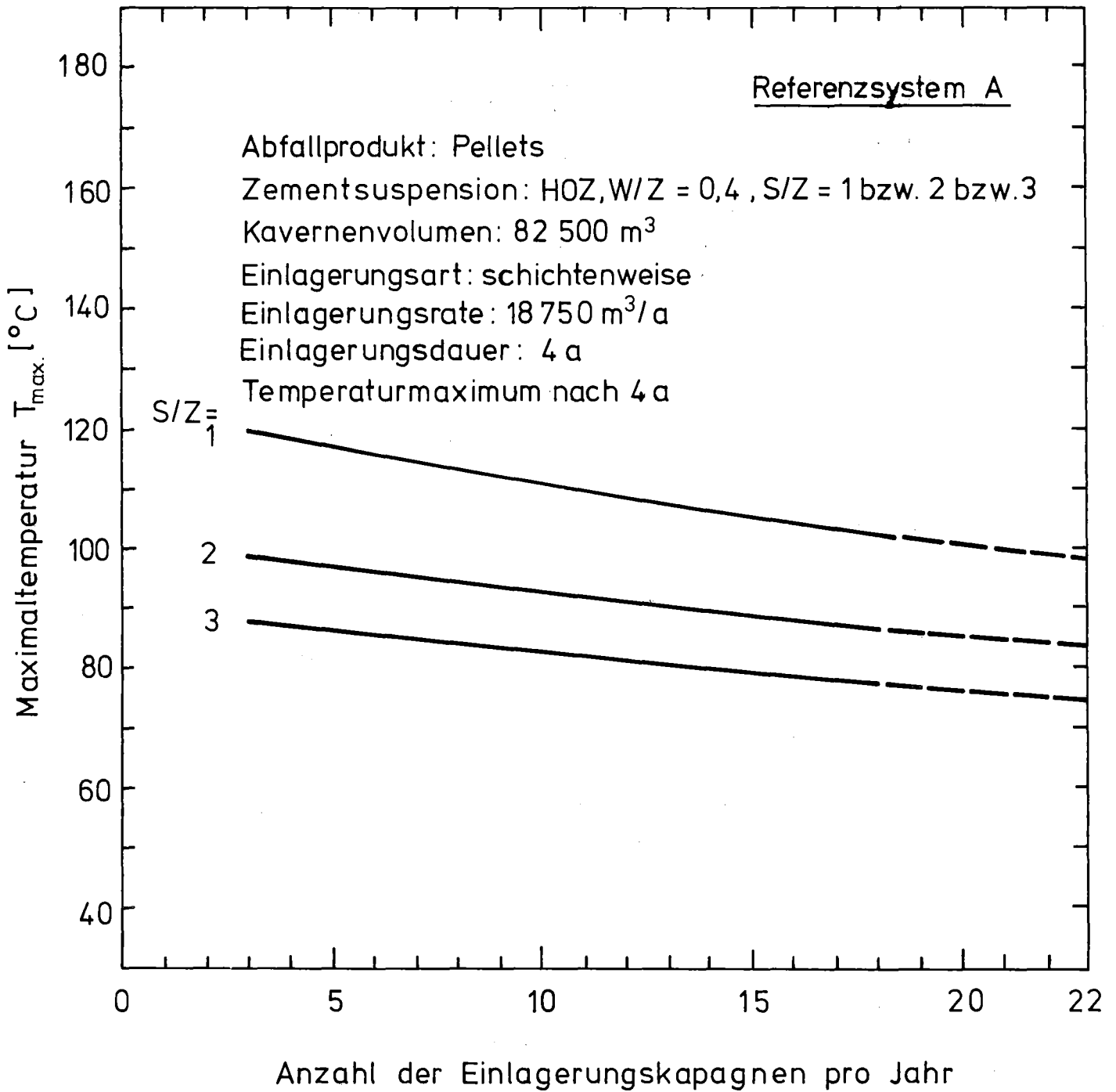


Abb. 4:

Abhängigkeit der Maximaltemperatur von der Anzahl der Einlagerungskampagnen pro Jahr bei der Lagerung von vollständig ausgehärtetem Abfallprodukt (Pellets) und Zementsuspension im Referenzsystem A (52 Vol.-% Pellets).

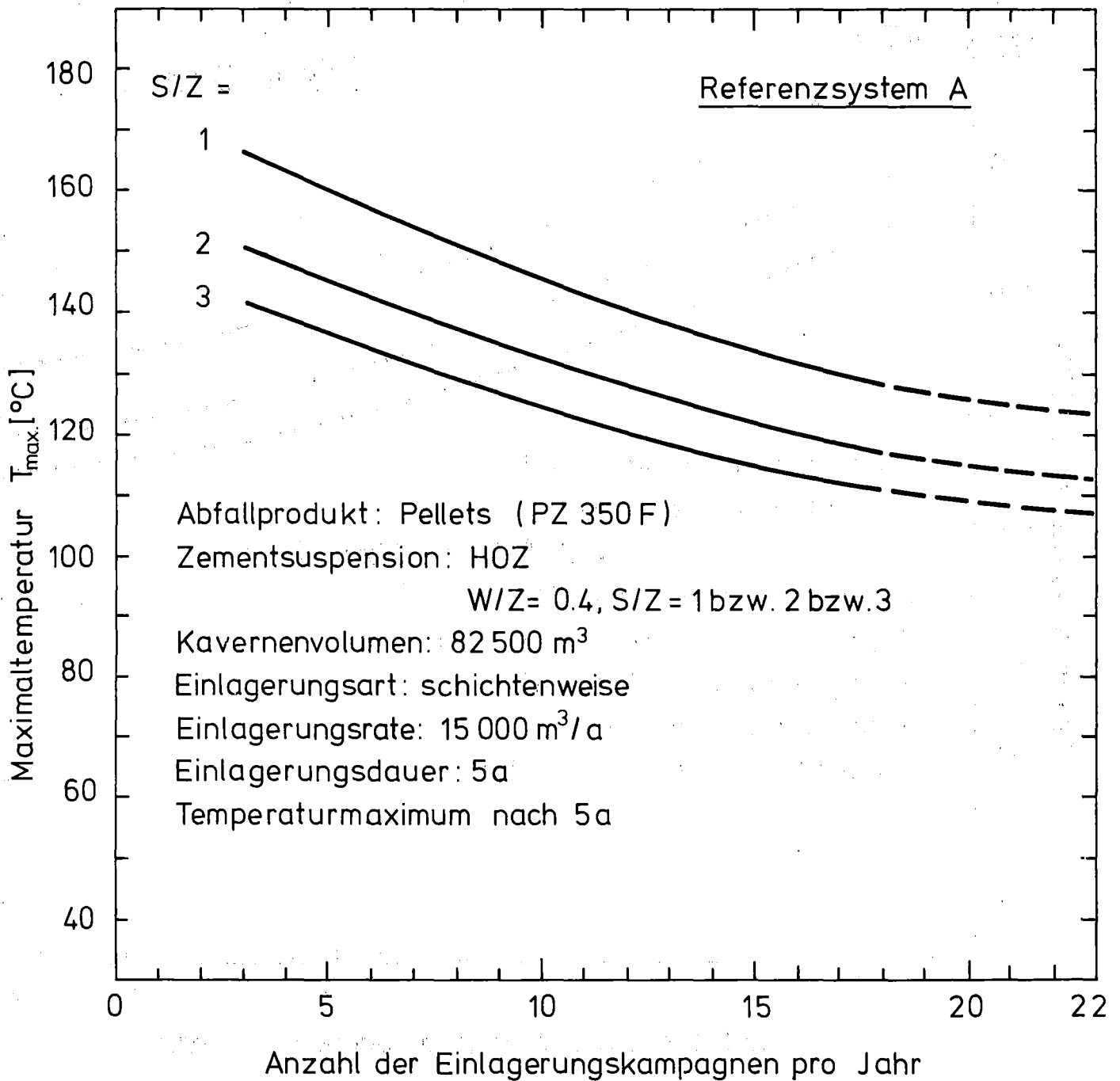


Abb. 5:

Abhängigkeit der Maximaltemperatur von der Anzahl der Einlagerungskampagnen pro Jahr bei der Lagerung von 40% ausgehärtetem Abfallprodukt (Pellets aus PZ 350F) und Zementsuspension im Referenzsystem A (65 Vol.-% Pellets).

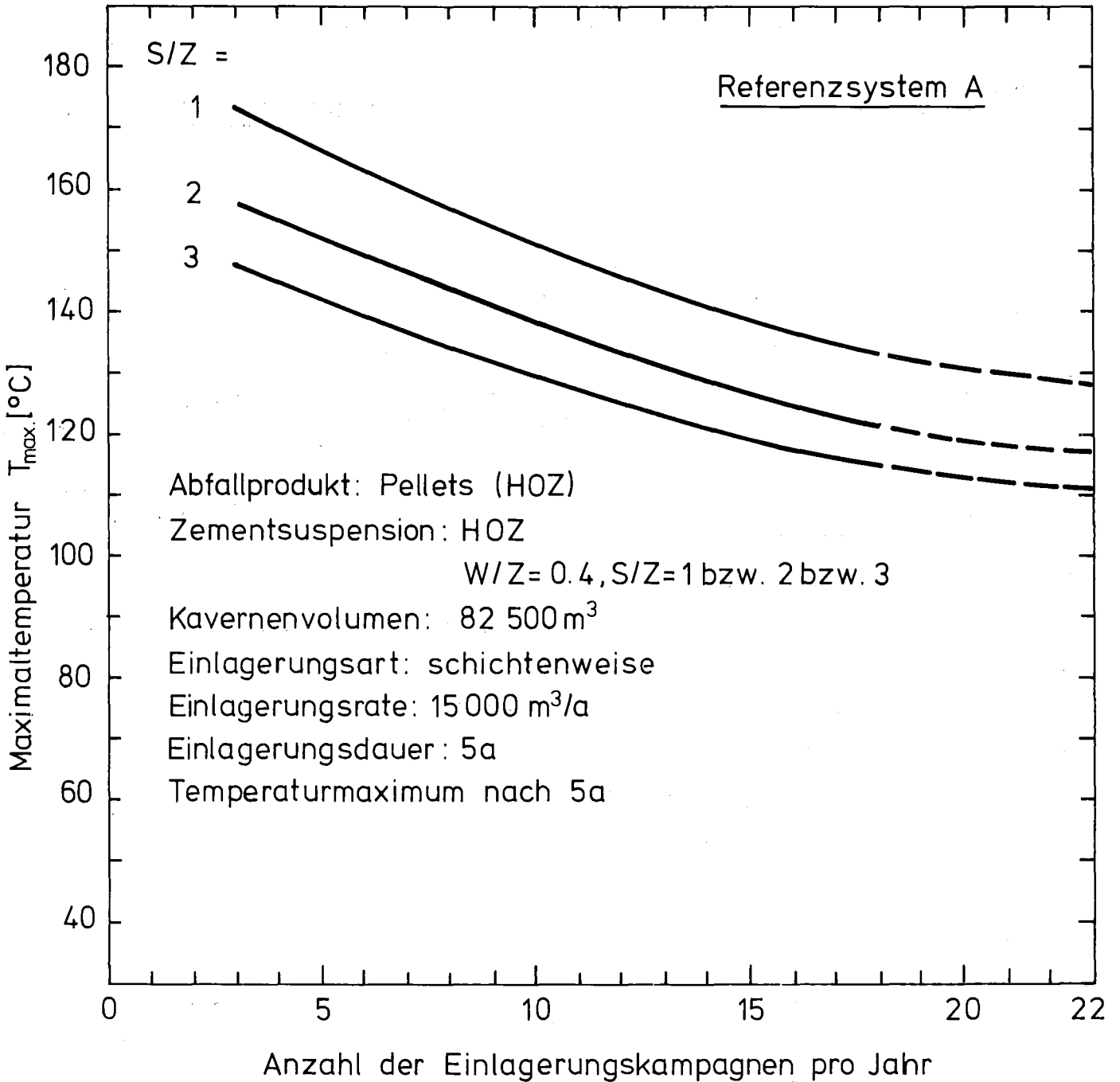


Abb. 6:

Abhängigkeit der Maximaltemperatur von der Anzahl der Einlagerungskampagnen pro Jahr bei der Lagerung von 40% ausgehärtetem Abfallprodukt (Pellets aus HOZ) und Zementsuspension im Referenzsystem A (65 Vol.-%Pellets).

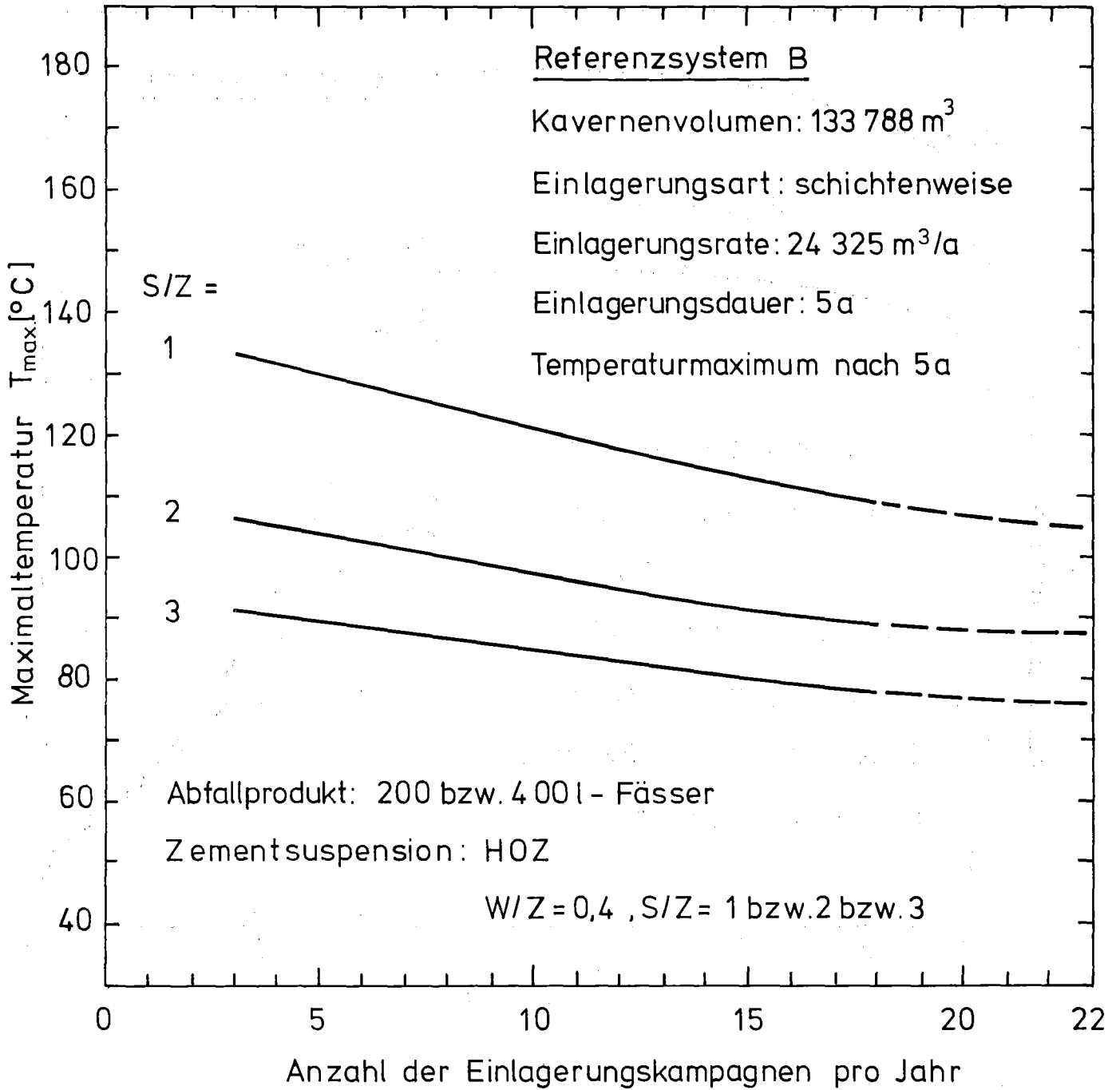


Abb. 7:

Abhängigkeit der Maximaltemperatur von der Anzahl der Einlagerungskampagnen pro Jahr beim Lagern von vollständig ausgehärtetem Abfallprodukt (200 bzw. 400 l-Fässer) und Zementsuspension im Referenzsystem B.

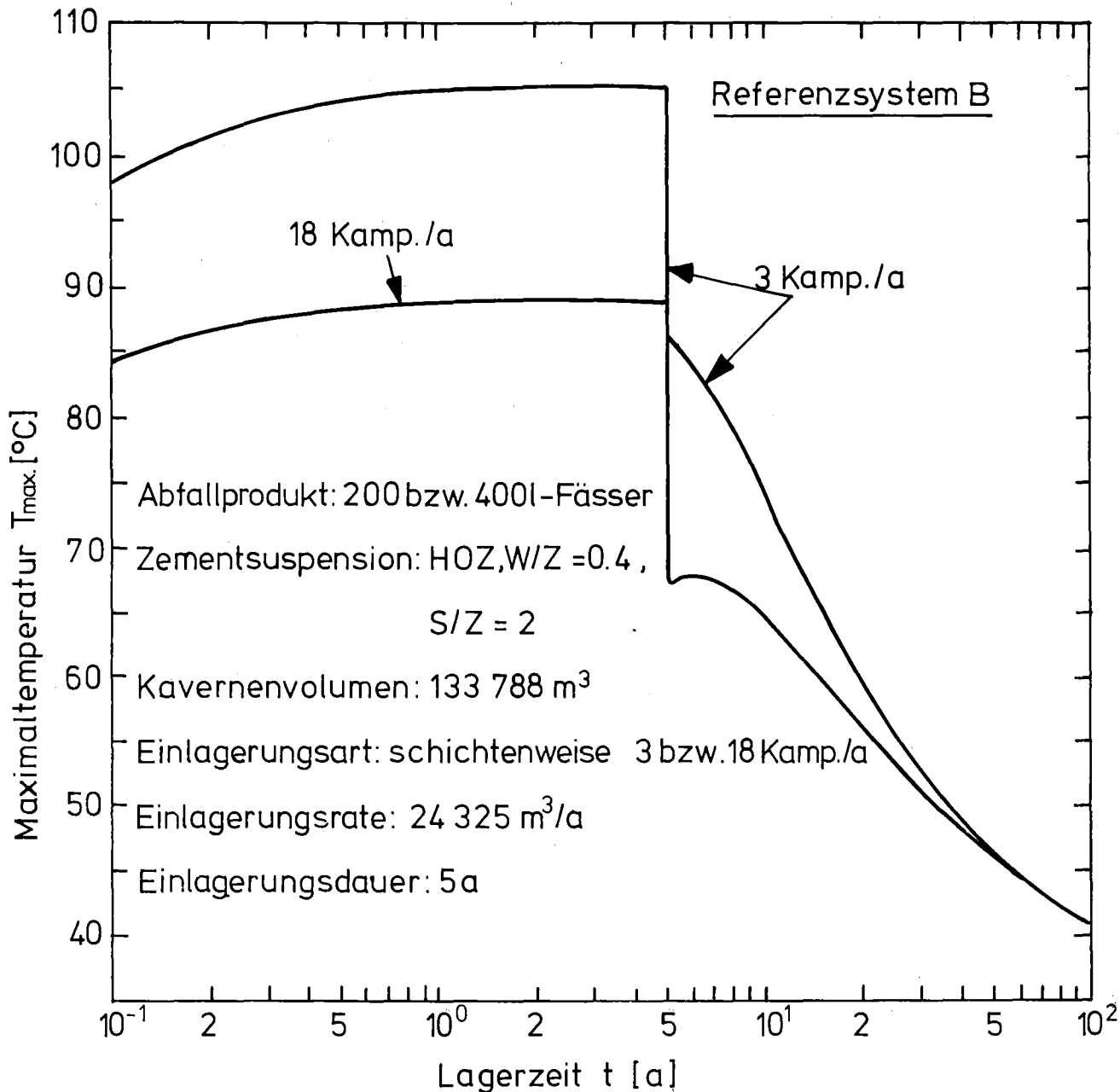


Abb. 8:

Zeitlicher Verlauf der Maximaltemperatur bei der Lagerung von vollständig ausgehärtetem Abfallprodukt (200 bzw. 400 l-Fässer) und Zementsuspension im Referenzsystem B.

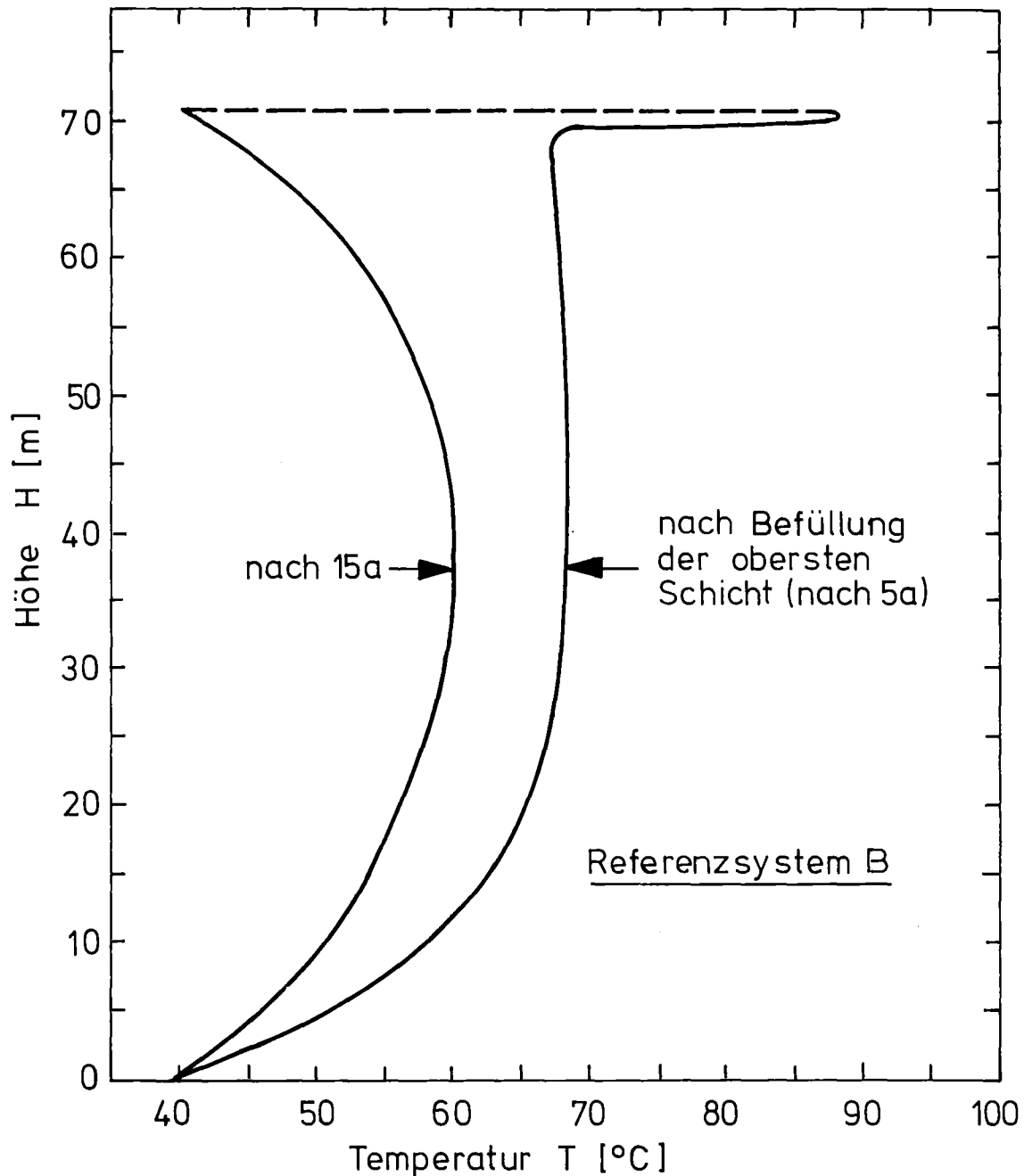


Abb. 9:

Temperaturverlauf entlang der Kavernenachse (Höhe) bei der Lagerung von vollständig ausgehärtetem Abfallprodukt (200 bzw. 400 l-Fässer) und Zementsuspension im Referenzsystem B.

Zementsuspension: HOZ, W/Z = 0,4, S/Z = 2
Kavernenvolumen : 133 788 m³
Einlagerungsart : Schichtenweise, 18 Schichten/a
Höhe einer Schicht: 0,79 m
Einlagerungsrate: 24 325 m³/a
Einlagerungsdauer : 5 a
Temperaturmaximum nach 5 a