



Gesellschaft für Anlagen-  
und Reaktorsicherheit  
(GRS) mbH

# Methodenentwicklung zum Hochabbrand einschließlich Burnup Credit

Vorhaben RS1169

Abschlussbericht



## **Abschlussbericht/ Final Report**

Reaktorsicherheitsforschung-  
Vorhabens Nr.:/  
Reactor Safety Research-Project No.:  
RS1169

Vorhabensitel / Project Title:  
Methodenentwicklung zum  
Hochabbrand einschließlich  
Burnup Credit

Development of methods for  
high burnup and burnup credit

Autor / Author:  
U. Hesse, K. Hummelsheim,  
R. Kilger, M. Kirsch,  
S. Langenbuch, F.E. Moser,  
A. Pautz, M. Wagner,  
W. Zwermann

Berichtszeitraum / Publication Date:  
August 2009

### Anmerkung:

Das diesem Bericht zugrunde liegende F&E-Vorhaben wurde im Auftrag des Bundesministeriums für Wirtschaft und Technologie (BMWi) unter dem Kennzeichen RS1169 durchgeführt.

Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt beim Auftragnehmer.



## **Kurzfassung**

Dieser Bericht beschreibt Untersuchungen zur Validierung des Reaktivitäts- und Nuklidinventarprogramms KENOREST für hohe Abbrände, die im Rahmen des BMWi-Vorhabens RS 1169 durchgeführt wurden. Dazu wurden Ergebnisse von KENOREST-Berechnungen mit Messdaten sowie Ergebnissen von Vergleichsrechnungen mit verschiedenen international eingesetzten Programmsystemen verglichen. Es wurden Abbrandrechnungen für Uran- und MOX-Brennelemente durchgeführt und der Einfluss von Betriebsparametern auf die Nuklidinventare bestimmt. Weiterentwicklungen des KENOREST-Programmsystems bestehen in der Integration des zweidimensionalen deterministischen Transportcodes DORT in die Abbrand-Berechnungskette, sowie in der Erweiterung der Neutronenfluenz- und Aktivierungsberechnungen durch Anknüpfung an DORT und den dreidimensionalen Transportcode TORT. Die Voraussetzungen für die Durchführung von Unsicherheits- und Sensitivitätsanalysen in Abbrandrechnungen mit dem GRS-Programmsystem SUSANA und nuklearen Kovarianzdaten wurden geschaffen.

## **Abstract**

This report describes investigations for the validation of the reactivity and nuclide inventory code KENOEST for high burn-up performed in the framework of the BMWi project RS 1169. To this end, results of KENOEST calculations were compared with experimental data and results of comparative calculations with internationally used code systems. Depletion calculations for UO<sub>2</sub> and MOX fuel assemblies were performed, and the influence of operational parameters on nuclide inventories was determined. New developments of the KENOEST code system were the integration of the two-dimensional deterministic transport code DORT into the depletion calculation chain, and the extension of neutron fluence and activation calculations by coupling to DORT and the three-dimensional transport code TORT. The foundations for performing uncertainty and sensitivity analyses in depletion calculations with the GRS code system SUSANA and nuclear covariance data were laid.

# Inhaltsverzeichnis

|          |   |           |
|----------|---|-----------|
| <b>1</b> | <b>Einleitung</b> .....   | <b>1</b>  |
| <b>2</b> | <b>Validierung des Reaktivitäts- und Nuklidinventarprogramms<br/>KENOREST</b> .....   | <b>3</b>  |
| 2.1      | Nachrechnung der Inventare von ARIANE-Proben.....   | 3         |
| 2.2      | Nuklidinventarberechnung für bestrahlte Brennstoff-Proben aus dem<br>Druckwasserreaktor Takahama-3 .....  | 9         |
| 2.2.1    | Die Probe SF97-1 aus Takahama-3.....  | 10        |
| 2.2.2    | Rechenmethode .....   | 16        |
| 2.2.3    | Ergebnisse .....  | 18        |
| 2.3      | Das ANS-Benchmark zur Doppler-Reaktivität.....  | 21        |
| 2.4      | Überprüfung der nuklearen Bibliotheken.....   | 23        |
| 2.4.1    | Wirkungsquerschnittsbibliotheken.....   | 23        |
| 2.4.2    | Zerfallsbibliotheken .....  | 24        |
| 2.5      | Einsatz des Monte-Carlo-Abbrandprogramms MONTEBURNS .....   | 27        |
| 2.6      | Erweiterung der KENOREST-Programmoptionen .....   | 30        |
| 2.6.1    | Brennelement-Bündelsimulation .....   | 30        |
| 2.6.2    | Simulation teilabgebrannter Umgebung um das Brennelement.....   | 30        |
| 2.6.3    | Ergebnisauswertung und Ergebnisdarstellung.....   | 30        |
| <b>3</b> | <b>Einfluss von Betriebsparametern auf die Nuklidinventare für<br/>Burnup Credit Anwendungen</b> .....  | <b>32</b> |
| 3.1      | Untersuchungen für ein UO <sub>2</sub> -Standard-DWR-Brennelement .....   | 32        |
| 3.2      | Untersuchungen für ein MOX-Standard-DWR-Brennelement in einer<br>Umgebung aus UO <sub>2</sub> -Standard-DWR-Brennelementen .....  | 37        |
| 3.3      | Vergleich der Abhängigkeiten von ausgewählten Abbrandnukliden bei<br>einem MOX-Brennelement und einem UO <sub>2</sub> -Brennelement von<br>Veränderungen der Betriebsparameter im Reaktor ..... | 42        |
| <b>4</b> | <b>Methoden zur Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse</b> .....   | <b>43</b> |
| 4.1      | Unsicherheitsanalysen für Reaktivitätsberechnungen mit TSUNAMI .....  | 43        |
| 4.2      | Unsicherheitsanalysen mit der GRS/SUSA-Methode .....  | 46        |

|           |   |           |
|-----------|---|-----------|
| 4.3       | Abbrandberechnungen mit TRITON .....  | 48        |
| <b>5</b>  | <b>Integration des deterministischen Transportcodes DORT in die<br/>Abbrandrechnung .....</b>   | <b>51</b> |
| 5.1       | Die Modellierung von LWR-Stabgittern mit DORT .....   | 52        |
| 5.2       | Vergleiche zwischen DORT- und KENO-Transportlösungen.....                                       | 54        |
| <b>6</b>  | <b>Erweiterung der Neutronenfluenz- und<br/>Aktivierungsberechnungen für 3D-Geometrie .....</b> | <b>60</b> |
| 6.1       | Programmerweiterungen TORTABLE.....   | 60        |
| 6.2       | Dokumentation TORTABLE .....  | 61        |
| 6.2.1     | Modul <tortgen> .....   | 61        |
| 6.2.2     | Kondensierstufe <threstar> für ANISN-W .....  | 64        |
| 6.2.3     | Modul <ANISN-W>.....  | 65        |
| 6.2.4     | Modul <flxdost> .....   | 65        |
| 6.2.5     | Modul <meshgent> .....  | 65        |
| 6.3       | Programmablauf TORTABLE.....  | 66        |
| 6.4       | Validierungsrechnungen TORTABLE .....   | 68        |
| 6.5       | Ergebnisse zur Dosisleistungsbestimmung.....  | 70        |
| 6.6       | Ergebnisse zur Kritikalitätsbestimmung .....  | 70        |
| <b>7</b>  | <b>Zusammenfassung und Bewertung .....</b>  | <b>72</b> |
| <b>8</b>  | <b>Literaturverzeichnis .....</b>   | <b>74</b> |
| <b>9</b>  | <b>Anhang: Konferenzbeiträge aus dem Berichtszeitraum .....</b>                                 | <b>79</b> |
| <b>10</b> | <b>Verteiler .....</b>  |           |

## Tabellenverzeichnis

|              |   |    |
|--------------|---|----|
| Tabelle 2-1: | Verhältnisse C/E der errechneten Nuklide für die Proben GU1 und BM5 (3×3 KENOREST 2006 Rechnung), geordnet hinsichtlich ihrer Bedeutung für die Kritikalitätssicherheit ..... | 8  |
| Tabelle 2-2: | Auslegungsdaten des Druckwasserreaktors Takahama-3 /SAN 02/ .....   | 11 |
| Tabelle 2-3: | Verlauf der Borkonzentration während der drei Bestrahlungszyklen des Probeneinsatzes /NAK 00/.....  | 13 |
| Tabelle 2-4: | Leistungsgeschichte der Probe SF97-1 während der Bestrahlung /NAK 00/ .....   | 14 |
| Tabelle 2-5: | Verhältnis C/E zwischen errechneten und experimentell bestimmten Nuklidmassen .....   | 19 |
| Tabelle 4-1: | Beiträge zur Unsicherheit des Multiplikationsfaktors (% k/k) für die KRITZ-2:13-Stabzelle aus den Kovarianzdaten der einzelnen Reaktionen einzelner Nuklide.....              | 46 |
| Tabelle 4-2: | Multiplikationsfaktor und relative Unsicherheit (% k/k) für die KRITZ-2:13-Stabzelle aus den Kovarianzdaten von $^{235}\text{U}$ und $^{238}\text{U}$ $\eta$ , .....          | 48 |
| Tabelle 5-1: | Vergleich von Eigenwerten und Peaking-Faktoren für unterschiedliche Lösungsmethoden und Kühlmittelzustände für den SWRMOX (ATRIUM-10) Benchmark /NEA 03/ .....                | 56 |
| Tabelle 6-1: | Eingabeflags und Eingabedaten für <tortgen> .....   | 62 |
| Tabelle 6-2: | Eingabeflags und Eingabedaten für <threstar> .....  | 64 |
| Tabelle 6-3: | Programmablauf TORTABLE (ohne OREST) .....  | 67 |

|              |  |    |
|--------------|--|----|
| Tabelle 6-4: | Ergebnisse der zonengemittelten Dosisleistungsberechnung aus ANISN, DORT und TORT für eine Zone außerhalb des RDB auf Höhe des aktiven Brennelementes..... | 70 |
| Tabelle 6-5: | Vergleich der Ergebnisse der Berechnung des Neutronenmultiplikationsfaktors $k$ für die Code-Systeme ANITABLE, DORTABLE und TORTABLE.....                  | 71 |

## Abbildungsverzeichnis

|  |    |
|--|----|
| Abb. 2-1: Relative Wichtigkeit von Nukliden in abgebranntem Kernbrennstoff für die Kritikalitätssicherheit /GAU 06/.....   | 4  |
| Abb. 2-2: Brennelement M308 mit Probe BM5 in 3×3 Brennelement-Umgebung während des dritten Bestrahlungszyklus.....   | 6  |
| Abb. 2-3: Verhältnis C/E zwischen mit und ohne 3×3 Brennelement-Umgebung errechneten und von SCK•CEN gemessenen Nuklidmassen mit Fehlerangabe für die Probe BM5. ....  | 7  |
| Abb. 2-4: Position des Brennstabs mit der Probe SF97-1 im BE. ....   | 12 |
| Abb. 2-5: Axiale Probenposition im Brennstab .....   | 12 |
| Abb. 2-6: Querschnitt in X-Y-Ebene durch das 3D Geometriemodell zur Inventarberechnung der Probe SF97-1 .....  | 17 |
| Abb. 2-7 Verhältnis C/E zwischen errechneten und experimentell bestimmten Nuklidmassen.....  | 18 |
| Abb. 2-8: Dopplerreaktivitäten für ein Uran-Brennstabgitter bei verschiedenen <sup>235</sup> U-Anreicherungen, berechnet mit KENOREST, DORTOREST, MCNP und HELIOS im Vergleich zur Gesamtheit der Benchmark-Lösungen. .... | 22 |
| Abb. 2-9: Dopplerreaktivitäten für ein MOX-Brennstabgitter mit Reaktorplutonium bei verschiedenen Pu-Gehalten, berechnet mit KENOREST, DORTOREST, MCNP und HELIOS im Vergleich zur Gesamtheit der Benchmark-Lösungen. .... | 22 |
| Abb. 2-10: Dopplerreaktivitäten für ein MOX-Brennstabgitter mit Waffenplutonium bei verschiedenen Pu-Gehalten, berechnet mit KENOREST, DORTOREST, MCNP und HELIOS im Vergleich zur Gesamtheit der Benchmark-Lösungen. .... | 23 |

|  |    |
|--|----|
| Abb. 2-11: Abweichung der mit verschiedenen Bibliotheken und nach der ANS-Vorschrift berechneten Nachzerfallswärme von $^{235}\text{U}$ gegenüber den Messwerten.....  | 25 |
| Abb. 2-12: Mit zwei verschiedenen Bibliotheken berechnete Nachzerfallsleistung als Funktion der Zerfallszeit. ....   | 26 |
| Abb. 2-13: Multiplikationsfaktor für das Standard-18x18-DWR-Uran-Brennelement als Funktion des Abbrands, berechnet mit MONTEBURNS, KENOREST und HELIOS.....  | 28 |
| Abb. 2-14: Pu-Inventare für das Standard-18x18-DWR-Uran-Brennelement als Funktion des Abbrands. $^{239}\text{Pu}$ (l.o.), $^{240}\text{Pu}$ (r.o.), $^{241}\text{Pu}$ (l.u.), $^{242}\text{Pu}$ (r.u.), berechnet mit MONTEBURNS, KENOREST und HELIOS..... | 28 |
| Abb. 2-15: Multiplikationsfaktor für das 18x18-DWR-Uran-Brennelement mit U/Gd-Stäben als Funktion des Abbrands, berechnet mit MONTEBURNS, KENOREST und HELIOS.....   | 29 |
| Abb. 2-16: Darstellung der Ringeinteilung der Brennstäbe in einer 2X2-Anordnung.....   | 31 |
| Abb. 3-1: Relative Anteile ausgewählter Abbrandnuklide an der gesamten Schwermetallmasse für ein $\text{UO}_2$ -Brennelement (Abbrand 40 $\text{GWd/tSM}$ ) für Abklingzeiten von einem Tag und von 40 Jahren. ....  | 34 |
| Abb. 3-2: Relative massenbezogene Abweichungen ausgewählter Abbrandnuklide für ein $\text{UO}_2$ -Brennelement (Abbrand 40 $\text{GWd/tSM}$ ) bei Variation der Betriebsparameter für eine Abklingzeit von einem Tag.35                                    |    |
| Abb. 3-3: Relative massenbezogene Abweichungen ausgewählter Abbrandnuklide für ein $\text{UO}_2$ -Brennelement (Abbrand 40 $\text{GWd/tSM}$ ) bei Variation der Betriebsparameter für eine Abklingzeit von 40 Jahren. ....                                 | 36 |

|           |   |    |
|-----------|---|----|
| Abb. 3-4: | MOX-Brennelement als Inselelement umgeben von UO <sub>2</sub> -<br>Brennelementen (DWR, 18x18-24).....  | 38 |
| Abb. 3-5: | Relative Anteile ausgewählter Abbrandnuklide an der gesamten<br>Schwermetallmasse für ein MOX-Brennelement (Abbrand 40<br>GWd/tSM) in einer Umgebung aus teilabgebrannten UO <sub>2</sub> -<br>Brennelementen für Abklingzeiten von einem Tag und von 40 Jahren.<br>Für die Betriebsparameter waren die Referenzwerte angesetzt. .... | 39 |
| Abb. 3-6: | Relative massenbezogene Abweichungen der Abbrandnuklide für ein<br>MOX-Brennelement (Abbrand 40 GWd/tSM) in einer Umgebung aus<br>UO <sub>2</sub> -Brennelementen bei Variation der Betriebsparameter für eine<br>Abklingzeit von einem Tag. ....   | 40 |
| Abb. 3-7: | Relative massenbezogene Abweichungen der Abbrandnuklide für ein<br>MOX-Brennelement (Abbrand 40 GWd/tSM) in einer Umgebung aus<br>UO <sub>2</sub> -Brennelementen bei Variation der Betriebsparameter für eine<br>Abklingzeit von 40 Jahren. ....   | 41 |
| Abb. 4-1: | Sensitivitäten des Multiplikationsfaktors auf die wichtigsten Nuklide<br>als Funktion der Neutronenenergie für die KRITZ-2:13-Stabzelle. ....   | 45 |
| Abb. 4-2: | Sensitivitäten des Multiplikationsfaktors auf die wichtigsten Nuklide<br>als Funktion der Neutronenenergie für die kritische Anordnung<br>KRITZ-2:13.....   | 45 |
| Abb. 4-3: | Multiplikationsfaktor für ein Standard-18x18-DWR-Uran-<br>Brennelement als Funktion des Abbrands, berechnet mit KENOREST<br>und TRITON.....   | 49 |
| Abb. 4-4: | Aktinideninventare für ein Standard-18x18-DWR-Uran-Brennelement<br>nach 50 GWd/t Schwermetall, berechnet mit KENOREST und<br>TRITON.....  | 49 |
| Abb. 4-5: | Spaltproduktinventare für ein Standard-18x18-DWR-Uran-<br>Brennelement nach 50 GWd/t Schwermetall, berechnet mit<br>KENOREST und TRITON. ....   | 50 |

|           |  |    |
|-----------|--|----|
| Abb. 5-1: | links: originale Stabzellgeometrie. Mitte: eine Approximation der Stabzelle durch eine 3-stufige Treppenfunktion. Rechts: Darstellung des Minimierungsprinzips zur Ermittlung der „Treppenstufen“-Koordinaten anhand einer 5-stufigen Treppenfunktion. ....  | 52 |
| Abb. 5-2: | Beispiel für die Diskretisierung einer Stabzell-Geometrie mit Hüllrohr-Repräsentation (links) und Multizonen-Darstellung, z. B. für die Gadolinium-Behandlung (rechts). In beiden Fällen wurde eine 3-stufige Treppenfunktion verwendet. ....  | 53 |
| Abb. 5-3: | links: Die Benchmark-Geometrie des DWR-30x30-Brennstabgitters zum Studium von Voideffekten in DWR. Rechts: Die Geometrie des SWRMOX (ATRIUM-10) Benchmarks. ....   | 54 |
| Abb. 5-4: | Abweichungen von KENOREST-Ergebnissen vom OECD30X-Benchmarkdurchschnitt /NEA 95/. Oben: Eigenwertabweichungen für die einzelne Stabzelle. Mitte: Eigenwertabweichungen für die Makrozelle. Unten: Abweichungen der Voidkoeffizienten für Stab- und Makrozelle im Vergleich zum Benchmarkdurchschnitt. .... | 55 |
| Abb. 5-5: | Die Brennelement-Geometrie, die für den Test der DORTOREST-Abbrandfunktionalität verwendet wurde. ....   | 57 |
| Abb. 5-6: | Eigenwert-Abweichungen zwischen KENOREST und DORTOREST für den Testfall UO <sub>2</sub> -Gd-Brennelement. Der Abbrandbereich entspricht etwa einem Abbrand von etwa 40 GWd/t. ....   | 58 |
| Abb. 5-7: | Effizienz der Vorwärts-Extrapolation über den Abbrand, wie sie in DORTOREST implementiert ist. ....  | 59 |
| Abb. 6-1: | Schnittbild des Modell-Cores für Kritikalitäts- und Abschirmrechnung. ....   | 69 |

# 1 Einleitung

Der Brennelementeinsatz in deutschen Leichtwasserreaktoren (LWR) wird durch eine fortlaufende Optimierung des Brennstoffeinsatzes zur Erhöhung des Abbrandes bestimmt. Eine erhöhte Ausnutzung der Brennelemente bedeutet auch eine Verringerung der Anzahl der abgebrannten Brennelemente für die weitere Lagerung und Entsorgung.

Das Ziel ist eine Erhöhung der Brennelementabbrände auf Werte bis etwa 70 GWd/tSM. Diese Abbranderhöhung ist verbunden mit einer Erhöhung der Anfangsanreicherung in Uran-Brennelementen bis auf 5,0 % <sup>235</sup>U Gehalt. Für die eingesetzten MOX-Brennelemente wird eine reaktivitätsäquivalente Auslegung angestrebt, was zu einem erhöhten  $Pu_{\text{fiss}}$ -Gehalt führt. Für die sicherheitstechnische Bewertung sind Reaktivitäts- und Nuklidinventarberechnungen erforderlich, um das Verhalten der Brennelemente im Reaktoreinsatz zu bewerten und die Nuklidinventare für die abgebrannten Brennelemente nach Entladung aus dem Reaktorkern zu bestimmen. Die Nuklidinventare bestimmen die Kritikalitätssicherheit bei der Lagerung und dem Transport der abgebrannten Brennelemente. Desweiteren bestimmen die Nuklidinventare die Wärmeerzeugung und Strahlung der abgebrannten Brennelemente und beeinflussen somit maßgeblich Kühlungs- und Abschirmaspekte.

Die GRS hat in den Vorhaben RS 1110 und RS 1150 das Reaktivitäts- und Nuklidinventarprogrammssystem KENOREST /HES 99, LAN 02/ entwickelt und in einer ersten Stufe für die Anwendungen validiert. Die in dem Programmsystem entwickelte Rechenmethodik ermöglicht eine in sich geschlossene konsistente Behandlung des Brennelementeinsatzes im Reaktorkern und den sich anschließenden Schritten der Lagerung im Brennelementlagerbecken und den nachfolgenden Transport- und Lagerungsphasen abgebrannter Brennelemente. In diesem gekoppelten Programmsystem wird zur Bestimmung der räumlichen Neutronenflussverteilung im Brennelement der Monte-Carlo-Code KENO-Va und für die Berechnung des Nuklidinventars der Code OREST eingesetzt. Dieser Code besteht aus dem Code Hammer für die 1D-Spektralrechnung und ORIGEN für die Abbrandrechnung. Die verwendete Datenbibliothek GRS-ORIGEN-X für die Spaltstoffe, Aktiniden, Strukturmaterialien und Spaltprodukte wurde von der GRS wesentlich erweitert. Dies betrifft die erweiterten Neutronenreaktionskanäle, die erhöhte Anzahl der spaltbaren Nuklide und die erweiterten Aktivierungsreaktionen auch für Spaltprodukte. Grundlage dieser Er-

weiterungen sind die Basisdatenbibliotheken JEF-2.2, ENDF/B-VI, JENDL-3.2 und EAF97.

Das in der GRS entwickelte Programmsystem KENOREST wurde für den erhöhten Abbrandbereich insbesondere für Werte über 50 GWd/tSM durch Vergleich mit experimentellen Daten zur Bestimmung des Nuklidinventars validiert. Bisher konnte durch Nachrechnung der Messungen im japanischen DWR Takahama-3 /SAN 02, KIL 05/ mit Abbrandwerten von etwa 48 MWd/kg der Vergleich mit experimentellen Daten erreicht werden. Eine systematische Bestimmung der Rechengenauigkeit für die relevanten Nuklidgruppen erfordert eine breitere Basis. Eine wesentliche Zielsetzung des Vorhabens 1169 des Bundesministeriums für Wirtschaft und Technologie war deshalb die Erweiterung der Validierung für höhere Abbrandwerte durch Nachrechnung von Experimenten und Vergleich mit Ergebnissen anderer Rechenprogramme. Dies wird in Kapitel 2 beschrieben.

Die Anwendung des Burnup Credits bei der Lagerung und dem Transport von abgebrannten Brennelementen, d. h. die explizite Berücksichtigung der Nuklidinventaränderungen mit dem Abbrand im Vergleich zum frischen Zustand, erfordert eine Bestimmung des Nuklidinventars unter Berücksichtigung der Genauigkeit des Rechenmodells und der Einflüsse von betrieblichen Parametern wie z. B. Kühlmitteldichte und -temperatur, Variation der Borkonzentration und der Steuerstabstellungen während des Einsatzes im Reaktorkern. Der Burnup Credit kann große wirtschaftliche und sicherheitstechnische Bedeutung bekommen, weil die Anzahl der Lagerbehälter und der damit verbundenen Transport- und Handhabungsvorgänge erheblich verringert werden können. Kapitel 3 beschreibt die Arbeiten zur systematischen Bestimmung der Bandbreite bzw. Streuung der Nuklidinventare.

International besteht der Trend, die Reaktivitäts- und Nuklidinventarberechnungen durch Unsicherheits- und Sensitivitätsanalysen zu ergänzen. In Kapitel 4 werden erste Unsicherheitsanalysen bezüglich nuklearer Kovarianzdaten mittels der probabilistischen GRS-Methode dargestellt.

Kapitel 5 beschreibt die Integration des deterministischen Neutronentransportcodes DORT/TORT in 2D- und 3D-Geometrie in der Abbrandberechnung, und Kapitel 6 die Erweiterung des Einsatzes für Neutronenflussberechnungen von 2D- auf 3D-Geometrie.

## **2 Validierung des Reaktivitäts- und Nuklidinventarprogramms KENOREST**

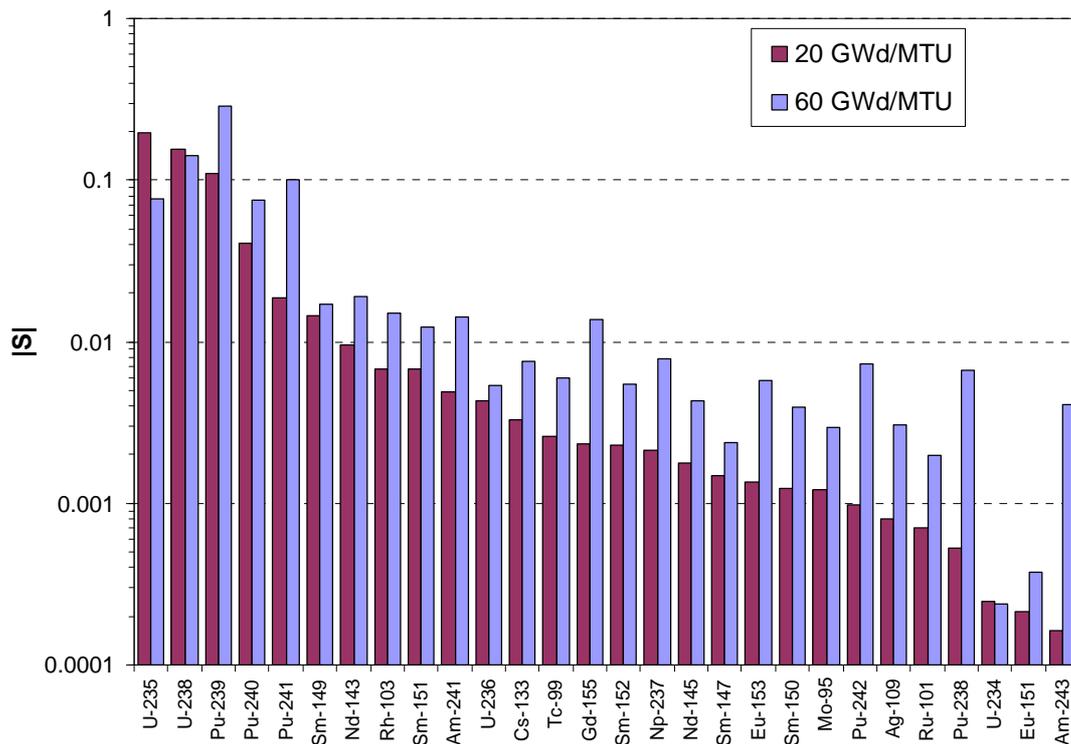
In diesem Kapitel werden umfangreiche Validierungsarbeiten für KENOREST dargestellt, die in der Nachrechnung von Experimenten und im Vergleich mit Ergebnissen internationaler Rechenprogramme bestehen.

### **2.1 Nachrechnung der Inventare von ARIANE-Proben**

Im Rahmen des nuklearen Brennstoffkreislaufs ist für viele Anwendungen wie z. B. der Kritikalitätssicherheitsanalyse oder der Bestimmung von Ortsdosisleistung und der Zerfallsleistung, die genaue Kenntnis des Nuklidinventars von abgebranntem Kernbrennstoff nötig. Dieses Inventar wird meist rechnerisch ermittelt. Zu diesem Zweck werden international unterschiedliche Rechenprogramme und Methoden zur Errechnung dieses Inventars entwickelt; in der GRS wird hierfür das Reaktivitäts- und Nuklidinventarberechnungssystem KENOREST verwendet.

Bevor ein derartiger Rechencode zum Einsatz kommen kann, muss seine Eignung durch Validierung anhand experimenteller Daten nachgewiesen werden. Während die Verfügbarkeit öffentlich zugänglicher Messdaten für abgebrannte MOX-Brennstoffe gering ist, liegt für abgebrannte Uranoxidbrennstoffe mit Anreicherungen bis 4,0 Gew.-%  $^{235}\text{U}$  und Abbränden bis 40 GWd/tSM eine ausreichende Datenbasis hinsichtlich der Aktiniden vor. Öffentlich zugängliche Messungen, welche für die Kritikalität relevante Spaltprodukte beinhalten, sind weniger verfügbar als im Falle der Aktiniden. Alleine die sechs Nuklide  $^{143}\text{Nd}$ ,  $^{149}\text{Sm}$ ,  $^{103}\text{Rh}$ ,  $^{151}\text{Sm}$ ,  $^{133}\text{Cs}$  und  $^{155}\text{Gd}$  bewirken aber in abgebranntem, aus dem Reaktor entladene Brennstoff etwa 75 % der reaktivitätsmindernden Wirkung aller Spaltprodukte zusammen; gerade für sie sind aber kaum verlässliche radiochemische Analysedaten aus bestrahltem Kernbrennstoff vorhanden.

Abbildung 2-1 zeigt die relative Wichtigkeit der einzelnen Aktiniden und Spaltprodukte für die Kritikalitätssicherheit von abgebranntem Kernbrennstoff (Uranoxid) bei Abbränden von 20 und von 60 GWd/tSM. Die Nuklide sind für einen Abbrand von 20 GWd/tSM in der Reihenfolge abnehmender Wichtigkeit angeordnet /GAU 06/.



**Abb. 2-1:** Relative Wichtigkeit von Nukliden in abgebranntem Kernbrennstoff für die Kritikalitätssicherheit /GAU 06/.

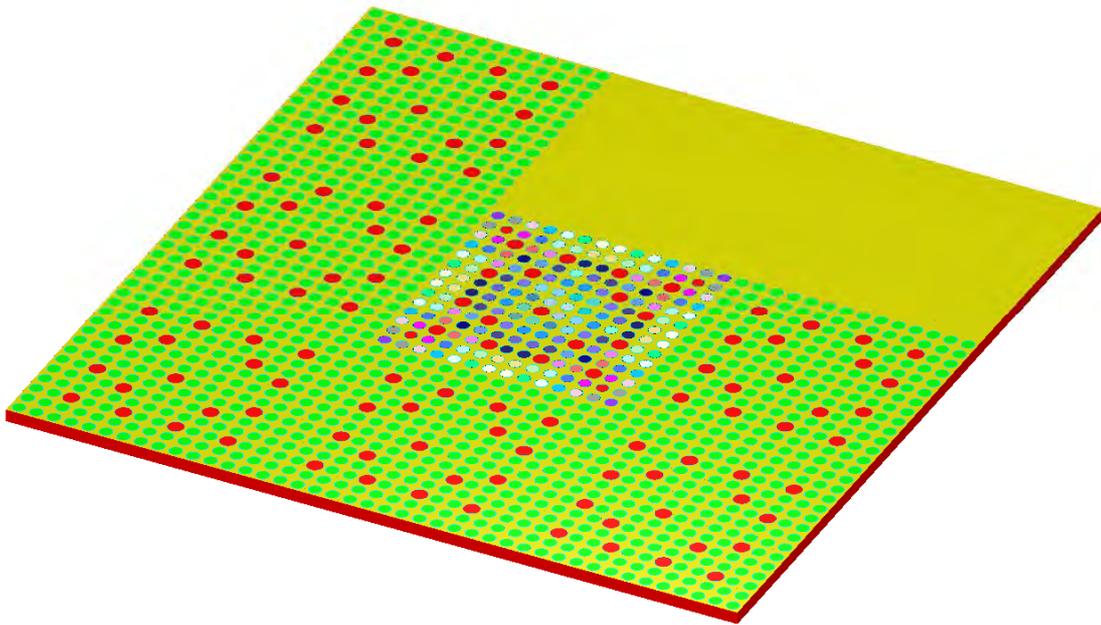
Aus dieser Liste ist zu sehen, dass neben den bekannten Uran- und Plutoniumisotopen,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  und  $^{241}\text{Pu}$ , bereits an sechster Stelle mit  $^{149}\text{Sm}$  ein wichtiges Spaltproduktisotop folgt, für das bisher kaum Messungen zur Verfügung standen. Hinzu kommt, dass der Trend bei modernen Reaktorfahrweisen seit längerem hin zu höheren Anfangsanreicherungen und Abbränden geht; hierfür fehlt eine ausreichende Datenbasis ebenso wie für MOX-Brennstoffe.

Deshalb wurde 1994 auf internationaler Ebene das ARIANE (Actinide Research In ANuclear Element) Programm ins Leben gerufen, an dem 15 Organisationen aus 7 Ländern teilnahmen. Als Beitrag zur Erweiterung der experimentellen Datenbasis wurden hier in internationaler Zusammenarbeit unter Koordination von Belgonucleaire (Brüssel, Belgien) insgesamt 15 Brennstoffproben (10 MOX und 5  $\text{UO}_2$ ) aus drei verschiedenen Reaktoren (1 SWR, 2 DWR) mit Abbränden bis ca. 60 GWd/tSM nach Bestrahlung radiochemisch und -physikalisch analysiert. Dabei wurden die Nuklidmassen von insgesamt über 50 Aktiniden und Spaltprodukten in drei verschiedenen, voneinander unabhängigen radiochemischen Instituten quantifiziert. Zur radiochemischen Analyse wählte man drei unabhängige, renommierte Institute aus, welche die Proben

untersuchen sollten. Diese waren SCK•CEN (Mol, Belgien), PSI (Würenlingen, Schweiz) und ITU (Karlsruhe, Deutschland). Wegen messtechnischer Probleme wurde die Liste der Brennstoffproben 1998 einvernehmlich erweitert.

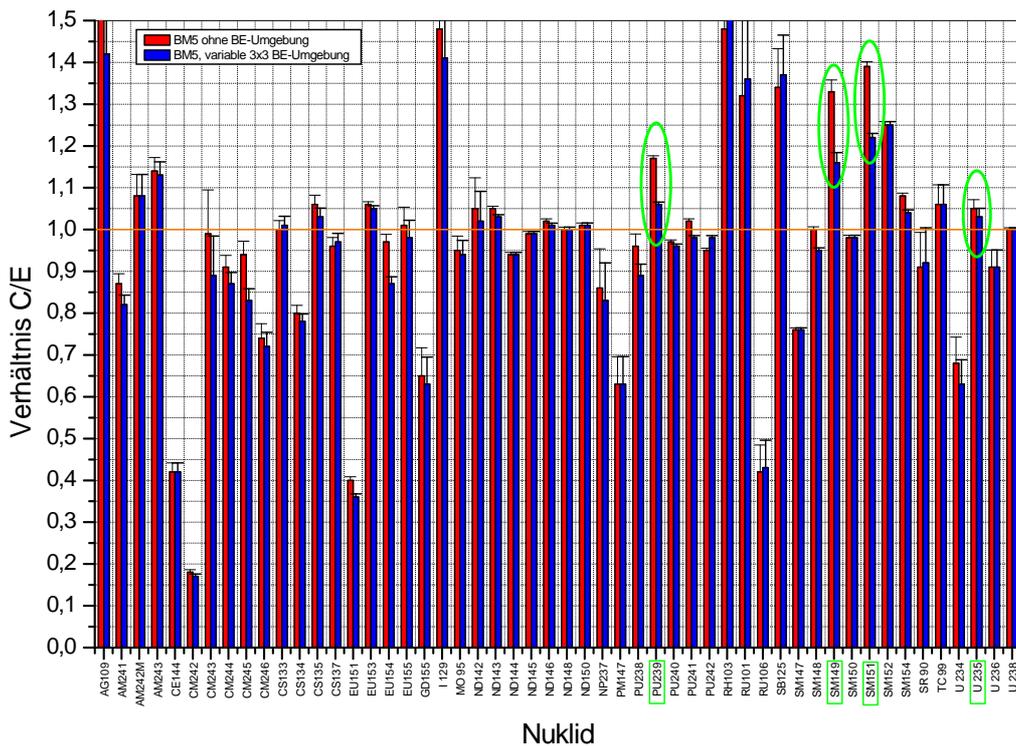
In der GRS wird das Reaktivitäts- und Nuklidinventarberechnungssystem KENOREST entwickelt und validiert. Für diese Validierung und Qualifizierung wurden nach der Nachrechnung von Proben aus Takahama-3 hier Ergebnisse des ARIANE Programms herangezogen. Zur Validierung wurden zwei Proben nachgerechnet. Ausgewählt wurden je eine Probe von abgebranntem UO<sub>2</sub>-Brennstoff (GU1) und MOX-Brennstoff (BM5') mit Abbränden bis 60 GWd/tSM. Die experimentellen Daten wurden zum Zeitpunkt der Entladung und zum Analysezeitpunkt erfasst und ausgewertet. Für beide Proben konnten mit KENOREST innerhalb der gegebenen experimentellen Unsicherheiten die Werte der Massen für die meisten der etwa 50 Nuklide und insbesondere für die wichtigen Nuklide innerhalb von  $\pm 10\%$  oder besser nachgerechnet werden. Größere Abweichungen konnten bis auf einzelne Ausnahmen durch bekannte Defizite im radiochemischen Analyseverfahren oder in den nuklearen Datenbasen erklärt werden.

Insgesamt wird durch die Rechnungen mit KENOREST der Großteil der betrachteten Nuklide im Rahmen der experimentellen Toleranz sowie unter Berücksichtigung der diskutierten Unklarheiten für die betrachtete MOX-Probe BM5/5' im 2D-Modus gut nachvollzogen. Um allerdings die Inkonsistenz vor allem des Wertes für <sup>239</sup>Pu zu ergründen, wurde zur Berücksichtigung der Brennelement-Umgebung des Probenmutterbrennelements M308 im Kern von Beznau eine weitere Rechnung mit der erweiterten Version 2006 durchgeführt, mit der Bündelrechnungen und die Positionierung des Brennelements am Core-Rand berücksichtigt werden können. Für die MOX-Brennstoffprobe BM5' wurde in den Berechnungen auch die wechselnde Umgebung des Brennelements während des betrieblichen Einsatzes für sechs Zyklen im Kern berücksichtigt. Die reale Beschaffenheit der benachbarten UO<sub>2</sub>-Brennelemente hinsichtlich Abbrand und Nuklidinventaren ist unbekannt. Deshalb wurden sämtliche Nachbarn von M308 (sofern kein Wasserelement) als 14×14-17 UO<sub>2</sub>-Brennelement mit 3,25 Gew.% Anfangsanreicherung und 24 GWd/tSM mittlerem Abbrand angenommen. Deren Inventar wurde mit einer separaten KENOREST-Rechnung bestimmt, in die eigentliche Abbrandrechnung überführt und während des Abbrands konstant gehalten („teilabgebrannte Umgebung“). Abbildung 2-2 zeigt exemplarisch das Geometriemodell von M308 während des dritten Bestrahlungszyklus.



**Abb. 2-2:** Brennelement M308 mit Probe BM5 in 3×3 Brennelement-Umgebung während des dritten Bestrahlungszyklus

Die gelbe Fläche rechts oben in Abb. 2-2 stellt die beiden Wasserelemente des Kernrandes dar, die neben M308 „positioniert“ sind. Für die Zyklen 1 bis 3 von M308, die als separate Rechnungen durchgeführt wurden, wurden jeweils die Inventare aller Brennstäbe von M308 am Zyklusende als Anfangsinventare in die Rechnung des jeweils folgenden Zyklus mit veränderter 3×3 Umgebung überführt. In den Zyklen 4 bis 6 wurde der 3×3-Aufbau des Gesamtmodells beibehalten. Da während dieser Zyklen M308 nicht randständig war, wurden diese drei Zyklen in einer einzigen Rechnung mit acht Nachbarn an teilabgebrannten  $\text{UO}_2$ -Brennelementen durchgeführt. Abb. 2-3 zeigt die dergestalt errechneten C/E Werte, basierend auf den Messungen von SCK•CEN (Tabelle 7.2 im Anhang) zu finden. Zum Vergleich sind die ohne 3×3- Umgebung errechneten Werte mit eingezeichnet.



**Abb. 2-3:** Verhältnis C/E zwischen mit und ohne 3×3 Brennelement-Umgebung errechneten und von SCK•CEN gemessenen Nuklidmassen mit Fehlerangabe für die Probe BM5.

Dies bewirkte eine deutliche Verbesserung für das wichtigste Spaltprodukt  $^{239}\text{Pu}$  im MOX-Brennstoff, sowie für die wichtigen Absorber  $^{149}\text{Sm}$  und  $^{151}\text{Sm}$ , während der größte Teil der Spaltprodukte unbeeinflusst blieb. Die Tendenz stark fallender C/E-Werte mit steigender Massenzahl für die Isotope des Cm ist ebenso wie die hohe Überschätzung z. B. des  $^{125}\text{Sb}$  von anderen Experiment-Nachrechnungen her auf internationaler Ebene bekannt und vermutlich auf Defizite in den nuklearen Datenbanken sowie Probleme bei den radiochemischen Analysen (schlechte Löslichkeit von Agglomeraten metallischer Spaltprodukte) zurückzuführen.

Für die Anwendungen zum Abbrandkredit („Burnup Credit“) ist von Bedeutung, dass die Ergebnisse für  $^{103}\text{Rh}$ ,  $^{109}\text{Ag}$  und  $^{151}\text{Eu}$  entweder rechentechnisch oder messtechnisch bei hohen Abbränden Schwierigkeiten bereiten und nicht zuverlässig bestimmt werden können. Im Vergleich zu Ergebnissen anderer Rechencodes zeigen sich in den KENOREST-Resultaten zudem für einzelne Nuklide relevante Unterschiede, welche in Zukunft Beachtung finden sollten. In Tabelle 2-1 sind die Verhält-

nisse C/E für die Proben GU1 und BM5 (3×3) geordnet hinsichtlich ihrer Bedeutung für die Kritikalitätssicherheit nach **Abb. 2-1** (20 GWd/tSM) /GAU 06/ zusammengefasst.

**Tabelle 2-1:** Verhältnisse C/E der errechneten Nuklide für die Proben GU1 und BM5 (3×3 KENOREST 2006 Rechnung), geordnet hinsichtlich ihrer Bedeutung für die Kritikalitätssicherheit

| <b>Nuklid</b>     | <b>GU1<br/>C/E</b> | <b>BM5<br/>C/E</b> |
|-------------------|--------------------|--------------------|
| <sup>235</sup> U  | 1,00               | 1,03               |
| <sup>238</sup> U  | 1,00               | 1,00               |
| <sup>239</sup> Pu | 0,98               | 1,06               |
| <sup>240</sup> Pu | 0,97               | 0,96               |
| <sup>241</sup> Pu | 0,97               | 0,98               |
| <sup>149</sup> Sm | 0,86               | 1,16               |
| <sup>143</sup> Nd | 1,05               | 1,03               |
| <sup>103</sup> Rh | 1,17               | 1,54               |
| <sup>151</sup> Sm | 1,10               | 1,22               |
| <sup>241</sup> Am | 1,05               | 0,82               |
| <sup>236</sup> U  | 0,94               | 0,91               |
| <sup>133</sup> Cs | 1,02               | 1,01               |
| <sup>99</sup> Tc  | 1,08               | 1,06               |
| <sup>155</sup> Gd | 1,19               | 0,63               |
| <sup>152</sup> Sm | 1,24               | 1,25               |
| <sup>237</sup> Np | ×                  | 0,83               |
| <sup>145</sup> Nd | 1,01               | 0,99               |
| <sup>147</sup> Sm | 0,94               | 0,76               |
| <sup>153</sup> Eu | 1,14               | 1,05               |
| <sup>150</sup> Sm | 1,00               | 0,98               |
| <sup>95</sup> Mo  | 1,02               | 0,94               |
| <sup>242</sup> Pu | 0,97               | 0,98               |
| <sup>109</sup> Ag | 2,24               | 1,42               |
| <sup>101</sup> Ru | 1,05               | 1,36               |
| <sup>238</sup> Pu | 1,01               | 0,89               |
| <sup>234</sup> U  | 1,14               | 0,63               |
| <sup>151</sup> Eu | 0,45               | 0,36               |
| <sup>243</sup> Am | 1,00               | 1,08               |

Man sieht, dass für beide Brennstoffproben (mit leichten Vorteilen im Falle der UO<sub>2</sub>-Probe) die für die Kritikalitätssicherheit relevanten Nuklide von KENOREST mit zumeist guter Genauigkeit berechnet werden können. In unseren Analysen wurden <sup>109</sup>Ag, <sup>103</sup>Rh und <sup>151</sup>Eu als Ausreißer erkannt, die entweder rechentechnisch oder messtechnisch bei Brennstoffen hohen Abbrands – unabhängig, ob UO<sub>2</sub> oder MOX – große Schwierigkeiten bei der Erfassung bereiten. Es ist also darauf zu drängen, diese Isotope aus Listen ähnlich Tabelle 2-1 vorläufig zu streichen, bis verbesserte Methoden (Rechen- wie Messmethoden) vorliegen.

Es bleibt anzumerken, dass die Angabe der Messdaten „at analysis“ trotz Rückrechnung auf EOL für alle Messproben im ARIANE Programm als sehr positiv empfunden wird. Zwar erleichtern rückgerechnete Werte den Vergleich von Rechen- ergebnissen durch den Bezug auf einen einheitlichen Zeitpunkt, enthalten dafür aber Unsicherheiten durch die Rückrechnung selbst, da so Unsicherheiten der Beiträge anderer Nuklide, beispielsweise der Anteil an <sup>241</sup>Am aus dem Zerfall von <sup>241</sup>Pu, in die Massenwerte einfließen. Messwerte „at analysis“ können allgemein als präziser angenommen werden, auch wenn dieses Vorgehen mit aufwendigeren Rechnungen durch unterschiedliche Nachzerfallszeiten für jedes Nuklid (oder zumindest Element, da typischerweise alle Isotope eines Elements am selben Tag vermessen wurden) verbunden ist.

Die erzielten Ergebnisse in der Auswertung und Nachrechnung für die beiden Brennstoffproben mit bis zu 60 GWd/tSM Abbrand bestätigen die Leistungsfähigkeit des Programms KENOREST und der Datenbibliotheken.

Die Ergebnisse der Nachrechnungen der ARIANE-Messungen sind ausführlich in einem Technischen Bericht /KIL 08/ dokumentiert.

## **2.2 Nuklidinventarberechnung für bestrahlte Brennstoff-Proben aus dem Druckwasserreaktor Takahama-3**

Die Kenntnis des Nuklidinventars von abgebranntem Kernbrennstoff ist von wesentlicher Bedeutung für numerische Methoden bei der Kritikalitätssicherheitsanalyse und der Bestimmung von Nachzerfallswärme und Dosisleistung. Um dieses Inventar rechnerisch zu ermitteln, ist der iterativ wiederholte Einsatz einer zweidimensionalen Flussberechnungsmethode und eines stabweise eingesetzten nulldimensionalen Abbrandcodes gegenwärtig Stand der Technik. Mit diesem Verfahren können radiale

Heterogenitäten innerhalb eines Leichtwasserreaktor-Brennelements (LWR-BE), wie z. B. unterschiedliche Anfangsanreicherungen der Brennstäbe, abbrennbare Absorber, Dampfblasengehalt, Steuerstab-/kreuz-Einsatz usw. angemessen berücksichtigt werden; auch die Einbeziehung der näheren Umgebung um das untersuchte BE herum, wie z. B. benachbarte BE oder Kernrandpositionen in der betrachteten Schnittebene, ist dergestalt möglich. Für dieses Verfahren sind insbesondere bei der Berechnung der zweidimensionalen (X-Y-Richtung) lokalen Neutronenflüsse axial homogene Verhältnisse entlang der Brennstäbe (BS) vonnöten. Diese Näherung ist für Proben, die weiter als eine mittlere freie Neutronenweglänge (im LWR max. 10 cm) vom Ende ihres BS entfernt entnommen wurden, hinreichend gut erfüllt; für die allermeisten Brennstoffproben, für die Nachbestrahlungsanalysen vorliegen (sog. PIE-Proben, *Post Irradiation Examination*), trifft dies zu.

Wenn dagegen eine PIE-Probe in einem geringeren Abstand vom Ende der aktiven Zone entnommen wurde, so wird der lokale Neutronenfluss durch Leckage- und Reflexionseffekte in Richtung der inaktiven Zone (Z-Richtung) derart verzerrt, dass die obige Näherung ungültig wird /SAN 02/, und dreidimensionale Verfahren zur korrekten Neutronenflussberechnung erforderlich werden. Diese Situation liegt z. B. bei der PIE-Probe SF97-1 aus dem japanischen Druckwasserreaktor Takahama-3 vor, die im Abstand von nur 4 mm vom oberen Ende der aktiven Zone entnommen wurde /NAK 00/. Darüber hinaus entstammt diese Probe einem BS, der am Rand des BE positioniert war, so dass die benachbarte BE-Umgebung ebenfalls nicht vernachlässigbar ist und akkurat implementiert werden muss. Dieses Kapitel beschreibt die Nachrechnung des experimentell ermittelten Nuklidinventars von SF97-1 mit KENOREST 2006 unter Zuhilfenahme sämtlicher derzeit implementierter Funktionen in drei Raumdimensionen.

### **2.2.1 Die Probe SF97-1 aus Takahama-3**

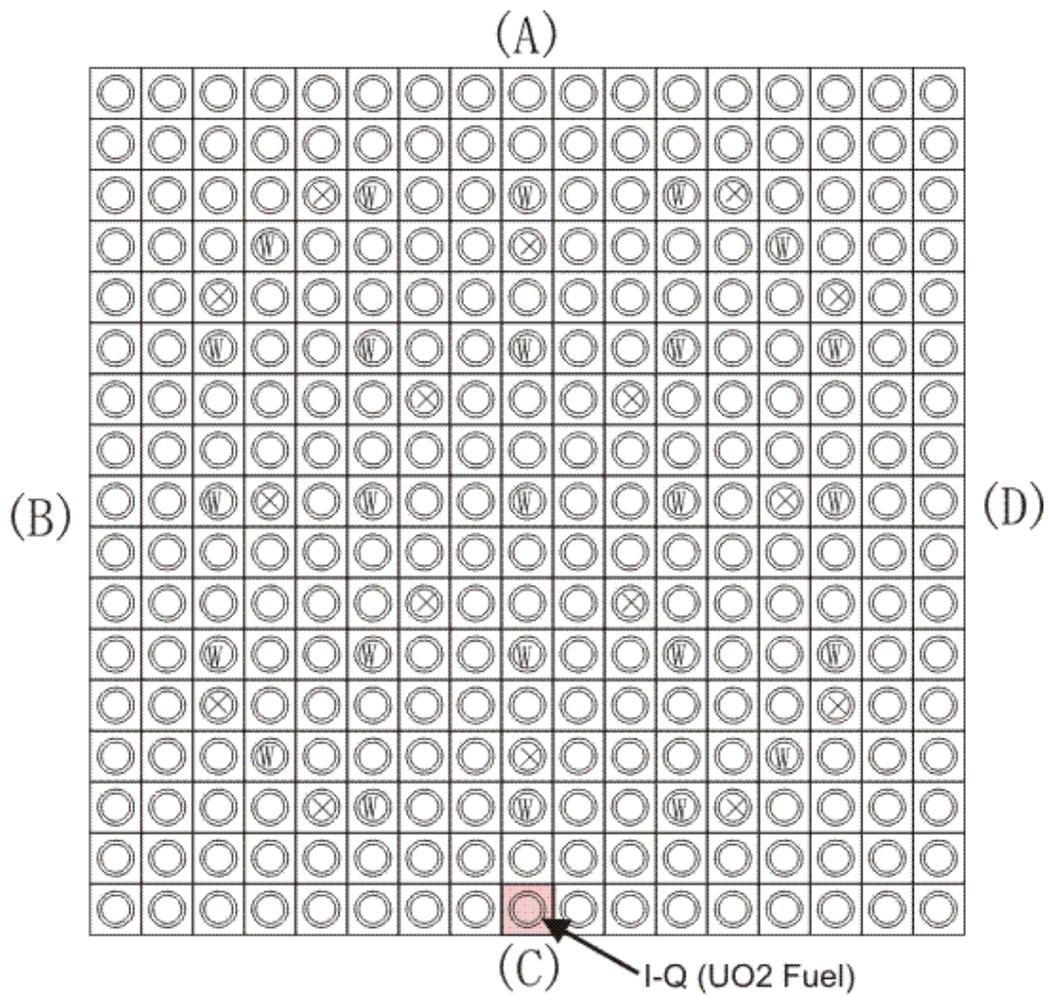
Bevor auf die eigentliche Probe eingegangen wird, werden in der Tabelle 2-2 die wesentlichen Auslegungsdaten des Druckwasserreaktors Takahama-3 zusammengefasst. Abb. 2-4 und Abb. 2-5 zeigen die Position des Brennstabs, welcher die Probe SF97-1 enthält, sowie die axiale Position der Probe am oberen Brennstab-Ende (rot markiert) /SAN 02/, /NEA 07/.

**Tabelle 2-2:** Auslegungsdaten des Druckwasserreaktors Takahama-3 /SAN 02/.

| Parameter                                      | Wert  |
|--|---|
| <u>Reaktorkern</u>                             |   |
| Mittlere thermische Leistung [MWth]            | 2652  |
| Kerndurchmesser [m]                            | 3,04  |
| Aktive Kernhöhe [m]                            | 3,66  |
| Anzahl Brennelemente                           | 157   |
| Mittlerer Borgehalt im Kühlwasser [ppm]        | 630   |
| Kühlmitteltemperatur beim Eintritt [°C]        | 284   |
| Kühlmitteltemperatur beim Austritt [°C]        | 321   |
| <u>Brennelemente</u>                           |   |
| Gitter   | 17 x 17   |
| Anzahl Brennstäbe                              | 264, davon 14 mit Gadoliniumoxid                |
| Anzahl Führungsrohre                           | 25  |
| Brennstoffmasse pro Brennelement [kg U]        | ~ 460   |
| Brennelementmittenabstand [cm]                 | 21,4  |
| Brennelementhöhe [m]                           | 4,06  |
| Wasserdruck [bar]                              | 155,134   |
| <u>Brennstäbe</u>                              |   |
| Brennstoff                                     | UO <sub>2</sub> bzw. Gd-UO <sub>2</sub>         |
| Anreicherung <sup>235</sup> U [Gew.-%]         | 4,11 (u.a. SF97-1) bzw. 2,63 bei Gd-haltigen BS |
| Brennstoffdichte [g/cm <sup>3</sup> ]          | 10,412 (95 % d. theor. Dichte)                  |
| Brennstofftemperatur im Betrieb [K]            | 900   |
| Stabmittenabstand                              | 1,259   |
| Pelletdurchmesser [cm]                         | 0,805   |
| Hüllrohrinnendurchmesser [cm]                  | 0,822   |
| Hüllrohraußendurchmesser [cm]                  | 0,950   |
| Aktive Brennstofflänge [cm]                    | ~ 364,8   |
| Brennstablänge [cm]                            | ~ 403,6   |
| Hüllrohrmaterial                               | Zircaloy-4                                      |
| Hüllrohrtemperatur im Betrieb <sup>1</sup> [K] | 570   |
| <u>Führungsrohre<sup>2</sup></u>               |   |
| Innenradius [cm]                               | 0,5715  |
| Außenradius [cm]                               | 0,6121  |
| Material                                       | Zircaloy-4                                      |

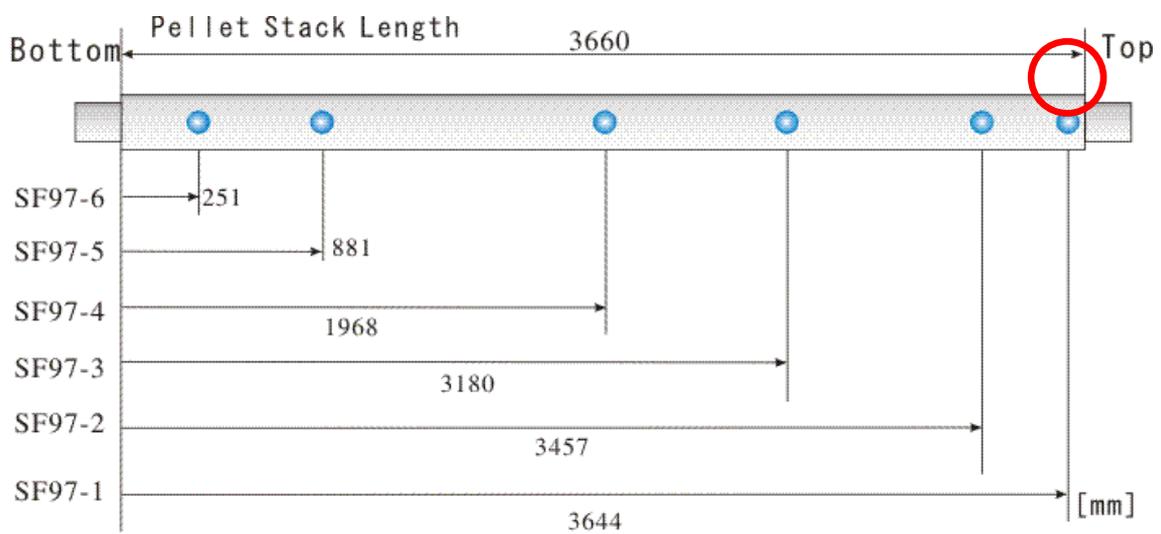
<sup>1</sup> Wert geschätzt /SAN 02/.

<sup>2</sup> Daten nicht verfügbar, deshalb Werte für ein Westinghouse 17 x 17 Brennelement angenommen /SAN 02/ und auch hier verwendet; /ROQ 04/ gibt in Anlehnung daran 0,573 cm bzw. 0,613 cm an.



W : Position of Control Rod (fill with coolant)  
 X : Gd Fuel Rod

**Abb. 2-4:** Position des Brennstabs mit der Probe SF97-1 im BE.



**Abb. 2-5:** Axiale Probenposition im Brennstab

Die Probe SF97-1 befindet sich ca. 16 cm unterhalb des oberen Brennstab-Endes, und nur 4 mm unterhalb des oberen Endes der aktiven BS-Zone.

Zwischen zwei Brennelementen befindet sich bei jedem Reaktor ein kleiner, mit Kühlmittel gefüllter Spalt (Wasserspalt). Im Falle Takahama-3 ist die Größe dieses Spaltes jedoch nicht angegeben /NAK 00/, /SAN 02/. Da sich der Stab mit der Probe SF97-1 aber direkt am Rand des Brennelements befindet, spielt die in diesem Fall durch den Wasserspalt erhöhte Moderation bei der Berechnung des Neutronenflusses eine nicht vernachlässigbare Rolle. Deshalb wird in dieser Arbeit in Anlehnung an das „OECD/NEA WPRS Depletion Calculation Benchmark devoted to Fuel Cycle Issues Phase I“ /ROQ 04/, welches die aus demselben Brennstab stammende Probe SF97-4 behandelt, ein Wasserspalt angenommen. Als realistische Dicke dieses Spaltes wurde 0,155 cm gewählt. Aufgrund der im Leistungsbetrieb häufig auftretenden Verformungen der BS kann in der Praxis durch Verbiegung der Stäbe sowohl eine lokale Vergrößerung als auch Verkleinerung des Wasserspalt aufgetreten sein. Die damit auftretende Änderung in der lokalen Moderation ist nur sehr schwer sinnvoll einzuschätzen und zu berücksichtigen, und wurde hier deshalb vernachlässigt.

**Tabelle 2-3:** Verlauf der Borkonzentration während der drei Bestrahlungszyklen des Probeneinsatzes /NAK 00/.

| Tag                   | Borkonzentration [ppm] |
|-----------------------|------------------------|
| 0 (Beginn Zyklus 5)   | 1154                   |
| 106                   | 894                    |
| 205                   | 651                    |
| 306                   | 404                    |
| 385                   | 210                    |
| 473 (Beginn Zyklus 6) | 1132                   |
| 592                   | 864                    |
| 704                   | 613                    |
| 817                   | 358                    |
| 875                   | 228                    |
| 937 (Beginn Zyklus 7) | 1154                   |
| 996                   | 1001                   |
| 1048                  | 967                    |
| 1100                  | 732                    |
| 1152                  | 598                    |
| 1204                  | 463                    |
| 1256                  | 329                    |
| 1308                  | 195                    |
| 1342                  | 104                    |

**Tabelle 2-4:** Leistungsgeschichte der Probe SF97-1 während der Bestrahlung /NAK 00/

| <b>Tag</b> | <b>Leistung</b> | <b>% P<sub>max</sub></b> |
|------------|-----------------|--------------------------|
| 0          | 0,00            | 0,00                     |
| 12         | 3,54            | 21,17                    |
| 20         | 14,23           | 85,13                    |
| 47         | 14,36           | 85,88                    |
| 82         | 14,56           | 87,08                    |
| 110        | 14,72           | 88,04                    |
| 131        | 14,81           | 88,56                    |
| 166        | 14,93           | 89,29                    |
| 201        | 15,01           | 89,79                    |
| 229        | 15,11           | 90,39                    |
| 256        | 15,42           | 92,25                    |
| 305        | 15,65           | 93,63                    |
| 320        | 15,65           | 93,58                    |
| 357        | 15,64           | 93,53                    |
| 376        | 15,61           | 93,38                    |
| 385        | 15,59           | 93,23                    |
| 473        | 0,00            | 0,00                     |
| 483        | 8,39            | 50,16                    |
| <b>494</b> | <b>16,72</b>    | <b>100,00</b>            |
| 514        | 16,60           | 99,27                    |
| 537        | 16,48           | 98,57                    |
| 565        | 16,29           | 97,42                    |
| 593        | 16,11           | 96,36                    |
| 621        | 16,02           | 95,84                    |
| 656        | 15,94           | 95,31                    |
| 684        | 15,93           | 95,26                    |
| 718        | 15,90           | 95,08                    |
| 761        | 15,76           | 94,26                    |
| 789        | 15,57           | 93,15                    |
| 817        | 15,53           | 92,88                    |
| 852        | 15,54           | 92,93                    |
| 867        | 15,46           | 92,48                    |
| 875        | 15,44           | 92,33                    |
| 937        | 0,00            | 0,00                     |
| 949        | 6,97            | 41,69                    |
| 957        | 13,95           | 83,45                    |
| 1006       | 14,03           | 83,90                    |
| 1034       | 14,13           | 84,52                    |
| 1063       | 14,21           | 85,00                    |
| 1097       | 14,20           | 84,95                    |
| 1125       | 14,20           | 84,93                    |
| 1153       | 14,26           | 85,30                    |
| 1188       | 14,24           | 85,18                    |
| 1215       | 14,20           | 84,95                    |
| 1244       | 14,22           | 85,05                    |
| 1279       | 14,18           | 84,83                    |
| 1307       | 14,21           | 84,98                    |
| 1326       | 14,24           | 85,18                    |
| 1343       | 14,22           | 85,05                    |

Tabelle 2-3 listet den Verlauf der Borkonzentration im Kühlmittel während der Bestrahlungsdauer auf. Hier ist der Verlauf wie in /NAK 00/ angegeben aufgeführt; für die Rechnung wurde für kleinere Zeitschritte entsprechend interpoliert.

Die lokale Kühlmitteltemperatur ist mit 593,05 K angegeben /NAK 00/.

Durch die randständige Position am oberen Brennstab-Ende ist die maximal auftretende lokale Leistung mit 16,72 MW/kgSM vergleichsweise gering; in der Tabelle ist das Zeitintervall, in dem diese Leistung vorkam, fett dargestellt.

Der messtechnisch mittels  $^{148}\text{Nd}$ -Methode bestimmte lokale Abbrand der Brennstoffprobe SF97-1 ist mit 17,69 /NAK 00/ bzw. 17,70 GWd/tSM /NEA 07/ angegeben.

Tabelle 2-4 listet die Bestrahlungsgeschichte der Probe im Reaktor auf.

Nach der Bestrahlung wurden die Aktinide  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{242\text{m}}\text{Am}$ ,  $^{243}\text{Am}$ ,  $^{242}\text{Cm}$ ,  $^{243}\text{Cm}$ ,  $^{244}\text{Cm}$ ,  $^{245}\text{Cm}$ ,  $^{246}\text{Cm}$ ,  $^{247}\text{Cm}$ , sowie die Spaltprodukte  $^{143}\text{Nd}$ ,  $^{144}\text{Nd}$ ,  $^{145}\text{Nd}$ ,  $^{146}\text{Nd}$ ,  $^{148}\text{Nd}$ ,  $^{150}\text{Nd}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ ,  $^{144}\text{Ce}$ ,  $^{125}\text{Sb}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{147}\text{Sm}$ ,  $^{148}\text{Sm}$ ,  $^{149}\text{Sm}$ ,  $^{150}\text{Sm}$ ,  $^{151}\text{Sm}$ ,  $^{152}\text{Sm}$  und  $^{154}\text{Sm}$  radiochemisch mit unterschiedlichen Methoden und Messgenauigkeiten je nach Nuklid bestimmt.

Die Auswahl dieser Nuklide wurde von den Experimentatoren hinsichtlich ihrer Bedeutung für die Kritikalitätssicherheit, die Nachzerfallswärmeentwicklung sowie für Strahlungsquellterme getroffen. Sämtliche Nuklide wurden in ihrer Konzentration vom Zeitpunkt der Probennahme auf den Zeitpunkt der Entladung aus dem Reaktor rückgerechnet, weshalb sich die Konzentrationen auf eine Abklingdauer von 0 Jahren beziehen. Die einzige Ausnahme stellen die Samarium-Isotope dar, deren Konzentration sich auf eine Abklingdauer von 3,96 Jahren bezieht.

Da es messtechnisch sehr schwierig ist, das Isotop  $^{239}\text{Pu}$  von dem Isotop  $^{239}\text{Np}$  abzutrennen, sind die experimentell bestimmten Werte für  $^{239}\text{Pu}$  als Summe  $^{239}\text{Pu} + ^{239}\text{Np}$  zu verstehen, was beim Vergleich von numerisch bestimmten Konzentrationen an  $^{239}\text{Pu}$  zu berücksichtigen ist; der Beitrag von  $^{239}\text{Np}$  zu dieser Summe liegt typischerweise bei unter 2 %.

Für eine ausführliche Beschreibung der experimentellen Messmethoden aller Nuklide siehe /NAK 00/.

### 2.2.2 Rechenmethode

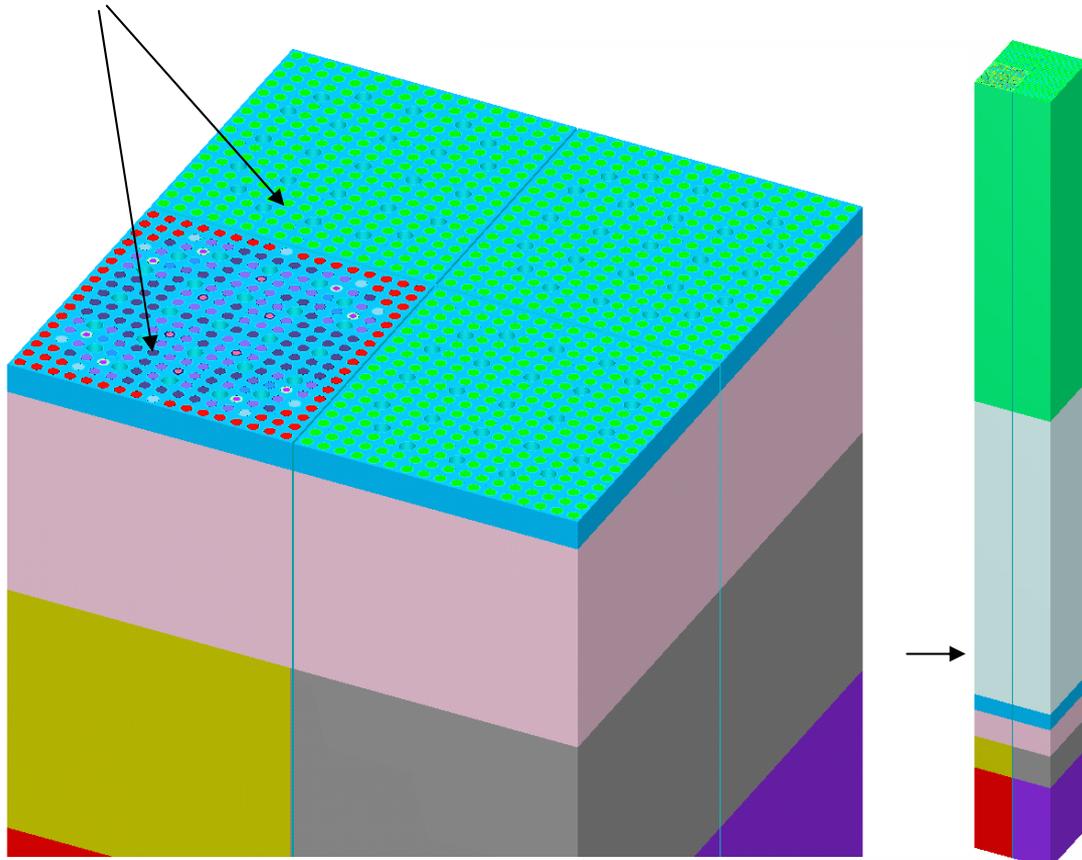
Zur stabweisen Modellierung eines unter Bestrahlung abbrennenden Brennelements in KENOREST sei auf frühere Berichte und Quellen verwiesen, wie z. B. /HES 06/, /KIL 05/, /KIL 06/, /KIL 07/. Gadoliniumhaltige BS wurden in je fünf radialen Ringzonen modelliert.

Die prinzipielle Vorgehensweise zur Verwendung einer zweidimensionalen, (numerisch) nicht abbrennenden mittleren Brennelement-Umgebung in KENOREST ist u.a. in /KIL 06/ beschrieben. In dem vorliegenden Fall wurden für die Umgebung der Probe das Inventar und die Querschnittsbibliothek für einen UO<sub>2</sub>-Brennstoff mit 4,11 Gew. % Anfangsanreicherung an <sup>235</sup>U und 8 GWd/tSM Abbrand (ca. halber Probenabbrand) mit Reaktor- und Brennelementdaten äquivalent zu dem Brennelement, in welchem die Probe enthalten war, vorberechnet und eingesetzt. Im frischen Brennelement vorhandenes Gadolinium ist bei diesem Abbrand bereits ausgebrannt /KIL 05/. Das betrachtete System wurde in 2×2-BE Anordnung mit periodischen Randbedingungen in zwei und drei Dimensionen modelliert.

Das dreidimensionale Rechenproblem stellt auch einen weiteren Test für das in KENOREST implementierte sog. FEC-Verfahren (*Flux Equivalent Cell Method*) dar, durch das die lokale Moderation stabweise in die OREST-Abbrandrechnung und intern in die stabweise lokale Querschnittsberechnung und Resonanzbehandlung einfließt. In drei Dimensionen wurde in axialer Z-Richtung zunächst grob in zwei je ca. 180 cm langen Teilabschnitten das Brennelement modelliert, dann der 9,7 cm lange Probenabschnitt SF97-1, direkt im Anschluss daran ein 16,3 cm langer Brennstababschluss aus Aluminium. Darauf wurde ein verschmiertes Kühlmittel-Stahlgemisch modelliert, um die funktionellen Einheiten des Brennelements zu simulieren, und zuletzt eine 50 cm starke Schicht aus Kühlmittel. Der Verlauf der Kühlmitteltemperatur entlang des Brennelements wurde näherungsweise wiedergegeben, wobei die Kühlmitteltemperatur in der Ebene der Probe gemäß /NAK 00/ zu 319,9 °C gewählt wurde. Aus Gründen der BE-Symmetrie konnte der Probenstab nur an zwei Stabpositionen modelliert werden.

Abbildung 2-6 zeigt einen horizontalen Querschnitt in der Probenebene durch die modellierte 2×2-BE Anordnung mit periodischen Randbedingungen. Die Pfeile markieren die beiden Stabpositionen, an denen die Probe SF97-1 platziert ist

(Originalposition sowie symmetrisch äquivalente Position zur Verbesserung der numerischen Konvergenz).



**Abb. 2-6:** Querschnitt in X-Y-Ebene durch das 3D Geometriemodell zur Inventarberechnung der Probe SF97-1

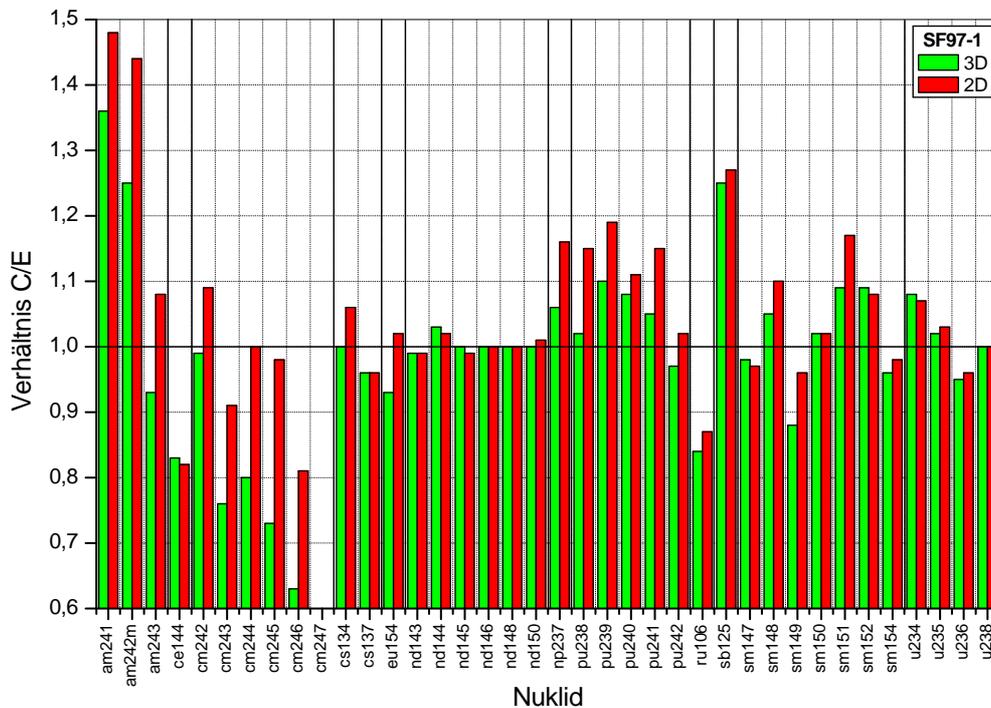
Die eigentlich interessierende Brennstabprobe macht innerhalb dieses Systems nur einen ausgesprochen geringen Volumenanteil aus. Dies stellt die Rechenmethode bezüglich der Einhaltung der statistischen Konvergenzkriterien (Reaktivität:  $\epsilon = 0.002$ , Spaltdichte:  $\chi_{\text{rel}} = 0.05$ ) vor erhebliche Herausforderungen. Zudem befinden sich in der Probenebene auch Gadolinium-haltige Brennstäbe, welche in je fünf Ringzonen unterteilt wurden; auch für jede dieser Zonen musste das gewählte Konvergenzkriterium erfüllt werden.

Um die Konvergenz für alle Brennstoffbereiche zu gewährleisten, mussten pro Abbrandschritt ca. 156,1 Mio. Neutronenschicksale ( $\rightarrow 23420$  Neutronengenerationen  $\times$  6666 Neutronen pro Generation) verfolgt werden. Der 3D-Rechenlauf nahm auf der SUN-Maschine `cs-gar04` ca. 123 h in Anspruch, der entsprechende 2D-Rechenlauf dagegen nur 7 h auf der gleichen Maschine.

### 2.2.3 Ergebnisse

Die Inventare der Proben sind sowohl in der Literaturquelle /NAK 00/ als auch von KENOREST durch die Massenanteile jedes Nuklids pro Tonne Brennstoff angegeben. Die errechneten Inventare werden über das Verhältnis C/E, also den Quotienten aus errechneter Masse (C, calculated) und gemessener Masse (E, experimental) verglichen. Für Werte  $C/E < 1$  ist die errechnete Masse für dieses Nuklid geringer als die gemessene Masse, während  $C/E > 1$  bedeutet, dass der Rechengenode die durch den Abbrand entstandene Nuklidmasse überschätzt.

Abb. 2-7 und Tabelle 2-5 fassen die ermittelten C/E-Werte grafisch und tabellarisch zusammen.



**Abb. 2-7** Verhältnis C/E zwischen errechneten und experimentell bestimmten Nuklidmassen

**Tabelle 2-5:** Verhältnis C/E zwischen errechneten und experimentell bestimmten Nuklidmassen

| <b>Nuklid</b> | <b>Experiment<br/>g/tSM</b> | <b>C/E<br/>3D</b> | <b>C/E<br/>2D</b> |
|---------------|-----------------------------|-------------------|-------------------|
| am241         | 14,92                       | 1,36              | 1,48              |
| am242m        | 0,227                       | 1,25              | 1,44              |
| am243         | 4,448                       | 0,93              | 1,08              |
| ce144         | 202,6                       | 0,83              | 0,82              |
| cm242         | 2,134                       | 0,99              | 1,09              |
| cm243         | 0,02483                     | 0,76              | 0,91              |
| cm244         | 0,4981                      | 0,80              | 1,00              |
| cm245         | 0,01087                     | 0,73              | 0,98              |
| cm246         | 0,0003866                   | 0,63              | 0,81              |
| cm247         | n/a                         |                   |                   |
| cs134         | 29,83                       | 1,00              | 1,06              |
| cs137         | 661,7                       | 0,96              | 0,96              |
| eu154         | 5,253                       | 0,93              | 1,02              |
| nd143         | 545                         | 0,99              | 0,99              |
| nd144         | 466,1                       | 1,03              | 1,02              |
| nd145         | 404,5                       | 1,00              | 0,99              |
| nd146         | 350,2                       | 1,00              | 1,00              |
| nd148         | 194,5                       | 1,00              | 1,00              |
| nd150         | 85,7                        | 1,00              | 1,01              |
| np237         | 152,1                       | 1,06              | 1,16              |
| pu238         | 23,7                        | 1,02              | 1,15              |
| pu239         | 3844                        | 1,10              | 1,19              |
| pu240         | 934,7                       | 1,08              | 1,11              |
| pu241         | 423,7                       | 1,05              | 1,15              |
| pu242         | 61,85                       | 0,97              | 1,02              |
| ru106         | 51,63                       | 0,84              | 0,87              |
| sb125         | 2,462                       | 1,25              | 1,27              |
| sm147         | 152,9                       | 0,98              | 0,97              |
| sm148         | 40,92                       | 1,05              | 1,10              |
| sm149         | 2,935                       | 0,88              | 0,96              |
| sm150         | 132,3                       | 1,02              | 1,02              |
| sm151         | 9,324                       | 1,09              | 1,17              |
| sm152         | 65,26                       | 1,09              | 1,08              |
| sm154         | 14,25                       | 0,96              | 0,98              |
| u234          | 293,9                       | 1,08              | 1,07              |
| u235          | 23470                       | 1,02              | 1,03              |
| u236          | 3115                        | 0,95              | 0,96              |
| u238          | 949360                      | 1,00              | 1,00              |

In beiden Fällen, sowohl zwei- als auch dreidimensional, wurde für das Isotop <sup>148</sup>Nd ein Wert von C/E = 1,00 erreicht; dies ist wesentlich, da der erreichte lokale Probenabbrand experimentell über die Konzentration dieses Nuklids bestimmt wurde.

In der 2D-Rechnung weist die teilweise deutliche Überschätzung aller Plutonium-Isotope (v.a. <sup>239</sup>Pu um 19 %), sowie von <sup>151</sup>Sm und <sup>134</sup>Cs darauf hin, dass das dort er-

rechnete Neutronenspektrum zu hart war um die Wirklichkeit angemessen abzubilden. Überhöhte Einfang- und Aufbauprozesse höherer Aktinide sind eine Folge davon. Dieser Befund für SF97-1 erscheint auch in /SAN 02/. Die Werte für die Curium-Isotope,  $^{154}\text{Eu}$  und  $^{149}\text{Sm}$  erscheinen gut, liegen aber für Nachrechnungen anderer Takahama-3 Proben untypisch hoch /KIL 05/ und sind eine Folge der unterschätzten Moderation.

In der dreidimensionalen Rechnung, welche der erhöhten Moderation und damit dem lokal weicheren Neutronenspektrum am oberen Brennstab-Ende Rechnung trägt, werden für die genannten überschätzten Nuklide z. T. deutlich verbesserte Ergebnisse erzielt. So reduziert sich z. B. die Überschätzung von  $^{239}\text{Pu}$  von 19 % auf 10 %, was für diese komplexe Probenumgebung einen akzeptablen Wert darstellt. Auch  $^{151}\text{Sm}$  ist von 17 % Überschätzung auf 9 % Überschätzung wesentlich besser reproduziert.  $^{134}\text{Cs}$ , wie  $^{148}\text{Nd}$  ein wichtiger Abbrandindikator, kann hier sogar mit  $C/E = 1,00$  reproduziert werden.

Die scheinbar verschlechterten Werte für die Curium-Isotope in der 3D-Rechnung passen besser zu den bisher gemachten Erfahrungen bei anderen Probennachrechnungen mit KENOREST für Takahama-3 (und auch andere). Dies ist ebenfalls ein Indiz für die in der 3D-Rechnung verbesserte Neutronenflussberechnung. Von der zwei- und der dreidimensionalen Rechnung qualitativ im Wesentlichen gleich bestimmt zeigen sich die Werte für  $^{137}\text{Cs}$ , die Nd-Isotope,  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{150}\text{Sm}$  und  $^{152}\text{Sm}$ , sowie die Isotope des Uran. Für  $^{235}\text{U}$  konnte eine geringfügige Verbesserung von 3 % Überschätzung auf 2 % erzielt werden. Beobachtete geringe Schwankungen dürften rein statistischer Natur sein. Die in beiden Rechenfällen deutliche Überschätzung der Americium-Isotope sowie von  $^{125}\text{Sb}$  ist ebenfalls ein häufig beobachtetes Phänomen, welches bisher nur teilweise erklärt werden konnte /KIL 05/, offensichtlich aber nicht in der Flussberechnung begründet liegt.

Methodische Verbesserungen in KENOREST Version 2006 erlauben in einer dreidimensionalen Abbrandrechnung für die Brennstab-endständige Probe SF97-1 aus Takahama-3 gegenüber einer zweidimensionalen Rechnung ein deutlich verbessertes Ergebnis für die meisten experimentell erfassten Nuklide. Auch scheinbar in 3D weniger gut erfasste Nuklide wie die Isotope des Curiums liegen im Gegensatz zur zweidimensionalen Rechnung mit ihren Werten in einem für vergleichbare Rechnungen typischen Bereich.

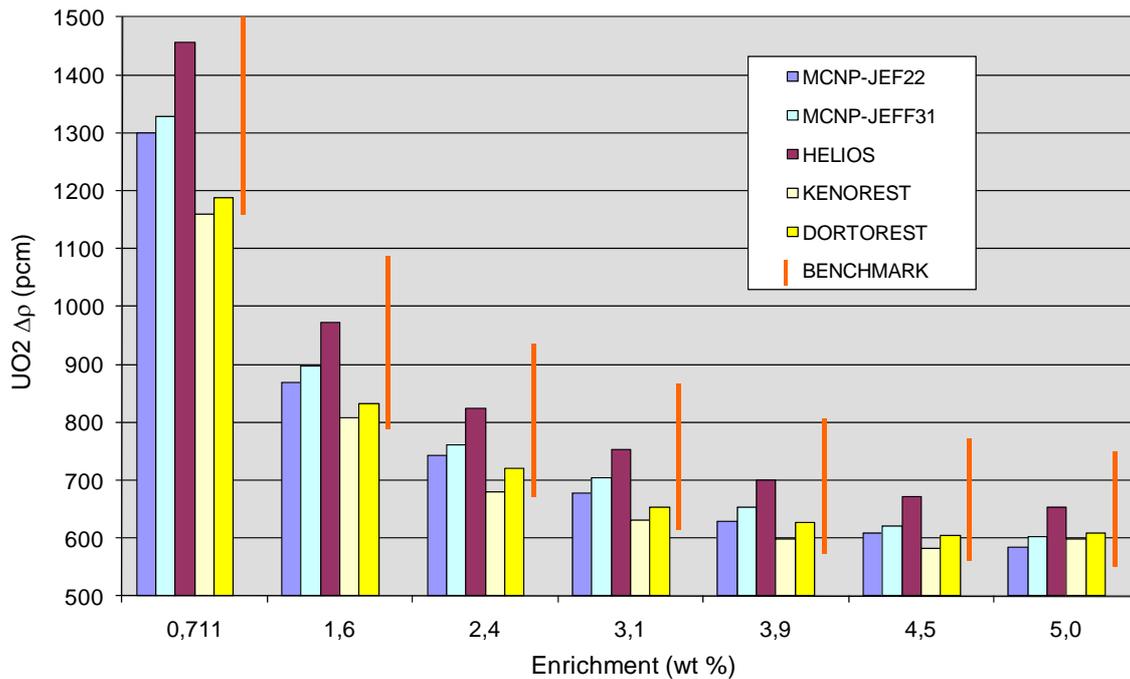
Das FEC-Verfahren in KENOREST arbeitet auch in diesem eher extremen Fall der endständigen Stabprobe noch gut. Durch die gegenüber einer rein zweidimensionalen Rechnung verbesserten Ergebnisse konnte gezeigt werden, dass damit die Querschnittserstellung in lokal variabler Moderation berücksichtigt und die Reaktionsratenbilanz in der Abbrandrechnung gewährleistet ist.

### **2.3 Das ANS-Benchmark zur Doppler-Reaktivität**

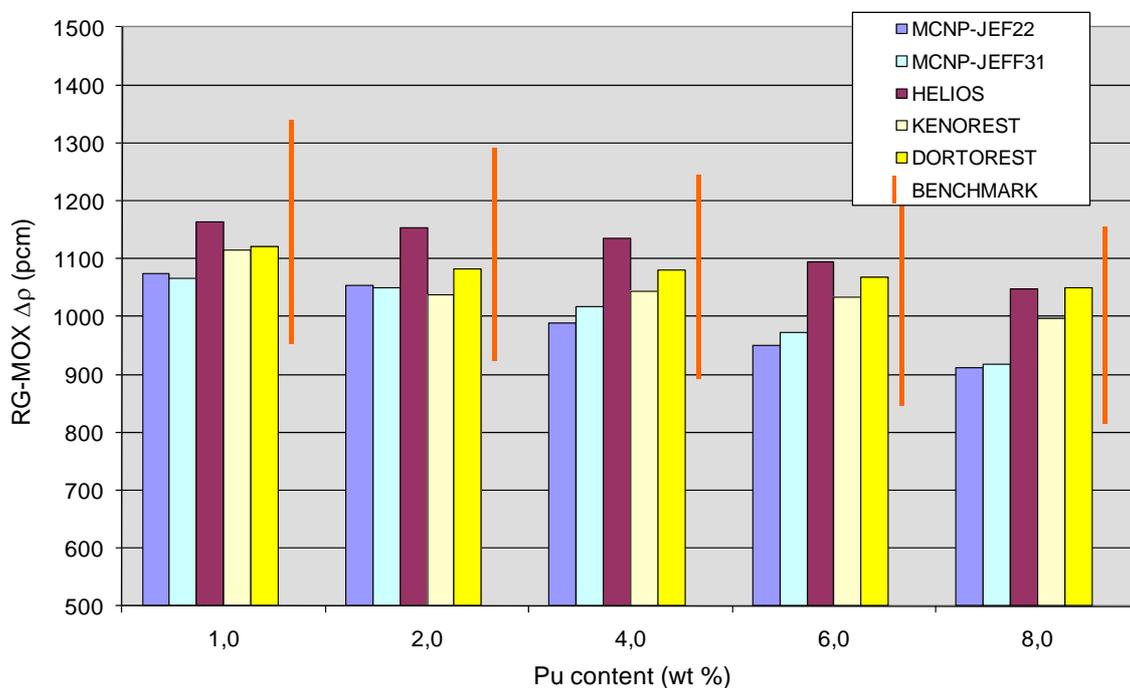
Bei den „Computational Benchmarks for the Doppler Reactivity Defect“ /MOS 06/ handelt es sich um Vergleichsrechnungen zum Reaktivitätskoeffizienten der Brennstofftemperatur für LWR-Stabgitter. Dieser ist einer der wichtigsten Parameter bei der Untersuchung von Transienten im Reaktorbetrieb. Die Größe der Dopplerreaktivität ist relativ gering (ca. -1000 pcm beim Übergang vom Nulllast-heiß- zum Volllastzustand für einen LWR mit Uranbrennelementen). Außerdem kann der Dopplerkoeffizient nicht direkt gemessen werden, sondern muss aus der Messung anderer Parameter bestimmt werden. Dadurch ist die Dopplerreaktivität mit einer Unsicherheit behaftet, die für Sicherheitsanalysen mit ca. 10 % angenommen wird. Es stellt sich die Frage, ob die Unsicherheiten beim Einsatz von MOX-Brennelementen wesentlich größer angenommen werden müssen.

Berechnet wurden die Multiplikationskonstanten für den Nulllast-heiß- und den Volllastzustand von drei Stabzellen; diese haben als Brennstoff niedrig angereichertes Uran, Reaktor-MOX und MOX mit waffentauglichem Plutonium bei verschiedenen <sup>235</sup>U-Anreicherungen bzw. Gehalten von spaltbarem Plutonium. Zur Validierung ihrer Rechenprogramme und nuklearen Daten hat sich die GRS mit KENOREST, DORTOREST, MCNP mit JEF-2.2- und JEFF-3.1-Daten, sowie HELIOS an diesen Vergleichsrechnungen beteiligt.

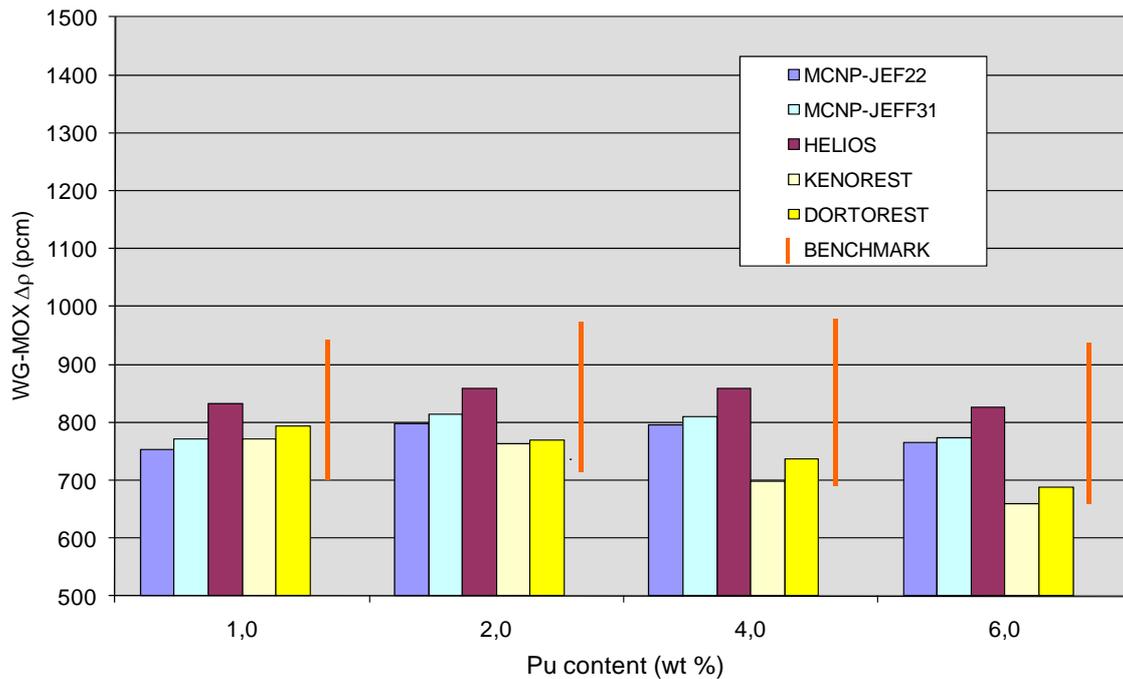
Insgesamt haben 16 Institutionen 45 Lösungen mit unterschiedlichen Rechenprogrammen und nuklearen Daten beigetragen. Durch die Vielzahl der Lösungen kann die Streubreite der Ergebnisse als repräsentativ für die mit aktuellen Programmen berechneten Dopplerreaktivitäten angesehen werden.



**Abb. 2-8:** Dopplerreaktivitäten für ein Uran-Brennstabgitter bei verschiedenen <sup>235</sup>U-Anreicherungen, berechnet mit KENOREST, DORTOREST, MCNP und HELIOS im Vergleich zur Gesamtheit der Benchmark-Lösungen.



**Abb. 2-9:** Dopplerreaktivitäten für ein MOX-Brennstabgitter mit Reaktorplutonium bei verschiedenen Pu-Gehalten, berechnet mit KENOREST, DORTOREST, MCNP und HELIOS im Vergleich zur Gesamtheit der Benchmark-Lösungen.



**Abb. 2-10:** Dopplerreaktivitäten für ein MOX-Brennstabgitter mit Waffenplutonium bei verschiedenen Pu-Gehalten, berechnet mit KENOREST, DORTOREST, MCNP und HELIOS im Vergleich zur Gesamtheit der Benchmark-Lösungen.

In Abb. 2-8 – 2-10 sind die in den GRS-Berechnungen erzielten Ergebnisse für die drei verschiedenen Stabgitter dargestellt. Die Balken für die Gesamtheit der zum Benchmark beigetragenen Ergebnisse stellen die Intervalle von +/- zwei Standardabweichungen um die jeweiligen Mittelwerte dar. Zur Auswertung wurden diejenigen Ergebnisse herangezogen, die mit unterschiedlichen Rechenprogrammen oder nuklearen Daten erzielt wurden, nicht aber Ergebnisse, die nur auf Parameteränderungen bei gleichem Code und gleichen Daten beruhen. Die mit JEF-2.2-basierten Daten erzielten Ergebnisse mit KENOREST, DORTOREST und MCNP liegen in vielen Fällen, besonders für den Uran-Brennstoff, deutlich unterhalb der Mittelwerte. Insgesamt liegen die  $2\sigma$ -Streubreiten aller Ergebnisse bei ca. 15 %, unabhängig von der Art des Brennstoffs, für den die Berechnungen durchgeführt wurden.

## 2.4 Überprüfung der nuklearen Bibliotheken

### 2.4.1 Wirkungsquerschnittsbibliotheken

In den bisherigen Nachrechnungen von experimentellen Nuklidinventaren mit KENOREST, aber auch mit anderen Programmsystemen zeigte sich eine deutliche Unterschätzung für Americium und Curium, die hier ca. 30% und mehr erreichen

konnte. Dabei ist insbesondere Cm-244 einer der Hauptverursacher der Neutronendosis im Brennelementlager und durch Transportbehälter mit abgebranntem Brennstoff. Nach eingehender Überprüfung von KENOEST wurde erkannt, dass diese Unterschätzung nicht auf programmbestimmte Schwächen zurückzuführen war. Vergleichsrechnungen mit älteren Querschnittsbibliotheken deuteten nämlich auf einen bibliotheksbedingten Effekt. Erst japanische Arbeiten /IWA 08/ kamen 2008 zum Resultat, dass bei Verwendung neuerer Messungen zu Americium und Curium, aber auch Neptunium und davon abgeleiteten Datenbibliotheken typische Unterschätzungen größtenteils vermieden werden können. Es ist deshalb anzustreben, diese Datenbibliotheken in Folgevorhaben aufzunehmen.

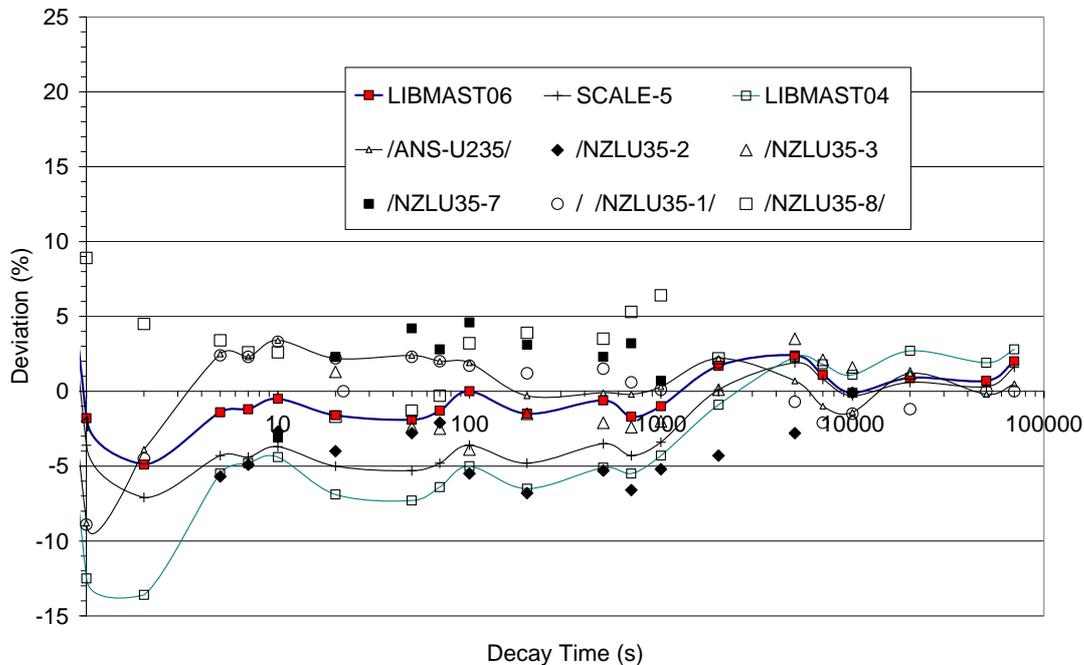
#### **2.4.2 Zerfallsbibliotheken**

Die Überprüfungen der Zerfallsdaten KENOEST der Version 2004 (noch nach ENDF/B-V) ergab im Kurzzeitbereich der Reaktorabschaltung eine bekannte deutliche Unterschätzung der Nachzerfallsleistung gegenüber Messungen bis 1000 Sekunden von ca. 10%, die als ‚Pandämonium-Effekt‘ bekannt ist. Deshalb wurde in dem Vorhaben eine Bibliothekserweiterung auf dem Stand ENDF/B-VI gestartet, da bekannt ist, dass hier bei der Datenbasis-Entwicklung eine ‚Pandämonium-Korrektur‘ vorgenommen wurde. Dabei wurde eine Arbeitsplattform <LIBGEN> geschaffen, um Halbwertszeiten, Zerfallskanäle und Zerfallsenergien samt Spaltausbeuten von ca. 20 Spaltmaterialien für ca. 1000 Spaltprodukte auf die Datenbasen des Basismoduls GRS-ORIGENX und davon abgeleitet auf KENOEST-2006 aufzuspielen.

Zur Überprüfung der Ergebnisse wurde das GRS-Programm WATT (Version 4) erweitert und eingesetzt, mit dem Leistungszerfallskurven zunächst in Exponentialdarstellung gewünschter Genauigkeit zerlegt und damit schnell integriert werden konnten. Eine Überprüfung damit von Rechenergebnissen mit Rechenergebnissen SCALE und den Experimentaldaten ergab nun in erster Näherung, dass die neu entwickelte Datenbasis auf Basis ENDF/B-VI zwar korrekt arbeitet, aber gegenüber dem Mittelwert aller Experimente immer noch ca. 5 % die Nachzerfallsleistung unterschätzt. Auffälligerweise werden nur die ORNL-Experimente, nicht aber international gemessene Mittelwerte zufriedenstellend wiedergegeben.

In einer genauen Analyse der verantwortlichen Nuklide wurde erkannt, dass die Ursache bei etwa 70 schnell zerfallenden Spaltprodukten mit Halbwertszeiten von bis

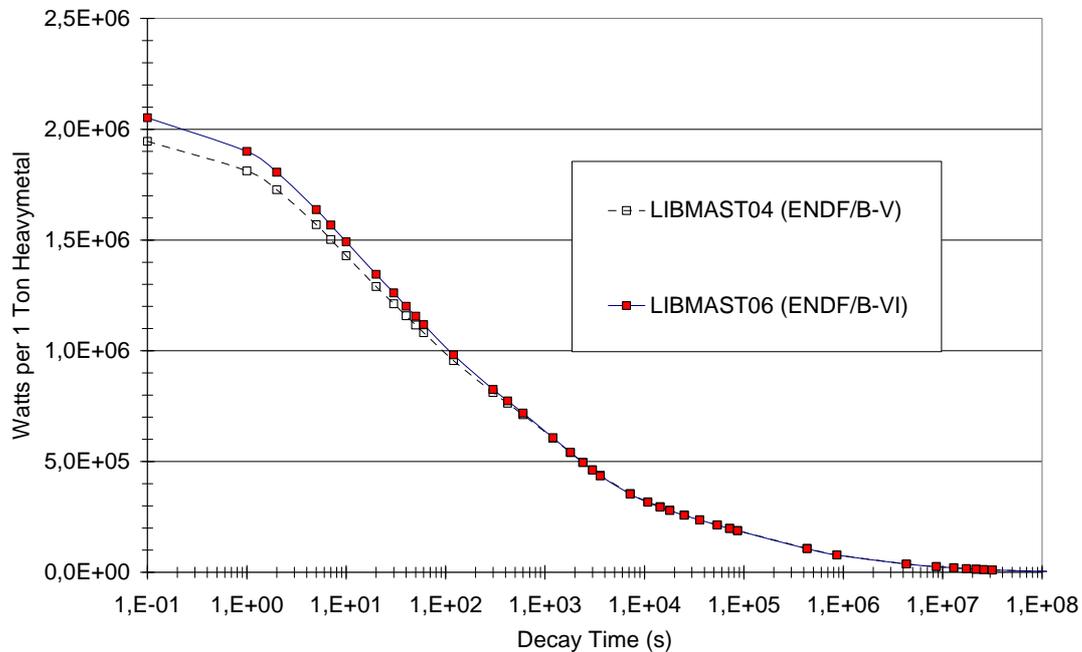
1000 Sekunden lag, die in einer zweiten verbesserten Version um 5% angehoben wurden. Eine zweite Überprüfung mit WATT (Version 10) der Rechenergebnisse mit den Experimentaldaten ergab, dass damit die Unterschätzung des Mittelwerts aller Experimente vermieden werden konnte. Die Ergebnisse wurden auf der Konferenz ND-2007 /HES 07/ vorgestellt und auch mit Teilnahme an DIN-Sitzungen zur Zerfallsleistungen fachlich eingebracht.



**Abb. 2-11:** Abweichung der mit verschiedenen Bibliotheken und nach der ANS-Vorschrift berechneten Nachzerfallswärme von  $^{235}\text{U}$  gegenüber den Messwerten.

Abbildung 2-11 zeigt die Abweichungen unterschiedlicher Nachrechnungen (in Prozent) gegenüber dem Mittelwert (0%-Achse bis 100 000 Sekunden Zerfallszeit). Die blaue Kurve, genannt LIBMAST-04 entspricht dem Datenstand KENOREST-2004 auf Basis ENDF/B-V, die anfangs bis 15 % die Experimente unterschätzt. Die schwarze Kurve, genannt SCALE-5, liegt zwar besser an der Null-Achse, bleibt aber bis ca. 1000 Sekunden um 5 % zu tief. Die schwarze Kurve, genannt „ANS-U235“, entspricht der analytischen Funktion der amerikanischen American-Nuclear-Standard-Vorschrift zur Berechnung der Nachzerfallswärme. Sie liegt anfangs 10 % tief, ab zwei Sekunden etwa 3 % über dem Mittelwert. Die rote Kurve, genannt LIBMAST-06 entspricht der hier beschriebenen GRS-Arbeit und zeigt im gesamten Zeitbereich zufriedenstellendes Verhalten. Die einzelnen schwarzen Symbole entsprechen den erfassten Messpunkten unterschiedlicher Labors. Deutlich wird, dass mit einer Streuung der Messdaten von ca. +/- 5% zu rechnen ist. Ähnliche Ergebnisse werden bei anderen Spaltmaterialien

erzielt. Die im Rahmen RS1169 entwickelte verbesserte Zerfallsbibliothek wird nun in allen ORIGEN-Versionen ab 2006 von OREST, KENOREST und GRS-ORIGENX einheitlich verwendet.



**Abb. 2-12:** Mit zwei verschiedenen Bibliotheken berechnete Nachzerfallsleistung als Funktion der Zerfallszeit.

Die Experimente zur Pulsspaltung vernachlässigen die im praktischen Reaktor-Abbrandbetrieb einsetzenden Beiträge anderer (erbrüteter) Wärme produzierender Isotope, wobei das wichtigste Beispiel Cs-134 ist, das erst aus dem (stabilen) Spaltprodukt Cs-133 durch Einwirkung des Neutronenflusses erbrütet werden muss. Für die Tagung ND-2007 wurden nun zwei realistische Abbrände von UO<sub>2</sub>- und MOX-Brennstoff mit beiden Bibliotheksentwicklungen 2004 und verbessert 2006 berechnet und die Differenzen aufgezeigt /HES 07/. Abbildung 2-12 gibt dies am Beispiel UO<sub>2</sub> wieder.

Man erkennt, dass im realen Abbrandfall von 40 GWd/tSM die Abweichungen zueinander bis 1000 Sekunden zwar noch merkbar sind, aber erfreulicherweise auf etwa 4 % sinken. Ähnliche Daten werden bei MOX-Brennstoff errechnet.

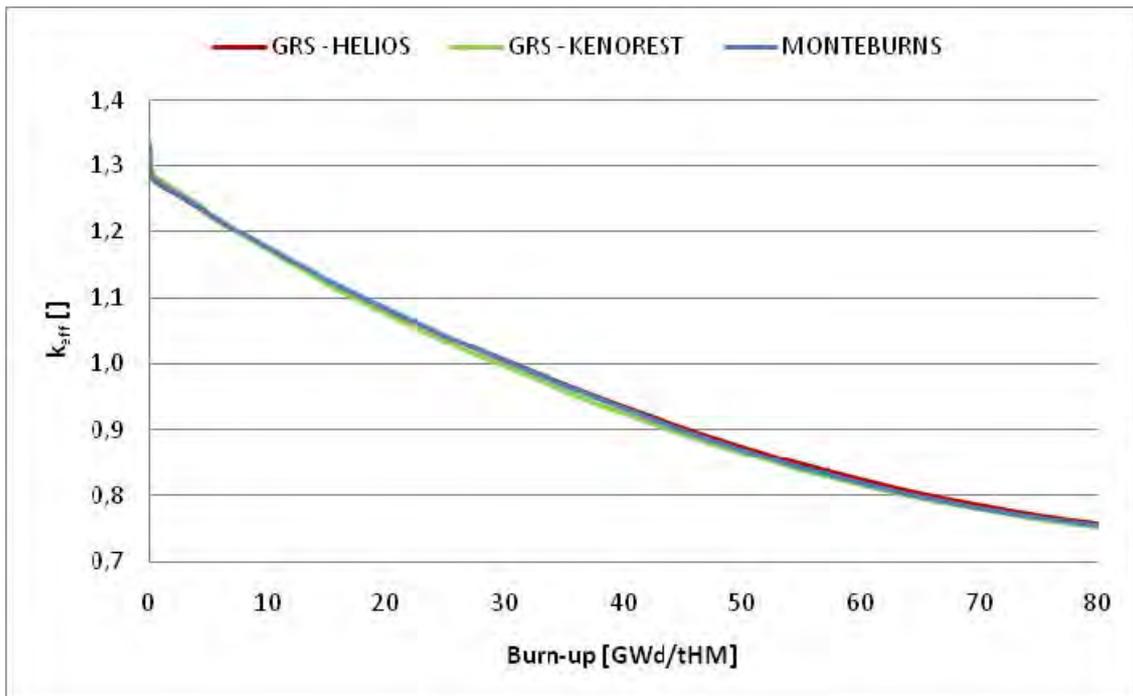
Mit dem Programm WATT (Version 10) wurde für die gleiche Tagung eine Empfehlung der Exponentialpräsentation der Zerfallsleistungskurven der Spalt nuklide U-235, U-238, Pu-239 und Pu-241 aus 34 Exponentialkurven übergeben, die im Rahmen einer

Genauigkeit von 1 % bis 2 % die Zerfallsleistungen der etwa 1000 Spaltprodukte repräsentiert.

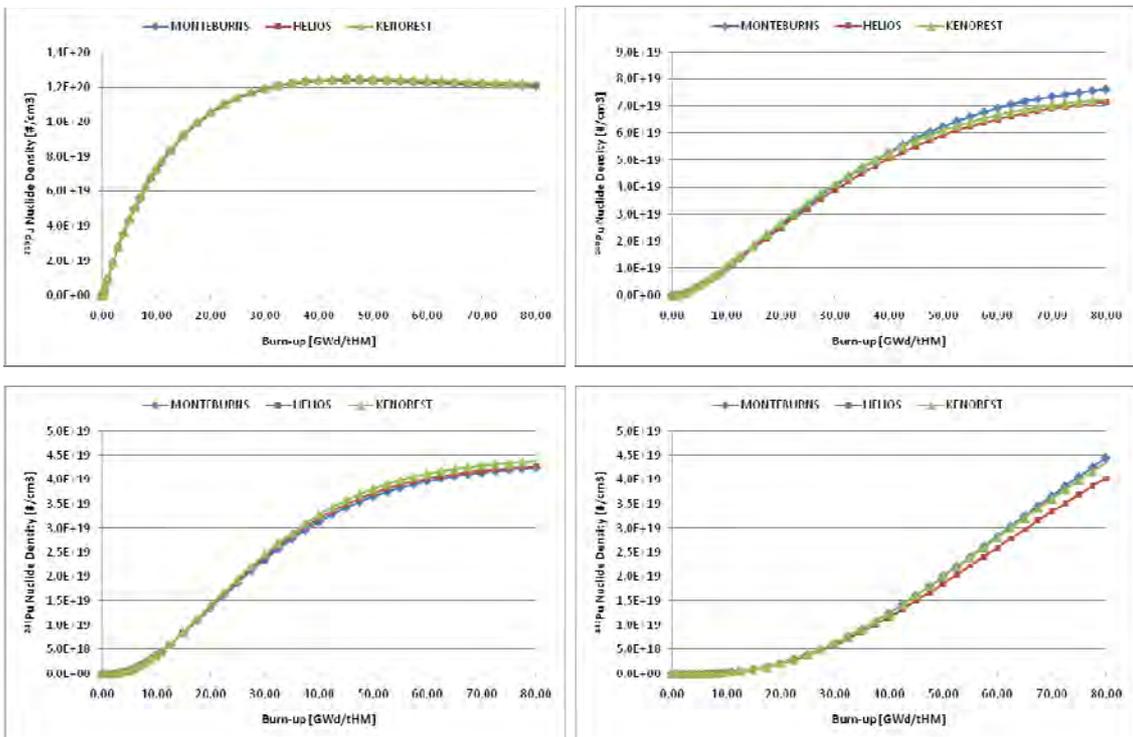
## **2.5 Einsatz des Monte-Carlo-Abbrandprogramms MONTEBURNS**

Um den Code KENOREST auch anhand weiterer Rechenprogramme zu validieren, wurden weitere Spektralcodes an der GRS eingeführt und verwendet. Eine Referenzmethode stellt z. B. das Abbrandprogramm MONTEBURNS /POS 99/ dar, das zur Lösung der Neutronentransportgleichung ähnlich wie KENOREST einen stochastischen Transportansatz verwendet, allerdings dabei anstelle von Multi-gruppendaten sog. Punktdaten benutzt. MONTEBURNS besteht aus einer Kopplung des Monte-Carlo-Programms MCNP (hier in der Version 5) zur Berechnung des Neutronenflusses und des Nuklidinventarcodes ORIGEN-2 zur Berechnung der Nukliddichten im Brennstoff.

Um die Arbeiten durchführen zu können, war eine Anzahl von Veränderungen am Original-MONTEBURNS-Programmpaket erforderlich. Um nukleare Daten auf dem neuesten Stand verfügbar zu machen, musste ein MONTEBURNS-Wirkungsquerschnittsverzeichnis erstellt werden, mit dem eine nukleare Punktdatenbibliothek für MCNP auf Basis der europäischen JEFF-3.1-Daten verwendet werden kann. Zur Durchführung der Brennelementberechnungen in akzeptabler Rechenzeit wurde eine MCNP-Version eingebunden, die für den Parallelprozessoreinsatz geeignet ist. Zur Behandlung von komplexen Brennelementauslegungen, wie dem o.g. SWR-Brennelement musste MONTEBURNS dahin gehend erweitert werden, mehr abbrennbare Materialien als in der Standardversion berücksichtigen zu können. Schließlich wurden Schwierigkeiten bei der Behandlung des metastabilen Zustands von Americium-242 durch eine Modifikation in der Datenbibliothek beseitigt. Insgesamt wurde gute Übereinstimmung der Ergebnisse mit anderen international eingesetzten Abbrandprogrammsystemen erzielt.



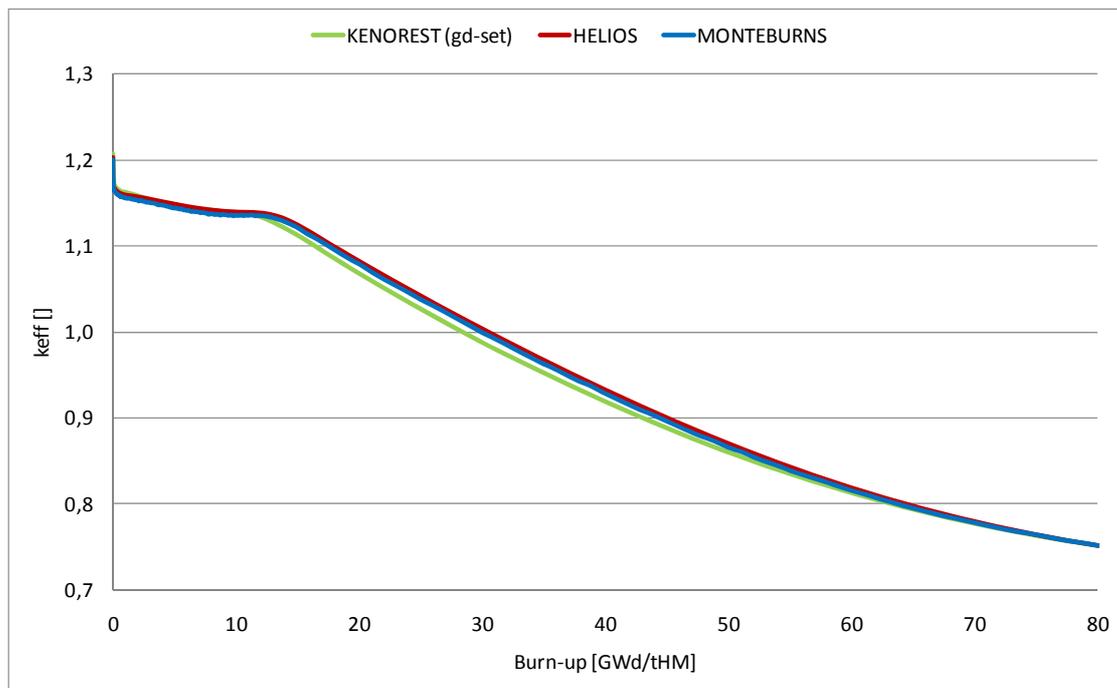
**Abb. 2-13:** Multiplikationsfaktor für das Standard-18x18-DWR-Uran-Brennelement als Funktion des Abbrands, berechnet mit MONTEBURNS, KENOREST und HELIOS.



**Abb. 2-14:** Pu-Inventare für das Standard-18x18-DWR-Uran-Brennelement als Funktion des Abbrands.  $^{239}\text{Pu}$  (l.o.),  $^{240}\text{Pu}$  (r.o.),  $^{241}\text{Pu}$  (l.u.),  $^{242}\text{Pu}$  (r.u.), berechnet mit MONTEBURNS, KENOREST und HELIOS.

Als Beispiel für diese gute Übereinstimmung werden in Abb. 2-13 die berechneten Multiplikationsfaktoren als Funktion des Abbrands für das 18x18-DWR-Uran-Brennelement ohne Uran-Gadolinium-Stäbe aus MONTEBURNS und KENOREST, sowie dem kommerziellen Abbrandprogramm HELIOS, und in Abb. 2-14 der berechnete Aufbau der Plutonium-Isotope 239 – 242 verglichen.

Entsprechende Berechnungen wurden auch für ein 18x18-DWR-Uran-Brennelement mit Uran-Gadolinium-Stäben durchgeführt. Von besonderem Interesse ist hier der Verlauf des Multiplikationsfaktors für niedrige Abbrandwerte, da dieser wesentlich durch den Ausbrand des Gadoliniums im ersten Zyklus bestimmt wird. Die mit KENOREST, HELIOS und MONTEBURNS berechneten Werte sind in Abb. 2-15 dargestellt. Bei der Behandlung der U/Gd-Stäbe mit abbrandabhängiger Adjustieroutine in KENOREST ist die Übereinstimmung ähnlich zu der im Fall des Standard-Brennelements.



**Abb. 2-15:** Multiplikationsfaktor für das 18x18-DWR-Uran-Brennelement mit U/Gd-Stäben als Funktion des Abbrands, berechnet mit MONTEBURNS, KENOREST und HELIOS.

Die Implementierung, Ertüchtigung und Anwendung von MONTEBURNS wurde in Zusammenarbeit mit dem Lehrstuhl für Nukleartechnik der Technischen Universität München durchgeführt. Die Ergebnisse sind ausführlich in der daraus resultierenden Diplomarbeit /RÖT 09/ und im Konferenzbeitrag /RÖT 09a/ dokumentiert.

## **2.6 Erweiterung der KENOREST-Programmooptionen**

### **2.6.1 Brennelement-Bündelsimulation**

Die Eingabelogik KENOREST wurde insofern erweitert, dass Brennelemente separat als Gittermatrix beschrieben und dann über eine BE-Anordnungsmatrix zu einem Brennelementbündel zusammengestellt werden können. Damit können sehr schnell Brennelementumsetzpläne im Rahmen der Bündelrechnungen beschrieben werden.

### **2.6.2 Simulation teilabgebrannter Umgebung um das Brennelement**

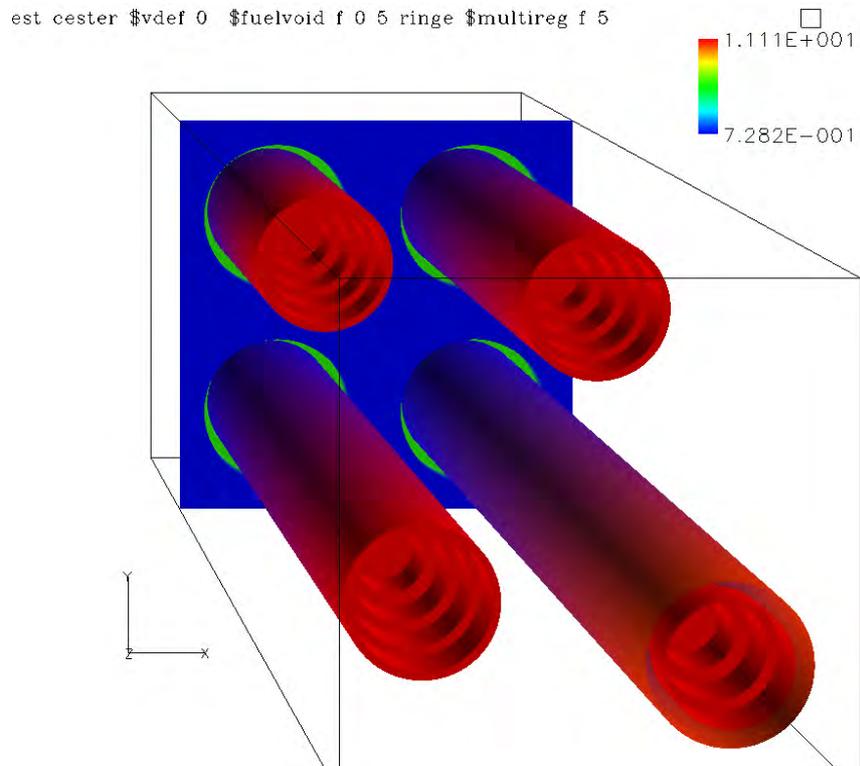
Gemäß den Anforderungen eines OECD-Benchmarks zur Beschreibung eines Insel-MOX-Brennelements in teilabgebrannter Umgebung wurde die Beschreibung der Umgebung des Brennelements erweitert. Dazu können nach einfachen Vorrechnungen eines teilabgebrannten  $\text{UO}_2$ -Brennstoffs die errechneten Inventare gleichzeitig mit der hier erstellten resonanzkorrigierten Querschnittsbibliothek berücksichtigt werden. Diese Rechenmethode wurde ebenfalls auf dem GRS-Beitrag zu PHYSOR-2008 /KIL 08a/ und im Technischen Bericht /KIL 08/ bei der Nachrechnung exponiert gelegener, experimentell analysierter Brennstababschnitte eingesetzt. Die entwickelte Rechenmethode kann ebenfalls zur verbesserten allgemeinen Bestimmung von Inventaren und Wirkungsquerschnitten eingesetzt werden, da die interne Annahme von KENOREST von unendlich wiederholten Brennelementbündeln – erzeugt durch Spiegelung oder periodischen Randbedingungen in KENO - realistischer modelliert ist. Die teilabgebrannte Umgebung trägt zwar zum Flussverlauf und Multiplikationsfaktor bei, wird aber nicht in die Abbrandrechnung mit einbezogen.

Zu den Programmerweiterungen wurde eine vorläufige Eingabebeschreibung erstellt /HES 07a/.

### **2.6.3 Ergebnisauswertung und Ergebnisdarstellung**

Der Anschluss der Rechenergebnisse an das verfügbare Standardprogramm FIELDVIEW wurde insofern erweitert, dass Brennelemente erfasst werden können, die im sogenannten <Multiregion mode> von KENOREST gerechnet wurden. Dabei werden die Brennstabregionen in bis zu 49 Unterringe zerlegt, für die die Abbrandgleichungen separat mit OREST gelöst und dann in KENO rückgeführt werden. Die Erfassung ist derzeit für den Rechenstart, also für die geometrische Struktur des Brenn-

elements möglich, die Rückführung der Ergebnisdaten in FIELDVIEW steht noch aus. In Abb. 2-16 sind, in einem verkleinerten fiktiven 2X2-Brennelement, die fünf Brennstoffringe pro Brennstab zu sehen.



**Abb. 2-16:** Darstellung der Ringeinteilung der Brennstäbe in einer 2X2-Anordnung.

### **3 Einfluss von Betriebsparametern auf die Nuklidinventare für Burnup Credit Anwendungen**

Bei den Arbeiten zur Untersuchung des Einflusses von Betriebsparametern auf die für Burnup Credit Anwendungen relevanten Nuklidinventare wurden jeweils für ein UO<sub>2</sub>-Standard-DWR-Brennelement als auch für ein MOX-Standard-DWR-Brennelement in einer Umgebung aus teilabgebrannten UO<sub>2</sub>-Brennelementen Abbrandrechnungen mit dem neu entwickelten System GRAMATFIX /HUM 08/, das auf der Grundlage der Kopplung des Abbrandcodes OREST /HES 04/ mit dem Störfallcode FIPISO /HES 98/ und einem zusätzlichen Datenverwaltungssystem arbeitet, Serienrechnungen durchgeführt. Bei den Serienrechnungen handelt es sich um Abbrandrechnungen mit identischem Zielabbrand bei Variation der Betriebsparameter wie Kühlmitteltemperatur, Brennstofftemperatur und Borkonzentration, wobei in jeder der Rechnungen jeweils nur ein Parameter verändert wurde. In den Abbrandrechnungen, die ausnahmslos mit einer Anfangsmasse von einer Tonne Schwermetall starteten, wurden für diskrete Abklingzeiten zwischen der Entladung des Brennelements und zu einem 40 Jahren späteren Zeitpunkt die Nuklidinventare ermittelt. Unter Burnup Credit versteht man die Berücksichtigung des Brennelementabbrandes in Kritikalitätsanalysen für abgebrannten Brennstoff.

Aus dem Vergleich der mit unterschiedlichen Betriebsparameterwerten errechneten Ergebnisse können Informationen über die betriebsparameterbedingten Abhängigkeiten der Ausbeuten abbrandkreditrelevanter Nuklide für das UO<sub>2</sub>- und das MOX-Brennelement gewonnen werden.

#### **3.1 Untersuchungen für ein UO<sub>2</sub>-Standard-DWR-Brennelement**

Für die Arbeiten zur Untersuchung des Einflusses von Reaktorbetriebsparametern auf das Nuklidinventar des bestrahlten Brennstoffes und insbesondere auf die für Burnup Credit Anwendungen relevanten Nuklide für ein UO<sub>2</sub>-Standard-DWR-Brennelement wurden die in der folgenden Aufstellung zusammengestellten Randbedingungen zugrunde gelegt:

- Betrachteter Brennelementtyp: DWR 18x18-24 (Anfangsanreicherung 4 % U-235, 537,9 kg SM, aktive Länge 391,56 cm, Pelletdurchmesser 0,808 cm wegen thermischer Ausdehnung, Hüllrohrinnendurchmesser 0,822 cm, Hüllrohraußendurchmesser 0,950 cm, Gitterschrittweite 1.272 cm).

- Abbrand: 40 GWd/tSM, wird berechnet in 3 Zyklen mit jeweils 330 Tagen bei konstanter Leistung (40,5 kW/kg) und 2 Nullleistungsintervallen mit jeweils 35 Tagen dazwischen.
- Kühlmitteldruck: 158 bar. Bleibt unverändert.
- Kühlmitteltemperatur: Rechnungen für 290 °C, 327 °C und 309 °C (Referenzwert).
- Brennstofftemperatur: Rechnungen für 500 °C, 800 °C und 600 °C (Referenzwert). Sonst automatische Berechnung.
- Borkonzentration: Rechnungen für 400 ppm, 700 ppm und 500 ppm (Referenzwert).
- Zeitbereich von Entladung des Reaktors bis 40 a später

Im Rahmen des Projektes RS1169 wurde für Burnup Credit Anwendungen die Abhängigkeit der Nuklidinventare von den Betriebsparametern Brennstofftemperatur, Kühlmitteltemperatur und Borkonzentration untersucht. Dazu wurde für jeden Betriebsparameter ein Wertetripel, bestehend aus den für den Normalbetrieb zu erwartenden Minimal- und Maximalwerten sowie dem Referenzwert, festgelegt. Für jeden Wert aus dem Tripel wurden die Nuklidinventare im Zeitintervall zwischen der Entladung des Brennelementes und zu einem 40 Jahre späteren Zeitpunkt ermittelt. Daraus wurden die relativen Abweichungen bei der Ausbeute der betrachteten Nuklide bei Variation der Betriebsparameter bestimmt. Die relativen Abweichungen der Ausbeuten eines bestimmten Nuklids  $N_i$  ( $AUS(N_i)$ ) für die Maximal-, Minimal-, und Referenzwerte des jeweiligen Betriebsparameters wurden dabei nach der Relation

$$\text{Relative Abweichung } AUS(N_i) = (AUS(N_i(\text{Maximum})) - AUS(N_i(\text{Minimum}))) / AUS(N_i(\text{Referenz}))$$

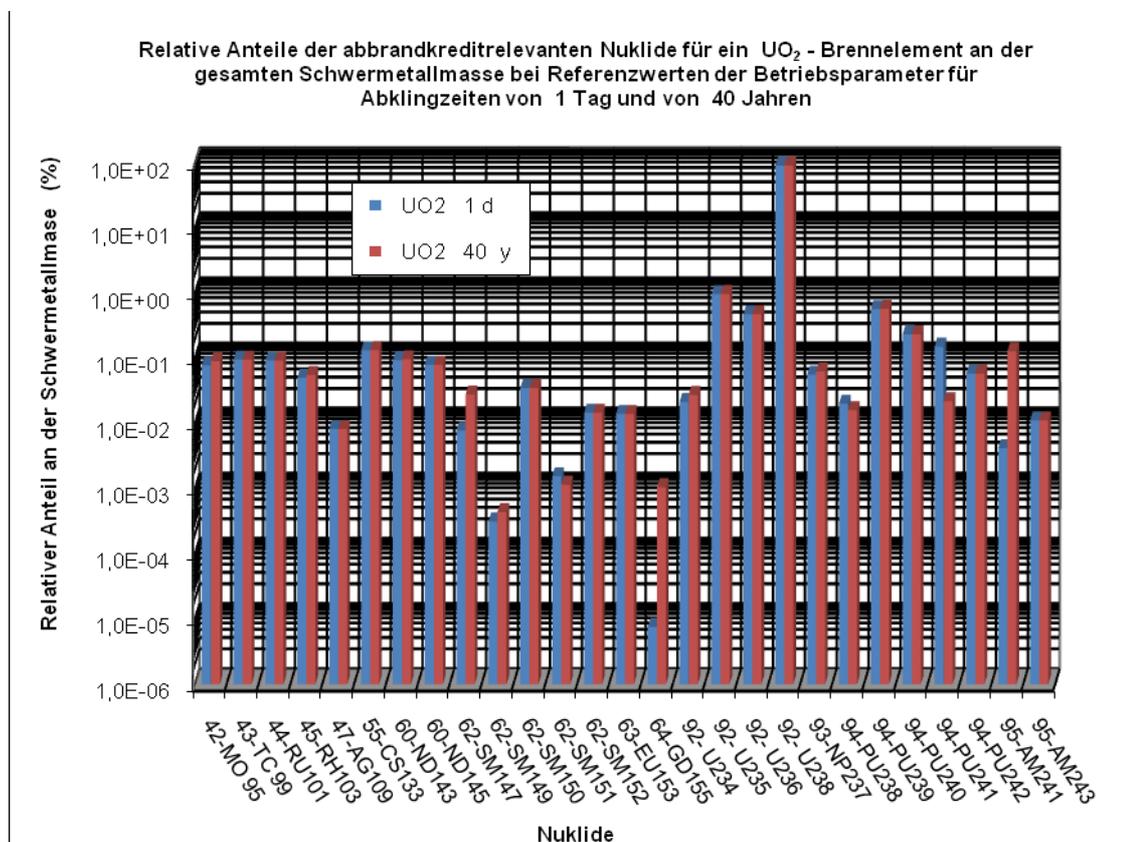
ermittelt. In jeder der Rechnung wurde jeweils nur einer der Betriebsparameter verändert. Für die beiden anderen Betriebsparameter wurden die Referenzwerte bzw. automatisch berechnet Werte (nur bei Brennstofftemperatur) eingesetzt.

Im Einzelnen wurden dabei die folgenden 27 Abbrandnuklide betrachtet:

- Aktiniden: U234, U235, U236, U238, PU238, PU239, PU240, PU241, PU242, NP237, AM241, AM243 (12 Nuklide nach OECD/NEA BUC Arbeitsgruppe)

- Spaltprodukte: RH103, SM149, GD155, SM151, ND143, CS133 (6 wichtigste Spaltprodukte) sowie AG109, SM152, EU153, TC99, ND145, RU101, SM147, MO95 und SM150 (insgesamt 15 Spaltprodukte, Ansatz der CEA, dies sind stabile, nicht flüchtige Spaltprodukte).

Abbildung 3-1 zeigt in logarithmischer Darstellung die prozentualen Anteile des für Burnup Credit Anwendungen relevanten Nuklidinventars an der gesamten Schwermetallmasse für ein einzelnes UO<sub>2</sub>-Brennelement für Abklingzeiten von einem Tag und für 40 Jahre. Für die Betriebsparameter wurden dabei die Referenzwerte eingesetzt.

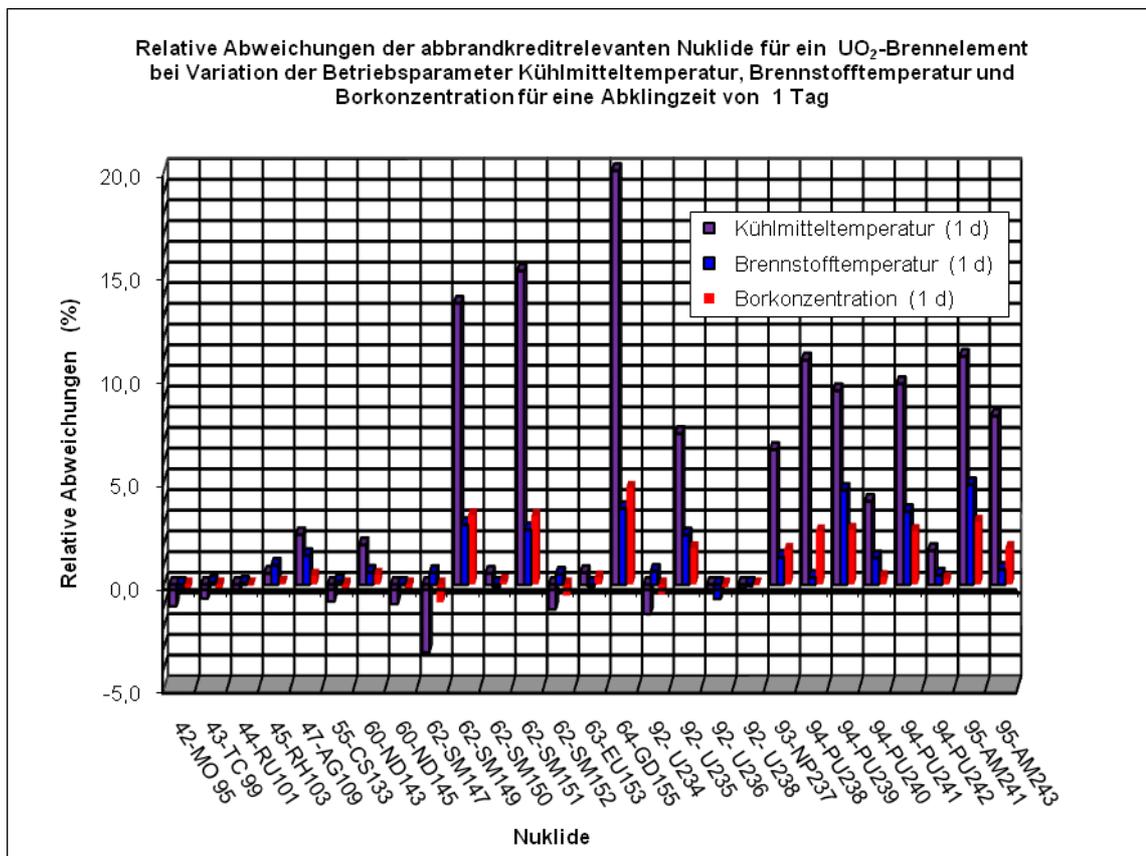


**Abb. 3-1:** Relative Anteile ausgewählter Abbrandnuklide an der gesamten Schwermetallmasse für ein UO<sub>2</sub>-Brennelement (Abbrand 40 GWd/tSM) für Abklingzeiten von einem Tag und von 40 Jahren.

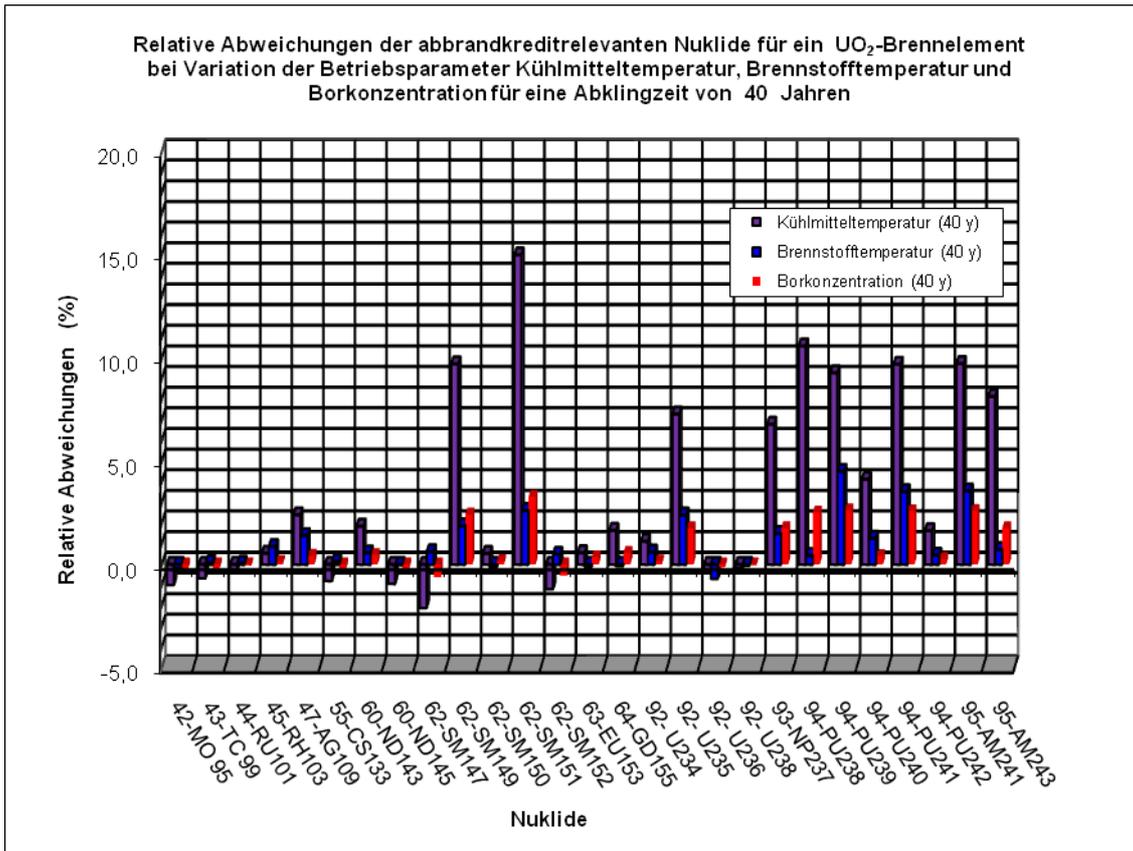
Aus Abbildung 3-1 ist ersichtlich, dass die Nuklide Pu239, U236 und Pu240, - abgesehen von den bereits im frischen Brennelement vorhandenen Nukliden U235 und U238, - die größten Anteile an der Schwermetallmasse aufweisen. Unterschiedlich große Beiträge eines Nuklids zur Schwermetallmasse bei den beiden Abklingzeiten können mit den jeweiligen Zerfallsketten erklärt werden. Beispielsweise ist die Zunahme von GD155 von  $7,6 \times 10^{-6}$  % nach einer Abklingzeit von einem Tag auf  $1,1 \times 10^{-3}$

% nach 40 Jahren auf den Zerfall durch das Nuklid EU155 ( $T_{1/2} = 4,761$  a) zurückzuführen. Insgesamt werden mit den Abbrandnukliden nach einer Abklingzeit von einem Jahr ca. 96,53 % und nach einer Abklingzeit von 40 Jahren ca. 96,58 % der Schwermetallmasse erfasst.

In den Abbildungen 3-2 und 3-3 sind die relativen Abweichungen der 27 Abbrandnuklide bei Variation der Betriebsparameter Kühlmitteltemperatur, Brennstofftemperatur und Borkonzentration für ein  $UO_2$ -Brennelement für Abklingzeiten bis zu 40 Jahren dargestellt.



**Abb. 3-2:** Relative massenbezogene Abweichungen ausgewählter Abbrandnuklide für ein  $UO_2$ -Brennelement (Abbrand 40 GWd/tSM) bei Variation der Betriebsparameter für eine Abklingzeit von einem Tag.



**Abb. 3-3:** Relative massenbezogene Abweichungen ausgewählter Abbrandnuklide für ein UO<sub>2</sub>-Brennelement (Abbrand 40 GWd/tSM) bei Variation der Betriebsparameter für eine Abklingzeit von 40 Jahren.

Aus den Abbildungen 3-2 und 3-3 ist ersichtlich, dass die größten Abweichungen der Abbrandnuklide bei der Variation des Betriebsparameters Kühlmitteltemperatur auftreten. Die Abweichungen bei Variationen der Brennstofftemperatur und der Borkonzentration fallen signifikant kleiner aus. Während bei der Variation der Brennstofftemperatur mehrere Nuklide, - 10 nach einer Abklingzeit von einem Tag (SM149, SM151, GD-155, U235, NP237, PU238, PU239, PU241, AM241 und AM243) und 9 nach 40 Jahren Abklingzeit (Nuklide wie nach einer Abklingzeit von einem Tag, aber ohne GD155), - Abweichungen von mehr als 5 % aufweisen, überschreitet bei Variationen von Brennstofftemperatur und Borkonzentration kein Nuklid diese Schranke. Die größte relative Abweichung mit einem Wert von über 20 % wird bei der Variation der Kühlmitteltemperatur und einer Abklingzeit von einem Tag für das Nuklid GD155 registriert; nach einer Abklingzeit von 40 Jahren sinkt dieser Wert auf weniger als 2 %. Dieser Rückgang ist mit dem Zerfall von EU155 ( $T_{1/2} = 4,761$  a) zu GD155 erklärbar: Während der Bestrahlung wird näherungsweise um einen Faktor 90 mehr EU155-Masse als GD155-Masse erzeugt, wobei die relative Abweichung für EU155 bei

Variation der Kühlmitteltemperatur einen Wert von etwa 1,5 % erreicht. Nach einer Abklingzeit von einem Tag beeinflusst dieser Zerfallsprozess die relative Abweichung des GD155 nur in geringem Umfang, aber nach 40 Jahren wird er dominant und führt zur Abnahme der GD155-Abweichung. Die zeitlichen Veränderungen der übrigen Nuklide fallen kleiner aus. Bemerkenswert ist auch, dass bei allen Betriebsparametervariationen die positiven Abweichungen an Anzahl und Betrag deutlich überwiegen. Das heißt, dass mehrheitlich ein größerer Wert der Betriebsparameter zu einer Zunahme der Ausbeute an Abbrandnukliden führt.

### **3.2 Untersuchungen für ein MOX-Standard-DWR-Brennelement in einer Umgebung aus UO<sub>2</sub>-Standard-DWR-Brennelementen**

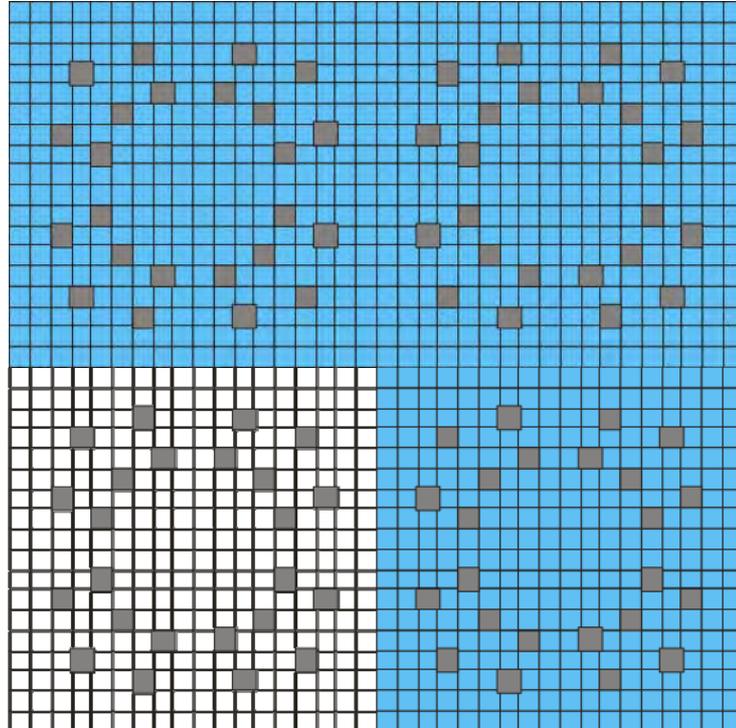
Für die Untersuchung des Einflusses von Betriebsparametern auf die für Burnup Credit Anwendungen relevanten Nuklidinventare für ein MOX-Standard-DWR-Brennelement in einer Umgebung aus UO<sub>2</sub>-Standard-DWR-Brennelementen wurden die in der folgenden Aufstellung zusammengestellten und weitgehend mit den bei den Untersuchungen für das UO<sub>2</sub>-Brennelement übereinstimmenden Randbedingungen zugrunde gelegt:

- Betrachteter Brennelementtyp: DWR 18x18-24 mit MOX-Beladung in einer Umgebung aus teilabgebrannten UO<sub>2</sub>-Brennelementen, Pelletdurchmesser 0,808 cm wegen thermischer Ausdehnung, Hüllrohrinnendurchmesser 0,822 cm, Hüllrohraußendurchmesser 0,950 cm, effektive Gitterschrittweite für Abbrandrechnungen 1.35859 cm (nach Reaktivitätsanpassung zwischen MOX- und UO<sub>2</sub>-Brennelement, vgl. Anhang).
- MOX-Brennstoff:  $Pu(\text{tot}) = Pu/(U+Pu) = 9,35 \text{ Gew\%}$  (nach Reaktivitätsanpassung zwischen MOX- und UO<sub>2</sub>-Brennelement, vgl. Anhang), Spaltwert des Plutoniums (Pu239 + Pu241) 63,9 %, Plutoniumvektor (Gew%): Pu239 50,4; Pu240 23,0; Pu241 13,5; Pu242 9,1, Trägermaterial ist abgereichertes Uran, Uranvektor (Gew%): U235 0,25; U238 99,75, Dichte MOX (g SMO<sub>2</sub>/cm<sup>3</sup>) 10,02.
- Abbrand: 40 GWd/tSM, wird berechnet in 3 Zyklen mit jeweils 330 Tagen bei konstanter Leistung (40,5 kW/kg) und 2 Nullleistungsintervallen mit jeweils 35 Tagen dazwischen.
- UO<sub>2</sub>-Brennelemente: Anfangsanreicherung 4 % U235, 537,9 kg SM, aktive Länge 391,56 cm, Abbrand 24 GWd/tSM (bleibt konstant bei Abbrand des MOX-

Brennelements), Pelletdurchmesser 0,808 cm wegen thermischer Ausdehnung, Hüllrohrinnendurchmesser 0,822 cm, Hüllrohraußendurchmesser 0,950 cm, Gitterschrittweite 1.272 cm.

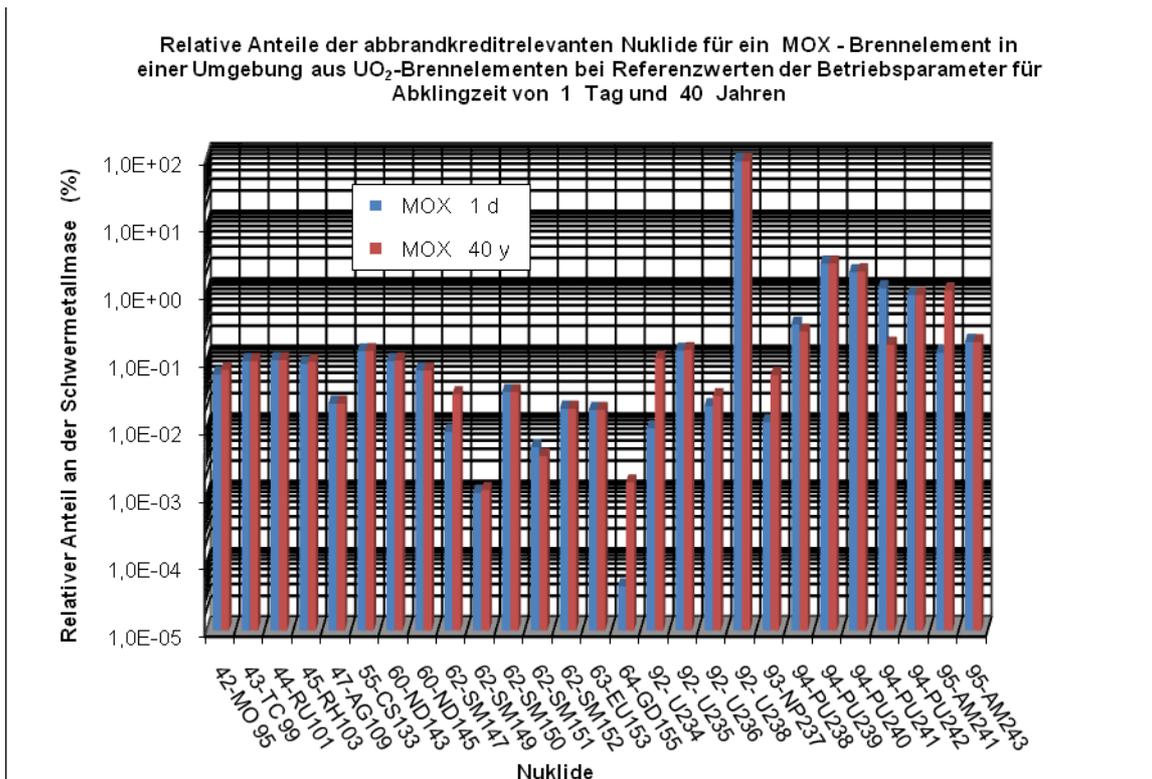
- Kühlmitteldruck: 158 bar. Bleibt unverändert.
- Kühlmitteltemperatur: Rechnungen für 290 °C, 327 °C und 309 °C (Referenzwert).
- Brennstofftemperatur: Rechnungen für 500 °C, 800 °C und 600 °C (Referenzwert). Sonst automatische Berechnung.
- Borkonzentration: Rechnungen für 400 ppm, 700 ppm und 500 ppm (Referenzwert).
- Zeitbereich von Entladung des Reaktors bis 40 a später.

Abbildung 3-4 zeigt das MOX-Brennelement in einer Umgebung aus (hier drei) teilabgebrannten (Abbrand 24 GWd/tSM) UO<sub>2</sub>-Brennelementen. Für die Rechnungen werden an den Außenrändern der Anordnung periodische Randbedingungen angenommen.



**Abb. 3-4:** MOX-Brennelement als Inselement umgeben von UO<sub>2</sub>-Brennelementen (DWR, 18x18-24)

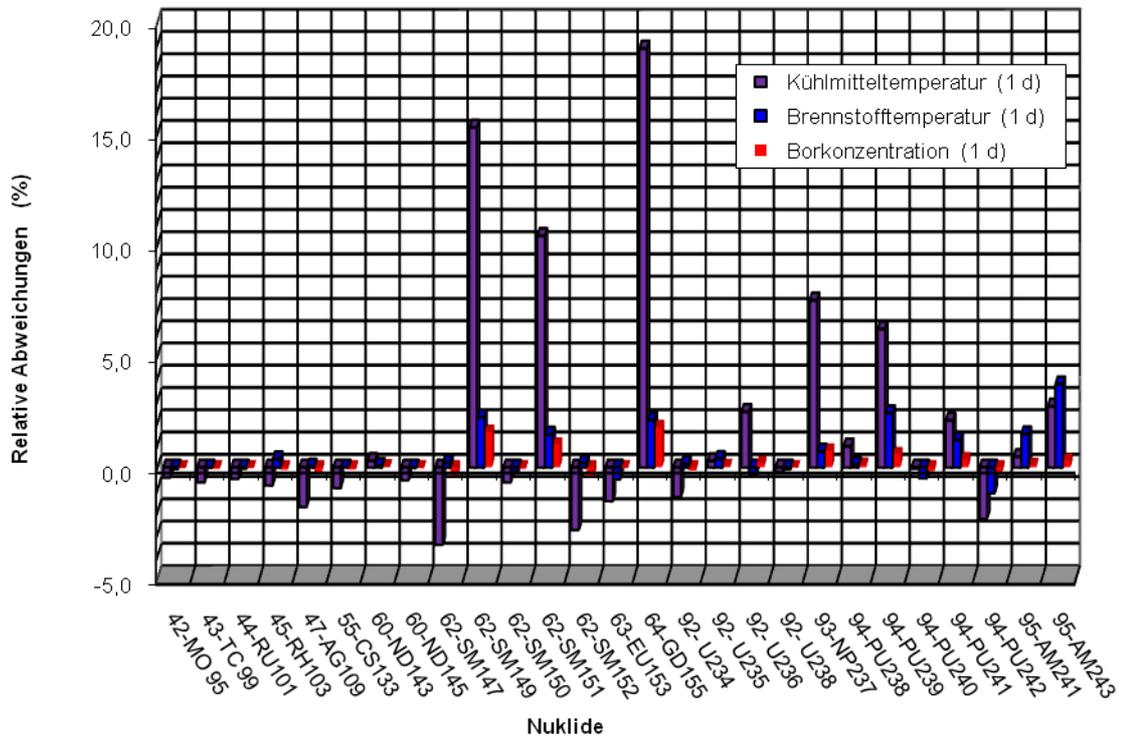
In Übereinstimmung mit der Vorgehensweise im Fall des  $\text{UO}_2$ -Brennelements wurden für die 27 ausgewählten Abbrandnuklide sowohl die relativen Anteile an der gesamten Schwermetallmasse als auch die massenbezogenen relativen Abweichungen bei Variationen der Betriebsparameter Kühlmitteltemperatur, Brennstofftemperatur und Borkonzentration für ein MOX-Brennelement in einer Umgebung aus  $\text{UO}_2$ -Brennelementen für Abklingzeiten von bis zu 40 Jahren ermittelt. Die Abbildungen 3-4, 3-5 und 3-6 zeigen die Resultate.



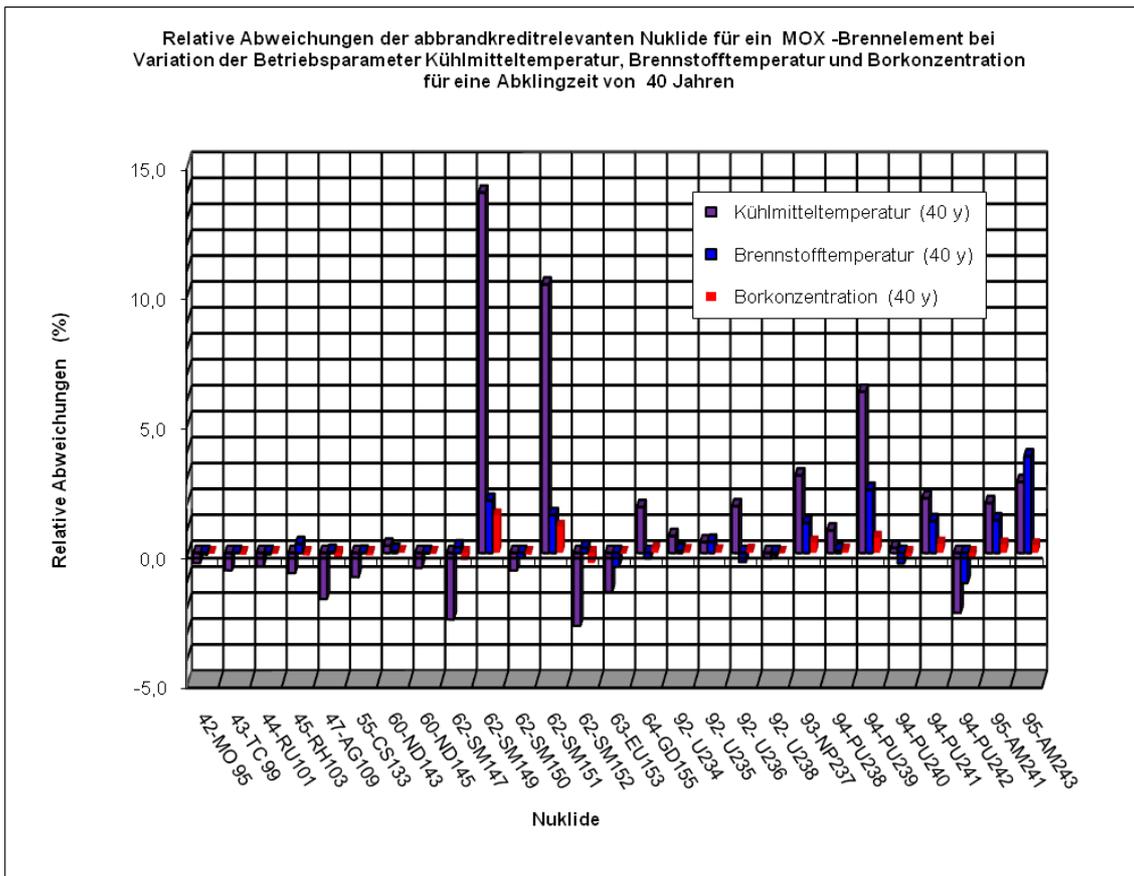
**Abb. 3-5:** Relative Anteile ausgewählter Abbrandnuklide an der gesamten Schwermetallmasse für ein MOX-Brennelement (Abbrand 40 GWd/tSM) in einer Umgebung aus teilabgebrannten  $\text{UO}_2$ -Brennelementen für Abklingzeiten von einem Tag und von 40 Jahren. Für die Betriebsparameter waren die Referenzwerte angesetzt.

Aus Abbildung 3-5 ist ersichtlich, dass die Nuklide Pu239 und Pu240, - abgesehen von den bereits im frischen Brennelement vorhandenen Nuklid U238, - die größten Anteile an der Schwermetallmasse aufweisen. Insgesamt werden mit den Abbrandnukliden nach einer Abklingzeit von einem Jahr ca. 96,55 % und nach einer Abklingzeit von 40 Jahren ca. 96,69 % der Schwermetallmasse erfasst.

Relative Abweichungen der abbrandkreditrelevanten Nuklide für ein MOX-Brennelement bei Variation der Betriebsparameter Kühlmitteltemperatur, Brennstofftemperatur und Borkonzentration für eine Abklingzeit von 1 Tag



**Abb. 3-6:** Relative massenbezogene Abweichungen der Abbrandnuklide für ein MOX-Brennelement (Abbrand 40 GWd/tSM) in einer Umgebung aus UO<sub>2</sub>-Brennelementen bei Variation der Betriebsparameter für eine Abklingzeit von einem Tag.



**Abb. 3-7:** Relative massenbezogene Abweichungen der Abbrandnuklide für ein MOX-Brennelement (Abbrand 40 GWd/tSM) in einer Umgebung aus  $UO_2$ -Brennelementen bei Variation der Betriebsparameter für eine Abklingzeit von 40 Jahren.

Aus den Abbildungen 3-6 und 3-7 ist ersichtlich, dass auch hier die größten Abweichungen der Abbrandnuklide bei der Variation des Betriebsparameters Kühlmitteltemperatur auftreten. Die Abweichungen bei der Variation der Brennstofftemperatur und der Borkonzentration fallen signifikant kleiner aus. Während bei einer Variation der Kühlmitteltemperatur mehrere Nuklide, - fünf nach einer Abklingzeit von einem Tag (SM149, SM151, GD155, NP237 und PU239) und drei nach 40 Jahren (SM149, SM151 und PU239), - Abweichungen von mehr als 5 % aufweisen, überschreitet bei Variationen der Brennstofftemperatur und der Borkonzentration kein Nuklid diesen Wert. Die größte relative Abweichung mit einem Wert von nahezu 20 % wird bei der Variation der Kühlmitteltemperatur und einer Abklingzeit von einem Tag für das Nuklid GD155 registriert; nach einer Abklingzeit von 40 Jahren sinkt dieser Wert auf weniger als 2 %. Wie bereits bei den Untersuchungen zum  $UO_2$ -Brennelement ausgeführt, wird dieser Sachverhalt durch den Zerfall von EU153 zu GD155 erklärt. Die zeitlichen Veränderungen der übrigen Nuklide fallen kleiner aus. Bei allen Variationen der Betriebsparameter übertreffen die Nuklide mit positiven Abweichungen diejenigen mit negativen

deutlich an Anzahl; zudem sind die Beträge der positiven Abweichungen im Mittel größer als diejenigen der negativen Abweichungen. Das heißt, dass, - wie im Fall des  $\text{UO}_2$ -Brennelements, - mehrheitlich ein größerer Wert der Betriebsparameter zu einer Zunahme der Ausbeute an Abbrandnukliden führt.

### **3.3 Vergleich der Abhängigkeiten von ausgewählten Abbrandnukliden bei einem MOX-Brennelement und einem $\text{UO}_2$ -Brennelement von Veränderungen der Betriebsparameter im Reaktor**

Die Abbrandnuklide in einem  $\text{UO}_2$ -Brennelement und einem MOX-Brennelement in einer Umgebung aus abgebrannten  $\text{UO}_2$ -Brennelementen zeigen im Hinblick auf die Abhängigkeit ihrer Ausbeuten von Variationen der Betriebsparameter ein sehr ähnliches Verhalten. In beiden Fällen führen Variationen des Betriebsparameters Kühlmitteltemperatur zu signifikant größeren positiven und negativen Abweichungen bei den Ausbeuten als Variationen der Betriebsparameter Brennstofftemperatur und Borkonzentration. Allerdings weisen die positiven Abweichungen bei Variationen des Betriebsparameters Kühlmitteltemperatur im Fall des  $\text{UO}_2$ -Brennelements für die Nuklide SM151, U238, PU238, PU239, PU240, PU241, AM241 und AM243 für beide untersuchten Abklingzeiten die höheren Werte aus. Die einzige diesbezügliche Ausnahme stellt das Nuklid SM149 dar; in diesem Fall besitzt die positive Abweichung für das MOX-Brennelement den höheren Wert. Bei den negativen Abweichungen der Ausbeuten treten keine vergleichbar großen Unterschiede auf.

Die großen Abweichungen bei den Ausbeuten der Abbrandnuklide bei der Variation des Betriebsparameters Kühlmitteltemperatur sowohl beim  $\text{UO}_2$ - als auch beim MOX-Brennelement sind mit Veränderungen des Neutronenspektrums im Reaktor erklärbar. Eine Erhöhung der Kühlmitteltemperatur führt zur Reduzierung der Kühlmitteldichte und damit zur Verringerung des Moderationsverhältnisses, wodurch das Neutronenspektrum „verhärtet“ wird. Umgekehrt verursacht eine Absenkung der Kühlmitteltemperatur eine Vergrößerung des Moderationsverhältnisses, wodurch das Neutronenspektrum „aufgeweicht“ wird. Die auf diese Weise modifizierten Neutronenspektren verursachen die Abweichungen in den Ausbeuten der Abbrandnuklide.

## 4 Methoden zur Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse

Neben Unsicherheiten in den Betriebsparametern, deren Einfluss in Kapitel 3 untersucht wurde, sollten auch Unsicherheiten in den nuklearen Daten in den Berechnungsketten berücksichtigt werden. Zur Beschreibung der Unsicherheiten in den nuklearen Daten sind zusammen mit den Erwartungswerten („Wirkungsquerschnitten“) auch die Varianzen und deren Korrelationen in den sog. Kovarianzmatrizen verfügbar. Bisher wurden diese hauptsächlich zur Bestimmung des Einflusses auf den Multiplikationsfaktor bei der Kritikalitätssicherheit verwendet. Dabei kommen meist Rechenprogramme zum Einsatz, die auf der Propagation der Unsicherheiten durch die Berechnungskette mittels Störungstheorie erster Ordnung beruhen, wie die Codes TSUNAMI („Tools for Sensitivity and Uncertainty Analysis Methodology“) aus dem SCALE-Programmsystem /SCA 06/ und SUS3D /KOD 01/. Es ist jedoch notwendig, den Einfluss der Unsicherheiten auf alle Ergebnisgrößen, wie z. B. die Nukliddichten bestrahlter Brennelemente, zu bestimmen. Dazu wurde begonnen, das in der GRS entwickelte Programmsystem SUSA („Software for Uncertainty and Sensitivity Analysis“) /HOF 93/ zu verwenden.

### 4.1 Unsicherheitsanalysen für Reaktivitätsberechnungen mit TSUNAMI

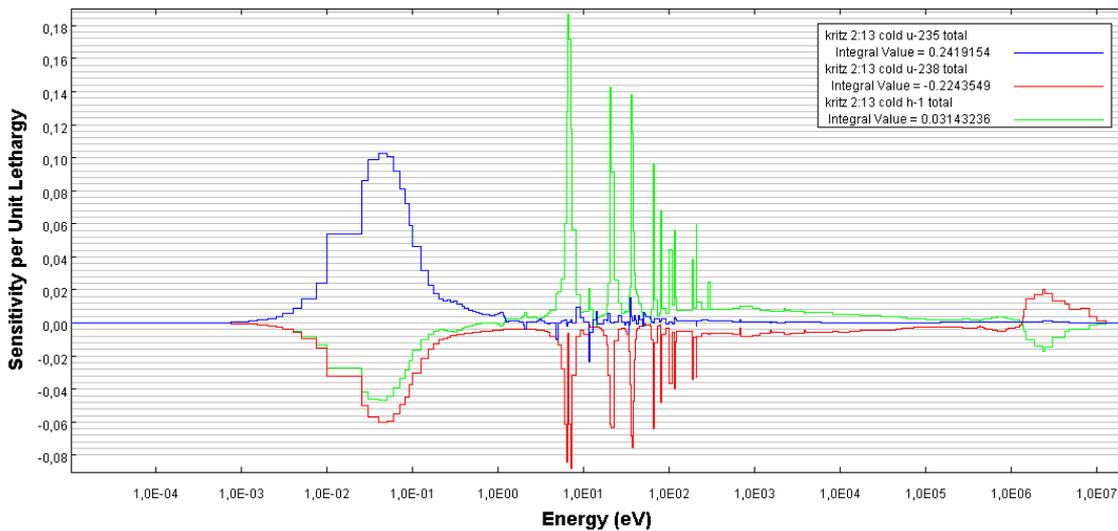
Obwohl in SCALE bis zur aktuellen Version SCALE-6 keine Möglichkeit vorgesehen ist, Unsicherheiten in den nuklearen Daten durch die Kette der Abbrandberechnung zu propagieren, und sich die Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse mit TSUNAMI im wesentlichen auf den Multiplikationsfaktor beschränkt, kann TSUNAMI dennoch für Vergleichsrechnungen zur Validierung erweiterter Analysemethoden herangezogen werden. Zusätzlich lässt sich mit Hilfe von TSUNAMI-Ergebnissen abschätzen, welche Nuklide und Reaktionen für eine bestimmte Anordnung, zumindest für die Kritikalität, von Bedeutung sind; diese Information kann bei der Verwendung anderer Methoden wie SUSA nützlich sein.

TSUNAMI verwendet Störungstheorie erster Ordnung, um die Sensitivitäten des berechneten Multiplikationsfaktors einer Anordnung auf die nuklearen Daten zu ermitteln. Dazu sind die direkte und die adjungierte Lösung der Transportgleichung erforderlich. Durch Multiplikation der Sensitivitäten mit den relativen Kovarianzen der nuklearen Daten werden die Beiträge aus den einzelnen Nukliden und Reaktionen zur Unsicherheit im Multiplikationsfaktor bestimmt. Mittels TSUNAMI-IP ist auch der Vergleich

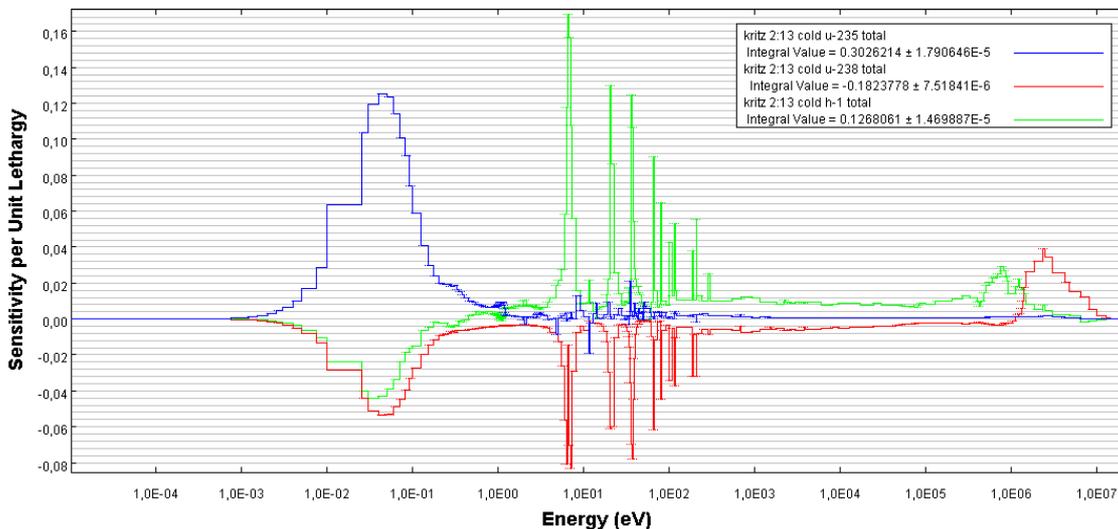
zweier oder mehrerer multiplikativer Systeme hinsichtlich ihrer Ähnlichkeit in Bezug auf S/U-Parameter und damit neutronischer Eigenschaften möglich. Neben den hier vorgestellten Arbeiten wird TSUNAMI in der GRS auch im Rahmen der Validierung von Kritikalitätssicherheitsanalysen eingesetzt. Seit SCALE-6 ist zusätzlich eine Auswertungsmethode zur Bestimmung von Unsicherheiten in Reaktivitätsdifferenzen verfügbar (TSAR – „Tool for Sensitivity Analysis of Reactivity Responses“). Eine Erweiterung des störungstheoretischen Ansatzes zur Bestimmung des Einflusses auf Ergebnisgrößen, die über den Multiplikationsfaktor hinausgehen, wie Reaktionsraten, ist in Vorbereitung /JES 09/. Zusätzlich ist mit TSURFER ein weiteres Modul für S/U-Analysen in SCALE 6 verfügbar. TSURFER bedient sich der GLLSM (Generalized linear least-squared method), um anhand einer Reihe von Benchmark-Experimenten die Unsicherheit einer Modellrechnung anzugeben. Das Modul berechnet anhand der durch den Benutzer angegebenen Benchmark-Experimente und den dazugehörigen, von TSUNAMI errechneten Sensitivitätsprofilen einen Wirkungsquerschnittsdatensatz, der den Unterschied zwischen Experiment und Modell im Rahmen der Unsicherheit der ursprünglichen Daten minimiert. Mit diesen neuen sowie mit den ursprünglichen Daten wird dann eine Rechnung für den Anwendungsfall durchgeführt und die Differenz dieser Rechnung ist der Fehler des Modells. Die Modellrechnung mit den neuen Daten wird also wie ein Datenpunkt des nicht vorhandenen Experiments für den Anwendungsfall behandelt.

TSUNAMI ist im Programmsystem SCALE seit der Version SCALE-5 integriert und wurde seither bei der GRS laufend erprobt und zur Unsicherheitsanalyse in der Kritikalitätssicherheit eingesetzt. Die hier vorgestellten Berechnungen wurden mit der neuesten Version SCALE-6 durchgeführt, die überarbeitete Kovarianzdaten und nukleare Daten auf der Basis von ENDF/B-VII beinhaltet. Berechnet wurden eine Stabzelle und eine kritische Anordnung der KRITZ-2-Experimente /JOH 90/ mit Uranbrennstoff, und zwar die Anordnung 2:13 (kalt). Dabei handelt es sich um ein quadratisches Gitter mit 40x40 wassermoderierten und -reflektierten LEU-Brennstäben bei Raumtemperatur; eine genauere Beschreibung findet sich in /ZWE 08/. Diese Anordnungen sind auch Bestandteil der Aufgaben, die im Rahmen des UAM-Benchmarks bearbeitet werden sollen. Die Stabzelle wurde mit TSUNAMI-1D berechnet, bei dem für die Transportrechnung das eindimensionale  $S_N$ -Programm XSDRN für die zylindrisierte Zelle angewendet wird, und die kritische Anordnung mit TSUNAMI-3D, bei dem das Monte-Carlo-Programm KENO zum Einsatz kommt; alle Berechnungen wurden mit Multigruppendaten mit 238 Energiegruppen auf der Basis von ENDF/B-VII durchgeführt.

In Abb. 4-1 und 4-2 sind für die Stabzelle und die kritische Anordnung die energieabhängigen Sensitivitäten der Multiplikationsfaktoren auf die wichtigsten Nuklide  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  und  $^1\text{H}$  dargestellt. Für die Unsicherheit in den Multiplikationsfaktoren sind nicht nur diese Sensitivitäten, sondern auch die Größen der Kovarianzdaten in den wichtigen Energiebereichen maßgeblich.



**Abb. 4-1:** Sensitivitäten des Multiplikationsfaktors auf die wichtigsten Nuklide als Funktion der Neutronenenergie für die KRITZ-2:13-Stabzelle.



**Abb. 4-2:** Sensitivitäten des Multiplikationsfaktors auf die wichtigsten Nuklide als Funktion der Neutronenenergie für die kritische Anordnung KRITZ-2:13.

In Tabelle 4-1 sind nennenswerte Beiträge ( $> 10^{-2}$ ) zur Unsicherheit des Multiplikationsfaktors für die KRITZ-2:13-Stabzelle aus den Kovarianzdaten der einzelnen Reaktionen einzelner Nuklide aufgelistet. Daraus wird ersichtlich, dass die Beiträge wesentlich aus

dem Neutroneneinfang (n, gamma) an  $^{238}\text{U}$  sowie Einfang, Spaltung (fission) und mittlerer Zahl von Neutronen pro Spaltung (nubar) von  $^{235}\text{U}$  stammen. Einfang und elastische Streuung am Wasserstoff sind trotz der hohen Sensitivität (siehe Abb. 4.1) nur von untergeordneter Bedeutung.

**Tabelle 4-1:** Beiträge zur Unsicherheit des Multiplikationsfaktors (%  $\Delta k/k$ ) für die KRITZ-2:13-Stabzelle aus den Kovarianzdaten der einzelnen Reaktionen einzelner Nuklide.

|                |                |           |
|----------------|----------------|-----------|
| 238U - n,gamma | 238U - n,gamma | 3,64E-01  |
| 235U - nubar   | 235U - nubar   | 2,83E-01  |
| 235U - n,gamma | 235U - n,gamma | 1,60E-01  |
| 235U - fission | 235U - n,gamma | 1,22E-01  |
| 235U - fission | 235U - fission | 1,19E-01  |
| 238U - n,n'    | 238U - n,n'    | 1,01E-01  |
| 235U - chi     | 235U - chi     | 9,45E-02  |
| 238U - nubar   | 238U - nubar   | 6,77E-02  |
| 1H - n,gamma   | 1H - n,gamma   | 5,36E-02  |
| 92Zr - n,gamma | 92Zr - n,gamma | 4,20E-02  |
| 91Zr - n,gamma | 91Zr - n,gamma | 3,24E-02  |
| 90Zr - n,gamma | 90Zr - n,gamma | 2,73E-02  |
| 1H - elastic   | 1H - elastic   | 2,48E-02  |
| 238U - elastic | 238U - elastic | 1,89E-02  |
| 238U - fission | 238U - fission | 1,61E-02  |
| 238U - n,2n    | 238U - n,2n    | 1,44E-02  |
| 238U - elastic | 238U - n,gamma | -1,07E-02 |
| 238U - elastic | 238U - n,n'    | -1,05E-02 |

Untersuchungen im Rahmen anderer, in der GRS laufender Arbeiten zeigen, dass Ergebnisse und Werte, wie sie in den Abbildungen 4-1 und 4-2 sowie Tabelle 4-1 aufgezeigt sind, für wassermoderierte Urandioxidstäbe als typisch anzusehen sind.

#### 4.2 Unsicherheitsanalysen mit der GRS/SUSA-Methode

Die Nachteile der TSUNAMI-Berechnungsketten bestehen (noch) in einer Beschränkung auf die Unsicherheit im Multiplikationsfaktor in Kritikalitätsrechnungen, und der Annahme, dass die relativen Unsicherheiten nicht zu groß sind, so dass lineare Störungstheorie verwendet werden kann. Diese Beschränkungen sind bei der Anwendung der GRS-Methode mit dem Programmsystem SUSA nicht vorhanden. Die

einzelnen Schritte der Berechnungskette im Zusammenhang mit nuklearen Daten und Kovarianzdaten bestehen hier im Wesentlichen aus

- Erzeugung einer großen Anzahl (typischerweise > 100) zufälliger Variationen der nuklearen Daten anhand der Kovarianzdaten
- Durchführung der Anwendungsrechnung mit den entsprechend variierten nuklearen Daten
- Statistische Auswertung der Ergebnisse der Anwendungsrechnungen zur Ermittlung der Unsicherheiten und deren Beiträgen aus den Nukliden und Reaktionen

Dieser allgemeinen Anwendbarkeit steht offensichtlich ein durch die Vielzahl der Rechenläufe hoher Bedarf an CPU-Zeit gegenüber; diese Limitierung wird aber durch die ständig steigende Leistungsfähigkeit und Verfügbarkeit von Rechnerressourcen entschärft.

Die allgemeinen Entwicklungsarbeiten zur Anwendung des SUSA-Programmpakets werden im Rahmen des BMWi-Vorhabens RS1183 durchgeführt. Die bisherigen Ergebnisse wurden dazu verwendet, eine erste Unsicherheitsanalyse für die KRITZ-2:13-Stabzelle bezüglich des Multiplikationsfaktors durchzuführen und mit den TSUNAMI-Ergebnissen zu vergleichen. Die Berechnungen wurden, analog zu TSUNAMI-1D, mit dem eindimensionalen  $S_N$ -Code XSDRN und den Kovarianzdaten aus SCALE-6 durchgeführt. Im Unterschied zu den TSUNAMI-Berechnungen wurden nukleare Daten in 44 Energiegruppen auf der Basis von ENDF/B-V verwendet. Dies liegt an der Übereinstimmung der Energiegruppenstruktur dieser Daten mit den Kovarianzmatrizen; diese Übereinstimmung ist für die Verwendung von SUSA mit nuklearen Kovarianzdaten in der gegenwärtigen Form Voraussetzung.

Da es zum gegenwärtigen Entwicklungsstand noch nötig ist, die Anzahl der berücksichtigten Unsicherheitsdaten zu reduzieren, wurden zur Orientierung über die Wichtigkeit von Nukliden und Reaktionen die TSUNAMI-Ergebnisse aus Tabelle 4-1 herangezogen. Schließlich wurden die vier wichtigsten Beiträge, Einfangquerschnitt von  $^{238}\text{U}$ , Anzahl von Neutronen pro Spaltung, Einfangquerschnitt und Spaltquerschnitt von  $^{235}\text{U}$  sowie deren Korrelation berücksichtigt.

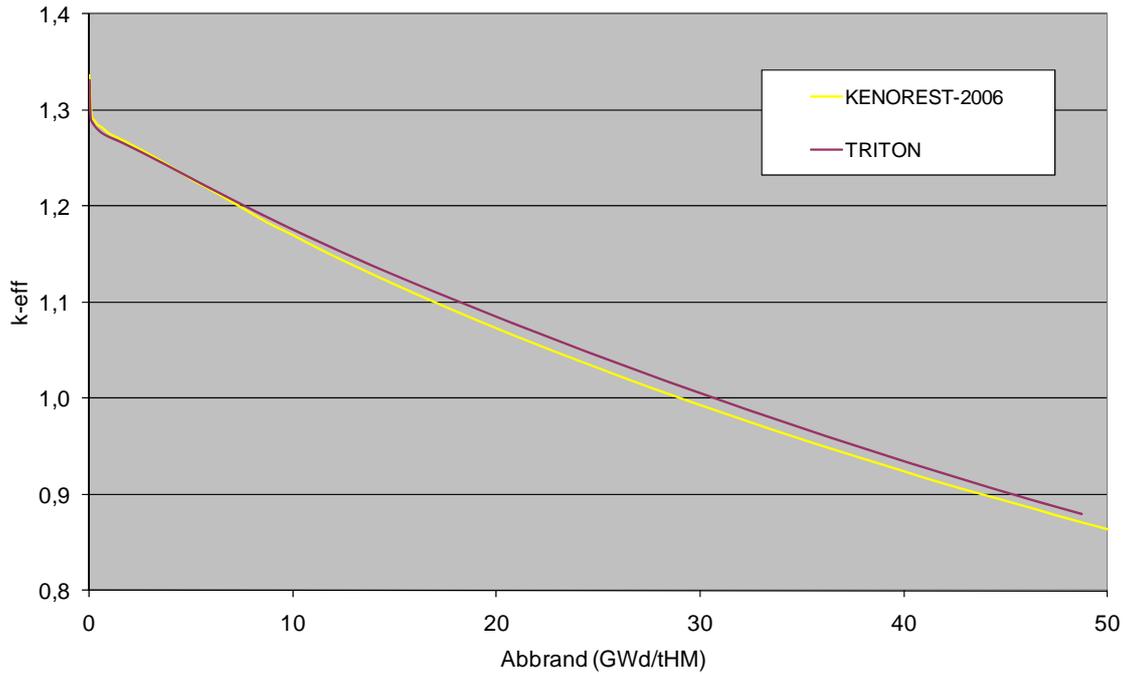
In Tabelle 4-2 werden die Ergebnisse der Berechnungen mit TSUNAMI und XSDRN/SUSA verglichen. Dabei wurden 150 XSDRN-Rechenläufe mit variierten nuklearen Daten durchgeführt und ausgewertet. Der Unterschied in den Referenzwerten des Multiplikationsfaktors (mit nicht variierten nuklearen Daten) zwischen TSUNAMI und XSDRN/SUSA ergibt sich aus den unterschiedlichen Basisdaten (238 Gruppen ENDF/B-VII für TSUNAMI, 44 Gruppen ENDF/B-V für XSDRN/SUSA). Für die relative Unsicherheit im Multiplikationsfaktor ergibt sich ausgezeichnete Übereinstimmung.

**Tabelle 4-2:** Multiplikationsfaktor und relative Unsicherheit (%  $\Delta k/k$ ) für die KRITZ-2:13-Stabzelle aus den Kovarianzdaten von  $^{235}\text{U}$  und  $^{238}\text{U}$  n,  $\gamma$ .

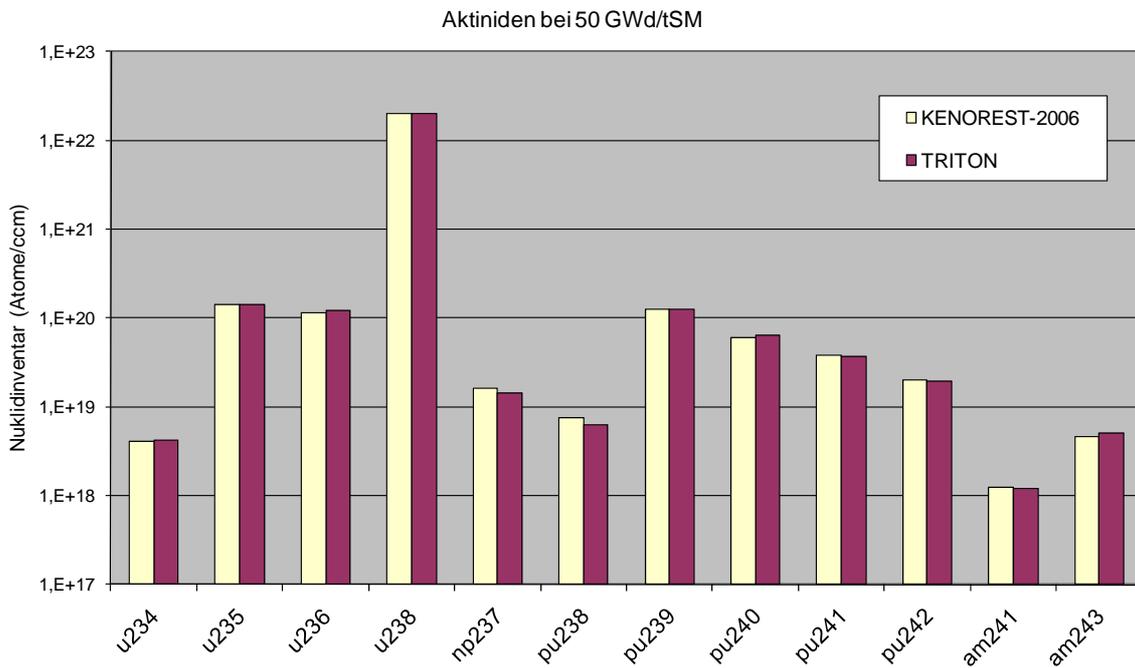
|                    | TSUNAMI | XSDRN/SUSA |
|--------------------|---------|------------|
| k-eff – Referenz   | 1.2651  | 1.2624     |
| k-eff – Mittelwert | -       | 1.2624     |
| $\Delta k/k$       | 0.546 % | 0.538 %    |

### 4.3 Abbrandberechnungen mit TRITON

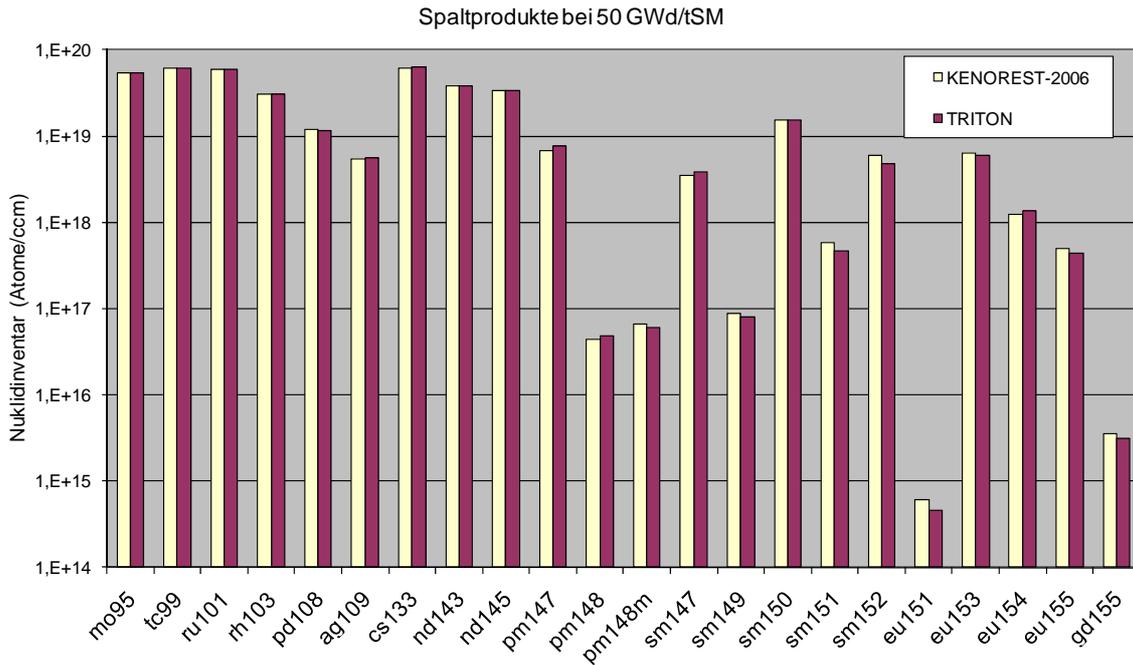
Für zukünftige Abbrandrechnungen ist geplant, Unsicherheitsanalysen bezüglich der Multiplikationsfaktoren, Nuklidinventare und anderer relevanter Größen durchzuführen. Als Abbrandprogramme sind die GRS-Codes KENOREST und DORTOREST, sowie der Code TRITON aus dem SCALE-Programmsystem vorgesehen. Die Berechnungen mit TRITON haben dabei den technischen Vorteil, dass die Energiegruppenstrukturen der nuklearen Datenbibliotheken mit der 44-Gruppen-Struktur der Kovarianzmatrizen kompatibel sind, d. h. die Gruppengrenzen der 44-Gruppen-Struktur sind auch z. B. in der 238-Gruppen-Struktur vorhanden, so dass sich die 238-Gruppen-Daten problemlos auf 44 Gruppen reduzieren lassen.



**Abb. 4-3:** Multiplikationsfaktor für ein Standard-18x18-DWR-Uran-Brennelement als Funktion des Abbrands, berechnet mit KENOREST und TRITON.



**Abb. 4-4:** Aktinideninventare für ein Standard-18x18-DWR-Uran-Brennelement nach 50 GWd/t Schwermetall, berechnet mit KENOREST und TRITON.



**Abb. 4-5:** Spaltproduktinventare für ein Standard-18x18-DWR-Uran-Brennelement nach 50 GWd/t Schwermetall, berechnet mit KENOREST und TRITON.

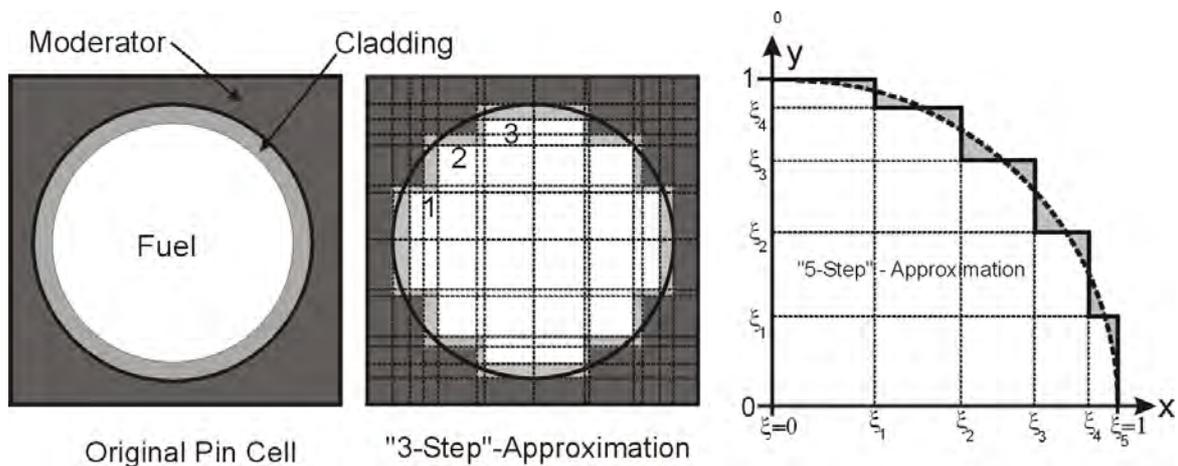
Zur Überprüfung der TRITON-Berechnungskette wurden Abbrandberechnungen mit der neuesten Version aus SCALE-6 mit 238-Gruppen-Daten auf der Basis von ENDF/B-VII durchgeführt. In Abb. 4-3 – 4-5 werden Ergebnisse von Abbrandberechnungen für ein 18x18-DWR-Uran-Brennelement ohne Gadolinium-Stäbe mit den Ergebnissen einer entsprechenden Berechnung mit KENOREST-2006 verglichen. Abbildung 4-3 zeigt die berechneten Multiplikationsfaktoren als Funktion des Abbrands. Die Übereinstimmung ist insgesamt zufriedenstellend, allerdings ist bei mittleren Abbränden ein Unterschied von ca. 0.01 zu erkennen. Die berechneten Nukliddichten für Aktiniden und Spaltprodukte bei einem Abbrand von 50 GWd/t Schwermetall, die in Abb. 4-4 und 4-5 dargestellt sind, stimmen sehr gut miteinander überein; die größten Unterschiede ergeben sich bei  $^{151}\text{Sm}$  und  $^{152}\text{Sm}$  mit ca. 20 %, und bei  $^{151}\text{Eu}$  mit ca. 25 % relativer Abweichung.

## **5 Integration des deterministischen Transportcodes DORT in die Abbrandrechnung**

Die Arbeiten zur Integration von DORT in das KENOREST-Codesystem wurden ursprünglich durch die Teilnahme der GRS am C5G7-Benchmark /NEA 03/ inspiriert, in dessen Rahmen die Fähigkeiten moderner Neutronentransportcodes überprüft werden sollten, typische LWR-Stabgitter auch ohne die übliche räumliche Stabzellhomogenisierungs-Prozedur behandeln zu können. Im Rahmen dieser Arbeiten wurden vereinfachte Eingabeoptionen für den DORT-Code in Form eines Input-Präprozessors sowie verschiedene Wirkungsquerschnittskondensations- und Homogenisierungsmodule implementiert. In /PAU 04/ wurden erste Resultate präsentiert, mit denen gezeigt werden konnte, dass DORT trotz seiner Beschränkung auf reguläre (d. h. in diesem Fall kartesische) Gitter durchaus in der Lage ist, LWR-Stabgitter hinreichend genau zu modellieren. Durch die guten Ergebnisse im C5G7-Benchmark und weitere Benchmarkaktivitäten ermutigt, wurde damals beschlossen, DORT auch als alternativen Transportlöser in das KENOREST-System zu implementieren und damit einen neuen Spektralcode („Lattice Code“) DORTOREST ins Leben zu rufen. Als Startpunkt für die Verifikation und Validierung eines solchen Systems wurden zwei Benchmarks aus der OECD-Serie „Physics of Plutonium Recycling“ gewählt /NEA 95, NEA 03/, wobei der erste sich mit dem Voideffekt in DWR-Gittern, der zweite mit der Berechnung eines komplexen SWR-ATRIUM10-Brennelements bei unterschiedlichen Voidanteilen beschäftigte. Der DORT-Stabgittermodus wurde außerdem an einer Reihe weiterer experimenteller Benchmarks und Code-zu-Code-Vergleichen /PAU 05, TIM 06/ validiert. Darüber hinaus wurde DORT um die Möglichkeit zur Erstellung homogener und kondensierter Wirkungsquerschnitte (auf Brennelement- und Stabzelebene) erweitert, die z. B. zur Generierung von Querschnitten für nachgelagerte 3D-nodale oder „Pin-by-Pin“-Ganzkernrechnungen dienen kann. Zu diesem Zweck wurde auch ein sog. SPH-Algorithmus ergänzt /PAU 06/, mit dem die Reaktionsratenerhaltung bei stabzellweiser Homogenisierung entscheidend verbessert werden kann.

Die Verwendung von DORT als zusätzliche Transportlöseroption im KENOREST-System bietet einige Vorteile. Während DORT zwar im Gegensatz zu KENO auf 2D-Geometrien beschränkt ist und reguläre Maschengitter benötigt, ist die von DORT generierte Fluss- und Spaltratenverteilung frei von jenen statistischen Unsicherheiten, die in Monte-Carlo-Verfahren stets inhärent vorhanden sind. Durch das hervorragende Konvergenzverhalten können mit DORT hochgradig auskonvergierte Flussverteilungen

erzeugt werden, die ausgezeichnet zur Kondensierung und Homogenisierung von Wirkungsquerschnitten auf komplexen Geometrien geeignet sind. Dabei sind der Wahl der Diskrete-Ordinaten-Ordnung ( $S_N$ ) und der Streuordnung ( $P_N$ ) prinzipiell keine Grenzen gesetzt. Außerdem können durch die Verwendung der identischen Multi-gruppen-Querschnittsbasis für DORT und KENO im KENOEST-System direkte Eins-zu-eins-Vergleiche zwischen dem deterministischen und dem statistischen Transportansatz durchgeführt werden, wodurch eine zusätzliche Codeverifikation des DORT-Transportmoduls für Stabgitter gegeben ist.



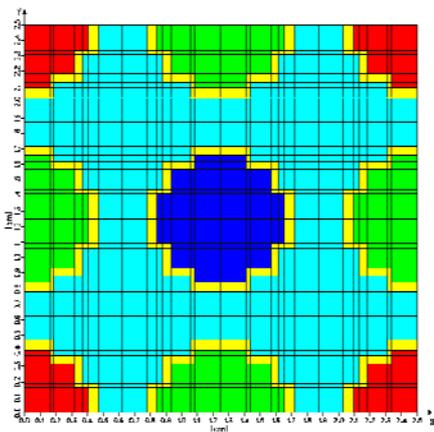
**Abb. 5-1:** links: originale Stabzellgeometrie. Mitte: eine Approximation der Stabzelle durch eine 3-stufige Treppenfunktion. Rechts: Darstellung des Minimierungsprinzips zur Ermittlung der „Treppenstufen“-Koordinaten anhand einer 5-stufigen Treppenfunktion.

## 5.1 Die Modellierung von LWR-Stabgittern mit DORT

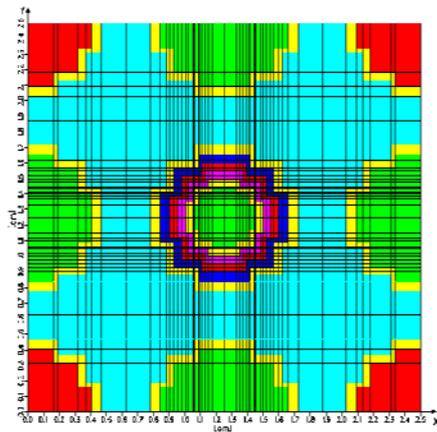
Um LWR-Stabgitter mit DORT korrekt zu modellieren, muss ein Weg gefunden werden, die kreisförmigen Stabstrukturen innerhalb einer quadratischen Stabanordnung durch ein kartesisches Gitter hinreichend genau zu approximieren. In einem solchen Modell müssen die kreisförmigen Stabkonturen durch eine Treppenfunktion angenähert werden, die sowohl Hüllrohr, Pellet als auch den Gasspalt im Brennstab beschreibt. Das Prinzip dieser Darstellung ist in Abb. 5-1 gezeigt, in der eine Brennstabstruktur durch eine 3- bzw. 5-stufige Treppenfunktion angenähert wird. Die Wahl der Stufenkoordinaten wird unter der Randbedingung strikter Volumenerhaltung so gewählt, dass die geometrischen „Abstände“ zwischen Kreis und Treppenfunktion minimal werden. Dieser Ansatz führt zu einem Funktional das leicht minimiert werden kann und die gewünschten Koordinaten liefert. Um den Aufwand für die Erzeugung der Koordinaten möglichst gering zu halten und weitgehend den Anwender davon zu ent-

lasten, wurde ein spezieller Inputprozessor für DORT entwickelt, mit dem auch komplexe Strukturen wie Multiring-Zonen für die Darstellung von Gadolinium-Stäben oder überlagerte rechteckige Strukturelemente wie Wasserkästen oder Wasserkanäle in SWR-Brennelementen generiert werden können. Damit verfügt DORT prinzipiell über alle wesentlichen Geometrieoptionen, die heutzutage für die Simulation auch komplexer Brennelementdesigns benötigt werden. Beispiele für solche komplexen geometrischen Strukturen sind in Abb. 5-2 gezeigt.

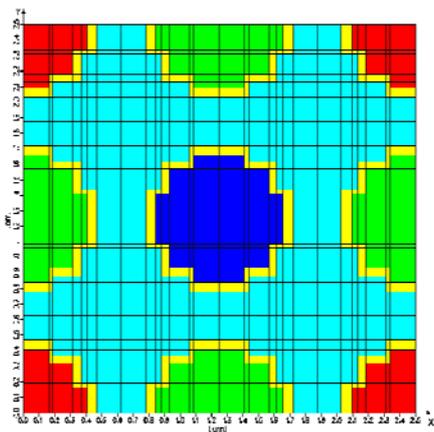
**3-step Approximation with Cladding**



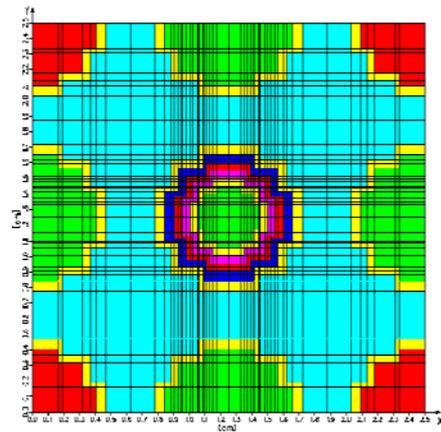
**3-step Approximation with Multi-Region in one Rod**



**3-step Approximation with Cladding**



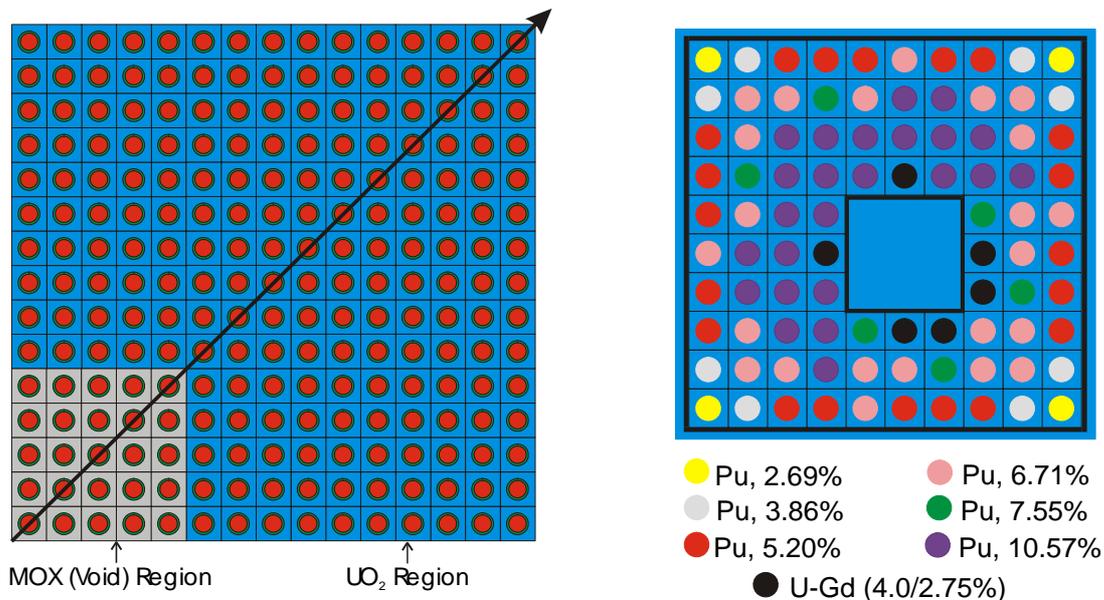
**3-step Approximation with Multi-Region in one Rod**



**Abb. 5-2:** Beispiel für die Diskretisierung einer Stabzell-Geometrie mit Hüllrohr-Repräsentation (links) und Multizonen-Darstellung, z. B. für die Gadolinium-Behandlung (rechts). In beiden Fällen wurde eine 3-stufige Treppenfunktion verwendet.

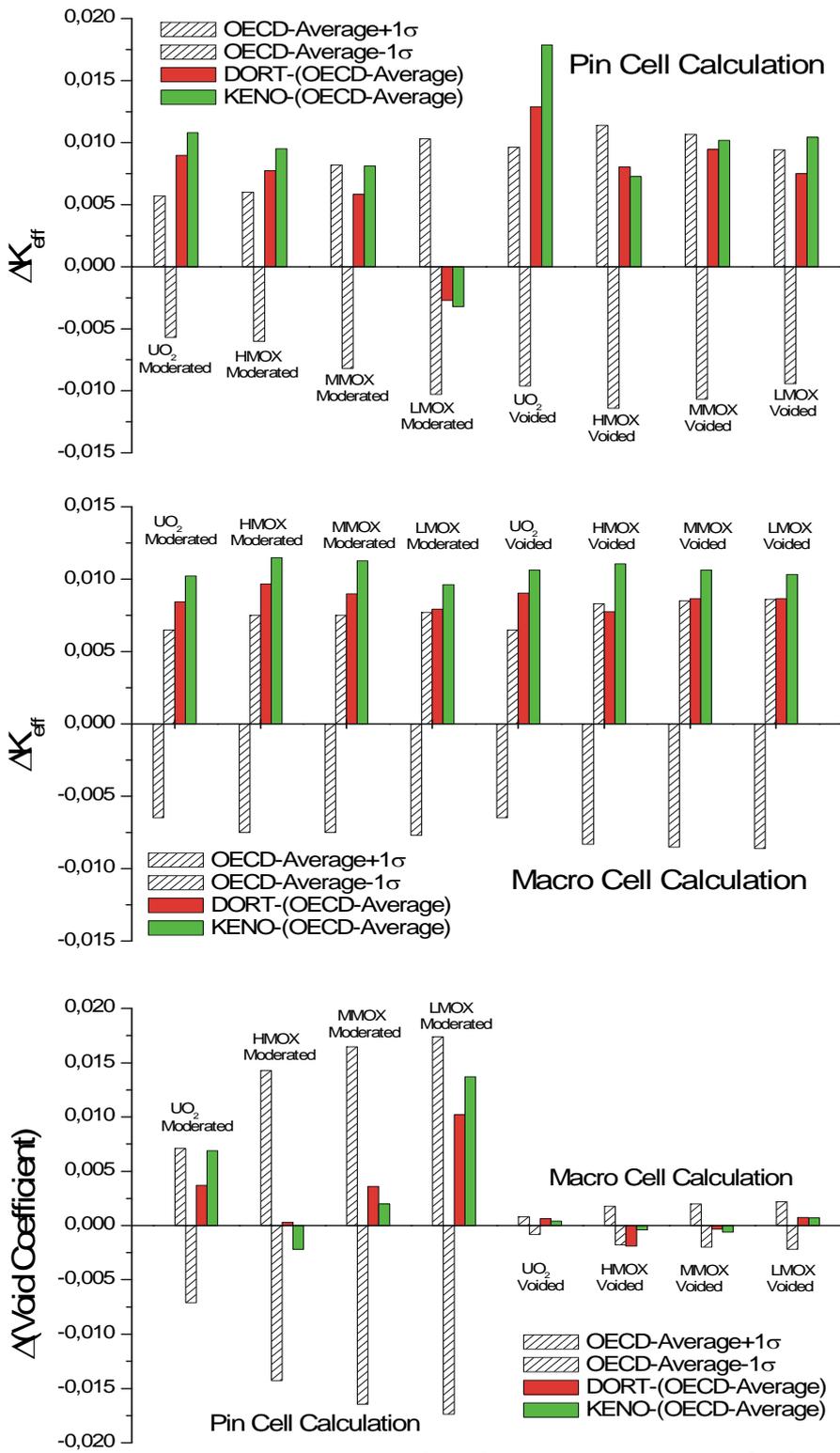
## 5.2 Vergleiche zwischen DORT- und KENO-Transportlösungen

Im Zuge der Arbeiten zu KENOREST/DORTOREST wurden umfangreiche Verifikations- und Validierungsarbeiten durchgeführt, die die Qualifikation des DORT-Stabzellmodus untermauern sollten. Dazu wurde die erweiterte DORT-Version (die sowohl den dedizierten Input-Prozessor, die unterschiedlichen Module zur Querschnittserzeugung als auch das SPH-Modul umfasst) in das KENOREST-Programmsystem derart implementiert, dass gewissermaßen das KENO-Verhalten imitiert wird. Dies wurde durch eine weitgehende Harmonisierung des DORT-Inputs und Outputs mit dem KENO-Input und Output erreicht. Dadurch kann DORT innerhalb KENOREST gewissermaßen den KENO-Transportlöser ersetzen oder parallel dazu ablaufen, letzteres wenn z. B. direkte Vergleiche zwischen beiden Lösern gewünscht sind.



**Abb. 5-3:** links: Die Benchmark-Geometrie des DWR-30x30-Brennstabgitters zum Studium von Voideffekten in DWR. Rechts: Die Geometrie des SWRMOX (ATRIUM-10) Benchmarks.

Um die Kompatibilität von DORT- und KENO-Ergebnissen zu überprüfen, wurden zunächst zwei Rechenfälle aus den OECD-Benchmarks zum Plutonium-Recycling untersucht, die in Abb. 5-3 dargestellt sind /NEA 95, NEA 03/. Dabei handelt es sich zum einen um ein modellhaftes 30x30-DWR-Brennstabgitter aus Uran- und MOX-Stäben mit verschiedenen Anreicherungen (LMOX, MMOX und HMOX; aufgrund der Achsensymmetrie des Problems ist in Abb. 5-3 nur ein 15x15-Gitter dargestellt).



**Abb. 5-4:** Abweichungen von KENOREST-Ergebnissen vom OECD30X-Benchmarkdurchschnitt /NEA 95/. Oben: Eigenwertabweichungen für die einzelne Stabzelle. Mitte: Eigenwertabweichungen für die Makrozelle. Unten: Abweichungen der Voidkoeffizienten für Stab- und Makrozelle im Vergleich zum Benchmarkdurchschnitt.

Die zentrale 10x10-Zone besteht aus MOX-Brennstäben und wird unter verschiedenen Void-Zuständen (0% und 100% Void) betrachtet. Der zweite Testfall ist ein SWR-

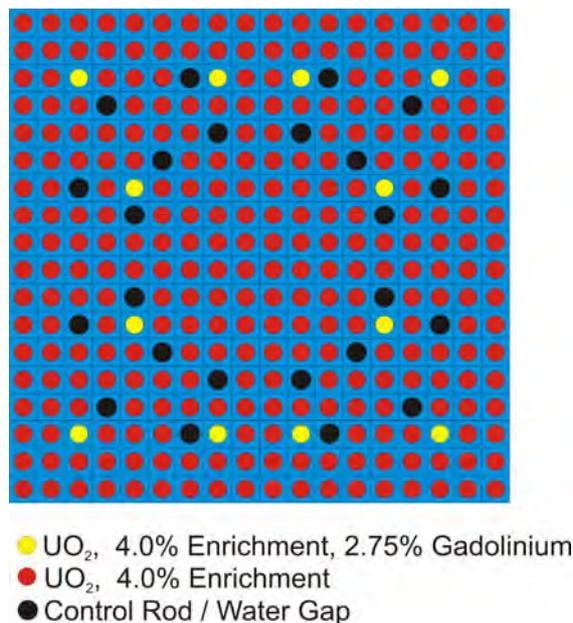
ATRIUM10-Brennelement, wie es z. B. in deutschen Siedewasserreaktoren eingesetzt wird. Seine Besonderheit ist die Verwendung mehrerer unterschiedlicher MOX-Anreicherungen, der Einsatz von Gadolinium zur Glättung der Leistungsverteilung sowie die interne Wasserstruktur (Atriumkanal). In Abb. 5-4 (oben) sind für den DWR-Benchmark (sowohl für den ungevoideten als auch den gevoideten Zustand der inneren MOX-Brennstoffzone) die Abweichungen zwischen den Eigenwerten von DORT und KENO aufgetragen, jeweils mit dem  $1\sigma$ -Intervall, dass sich aus der Auswertung aller Benchmarklösungen ergibt. Man erkennt, dass die DORT- und KENO-Ergebnisse sowohl für die einzelne Pinzelle als auch für die 30x30-Makrozelle in recht guter Übereinstimmung sind, wobei allerdings der KENO-Eigenwert den DORT-Eigenwert systematisch um ca. 100-300 pcm überschätzt. Dieser Effekt ist den Autoren wohlbekannt und wurde auch in anderen Veröffentlichungen anderer Institutionen häufig beobachtet; weitere Untersuchungen zur Ursache dieses Effekts sind geplant. Daneben ist festzuhalten, dass sowohl KENO als auch DORT den Benchmark-Durchschnittswert systematisch überschätzen; dies ist vermutlich auf die Verwendung der JEF2.2-Querschnittsbasis zurückzuführen, die im zu RS1169 geplanten Nachfolgeprojekt durch eine JEFF3.1-basierte Datenbasis ersetzt werden soll. Trotz dieser Inkonsistenzen ist aber die wesentliche sicherheitsrelevante Rechengröße, nämlich der Voideffekt, für alle Konfigurationen in sehr guter Übereinstimmung mit dem Benchmark-Durchschnitt, wie in Abb. 5-4 (unten) zu erkennen ist.

**Tabelle 5-1:** Vergleich von Eigenwerten und Peaking-Faktoren für unterschiedliche Lösungsmethoden und Kühlmittelzustände für den SWRMOX (ATRIUM-10) Benchmark /NEA 03/.

| Voiding State               | $K_{\text{eff}}$ (DORT/KENO/MCNP) | Power Peaking Factor (DORT/KENO/MCNP) |
|-----------------------------|-----------------------------------|---------------------------------------|
| <b>0% (cold)</b>            | 1.17484 / 1.17555 / 1.17580       | 1.335 / 1.339 / 1.340                 |
| <b>0% (hot, full power)</b> | 1.16195 / 1.16392 / 1.16730       | 1.234 / 1.231 / 1.241                 |
| <b>40%</b>                  | 1.13152 / 1.13316 / 1.13840       | 1.222 / 1.218 / 1.229                 |
| <b>80%</b>                  | 1.09385 / 1.09690 / 1.10710       | 1.232 / 1.233 / 1.226                 |

Für den SWR-MOX-Benchmark /NEA 03/ wird ein ATRIUM-10-Brennelement unter unterschiedlichen Kühlmittelbedingungen (0% Voidanteil kalt, 0% Voidanteil heiß, 40% Voidanteil, 80% Voidanteil) hinsichtlich Eigenwert und Stableistungsverteilung betrachtet. In Tabelle 5.1 werden die Lösungen der Codesysteme DORT(OREST), KENO(REST) und MCNP gegenübergestellt. Neben den Eigenwerten sind hier auch die radialen „Peaking“-Faktoren angegeben. Es ist zu beobachten, dass die DORT-

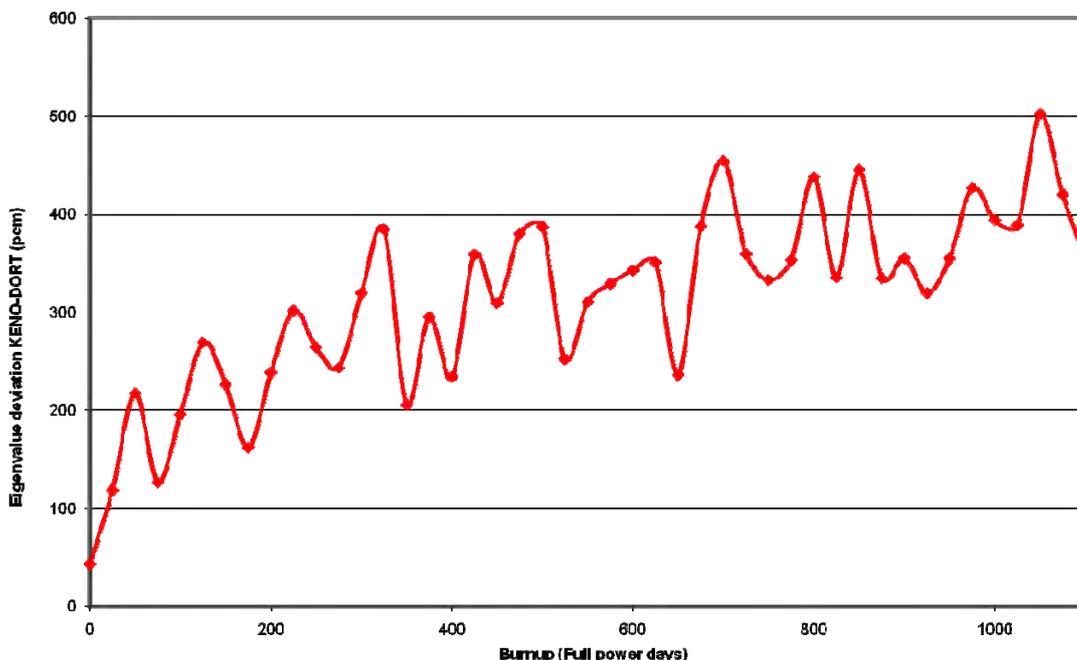
und KENO-Resultate in ausgezeichneter Übereinstimmung sind, aber beide den MCNP-Eigenwert unterschätzen. Die Peaking-Faktoren werden dagegen von allen Codes mit einer Unsicherheit von ca. 0,5% praktisch identisch berechnet. Generell ist diese Nachrechnung zunächst ein Indiz dafür, dass die DORT-Implementierung korrekt durchgeführt wurde und dass das Codesystem KENOREST in guter Übereinstimmung mit MCNP als Quasi-Referenz ist.



**Abb. 5-5:** Die Brennelement-Geometrie, die für den Test der DORTOREST-Abbrandfunktionalität verwendet wurde.

Um schließlich auch Probleme mit Abbrandabhängigkeit zu untersuchen, wurde ein typisches 18x18-KONVOI-Brennelement mit 4,0%-Anreicherungsgrad und 12 Gadoliniumstäben untersucht (siehe Abb. 5-5). Untersucht wurde ein Abbrandzeitraum von 1000 Volllasttagen (entsprechend einem Abbrand von etwa 40 GWd/t) mit DORT und KENO als Transportlöser im KENOREST-System. Betrachtet wurden der Eigenwert sowie die Stabileistungsverteilungen. In Abb. 5-6 sind die Eigenwertabweichungen DORT vs. KENO über den Abbrand aufgetragen. Während die Übereinstimmung bei Abbrand Null fast perfekt ist (nur ca. 50 pcm Differenz), so wächst diese Differenz mit steigendem Abbrand bis auf etwa 500 pcm an. Einer der Gründe für diese Abweichungen könnte sein, dass DORTOREST im Gegensatz zu KENOREST noch nicht die Spaltspektren neu bestimmt, so dass selbst für höhere Abbrände und damit erhöhtem Plutoniumgehalt das Spaltspektrum in DORTOREST dem Spektrum von reinem Uranbrennstoff entspricht. Diese Schwäche des DORTOREST-Systems wird im Nachfolgeprojekt zu RS1169 behoben werden. Die Auswertung der Stabileistungsverteilungen ergab bei Abbrand Null eine RMS- („Root Mean Square“) Abweichung

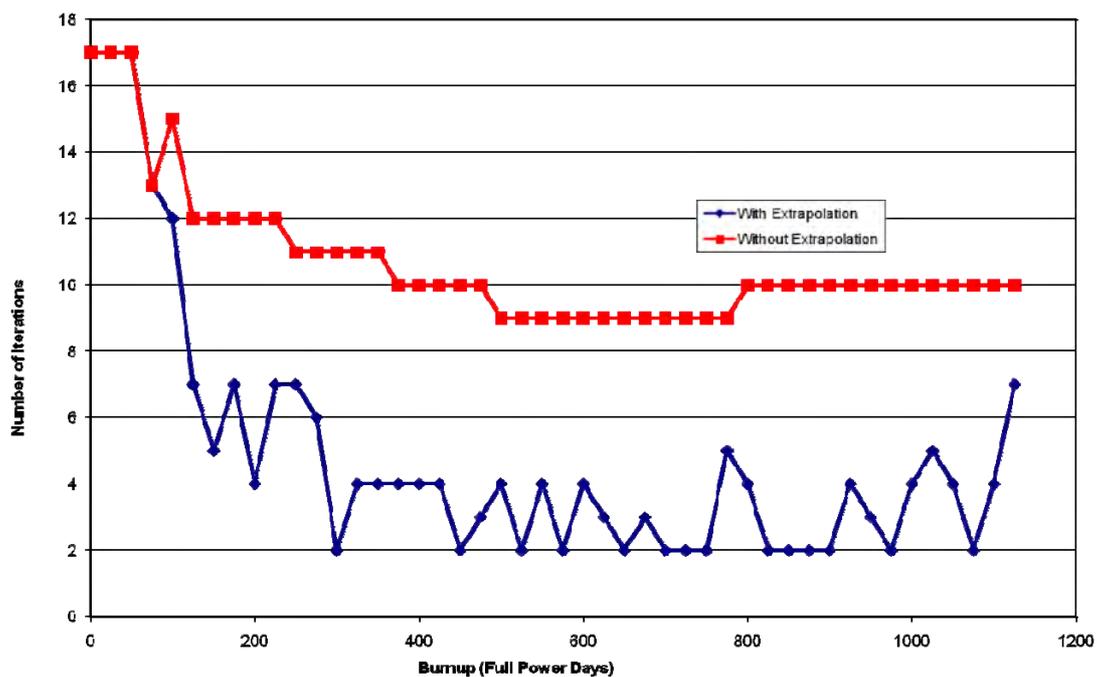
zwischen KENO und DORT von 0.49% und bei Abbrand 40 GWd/t eine Abweichung von 0.57%, bei einer maximalen Abweichung von ca. 1%. Aus diesen ersten Studien lässt sich ableiten, dass das Codesystem DORTOREST in recht guter Übereinstimmung mit KENOREST ist und dass der DORT-Transportlöser in der Tat eine brauchbare Alternative zu KENO darstellt. Darüber hinaus konnte auch demonstriert werden, dass das DORTOREST-System zu jedem Abbrandzeitpunkt in der Lage ist, ggf. Weniggruppen-kondensierte und Brennelement-homogenisierte Wirkungsquerschnitte für 3D-Ganzkernrechnungen im ANISN-Format zu erzeugen. Durch die SPH-Behandlung der Querschnitte können außerdem auch reaktionsratenerhaltende Pin-by-Pin-Querschnitte generiert werden, die z. B. im Sinne einer Transport-Transport-Äquivalenz in TORT-TD eingesetzt werden können.



**Abb. 5-6:** Eigenwert-Abweichungen zwischen KENOREST und DORTOREST für den Testfall  $\text{UO}_2$ -Gd-Brennelement. Der Abbrandbereich entspricht etwa einem Abbrand von etwa 40 GWd/t.

Ein weiterer Vorteil der deterministischen Transportmethode in DORT ist die Tatsache, dass die Flussinformation aus einem berechneten Abbrandschritt effizient als Schätzung für den nächsten Abbrandschritt verwendet werden kann. Tatsächlich werden in DORTOREST die Flüsse aus den letzten drei Abbrandschritten gespeichert, um daraus quadratisch die Flussverteilung für den nächsten Schritt zu extrapolieren. Die Effizienz dieser Methode ist in Abb. 5-7 dargestellt, in der die Anzahl äußerer Iterationen dargestellt ist, die notwendig ist um Konvergenz für das System zu er-

reichen. Aus der Abbildung ist z. B. ersichtlich, dass die Extrapolation erst dann einsetzt, wenn drei vorhergehende Flussberechnungen zur Verfügung stehen, also ab dem vierten Abbrandschritt. Nach diesen Schritten werden lediglich 2-4 Iterationen bis zur Konvergenz benötigt, während eine unbeschleunigte Rechnung ohne Extrapolation 9-10 äußere Iterationen benötigt. Tatsächlich sind für die beschleunigte Rechnung auch weniger innere Iterationen pro äußere Iterationen notwendig, so dass der Vergleich der CPU-Zeiten zwischen beiden Rechenmodi eher noch günstiger ausfällt.



**Abb. 5-7:** Effizienz der Vorwärts-Extrapolation über den Abbrand, wie sie in DORTOREST implementiert ist.

Durch die Implementierung von DORT in das KENOREST-System ist ein vielseitiges Werkzeug DORTOREST entstanden, das wesentliche Eigenschaften von Spektral-codes mit dem bewährten Nuklidinventarsystem von KENOREST vereint. Neben der Reaktivitäts- und Inventaranalyse ist es nun auch möglich, Weniggruppen-Querschnitte für Ganzkernrechnungen (nodal oder „Pin-by-Pin“) zu erstellen. Erste Tests anhand eines Standard-U-Gd-Brennelements haben gezeigt, dass DORTOREST und KENOREST in guter Übereinstimmung auch für höhere Abbrände sind. Die Arbeiten an DORTOREST, insbesondere hinsichtlich weitergehender Codevalidierung und Codebeschleunigung sollen im Rahmen des geplanten Nachfolgeprojekts zu RS1169 fortgesetzt werden.

## **6 Erweiterung der Neutronenfluenz- und Aktivierungs-berechnungen für 3D-Geometrie**

Der 3d-Code TORT /DOO 96/ wurde in das bestehende Reaktivitäts- und Abschirmprogrammssystem DORTABLE /HES 08/ implementiert. Erste Testrechnungen dieses um eine Dimension erweiterten DORTABLE-Systems liefen Erfolg versprechend. So können früher erzeugte DORTABLE-Inputdateien der Version 2008 ohne irgendeine Zusatzinformation direkt verwendet werden. Kritikalitäts-Testrechnungen ergaben im Rahmen der Konvergenzschwankungen in TORT und DORT /RHO 88/ denselben Multiplikationsfaktor, Abschirmrechnungen denselben Fluss. Die Laufzeiten ohne Zusatz-3d-Daten waren bei TORT nicht viel länger als bei DORT, die Konvergenz zufriedenstellend gut. Für die vom Benutzer zu wählende Struktur der Raumwinkel-Diskretisierung von 12 bis 140 Winkel wurden Bibliotheksdateien aufbereitet und abgespeichert. Wie bei DORTABLE stehen sechs Neutronen- oder Neutronen-Gamma-Bibliotheken zur Verfügung: KORLIB, EURLIB99, BUGLE96, ANISN22, ANIDTF und EURLIB78 von 13 bis 175 Neutronengruppen und 9 bis 42 Gammagruppen.

Der Unterschied RZ-Theta-TORT zu RZ-DORT besteht in der möglichen Variation von Geometrie und Materialien in der azimuthalen Richtung um die Z-Achse, so dass nun eine vollständige dreidimensionale Beschreibung der Systemgeometrie möglich ist. In der derzeitigen Fassung von TORTABLE sind bis zu 360 unterschiedliche Theta-Winkel angebar. Bei voller Ausschöpfung dieser Möglichkeit sind entsprechend längere Rechenzeiten zu erwarten.

### **6.1 Programmiererweiterungen TORTABLE**

Die Implementierung von 3d TORT in das Programmsystem 2d DORTABLE (Version 2008) wurde unter folgenden Gesichtspunkten vorgenommen:

- Bestehende Eingabedateien von DORTABLE sollen auch in der erweiterten 3d Version mit TORT lauffähig bleiben. Damit reichen die für den zweidimensionalen Fall in RZ-Geometrie zuständigen Eingabebeschreibungen DORTABLE auch für RZ-Theta-TORT aus. Gleichzeitig kann in sich widerspruchsfrei eine Prüfung der DORT- und TORT-Ergebnisse erfolgen, wenn nur ein einziger Drehwinkel Theta von  $360^\circ$  auch im 3d-Code die Rotationssymmetrie erzwingt.

- Eine möglichst einfache Eingabelogik für TORT beschreibt Material- oder Geometrieänderungen an den Orten, an denen die 3d Eingabe von der 2d Eingabe abweichen muss. Damit wird eine für den Benutzer übersichtliche Dateneingabe ermöglicht.

Weiterhin wurden zwei wichtige Auswertemodule aus DORTABLE zur Dosisberechnung und zur Feinzellenberechnung nach der Flussgradientenmethode auf drei Dimensionen erweitert.

## 6.2 Dokumentation TORTABLE

Das Programmsystem TORTABLE ist auf der GRS-Plattform `/fsgarperm/grs/csg03/tortable2008` archiviert.

Für Abbrandrechnungen OREST greift TORTABLE auf das KENOREST-System `/fsgarperm/grs/csg03/korest2008` zurück.

Für Aktivierungsrechnungen und Materialdaten zieht es das System `/fsgarperm/grs/csg03/dortactiv2008` heran.

Shellskripts sind unter `/fsgarperm/grs/csg03/tortable2008/bin` zu finden.

Bibliotheken werden unter `/fsgarperm/grs/csg03/tortable2008/lib` aufgerufen.

Die Quellcodes aller Module ist unter `/fsgarperm/grs/csg03/tortable2008/src` archiviert. Alle Quellcodes sind in FORTRAN-90 für Cray geschrieben.

Notwendige Updates des Systems erfolgen von der Plattform `/fsgarperm/hse/d701/tortable2008` aus für die Quellcodes von `<./srcf>`, für die Bibliotheken von `<./libf>` und für die Shellskripts von `<./binf>`.

### 6.2.1 Modul <tortgen>

Das Modul <tortgen> ist eine 3d Erweiterung des Moduls <dortgen> und erzeugt analog zu DORT die lauffähige Eingabedatei für TORT mit den Dateinamen `<./x.inp/tort>` nach Eingabebeschreibung `/DOO 96/`. Das zugehörige Shellskript lautet

<./bin/tortgen.sh/>. Eingabeflags beginnen mit einem Dollarzeichen. Daran schließen sich die mit mindestens einem Leerzeichen getrennten Daten an. Die gegenüber DORTABLE erweiterten Eingangsflags in der Eingabedatei sind wie folgt:

Tabelle 6-1: Eingabeflags und Eingabedaten für <tortgen>

| Flag                          | Bedeutung   | Anzahl der Daten   | Bemerkung Minimum / Maximum  |
|-------------------------------|---|--------------------|--|
| \$thetaleng                   | Bruchteil des Einheitskreises pro Theta-Winkel  | \$thetanr          | 1.e-10 bis 1.000   |
| \$thetanr                     | Anzahl der Winkel   | 1                  | Maximum 360  |
| \$thetamat<br><br>(kein Flag) | Materialzuordnung pro Axial-, Radial- und Ttetaposition: Angabe der Axialposition. Dann:<br><br>Angabe der Radialposition. Dann | 1<br><br>1         | Axialzone; Maximum ist \$axnr<br>Radialzone Maximim ist \$radnr. Wenn Zahl negativ ist, wird \$thetarad iabs(Zahl) aufgerufen. Wenn die Zahl -999 ist, wird die Eingabe pro Axial-Position abgebrochen. Material-Integers pro Thetawinkel; Materialnamen, müssen in \$matrix DORTABLE zu finden sein |
| (kein Flag)                   |   | \$thetanr          |  |
| \$thetaval                    | Feineinteilung pro Thetawinkel  | \$thetanr          | Summe Maximum 360  |
| \$thetaburn                   | Abbrandverteilung-Funktion pro Thetawinkel  | \$thetanr          | Analog zu DORTABLE \$axburn und \$radburn wird die Standard-Quelle winkelabhängig modifiziert  |
| \$thetarad<br><br>(kein Flag) | Materialzuordnung pro Radial- und Theta-position: Angabe der Axialposition. Dann:   | 1<br><br>\$thetanr | Material-Integers pro Thetawinkel; Materialnamen, müssen in \$matrix von DORTABLE zu finden sein   |
|                               |   |                    |  |

Bei der Materialzuordnung in den Anweisungen \$thetamat oder \$thetarad ist zu beachten, dass in mindestens einem Thetawinkel pro Axial- und Radialzone eine Materialnummer der DORTABLE-Rechnung erhalten geblieben sein muss. Dies gilt für

die plausible Forderung, dass die RZ-DORT-Rechnung zuvor eine verwandte Weiterführung in RZ-Theta-TORT findet.

Zur Berechnung des TORT-Inputs werden folgende Daten aufgerufen

- `./x.inp/overall` von ANITABLE aus `/HES 08/`. Dieser Datensatz enthält die notwendigen Geometriedaten. Weiterhin sind hier die vom Benutzer gewünschten RZ-Theta-Angaben festgehalten, die von der RZ-Struktur DORT abweichen.
- `./x.inp/dort` von DORTABLE. Dieser Datensatz, der Eingabedatensatz von DORT, enthält weitere für eine Transportrechnung notwendige Daten (Bibliotheks-Strukturdaten, Quellterm pro Zelle und Energiegruppe).
- `./x.dat/XX.SFLUXES`. Dieser Datensatz enthält die von ANISN ermittelten skalaren Flüsse. Er wird zu einem Startfluss TORT verarbeitet.
- `$LIB1SN`. Dieser Parameter steht für einen vom Benutzer aus der Bibliothek gewählten Datensatz für die Raumwinkelstruktur:
- `/fsgarperm/grs/csg03/tortable2008/m012` steht für 12 diskrete Raumwinkel pro Einheitskugel und entspricht  $SN=2$
- `/fsgarperm/grs/csg03/tortable2008/m016` steht für 16 diskrete Raumwinkel pro Einheitskugel und entspricht  $SN=3$
- `/fsgarperm/grs/csg03/tortable2008/m032` steht für 32 diskrete Raumwinkel pro Einheitskugel und entspricht  $SN=4$
- `/fsgarperm/grs/csg03/tortable2008/m060` steht für 60 diskrete Raumwinkel pro Einheitskugel und entspricht  $SN=6$
- `/fsgarperm/grs/csg03/tortable2008/m140` steht für 140 diskrete Raumwinkel pro Einheitskugel und entspricht  $SN=10$

Das Skript für `<tortgen>` ist auf `/fsgarperm/grs/csg03/binf/tortgen.sh` archiviert. Der Quellcode `<tortgen.f>` ist auf `/fsgarperm/grs/csg03/srcf/` archiviert.

## 6.2.2 Kondensierstufe <threstar> für ANISN-W

Mit dem Modul <threstar> wird die Eingabedatei für nachfolgende ANISN-W (ANISN speziell für die Querschnittswichtung) erstellt. Insbesondere werden pro gewählter Axialzone für ANISN-W die Zonenflüsse von DORT pro Radialzelle erfasst und als sogenannter <flux guess 3\*\*> in einer Eingabedatendatei abgelegt. Aus den Benutzer-Eingabedaten werden die Flags \$FEWGROUPODAT, \$FEWGROUPONUM und \$FEWGROUPODOS eingelesen und entsprechende Steuerdaten zu Kondensierung der Original-Querschnittsdatensätze eingelesen:

Tabelle 6-2: Eingabeflags und Eingabedaten für <threstar>

| Flag                              | Bedeutung   | Anzahl der Daten | Bemerkung Minimum / Maximum   |
|-----------------------------------|---|------------------|---|
| \$FEWGROUPODAT oder auch < 27\$ > | Eingabedaten entsprechen ANISN /HES 08/ 27\$-Feld ICON, IHTF, IHSF, IHMF            | 4                | ICON = 2 (Makro-XS gewünscht)<br>IHTF = 3 Position von Sigma-total<br>IHSF Position Sigma-gg nach Wichtung siehe ANISN<br>IHMF Tabellenlänge nach Wichtung siehe ANISN.<br>Wenn minus, wird <upscatter> entfernt. |
| \$FEWGROUPONUM oder auch < 28\$ > | Eingabedaten ANISN /HES 08/ entspricht 28\$ <Few group number> für jede Multigruppe | IGM              | NGRP-Zahlen der Original-Bibliothek (Kondensiervorschrift)  |

Pro Axialzone baut <threstar> in einer Schleife über \$axnr Axialpositionen jeweils einen ANISN-kompatiblen Inputdatensatz auf, ruft ANISN-W zur Kondensierung der \$randnr Querschnittsdatensätze auf, formatiert die erzeugten Daten ANISN-kompatibel um und stellt sie auf einer temporären, binären Querschnittsdatendatei XX.TORTWQ für TORT bereit.

Das Skript für <threstar> ist auf /fsgarperm/grs/csg03/binf/ archiviert. Der Quellcode <threstar.f> und <anisnw.f> sind auf /fsgarperm/grs/csg03/srcf/ archiviert.

### 6.2.3 Modul <ANISN-W>

Mit dem Modul <ANISN-W> werden eingelesene DORT-Querschnittsdatensätze gemäß der Input-Angaben in dem vom Inputgenerator <threstar> erzeugten Eingabedatensatz kondensiert und für eine nachfolgende TORT-Rechnung bereitgestellt. Das Modul entspricht exakt dem 1d-Transportcode ANISN, bis auf die Sprungadresse in Routine <guts> gleich <gutswate>, wo der Flussiterationsprozess übersprungen wird und direkt die ANISN-Kondensierstufe mit dem Eingabefluss gleich dem Datenfeld 3\*\* von <threstar> angesteuert wird. ANISN-W wird innerhalb <threstar> als Unteroutine über alle Axialzonen aufgerufen.

### 6.2.4 Modul <flxdost>

Das Modul <flxdost> bestimmt analog zu <flxdosd> in DORTABLE die Neutronen- und Gammadosis im gesamten R-Z-Theta-System pro TORT-Zelle oder TORT-Zone. Damit lassen sich viele Fragen zur 3d Ortsdosisleistung innerhalb des R-Z-Theta-Systems und an der Oberfläche von strahlenden Komponenten bereits beantworten. Zusätzlich liefert das Modul die Neutronenflüsse pro Zelle und Zone integriert über die Energiegruppen.

### 6.2.5 Modul <meshgent>

Die Neutronenflüsse werden im Modul <meshgent> verwendet, um die notwendige R-Z-Theta-Feinintervallierung für einen Neustart TORT zu bestimmen. Wahlweise kann man dafür statt der zellweisen Flüsse (in Kritikalitätsrechnungen) auch bei Abschirmrechnungen die berechnete Dosisleistung pro Zelle verwenden.

Die Idee hinter der Zelleinteilung nach der Flussgradientenmethode ist, die Raumunterteilung für SN-Codes wie ANISN, DORT oder hier TORT so bereitzustellen, dass sich die Flüsse benachbarter Zellen um einen (eingebbaren) Faktor von maximal etwa 30% unterscheiden. Damit bleiben die SN-Rechnungen numerisch in einem Stabilitätstal um zuverlässige Resultate und gute Konvergenz zu erzielen. In DORT wird die Zelleinteilung bestimmt, in dem das Maximum der Zone und das über eine Richtung gemittelte Minimum der Zone in Verhältnis gesetzt werden. Daraus wird die Anzahl der Zellen extrapoliert, die benötigt werden, um das Gradientenkriterium zu erfüllen. In dem neuen Modul gibt es nun noch weitere Möglichkeiten die Zelleinteilung zu bestimmen.

Neben der alten Variante können nun auch das gemittelte Maximum und das gemittelte Minimum zueinander in Verhältnis gesetzt werden. Die Mittelung erfolgt hier jeweils über die zwei verbleibenden Richtungen. Diese Variante funktioniert umso besser, je mehr sich der Flussverlauf in den einzelnen gemittelten Schichten ähnelt.

Außerdem wurde für beide Varianten noch eine Korrektur eingeführt, die wahlweise angewählt werden kann, die berücksichtigt, dass das Maximum und das Minimum nicht zwingend an den Enden der Zone sitzen. Ist das Maximum der Zelle etwa in der Mitte der Zone und das gemittelte Minimum am Rand so wird eine feinere Zelleinteilung benötigt, als wenn die Extrema an entgegengesetzten Rändern der Zelle sitzen. Als weitere Variante wurde noch die etwas direktere Umsetzung der anfangs erwähnten Idee, dass benachbarte Zellen keinen zu großen Flussunterschied (standardmäßig 30%) aufweisen sollten, eingeführt. In dieser Variante wird für jede Richtung pro Zone der maximale Unterschied zweier benachbarter Zellen in der jeweiligen Richtung ermittelt und mit dem vorgegebenen Maximalwert verglichen, um daraus die neue Zelleinteilung zu bestimmen.

Generell bieten 3D-Anwendungen mehr Varianten als die 2D-Anwendungen, die sozusagen ja schon eine Mittelung über eine Richtung von Beginn an beinhalten. Insbesondere in der Intervallierung der Theta-Richtung können hier je nach Wahl der Methode Unterschiede auftauchen.

Alle weiteren Funktionen, die bereits für DORT implementiert waren, wie etwa die Festlegung von Moderatorzonen und Spalten mit einer vorgegebenen Intervallierung, sind ebenfalls im Modul realisiert und für alle drei Dimensionen einsetzbar. Die beiden beschriebenen Module wurden ins System implementiert und werden bei erfolgten TORT-Rechnungen aktiviert.

Das Skript für <flxdost> und <mesgent> ist auf /fsgarperm/grs/csg03/binf/ archiviert. Die Quellcodes <flxdost.f> und <mesgent.f> sind auf /fsgarperm/grs/csg03/srcf/ archiviert.

### **6.3 Programmablauf TORTABLE**

Der Programmablauf wird in einem leicht verkürzten Ausdruck in Tabelle 6-3 sichtbar.

Tabelle 6-3: Programmablauf TORTABLE (ohne OREST)

```

==> owner      is: </fsgarperm/grs/csg03>
-----
          ==> TORTABLE-2008 <==
          the GRS-OREST-ANITABLE-DORT SYSTEM
          for 3-d shielding and criticality problems
-----
          Problems? U.Hesse  GRS 089-32004-502
                   M.Wagner GRS 089-32004-499
-----
          level 01 clearing and mkdir
-----
==> GENK3D  erfolgreich beendet
==> START-TRANS  erfolgreich beendet
-----
          level 03 ANITABLE run
          for R-shielding and reactivity-calculations
-----
==> DATAPREP  erfolgreich beendet
==> ANITGEN   erfolgreich beendet
==> ANITABLE  erfolgreich beendet
==> ANIMOD    erfolgreich beendet
==> ACOND XS-calc.  erfolgreich beendet
==> NGSRC     erfolgreich beendet
==> ANISN     start
==> ANISN k-inf-mode  erfolgreich beendet
==> THERES    erfolgreich beendet
==> SFLUX     erfolgreich beendet
==> RESULT01  erfolgreich beendet
-----
          level 04 DORT run
          for RZ 2d-shielding and reactivity-calculations
-----
==> GIPGEN    erfolgreich beendet
==> GIP64     erfolgreich beendet
==> DORTGEN   erfolgreich beendet
==> DORT64    start
==> DORT64    erfolgreich beendet
==> RESUDORT  erfolgreich beendet
==> MASSES    erfolgreich beendet
-----
          level 06 results from dort generated
-----
==> FLXDOSD   erfolgreich beendet
==> MESHGEN   erfolgreich beendet
-----
          level 04 TORT run
          for R-Z-Theta 3d shielding and reactivity-calculations
-----
==> TORTGEN   erfolgreich beendet
==> TORT64    start
==>          warning 7
==> TORT64    erfolgreich beendet
==> RESUTORT  erfolgreich beendet
-----
          level 06 results from tort generated
-----
==> FLXDOS-TORT  erfolgreich beendet
==> MESHGEN-TORT  erfolgreich beendet
-----
          ==> TORTABLE-2008 <==
          end of calculation sucessfully reached
          ==> congratulations ! <===
-----
Attention: Binary results had been used and/or calculated by <node6-
chassis574>

```

Erklärung:

- Level01: Mit GEN3K wird aus dem Eingabedatensatz <seu1\_trans> ein KENO3D-taugliches Eingabedatensatz der RZ-Geometrie erzeugt.
- Level02: damit wird OREST gestartet. Im aktuellen Fall wurde erkannt, dass OREST für <seu1> bereits gelaufen war.
- Level03: ANITABLE wird gestartet. Es laufen die Haupt-Codes ACOND, NGSRC, ANISN. THERES, SFLUX und RESU01 sind Auswertemodule für die 1d-Lösung
- Level04: DORT wird gestartet. Zunächst läuft die Querschnittskonvertier-Routine GIP
- Level06: Die DORT-Auswertung wird gestartet mit <flxdosd> und <mesgen>
- Level04.tort: TORT wird gestartet.
- Level06.tort: Die TORT-Auswertung wird gestartet mit <flxdost> und <mesgent>

#### **6.4 Validierungsrechnungen TORTABLE**

Zur ersten Schritt zu Validierung des entwickelten 3d-Abschirmsystems TORTABLE in seiner Ausbaustufe 2009 wurden direkte Vergleichsrechnungen mit dem 2d-System DORTABLE angestellt. Als Eingabe in beide Programmpakete diente ein identisches Modell (d. h. identische Eingabedatei) eines DWR-Reaktors mit 16x16-20 UO<sub>2</sub>-Brennelementen, die mit 3,2% angereichert sind. Die Reaktorhistorie wird mit sechs Abbrandschritten à 305 Tagen mit vorhergehender jeweils 60-tägiger Pause angenommen. Während des Abbrand-Zeitraumes wird eine Leistung von 32,79 MW/tSM angenommen. Dies entspricht einem erzielten Gesamtabbrand von 60 GWd/tSM. Der Bestrahlungsbeginn der Brennelemente beginnt nach einer Verweilzeit von einem Jahr. Die Bor-Konzentration im Kühlwasser wird durchgängig auf 500 ppm gesetzt.

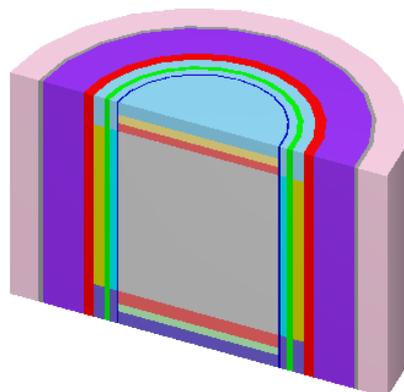
Das gesamte Reaktormodell wurde in sieben Axial- und neun Radialzonen unterteilt und stellt eine Vereinfachung des in /PRE 07/ bereits berechneten Modells dar. Die Axialzonen der ersten Radialzone unterteilen sich in 30 cm Wasser, ein 18,3 cm langes Fußstück, 31,4 cm inaktives Brennelement, den 390 cm langen Reaktorkern, ein 19,4 cm langes Stück inaktiven Brennelements, gefolgt von einem Kopfstück mit 21 cm Länge und einer abschließenden Wasserschicht von weiteren 30 cm. In allen weiteren

Radialzonen entsprechen die zugehörigen Axialzonen nur noch einem Materialzone, die geometrische Unterteilung bleibt jedoch bestehen. Der Reaktorkern hat in radialer Richtung eine Ausdehnung von 179,6 cm. Ihm folgt eine 4,1 cm starke Kernumfassung, der eine 16 cm dicke Wasserschicht folgt. Radialzone vier ist der Kernbehälter mit einer Dicke von 12 cm, dem wiederum eine Wasserschicht von 24,15 cm folgt. Die nächste Zone stellt den Reaktordruckbehälter (RDB) mit einer Dicke von 22,4 cm dar. Auf den RDB folgt eine Luftschicht von 91,5 cm, eine 8,8 cm starke Isolierung und abschließend noch der Bioschild mit einer Dicke von 65 cm.

Der direkte Vergleich der DORT und TORT-Ergebnisse erfolgt in zwei Szenarien: als Abschirmrechnung sowie als Kritikalitätsrechnung. Beiden Rechnungen gemein ist, dass die Feinunterteilung der Axial- und Radialzonen in Zellen mit der ANISN22-Test-Bibliothek mit 13 Neutronen- und 9 Gammagruppen in der ‚startup-Phase‘ iterativ erstellt wurde. Im Falle der Kritikalitätsrechnung wird die Bibliothek reduziert, indem lediglich die Neutronenbeiträge betrachtet werden.

Weiterhin wird für beide Szenarien der Abbrand des Reaktorkerns durch das Programm OREST simuliert. Vom hier nach Abbrand von 60 GWd/tSM erzeugten Inventar wurden 192 Brennelemente à 533 kgSM in den vereinfachten Core-Bereich eingefüllt, und mit den zugehörigen Strukturmaterialien, Zirkaloy und dem Kühlmittel homogen gemischt.

Um die Vergleichbarkeit der Ergebnisse zu gewährleisten wurde im TORTABLE-System lediglich eine Theta-Zone, die somit die vollen 360° einschließt, eingefügt und damit Rotationssymmetrie auch in TORT erzwungen. Das einfache RZ-Modell in Anlehnung an /PRE 07/ ist in Abbildung 6-1, direkt erzeugt aus den Eingabedaten, dargestellt.



**Abb. 6-1:** Schnittbild des Modell-Cores für Kritikalitäts- und Abschirmrechnung  
Die Ergebnisse der Rechnungen werden in den folgenden Unterkapiteln dargestellt.

## 6.5 Ergebnisse zur Dosisleistungsbestimmung

Für die Bestimmung der Dosisleistung wurde die Bibliothek EURLIB97 herangezogen. In der Eingabe wurde hierfür das Feld <\$ievt> auf 0 gesetzt. Ein Abklingzeitpunkt von 1 Monat nach dem letzten Lastzyklus des Reaktors wurde betrachtet. Verglichen wurde die Ortsdosisleistung zonengemittelt für Radialzone 7 und Axialzone 4, d. h. der mit Luft oder mit Isoliermaterial gefüllten Zone zwischen dem Reaktordruckbehälter und dem Biologischen Schild, auf axialer Höhe des aktiven Cores. Diese Werte konnten in den Ausgabedateien <flxdosa> für ANISN, <flxdosd> für DORT und <flxdost> für TORT ausgelesen werden. Tabelle 6-4 zeigt einen Vergleich der Ergebnisse der zonengemittelten Dosisleistungsberechnung des 1d-Systems ANISN, des 2d-Systems DORT und des 3d-Systems TORT für eine Zone, die sich in der auf den RDB folgenden Luftschicht auf Höhe des aktiven Brennelementes befindet. Die ANISN-Werte zeigen eine leicht-konservative Überhöhung +10% - +20%, da hier die axiale Leckage nicht mitgerechnet werden kann. Die DORT und TORT-Werte sind in guter Übereinstimmung.

Die Daten gelten nur für Neutronen und Gammas aus dem Core-Inventar, nicht aber für aktivierte Strukturmaterialien RDB, Kernumfassung usw. Deren Dosisbeitrag wäre gesondert zu bestimmen.

**Tabelle 6-4:** Ergebnisse der zonengemittelten Dosisleistungsberechnung aus ANISN, DORT und TORT für eine Zone außerhalb des RDB auf Höhe des aktiven Brennelementes.

|              | Neutronendosis [ $\mu\text{Sv/h}$ ] | Gammadosis [ $\mu\text{Sv/h}$ ] | Gesamtdosis [ $\mu\text{Sv/h}$ ] |
|--------------|-------------------------------------|---------------------------------|----------------------------------|
| flxdosa (1d) | 1.2070E+01                          | 9.9180E+02                      | 1.0040E+03                       |
| flxdosa (2d) | 8.1960E+00                          | 8.8250E+02                      | 8.9070E+02                       |
| flxdosa (3d) | 8.1490E+00                          | 8.2660E+02                      | 8.3480E+02                       |

## 6.6 Ergebnisse zur Kritikalitätsbestimmung

Für die Berechnung des Neutronenmultiplikationsfaktors  $k$  wurde die reine Neutronenbibliothek KORLIB mit 83 Neutronengruppen und 32 Upscatter-Gruppen benutzt. Durch die Zuweisung des Wertes 1 zum Feld <\$ievt> in der Eingabedatei wurde die  $k$ -Berechnung aktiviert. Bei der Berechnung von  $k$  kann zusätzlich zum Vergleich zwischen DORTABLE und TORTABLE auch noch ein Vergleich mit dem 1d-System

ANITABLE durchgeführt werden. Die Ergebnisse sind in Tabelle 6-5 zusammengefasst. Bei 1d ANISN ist die z-Achse des Cores nicht begrenzt, d. h. es wird ein unendlicher Zylinder betrachtet. Trotzdem sind 1d-, 2d- und 3d-Daten in guter Übereinstimmung. Die ANISN-Werte zeigen eine leicht konservative Überhöhung von +0,2%, da hier die axiale Leckage nicht mitgerechnet werden kann. Die DORT- und TORT-Werte sind in guter Übereinstimmung.

Der Multiplikationsfaktor, der bei einem laufenden Reaktor natürlich 1.0 beträgt, wurde hier durch entsprechendes abgebranntes Inventar von 60 GWd/tSM bewusst deutlich unter 1.0 gewählt, um im System ein konsistentes Umschalten der Rechenart sowohl für Kritikalität als auch für Dosisrechnungen zu gestatten. Hier wären bekanntermaßen bei allen Transportcodes sonst numerische Probleme zu erwarten.

**Tabelle 6-5:** Vergleich der Ergebnisse der Berechnung des Neutronenmultiplikationsfaktors  $k$  für die Code-Systeme ANITABLE, DORTABLE und TORTABLE.

|     | ANITABLE | DORTABLE | TORTABLE |
|-----|----------|----------|----------|
| $k$ | 0.651299 | 0.649536 | 0.650108 |

## 7 Zusammenfassung und Bewertung

Mit den durchgeführten Arbeiten wurde die Validierung von KENOREST auch für höhere Abbrandwerte erreicht. Dazu wurden Vergleiche mit Messungen und anderen international eingesetzten Rechenprogrammen herangezogen. Die erzielten Ergebnisse für die nachgerechneten ARIANE-Messungen bei einem Abbrand von 60 GWd/tSM bestätigen die Leistungsfähigkeit von KENOREST und der Datenbibliotheken bei hohen Abbränden. Für die betrachtete Takahama-3-Probe wurden in einer dreidimensionalen Abbrandrechnung deutlich verbesserte Ergebnisse gegenüber der zweidimensionalen Rechnung erzielt. Die Übereinstimmung in unterschiedlichen berechneten Größen wie Brennstofftemperaturkoeffizienten, Multiplikationsfaktoren und Nuklidinventaren mit international eingesetzten Rechenprogrammen ist durchwegs gut. Deutliche Unterschiede zwischen berechneten und gemessenen Mengen von Americium- und Curium-Isotopen scheinen bei Verwendung von Datenbibliotheken, die auf neuen Experimenten beruhen, reduziert zu werden.

Die quantifizierte Bestimmung der Rechengenauigkeit für einzelne Nuklide und Nuklidgruppen sowie die Bestimmung der Einflüsse auf das Nuklidinventar von betrieblichen Einsatzbedingungen trägt wesentlich dazu bei, die Anwendung des Burnup Credits zu bewerten. Dabei zeigen die Abbrandnuklide aus Uran- und MOX-Brennelementen ein sehr ähnliches Verhalten. Die Nuklidinventare werden am stärksten durch die Variation des Betriebsparameters Kühlmitteltemperatur beeinflusst.

Zur Bewertung des Einflusses von Unsicherheiten in den nuklearen Daten wurden eigene Unsicherheitsanalysen für kritische Systeme durchgeführt und der Einsatz für Abbrandrechnungen vorbereitet. Dazu wurde die GRS/SUSA-Methode verwendet. Für Kritikalitätsrechnungen ergibt sich sehr gute Übereinstimmung mit dem amerikanischen Programm TSUNAMI. Die Anwendung von SUSA mit einem Abbrandprogramm zur systematischen Ermittlung von Unsicherheiten in relevanten Größen für abgebrannten Brennstoff wird im Nachfolgevorhaben durchgeführt.

Die Integration des deterministischen Neutronentransportcodes DORT/TORT für Abbrandrechnungen wie auch für Neutronenflussberechnungen erweitert das vorhandene Programmsystem KENOREST für Anwendungen, bei denen die deterministische Methode Vorteile gegenüber der statistischen Methode hat. Durch die Einbindung von DORT in das KENOREST-System ist ein vielseitiges Werkzeug DORTOREST entstanden, das wesentliche Eigenschaften von Spektralcodes mit dem bewährten Nuklid-

inventarsystem von KENOREST vereint. Damit ist es nun auch möglich, Weniggruppen-Querschnitte für Ganzkernrechnungen zu erstellen. Erste Tests haben gezeigt, dass DORTOREST und KENOREST in guter Übereinstimmung auch für höhere Abbrände sind. Mit der Implementierung des dreidimensionalen  $S_N$ -Codes TORT in das Reaktivitäts- und Abschirmprogrammsystem DORTABLE wurde dessen Einsatzbereich deutlich erweitert.

## 8 Literaturverzeichnis

- /DOO 96/ DOORS3.1, RSICC Computer Code Collection, One, Two- and Three Dimensional Discrete Ordinate Neutron/Photon Transport Code System, CCC-650, Oak Ridge National Laboratory, Tennessee, Radiation Shielding Information Center, contributed by NEA DATA BANK, 10/96
- /GAU 06/ I.C. Gauld, "Spent Fuel Isotopic Validation Activities in the United States: Status and Lessons Learned", PIE Workshop, NRI Řež/Prague, Czech Republic, May 11th/12th 2006
- /HES 04/ U. Hesse, J. Sieberer, K. Hummelsheim, E. Moser, „OREST-.V04, UNIX-Version für GRS mserver1, user-instruction“, GRS-Bericht, September 2005
- /HES 06/ U. Hesse, T. Voggenberger, F. Cester, (2006) „KENOREST Version 2006, quadratische Gitter“. Internes Dokument, GRS 2006
- /HES 07/ U. Hesse, K. Hummelsheim, R. Kilger, F.E. Moser, S. Langenbuch, "LWR Decay Heat Calculations Using a GRS Improved ENDF/B-VI Based ORIGEN Data Library", International Conference on Nuclear Data for Science and Technology 2007, Nizza, Frankreich, 22. – 27. April 2007
- /HES 07a/ U. Hesse, T. Voggenberger, F. Cester, R. Kilger: „KENOREST-2006.V1, Unix-Version (Cray), Eingabebeschreibung für quadratische Gitter“, Technischer GRS-Bericht in Vorbereitung, 2007
- /HES 08/ U.Hesse, U., Gewehr, K., Moser, E., Hummelsheim, Kilger, R., Langenbuch, S., Denk, W., Deitenbeck, H., Sieberer, J.; Voggenberger, T.: The GRS AAA-Code-Collection for Activation, Shielding and Burn-up: GRS-AKTIV (GRS-A-2249, 06/1995); GRS-ORIGENX-07, Version 2 (Technical Report 02/2007); KENOREST (GRS-A-2783, 12/1999), OREST (GRS-63, 11/1986, updated 2006); DORTABLE (Technical Report 03/2007); NGSRC (GRS-A-1963, 1993); SURF-88 (Technical Report 1988); ANITABL-PC (GRS-A-3004, 2001); ANITABL - EURLIB97 extended UNIX-Version (Technical Report 12/2001); AIRBAGS V05.0 (Technical Report 03/2007)

- /HES 98/ U. Hesse, „FIPISO-98, ein Rechenmodell zum Nuklidverhalten in einem Raumzellensystem nach einem Reaktorstörfall“, GRS-A-2750, März 1998
- /HES 99/ U. Hesse, S. Langenbuch, „KENOREST, eine direkte Kopplung von KENO und OREST“, GRS-A-2783, Dezember 1999
- /HOF 93/ E. Hofer, Probabilistische Unsicherheitsanalysen von Ergebnissen umfangreicher Rechenmodelle, GRS-A-2002, Januar 1993
- /HUM 08/ K. Hummelsheim, U. Hesse : „GRAMATFIX: ein OREST/FIPISO Datenbanksystem zur Erzeugung, zur Abspeicherung und zum Aufruf von abgebrannten Nuklidinventaren aus LWR-Kernbrennstoffen“, GRS-A-3442, Juli 2008
- /IWA 08/ O. Iwamoto, T. Nakagawa, N. Otuka, S. Chiba, K.Okumura, G. Chiba, "Development of JENDL Actinoid File", International Conference on the Physics of Reactors – PHYSOR 2008, Interlaken, Schweiz, 14. – 19. September 2008
- /JES 09/ M.A. Jessee, M.L. Williams, M.D. DeHart, "Development of Generalized Perturbation Theory Capability within the SCALE Code Package", International Conference on Advances in Mathematics, Computational Methods, and Reactor Physics (M&C 2009), Saratoga Springs, NY, USA, 3. – 7. Mai 2009
- /JOH 90/ E. Johansson, "Data and Results for KRITZ Experiments on Regular H<sub>2</sub>O/Fuel Pin Lattices at Temperatures up to 245°C", STUDSVIK/NS-90/133 (1990). [http://www.nea.fr/html/dbdata/nds\\_jefreports/jefreport-17/JEF\\_DOC/jefdoc-329.pdf](http://www.nea.fr/html/dbdata/nds_jefreports/jefreport-17/JEF_DOC/jefdoc-329.pdf)
- /KIL 05/ R. Kilger, B. Gmal, "Burnup calculations with KENOREST 03T01 and associated criticality studies for spent fuel samples from Takahama-3 reactor", ANS NCSD Meeting, Knoxville TN, USA, 19.-22.09.2005
- /KIL 06/ R. Kilger, U. Hesse, W. Weber, „GRS Rechnungen zu dem OECD/NEA Depletion Calculation Benchmark devoted to Fuel Cycle Issues Phase II: MOX Fuel mit KENOREST und TRITON“, GRS-interner Bericht (Entwurf), 2006

- /KIL 07/ R. Kilger, U. Hesse, „Nachrechnung von Nuklidinventaren von Nachbestrahlungsproben aus dem ARIANE Programm mit KENOREST“, GRS-interner Bericht (Entwurf), 24.07.2007
- /KIL 08/ R. Kilger, U. Hesse, S. Langenbuch, „KENOREST Nachrechnung der Nuklidinventare von Nachbestrahlungsproben aus dem ARIANE Programm“, GRS-A-3428, Technischer Bericht, Mai 2008
- /KIL 08a/ R. Kilger, U. Hesse, S. Langenbuch, „Isotopic Inventory Calculations Taking into Account 2D/3D Environment Conditions during Fuel Irradiation“, International Conference on the Physics of Reactors – PHYSOR 2008, Interlaken, Schweiz, 14. – 19. September 2008
- /KOD 01/ I. Kodeli, „Multidimensional Deterministic Nuclear Data Sensitivity and Uncertainty Code System: Method and Application“, Nucl. Sci. And Eng. 138, pp 45 – 66 (2001)
- /LAN 02/ S. Langenbuch, U. Hesse, K. Hummelsheim, W. Zwermann, „Reaktorphysikalische Untersuchungen und Methodenentwicklung für neue Einsatzstrategien zum Abbau von Plutonium in Leichtwasserreaktoren“, GRS-A-3082, Abschlussbericht, Dezember 2002
- /MOS 06/ R.D. Mosteller, "The Doppler-Defect Benchmark: Overview and Summary of Results", Joint International Topical Meeting on Mathematics & Computation and Supercomputing in Nuclear Applications (M&C + SNA 2007), Monterey, Kalifornien, 15. – 19. April, 2007
- /NAK 00/ Y. Nakahara, K. Suyama, T. Suzaki (2000), „Technical development on burn-up credit for spent LWR fuels,“ ORNL/TR 2001/01, Translation of JAERI Tech 2000 071, Oak Ridge, USA, 2000
- /NEA 95/ Nuclear Energy Agency: “Physics of Plutonium Recycling, Vol. III: Void Reactivity Effect in Pressurized Water Reactors”, ISBN: 92-64-14591-5, (1995).
- /NEA 03/ Nuclear Energy Agency: “Benchmark on Deterministic Transport Calculations without Spatial Homogenization, a 2-D/3-D MOX Fuel Assembly Benchmark“, NEA#03135, ISBN: 92-64-02139-6, available from [www.nea.fr](http://www.nea.fr) (Report No. NEA/NSC/DOC(2003)16), (2003).
- /NEA 03a/ Nuclear Energy Agency: “Physics of Plutonium Recycling, Volume VII: BWR MOX Benchmark, Specification and Results“, NEA#03038, ISBN: 92-64-19905-5, (2003).

- /NEA 07/ <http://www.nea.fr/sfcompo/Ver.2/Eng/Takahama-3/index.html> am 27.  
September 2007
- /PAU 04/ A. Pautz, "Results on the OECD/NEA C5G7-MOX benchmark obtained with the Discrete Ordinates code DORT", Prog. Nucl. Energy **45**, No. 2-4 (2004) 153
- /PAU 05/ A. Pautz, U. Hesse, W. Zwermann, S. Langenbuch, "Fuel Assembly Calculations Using the Method of Discrete Ordinates", Nuclear Science and Engineering, **Vol. 149**, pp. 197-210, (2005).
- /PAU 05a/ A. Pautz: "Application of the Discrete Ordinates Code DORT to Fuel Lattices: Benchmark Results and Improved Cross Section Generation Capabilities", Mathematics & Computation 2005, Avignon, France, Sep. 12-15, (2005).
- /PAU 06/ A. Pautz, "Improved Strategies for Fuel Assembly, Pin Cell and Reflector Cross Section Generation Using the Discrete Ordinates Code DORT", PHYSOR 2006, Vancouver, Canada, (2006)
- /PAU 09/ A. Pautz, U. Hesse, „DORTOREST: A Coupled Transport-Depletion Code System for LWR Fuel Assembly Burnup Calculations", International Conference on Advances in Mathematics, Computational Methods, and Reactor Physics (M&C 2009), Saratoga Springs, NY, USA, 3. – 7. Mai 2009
- /POS 99/ D.L. Poston, H.R. Trelue, "User's Manual, Version 2.0 for MONTEBURNS Version 1.0", LA-UR-99-4999, September 1999
- /PRE 07/ G.Pretzsch, B.Gmal, U.Hesse, K.Hummelsheim: "Neutron activation of reactor components during operation lifetime of a NPP", IAEA-CN-155/062, 2007
- /RHO 88/ W. A. Rhoades, R. L. Childs, "The DORT Two-Dimensional Discrete Ordinates Code", *Nucl. Sci. & Eng.*, **99**, 88-89 (1988)
- /ROQ 04/ B. Roque et al., "Depletion Calculation Benchmark Devoted To Fuel Cycle Issues: Specification for Phase 1", Benchmark-Spezifikation (2004).  
<http://www.nea.fr/html/science/docs/2004/nsc-doc2004-11.pdf>
- /RÖT 09/ C. Röttgen, "Enhancement and Evaluation of the Mont Carlo Depletion Code MONTEBURNS", Diplomarbeit, NTech Lehrstuhl für Nukleartechnik, Technische Universität München, Januar 2009

- /RÖT 09a/ C. Röttgen, R. Macián-Juan, A. Pautz, W. Zwermann, „Improvements and Applications of the MONTEBURNS Depletion Code“, Jahrestagung Kerntechnik, Dresden, 12. – 14. Mai 2009
- /SAN 02/ C.E. Sanders, I.C. Gauld, “Isotopic Analysis of High-Burnup PWR spent Fuel Samples from the Takahama-3 Reactor”, ORNL/TRM-2001/259, Oak Ridge, USA, (2002)
- /SCA 06/ "SCALE: A Modular Code System for Performing Standardized Computer Analyses for Licensing Evaluation, Version 5.1“, ORNL/TM-2005/39 (2006)
- /TIM 06/ W. Timm, St. Misu, A. Pautz: “VENUS-7 Plutonium Recycling Benchmark, Results of AREVA NP”, PHYSOR 2006, Vancouver, Canada, (2006)
- /ZWE 08/ W. Zwermann, A. Pautz, S. Langenbuch, „Stationäre Kernberechnungen mit Monte-Carlo- und deterministischen Neutronen-Transportprogrammen“, GRS-A-3427, Mai 2008

## 9 Anhang: Konferenzbeiträge aus dem Berichtszeitraum

U. Hesse, K. Hummelsheim, R. Kilger, F.E. Moser, S. Langenbuch, "LWR Decay Heat Calculations Using a GRS Improved ENDF/B-VI Based ORIGEN Data Library", International Conference on Nuclear Data for Science and Technology 2007, Nizza, Frankreich, 22. – 27. April 2007

R. Kilger, U. Hesse, S. Langenbuch, "Isotopic Inventory Calculations Taking into Account 2D/3D Environment Conditions during Fuel Irradiation", International Conference on the Physics of Reactors, Interlaken, Schweiz, 14. – 19. September 2008

A. Pautz, U. Hesse, "DORTOREST: A Coupled Transport-Depletion Code System for LWR Fuel Assembly Burnup Calculations", International Conference on Advances in Mathematics, Computational Methods, and Reactor Physics (M&C 2009), Saratoga Springs, NY, USA, 3. – 7. Mai 2009

C. Röttgen, R. Macián-Juan, A. Pautz, W. Zwermann, "Improvements and Applications of the MONTEBURNS Depletion Code", Jahrestagung Kerntechnik, Dresden, 12. – 14. Mai 2009



## LWR decay heat calculations using a GRS improved ENDF/B-VI based ORIGEN data library

U. Hesse<sup>a</sup>, Kl. Hummelsheim, R. Kilger, F.E. Moser, and S. Langenbuch

Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, Forschungsinstitute, 85748 Garching, Germany

**Abstract.** The known ORNL ORIGEN code is widely spread over the world for inventory, activity and decay heat tasks and is used stand-alone or implemented in activation, shielding or burn-up systems. More than 1000 isotopes with more than six coupled neutron capture and radioactive decay channels are handled simultaneously by the code. The characteristics of the calculated inventories, e.g., masses, activities, neutron and photon source terms or the decay heat during short or long decay time steps are achieved by summing over all isotopes, characterized in the ORIGEN libraries. An extended nuclear GRS-ORIGENX data library is now developed for practical appliance. The library was checked for activation tasks of structure material isotopes and for actinide and fission product burn-up calculations compared with experiments and standard methods. The paper is directed to the LWR decay heat calculation features of the new library and shows the differences of dynamical and time integrated results of ENDF/B-VI based and elder ENDF/B-V based libraries for decay heat tasks compared to fission burst experiments, ANS curves and some other published data. A multi-group time exponential evaluation is given for the fission burst power of 4 important fission materials, to be used in quick LWR reactor accident decay heat calculation tools.

### 1 Development of a GRS improved, ENDF/B-VI based ORIGEN data library

A new nuclear data library GRS-ORIGENX [11] is now developed for practical appliance. In a first step of development, called LIBMAST04, some problems in the former ORIGEN calculation method [2] and/or in the data libraries for structural material activation calculations (LIB1), for the actinide build-up (LIB2) and the fission product generation (LIB3) could be solved, e.g., the tritium, <sup>14</sup>C, <sup>22</sup>Na, <sup>26</sup>Al, <sup>60</sup>Fe or <sup>93m</sup>Nb production problem. This was achieved by extending the number of neutron reaction channels, the energy groups and the energy range. All cross sections and build-up channels are completely recalculated by point data files JEF-2.2, ENDF/B-VI, JENDL3.2 and EAF97. But the decay data and fission yields of LIBMAST04 were based on ENDF/B-V as in the burn-up program system OREST-96 [10].

In a second step of development LIBMAST06 the decay data – decay energies, probabilities and channels – and 25 fission yield sets are now taken from ENDF/B-VI data bases. The decay energies were analyzed and improved for reactor accident calculation to avoid the slight under-predictions of the reactor decay heat in the first 1000 seconds in ENDF/B-VI. Especially the beta and gamma energies of 70 important fission products were enlarged by 5%. The library was checked for structure material isotope activation, and for actinide and fission product burn-up inventories compared with experiments and standard calculations. The overall data

of the new library, compared to elder evaluations, are listed in table 1, last column:

**Table 1.** Nuclide numbers and data range LIBMAST06 and former ORIGEN versions.

| Library                     | ORIGEN ref. [2] | ref. [10] *) | LIBMAST-04 *) | LIBMAST-06 **) |
|-----------------------------|-----------------|--------------|---------------|----------------|
| Number of nuclides          |                 |              |               |                |
| LIB1                        | 253             | 700          | 980           | 1050           |
| LIB2                        | 101             | 144          | 177           | 177            |
| LIB3                        | 461             | 847          | 1116          | 1195           |
| Range of decay data         |                 |              |               |                |
| Channels                    | 7               | 8            | 8             | 8              |
| Fission yield sets          | 5               | 5            | 20            | 25             |
| Delayed n-precursors        | 0               | 95           | 95            | 225            |
| Number of neutron reactions |                 |              |               |                |
| LIB1                        | 6               | 6            | 15            | 15             |
| LIB2                        | 7               | 7            | 16            | 16             |
| LIB3                        | 2               | 2            | 15            | 15             |
| E-Groups                    | 3               | 3            | 6             | 6              |
| Up to MeV                   | 10              | 10           | 20            | 20             |

\*) Decay library based on ENDF/B-V. \*\*) Decay library based on ENDF/B-VI.

#### 1.1 Burst decay heat exponential presentations for <sup>235</sup>U, <sup>238</sup>U, <sup>239</sup>Pu and <sup>241</sup>Pu

For the most important fission materials <sup>235</sup>U, <sup>238</sup>U, <sup>239</sup>Pu and <sup>241</sup>Pu we started GRS-ORIGENX decay heat calculations up to 10<sup>13</sup> seconds. Due to good agreement in fission burst experiments, a time group exponential development was generated by the GRS-WATT10 code for the four isotopes.

<sup>a</sup> Presenting author, e-mail: Ulrich.Hesse@grs.de

The data represent the exact ORIGENX results inside one, maximum two percent (see last two lines in the tables) starting at discharge up to  $10^{13}$  seconds or 317,000 years. They can be used in quick LWR reactor accident calculations. It should be mentioned, that only the decay heat of the fission products is respected. Decay heat contributions of actinides and of captured delayed neutrons are excluded.

The data fit two simple burst decay power/energy equations, summarizing the time groups  $m = 1.34$  for each fission material  $l = 1.4$

$$P_l(t) = \sum_m \alpha_{lm} * \exp(-\lambda_{lm} * t), \quad (1)$$

$P_l(t)$  is the power (MeV/s) of material  $l$  at time  $t$  (s)

$$Q_l(t) = \sum_m (\alpha_{lm}/\lambda_{lm}) * \left[ 1.0 - \exp(-\lambda_{lm} * t) \right], \quad (2)$$

$Q_l(t)$  is the emitted energy (MeV) of material  $l$  at time  $t$  (s).

The decay power of fission products for longer burn-up times than a fission burst can be constructed by using equation (2) for the reached burn-up time, summing over the fission rates of the four fission materials and combing this expression with equation (1) for the decay time. This method is used, e.g., in [3].

## 1.2 Burst decay heat calculations compared to measurements and other evaluations in the short time range

In figure 1, a comparison of different library evaluations and the averaged value is made for the burst decay heat of  $^{235}\text{U}$ , presented as a curve  $F*T$  (power\*decay time). Five measurements for the total (gamma plus beta) power were used from 0.4 up to  $7 \times 10^4$  seconds. It is good to see that LIBMAST06 (full square dots) fits the experimental results (empty circles). The ANS curve ([1], triangular dots) slightly over-predicts, but the ENDF/B-V based LIBMAST04 library (empty square dots) and also the ENDF/B-VI based SCALE5-ORIGENS library (cruciform dots) under-predict the measured data by some percent.

The deviations of codes and single experiments are shown in figure 2, where the zero deviation line is represented by the averaged five measurements. The spreading of the measurements [5–9] against the averaged data is found as  $\pm 5\%$ . The most recent gamma and beta measurements taken from [9] (empty square dots, /NZLU35-8/), dated from 1997, are found up to 5% higher than the zero line, whereas the known ORNL-Dickens data ([6], /NZLU35-2/) are up to 5% lower than the averaged value.

In [9] we found the beta values to be reliable over the whole time range of measurements, but the gamma values after 2000 seconds are found to be significantly too low, so for [9] our experimental total results ended at 1000 seconds.

Similar results and good agreement in the short time range we found for  $^{239}\text{Pu}$  in seven measurements from 0.7 to  $7 \times 10^4$  s,  $^{238}\text{U}$  in two measurements from 0.4 to  $2 \times 10^4$  s and  $^{241}\text{Pu}$ , where only one measurement from 5 to  $10^4$  s is available.

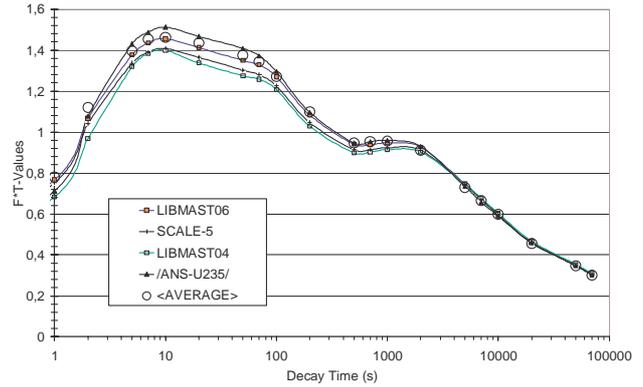


Fig. 1. Experimental average decay heat  $^{235}\text{U}$  in comparison to three libraries and ANS [1].

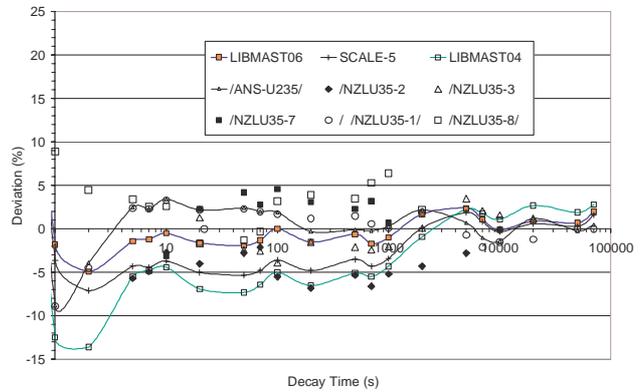


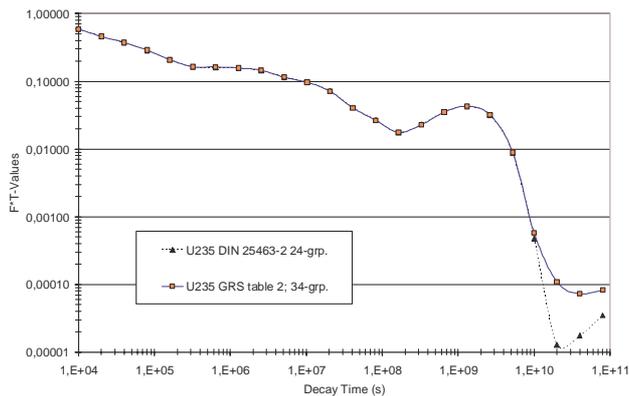
Fig. 2. Deviations of the three libraries and ANS of figure 1 against experimental  $^{235}\text{U}$  decay heat.

We noticed that the pandaemonium effect, the great discrepancy between the gamma and beta decay heat in the range between one and 1000 seconds in the ENDF/B-V based data libraries ([10] and LIBMAST04) is now avoided in the ENDF/B-VI based library of this paper.

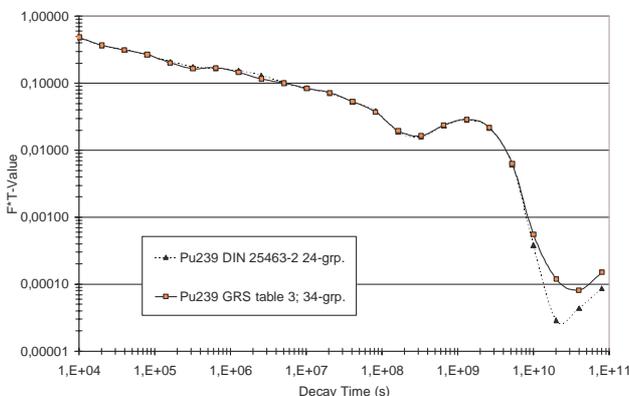
## 1.3 Burst decay heat calculations in the long time range

The library was tested against the future German Industry Decay Heat Standard DIN 24563-2 [3] for PWR MOX fuel. An exponential presentation in 24 time groups is here given for four fission materials  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Pu}$ . The long time range of [3] is limited to  $10^9$  s or ca. 30 years. In the whole decay time range a comparison was made with our LIBMAST06.

In the short time range of ref. [3] at burst decay heat calculations up to  $10^4$  s we found a slight under-prediction of the averaged  $^{235}\text{U}$  experimental data in figure 1 similar to SCALE5/ORIGENS or [6], but for the other fission materials  $^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Pu}$  the agreement with our calculation or the experimental data was very good. For the long time decay heat range greater  $10^4$  s the DIN-LIBMAST06-comparison was made up to  $10^{11}$  s, see figure 3 for  $^{235}\text{U}$  and figure 4 for  $^{239}\text{Pu}$ .



**Fig. 3.**  $^{235}\text{U}$  decay heat GRS-LIBMAST06 and DIN 25463-2 in the long time range.



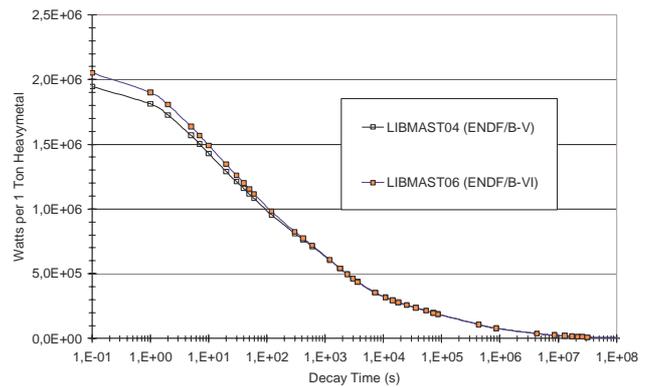
**Fig. 4.**  $^{239}\text{Pu}$  decay heat GRS-LIBMAST06 and DIN 25463-2 in the long time range.

The figure 3 for uranium-235, the most important fission material in  $\text{UO}_2$  fuel, shows clearly that both exponential presentations, DIN or LIBMAST06, are in very good agreement in a time range up to  $10^{10}$  s or ca. 317 years. Same is true for plutonium-239, figure 4, which is in MOX fuel the most important fission material, and for  $^{238}\text{U}$  and  $^{241}\text{Pu}$  (not shown). Beyond such long decay times of  $10^{10}$  s a more detailed evaluation with more groups than 24 should be used; for example our evaluation, which had been developed up to  $10^{13}$  seconds.

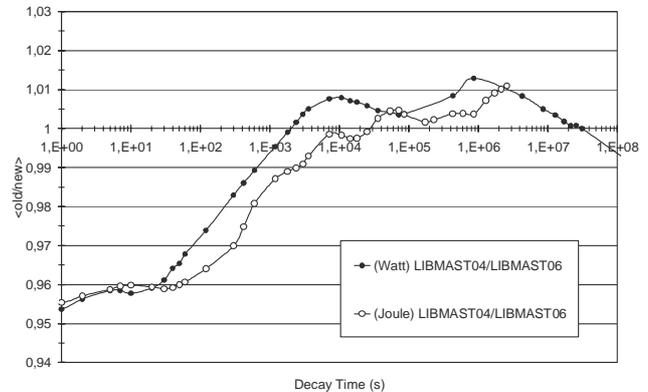
## 2 Burn-up calculations and decay heat

Fission burst analysis is only one (important) aspect of the methods to prove a library. But in the short pulse all other neutron activation processes which lead to other long living decay heat emitting isotopes are neglected, which normally occur in the neutron flux during the reactor burn-up time periods. The build-up of  $^{134}\text{Cs}$  by neutron capturing in the fission product  $^{133}\text{Cs}$  is the most known and most important example.

Using LIBMAST06 of the GRS-ORIGENX code, six improved standard ORIGEN card image libraries were generated for our burn-up systems 1D OREST and 3D KENOREST



**Fig. 5.** Decay heat of PWR  $\text{UO}_2$  at a burn-up 40 GWd/tHM, calculated with OREST-V04 (ENDF/B-V decay data) compared to OREST-V06 (ENDF/B-VI decay data).



**Fig. 6.** Library comparison of the decay power and emitted decay energy calculated from figure 5.

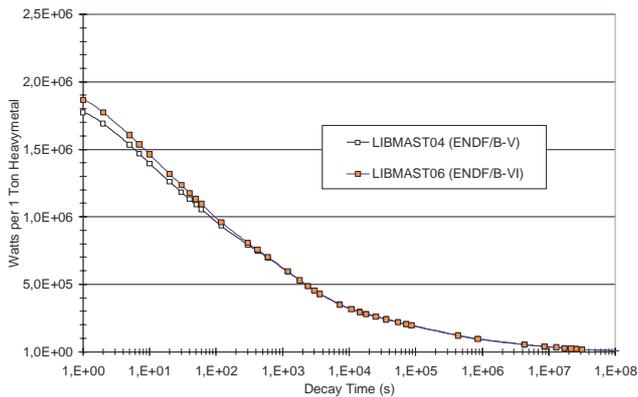
[4]. In the next figures the heat production of  $\text{UO}_2$  and MOX PWR fuel after realistic burn-ups of 40 GWd/tHM in a standard fuel assembly is shown for the ENDF/B-VI improved library LIBMAST06 compared to LIBMAST04, which is the elder ENDF/B-V decay data based library with same updated neutron cross sections.

It should be mentioned, that in the following figures only the decay heat of the actinides and fission products is respected. Decay heat contributions of activated structure materials and of captured delayed neutrons are excluded.

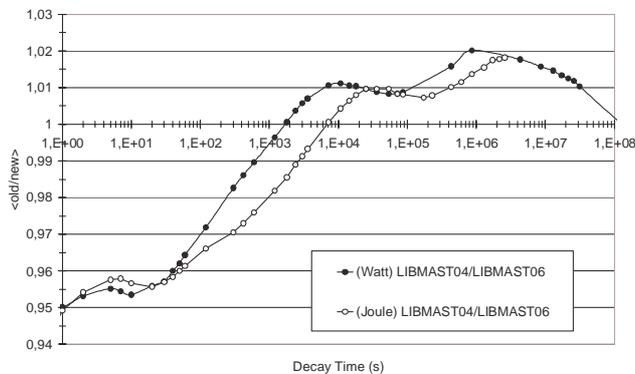
In figure 5 the  $\text{UO}_2$  decay power after the reactor shut down up to one month is shown for the elder and the improved library.

In figure 6 a quotient old/new is generated for the production of the decay power and the time integrated emitted decay energy. The differences of these realistic calculations with all fission and neutron capturing processes show, that the older library under-predicts the decay power (full circles) up to 1000 s, and under-predicts the emitted energy (empty circles) up to  $10^4$  s. But it is interesting to see that – starting from these time points up to  $10^7$  s – the elder ENDF/B-V based library gave a slightly higher decay heat (ca. 1%).

Analogous data as shown in figures 5–6 had been generated with the same burn-up and reactor power for a typical MOX fuel assembly as shown in figures 7–8. The



**Fig. 7.** Decay heat of PWR MOX at a burn-up 40 GWd/tHM, calculated with OREST-V04 (ENDF/B-V decay data) compared to OREST-V06 (ENDF/B-VI decay data).



**Fig. 8.** Library comparison of the decay power and emitted decay energy calculated from figure 7.

maximum MOX decay heat under-predictions arrive 5%, the over-prediction in the time range  $10^4$ – $10^8$  s arrive a maximum of 2%.

### 3 Conclusions

A new GRS-ORIGENX library was developed with 16 neutron reactions and 8 decay channels based on ENDFB/F-VI decay data and fission yields and cross section point data for 500 capturing isotopes. The library is used in activation, shielding and burn-up tasks. In the short time range the decay energies of the 70 most important ENDF/B-VI fission product isotopes were enlarged by 5%. For a comparison

good agreement with experimental fission burst decay heat experiments for  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Pu}$  could be shown. A multi-group time exponential evaluation was generated, which can be used in quick reactor accident calculations, representing the exact results of GRS-ORIGENX inside 1% or maximal 2% from discharge up to  $10^{13}$  seconds. A long time calculation compared to the future German Industry Decay Heat Standard for PWR MOX fuel is in good agreement between 1 up to  $10^{10}$  seconds for  $^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Pu}$  and between  $10^4$  up to  $10^{10}$  seconds for  $^{235}\text{U}$ . The library is available in the GRS-ORIGENX format or in the standard ORIGEN format for the HTGR, LWR and FBR reactor type.

### References

1. A. Tobias, Berkeley Nuclear Laboratories, *Uncertainties in JEF1 Integral Decay Heat Predictions, Proceedings of a Specialists' Meeting on Data for Decay Heat Predictions, Studsvik, Sweden, 7–10 Sept. 1987*, table 9, p. 243.
2. M.J. Bell, *ORIGEN - The ORNL Isotope Generation and Depletion Code*, ORNL-4628, UC-32-Mathematics and Computers, May 1973.
3. *Berechnung der Zerfallsleistung der Kernbrennstoffe von Leichtwasserreaktoren – Teil 2: Uran-Plutonium-Mischoxid (MOX)-Kernbrennstoff für Druckwasserreaktoren*, Deutsche Norm – Entwurf, DIN-25463-2, 2004.
4. U. Hesse, T. Voggenberger, F. Cester, R. Kilger, *KENOREST-2004, Eingabebeschreibung für quadratische Gitter*; GRS 5, Sept. 2005.
5. M.F. James, *Libraries of Evaluated Fission Yields, Evaluation of Fission Product Yields, Proceedings of a Specialists' Meeting on Data for Decay Heat Predictions, Studsvik, Sweden, 7–10 Sept. 1987*, table 13, p. 101.
6. J.K. Dickens, Oak Ridge National Laboratory, Tennessee 37831 USA, *Review of New Integral Determinations of Decay Heat*, same meeting, ORNL-Data, figure 2, p. 204.
7. J.K. Dickens, Oak Ridge National Laboratory, Tennessee 37831 USA, same meeting, NERL-Data, figure 2, p. 204.
8. P.I. Johansson, University of Uppsala, Nykoeping, Sweden, *Integral Determinations of the Beta and Gamma Heat*, same meeting, table 1, p. 217, table 2, p. 218.
9. H.V. Nguyen et al., *Decay Heat Measurements Following Neutron Fission of  $^{235}\text{U}$  and  $^{239}\text{Pu}$* , *Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology, Trieste, Italy, 1997*.
10. U. Hesse, J. Sieberer; OREST-96, User-Instruction, GRS 6, July 1999.
11. U. Hesse, E. Moser, Kl. Hummelsheim, *GRS-ORIGENX – 2004, Eingabebeschreibung*, GRS 6, Sept. 2005.

## Isotopic inventory calculations taking into account 2D/3D environment conditions during fuel irradiation

Robert Kilger<sup>\*</sup>, Ulrich Hesse, Siegfried Langenbuch

*Gesellschaft fuer Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS)mbH, Garching n. Munich, Germany*

---

### Abstract

Burnup-dependent 2D or 3D flux calculation tools coupled to rod-wisely applied point depletion codes being used to model a whole fuel assembly nowadays are state of the art in inventory calculation during in-core fuel depletion. By these tools, radial structures in modern fuel assembly designs can be accounted for properly in models were infinite assembly arrays are an acceptable approximation. However, in some cases this infinite array assumption is strongly violated, e.g. when applied to a MOX fuel assembly surrounded by uranium dioxide assemblies, or when dealing with an assembly being located at the core periphery for one or more irradiation cycles. Moreover, the inventory calculation for spent nuclear fuel samples taken from rod positions near to the very top or bottom of a fuel assembly suffers from neutron leakage and backscatter effects from the environment and thus spectral shifts which cannot be regarded by two dimensional flux models.

This paper demonstrates the improved capabilities of the GRS 2D/3D depletion calculation system KENOREST in dealing with the above mentioned difficulties on the basis of inventory calculations for the PIE samples ARIANE BM5 and Takahama-3 SF97-1.

---

### 1. Introduction

Regarding spent nuclear fuel (SNF), in the fields of criticality safety, dose rate and shielding estimation as well as decay heat calculation, a detailed knowledge of the isotopic inventory of the spent fuel is indispensable. This task is supported by depletion calculation code systems.

While formerly starting with zero dimensional ORIGEN calculations with pre-weighted cross sections, then 1D static pin cell models, nowadays burnup-dependent 2D or 3D flux calculation tools coupled to rod-wisely applied point depletion codes being used to model a whole fuel assembly are state of the art. By this means, radial structures in modern fuel assembly designs, such as guide tubes, fixed or

---

<sup>\*</sup> Corresponding author, robert.kilger@grs.de

Tel. +49 89 32004-498; Fax: +49 89 32004-10498

removable absorber (control) rods, water channels, or fuel rods with varying initial enrichment, can be accounted for properly in models where infinite assembly arrays are an acceptable approximation.

However, in some cases this infinite array assumption is strongly violated, e.g. when applied to a MOX fuel assembly surrounded by uranium dioxide assemblies, or when dealing with an assembly being located at the core periphery for some cycles during the irradiation.

Moreover, the inventory calculation for SNF samples taken from rod positions near to the very top or bottom of a fuel assembly suffers from neutron leakage and backscatter effects from the environment and thus spectral shifts which cannot be regarded by two dimensional flux models; here an accurate three dimensional model is required for appropriateness.

## 2. Inventory Calculations using KENOREST

In GRS, since ten years the 2D/3D pin by pin inventory and reactivity calculation system KENOREST is developed and applied for in-core depletion calculations of nuclear fuel (Hesse et al., 2005). Its 2D/3D capabilities are validated against OECD benchmarks and post irradiation experiments (PIE). Recently introduced improvements are fission yields and decay libraries being updated to ENDF/B-VI, the possibility to regard for neighbouring fuel assemblies featuring an averaged, constant nuclide inventory, as well as a simplified possibility to account for three dimensional variations along the fuel axis, e.g. structures at the fuel top or bottom (Hesse, 2006).

This paper presents a validation of KENOREST against the SNF sample BM5 from ARIANE programme (Primm 2003), which is a high burn-up MOX sample; the respective MOX assembly was surrounded with uranium dioxide fuel assemblies during irradiation, and being located for three of six irradiation cycles at the core periphery.

Also isotopic inventory calculations for the sample SF97-1 from the Japanese Takahama-3 reactor (Nakahara et al, 2002) are presented, which is taken from the fuel top of an assembly being irradiated for three reactor cycles; irradiation history and three dimensional position of this sample were modelled with KENOREST in detail, and the results were compared to calculations neglecting the 3D environment in axial direction.

### 2.1. ARIANE Sample BM5

This high burn-up MOX sample was irradiated in the Swiss PWR Beznau-1 to about 60 GWd/tHM (Primm 2003). The assembly vicinity of the BM5 sample bearing MOX assembly was modelled in two dimensions, but extended by neighbouring assemblies rather than an infinite arrangement of identical MOX assemblies. Uranium dioxide assemblies with an initial enrichment of 3.5 wt%  $^{235}\text{U}$  and an average burn-up of 24 GWd/tHM were placed in a  $3\times 3$  array around the central MOX assembly. According to a similar approach in the OECD/NEA WPRS Depletion Calculation Benchmark Phase II (Roque et al., 2007), this pre-calculated “half-burnt”  $\text{UO}_2$  inventory was not changed during irradiation to provide for an adequate average condition.

For those three of totally six irradiation cycles during which the MOX assembly was placed at the core periphery, using the branching calculation mode, at the respective “empty” assembly positions the  $\text{UO}_2$  assemblies were replaced by “water assemblies” consisting only of coolant water.

Figure 1 illustrates as an example the position of the fuel assembly bearing the BM5 sample in the middle of the respective  $3\times 3$  assemblies arrangement with two water assemblies during the third irradiation cycle, when the MOX assembly was positioned at the core periphery.

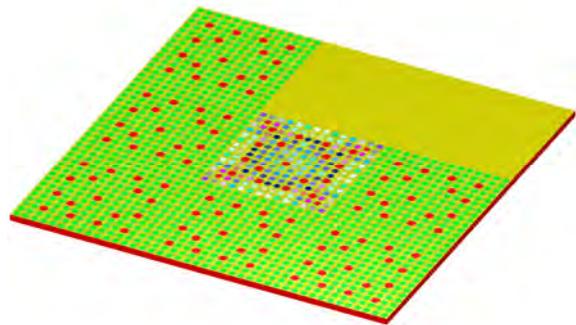


Figure 1: Fuel assembly bearing BM5 with  $3\times 3$  environment during 3<sup>rd</sup> irradiation cycle.

Figure 2 shows KENOREST calculation results C/E for this cycle-dependent  $3\times 3$  assemblies arrangement at the experimental analysis point in time, compared to a standard KENOREST

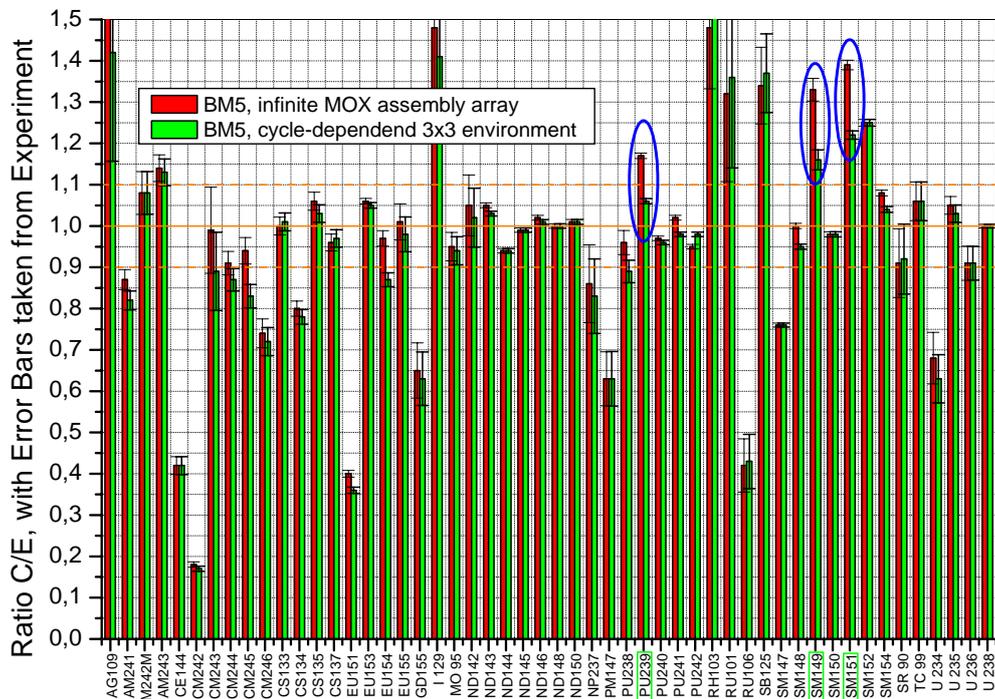


Figure 2: Comparison of calculated and experimentally determined nuclide inventory of ARIANE BM5 sample with and without extended 2D environment.

calculation using an infinite MOX assembly array under otherwise identical irradiation conditions.

On the one hand, for almost all nuclides evaluated in the ARIANE experimental programme, both calculations show similar results of C/E within statistical fluctuations and experimental error bars. However, in the infinite assembly array model the considerable overestimation of 17 % of  $^{239}\text{Pu}$  as main fissile isotope in MOX fuel, and also of  $^{149}\text{Sm}$  (33 %) and  $^{151}\text{Sm}$  (39 %) as some main contributors to neutron absorption, are highly unsatisfactory (this was one incentive, amongst others, for the application of the more detailed assembly environment). In Figure 2, these three nuclides are marked with blue ellipses. In fact, the same unsatisfying  $^{239}\text{Pu}$  overestimation was also found in literature (Murphy, Primm, 2002). However, this article mentions a negligible influence of an additional regard for the assembly's vicinity.

In contrary, in our results the detailed 3x3 cycle-dependent assembly model shows a definite improvement for  $^{239}\text{Pu}$  to a 6 % overestimation which appears acceptable for this nuclide in such a

complex vicinity, and enhancements for  $^{149}\text{Sm}$  and  $^{151}\text{Sm}$  to 16 % and 22 % overestimation, respectively.

Both regarding for the more realistic flux calculation ( $\text{UO}_2$  environment with its implications on the overall reactivity) and for the increased moderation during three cycles ("water assemblies" at core periphery) yield to an improved agreement of three important nuclides. Especially  $^{239}\text{Pu}$  is enhanced, while the quality of results for the other isotopes is maintained.

It should be mentioned that the exact orientation of the BM5 sample (which is not located centrally in the assembly lateral plane) towards the core periphery is no more comprehensible, so an average value of two possible positions, on the one hand facing and otherwise averted to the water assembly, was calculated. A potentially higher moderated orientation could reduce the still remaining overestimation of  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{149}\text{Sm}$ ,  $^{151}\text{Sm}$  and  $^{235}\text{U}$ , but is currently not justified by available information, and thus was not investigated further.

## 2.2. Takahama-3 Sample SF97-1

This  $\text{UO}_2$  sample with 4.11 wt% initial  $^{235}\text{U}$  enrichment was irradiated in the Japanese PWR Takahama-3 up to a sample burn-up of 17.69 GWd/tHM (Nakahara et al, 2002). It was situated 163 mm from the top end of the fuel assembly and only 4 mm from the top end of the active zone, hence requiring a 3D modelling. In extension to the fuel in axial direction functional structural modules of the assembly were added as inactive material zones, including aluminium, Zircaloy-4, and water.

Figure 3 shows an (upside-down) cutaway view from the 3D model of Takahama-3 SF97-1 sample for KENOREST. Again, a “half-burnt”, constant  $\text{UO}_2$  assembly environment with 8 GWd/tHM local burn-up likewise to the above mentioned MOX assembly was modelled, now as  $2 \times 2$  arrangement, as supposed to be typical for Takahama-3. No MOX fuel was to be used in that core during the irradiation period of the sample. No dimension for the gap between two assemblies was given, so a gap of 1.55 mm was assumed, and periodic boundaries were applied in the lateral plane.

Figure 4 shows KENOREST calculation results C/E at discharge time for this 3D modelling, in

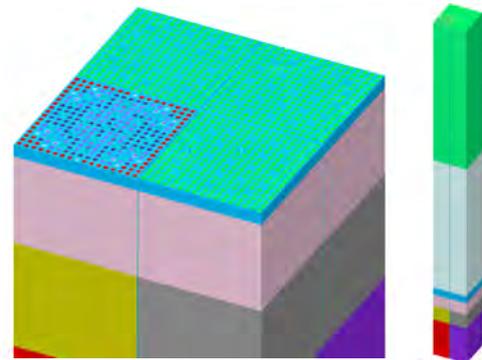


Figure 3: Cutaway view in the lateral plane through the 3D model of the SF97-1 sample

comparison to a standard 2D calculation (including the  $2 \times 2$  environment) under otherwise identical irradiation conditions. As can be seen there, in comparison to the two dimensional calculation the consideration of the three dimensional environment leads to a major improvement for the Plutonium isotopes,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{151}\text{Sm}$  and others. There is no decline of the remainder results except for Curium, being significantly underestimated in the 3D case but comparatively well reproduced in the 2D case. The first is known to be typical (Kilger, Gmal, 2005). In the latter, the harder neutron spectrum is apparently fostering the actinide build-up chain.

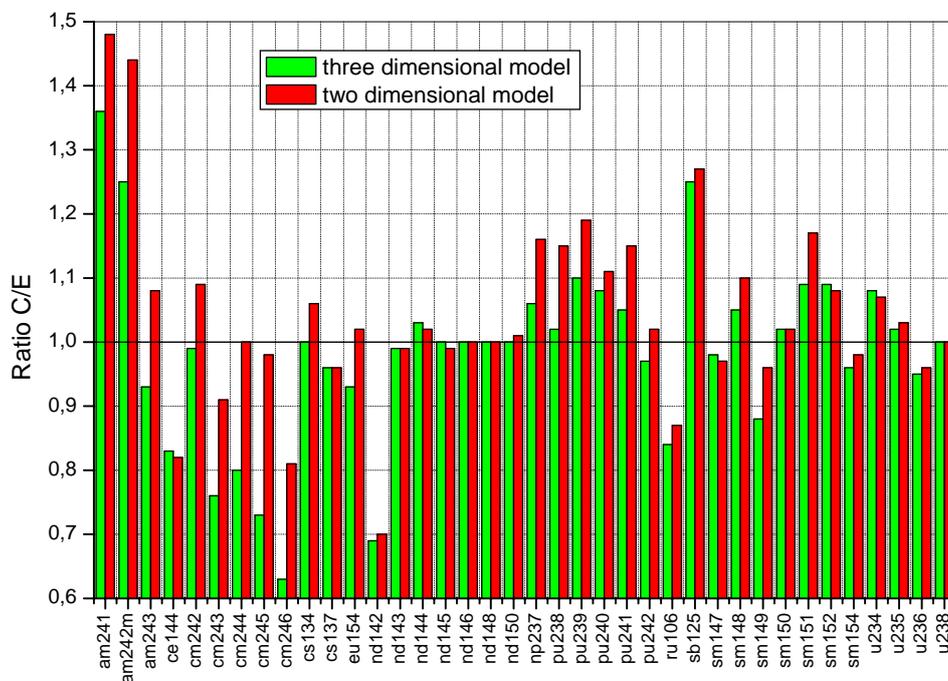


Figure 4: Comparison of calculated and experimentally determined nuclide inventory of Takahama-3 SF97-1 sample with two- and three-dimensional modelling.

### 3. Discussion of Results

#### 3.1. Calculation Results

##### 3.1.1 ARIANE BM5

In the case of the MOX sample ARIANE BM5, by regarding for the changing vicinity during the six irradiation cycles, a remarkable improvement in the prediction of the most important fissile nuclide in MOX fuel,  $^{239}\text{Pu}$ , can be achieved, as well as for two important neutron absorbers,  $^{149}\text{Sm}$  and  $^{151}\text{Sm}$ . The remainder nuclide C/E ratios remain essentially unchanged within statistical fluctuations as compared to the infinite assembly array, which however is also notable.

Well reproduced in both cases are all Nd and the other Pu isotopes, and many others. The common overestimation for some metallic fission products, e.g.  $^{109}\text{Ag}$ ,  $^{103}\text{Rh}$  or  $^{125}\text{Sb}$ , is likely due to experimental difficulties in dissolving those nuclides from SNF, and is frequently reported in literature, e.g. by (Murphy, Primm, 2002), (Primm, 2003) or (Gauld, 2006).

This study demonstrates the strong sensibility of calculation results for MOX to changes in moderation and neutron spectrum.

Additionally it should be mentioned that the publication of the measured (and reversely calculated) nuclide masses both “at analysis” and “at discharge” within the ARIANE program was highly appreciated. Despite of the increased calculation efforts, for our study we chose comparison of calculated nuclide masses to the experimental masses “at analysis”, to bypass possible inaccuracies accompanied to the return account of masses to discharge time. However, giving both information side by side is valuable (Kilger et al., 2007).

##### 3.1.2 Takahama-3 SF97-1

The regard for the complex three dimensional vicinity of the Takahama-3 SF97-1 sample also yields to a definite improvement for the overall results compared to a standard 2D calculation. The nuclide-by-nuclide comparison to results for other Takahama-3 samples for which 2D calculations were demonstrated to be appropriate (Kilger, Gmal 2005), now shows equivalent results also for this

peripheral SF97-1 sample. There are good results for U, Pu, all Nd except for  $^{142}\text{Nd}$ ; overestimation of most Am,  $^{125}\text{Sb}$  and  $^{151}\text{Sm}$ , as well as a considerable underestimation of all Cm except for  $^{242}\text{Cm}$ . The latter appears to be a setback, nevertheless the underestimation of these Curium isotopes is typical, and is experienced also for most other Takahama-3 samples inventory calculations with KENOREST as being reported in (Kilger, Gmal, 2005), and found also in (Sanders, Gauld, 2002). So in this special case, quasi the “worse” Curium results indicate “better” (i.e. more reliable) overall calculation results. This fact appears to be typical also for many other codes using modern cross section libraries (Roque et al., 2006).

Note that the original work (Nakahara et al, 2002), p. 390, doesn't provide a mass value for  $^{142}\text{Nd}$  in sample SF97-1. Therefore, a respective value given in (SFCOMPO, 2008) is used within this work. Here a C/E of 0.69 was calculated. A general underestimation of  $^{142}\text{Nd}$  in other Takahama-3 samples is also experienced e.g. in (Sanders, Gauld, 2002).

##### 3.1.3 Review

In both sample cases, the “half-burnt” uranium dioxide environment provides for a more realistic overall neutron spectrum and flux calculation, which is especially important in the case of an insular MOX assembly being inserted into a uranium dioxide dominated reactor core. It yields to certain advantages against considering solely the lateral variations of the fuel assembly itself.

Moreover, for that Takahama-3 top end sample, a three dimensional geometry model is crucial.

The only observed disadvantage due to the extensions carried out in the modeling, if any, was a drastically increased calculation effort.

#### 3.2. Discussion of Burn-up Credit Fission Products

Most of the fission products (FP) relevant to burn-up credit can be calculated in adequate accuracy. However, among the list of experimentally determined FP nuclides within the ARIANE program, there are three ones which contribute to a major part to the overall FP neutron absorption, but are numerically determined poorly:  $^{103}\text{Rh}$ ,  $^{109}\text{Ag}$  and  $^{151}\text{Eu}$ . Especially the first two of these often suffer from experimentally caused

deficiencies (Gauld, 2006), and are thus often experienced to be insufficiently predicted by various depletion codes (Kilger et al., 2007).

Due to this reason, we recommend to withdraw these nuclides (and probably some others) temporary from the list of “major fission products for burn-up credit”, as long as they are in fact not rigorously reliable in validation studies.

At present, public available PIE analyses don't provide a sufficient data base to take credit from these nuclides when being determined numerically. Experimental efforts are necessary, and results should be made available, to allow for their inclusion into a robust depletion code validation.

#### 4. Conclusion

Methodical improvements in KENOEST, as the possibility to regard for the assembly vicinity of a MOX fuel assembly located in an UO<sub>2</sub> environment, or the three dimensional modeling of SNF samples at positions at the top and/or bottom end of a fuel assembly, facilitate an improved, more realistic image of SNF samples with complex vicinity.

In both cases investigated, these model improvements yield to a better agreement between measured and calculated nuclide masses for a couple of nuclides important to burn-up credit.

However, extension of the experimental data base for validation is highly recommended.

#### 5. Acknowledgement

This work was supported by the German Federal Ministry of Economics and Technology.

#### References

- Gauld I.C., 2006, “Spent Fuel Isotopic Validation Activities in the United States: Status and Lessons Learned”, PIE Workshop, NRI Rež/Prague, Czech Republic, May 11<sup>th</sup>/12<sup>th</sup> 2006
- Hesse U., Langenbuch S., 2006, “KENOEST, eine direkte Kopplung von KENO und OREST”, GRS-A-2783, Dez. 1999 (Update 2006; Report in German)
- Hesse U. et al., 2005, “Status of the GRS Reactivity and Burn-up Code System KENOEST”, M&C2005, Avignon, France
- Kilger R., Gmal B., 2005, “Burnup calculations with KENOEST 03T01 and associated criticality studies for spent fuel samples from Takahama-3 reactor,” NCS D 2005, Knoxville TN, USA, September 19-22, 2005
- Kilger R., Hesse U., Langenbuch S., 2007, „KENOEST Nachrechnung der Nuklidinventare von Nachbestrahlungsproben aus dem ARIANE Programm“ (in German), to be published as GRS-A Report in 2008
- Murphy B.D., Primm III R.T., 2002, “Simulation of Mixed-Oxide and Low-Enriched Uranium Fuel Burnup in a Pressurized Water Reactor and Validation Against Destructive Analysis Results,” Nuc. Sci. Eng: **142**, 258-269 (2002)
- Nakahara Y., Suyama K., Suzuki T., 2002, „Technical development on burn-up credit for spent LWR fuels“ (Translation), ORNL/TR-2001/01
- Primm III R.T., 2003, „ARIANE International Programme Final Report“, ORNL/SUB/97-XSV750-1
- Roque B. et al., 2006, „International comparison of a depletion calculation benchmark devoted to fuel cycle issues, Results from the Phase 1 dedicated to PWR-UOx fuels“, PHYSOR 2006, Vancouver, Canada, Sept. 10-14, 2006
- Roque B. et al., 2007, „Specification for the Phase 2 of a Depletion Calculation Benchmark devoted to MOx Fuel Cycles“, OECD/NEA doc. NEA/NSC/DOC(2007)9, 2007/12/14
- Sanders C. E., Gauld I. C., 2002, ”Isotopic Analysis of High-Burnup PWR Spent Fuel Samples From the Takahama-3 Reactor“ ORNL/TM-2001/259, June 2002
- SFCOMPO, date 2008/04/17,  
<http://www.nea.fr/sfcompo/Ver.2/Eng/Takahama-3/index.html>

## **DORTOREST: A COUPLED TRANSPORT-DEPLETION CODE SYSTEM FOR LWR FUEL ASSEMBLY BURNUP CALCULATIONS**

**Andreas Pautz and Ulrich Hesse**

Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH  
Forschungsinstitute, 85748 Garching, Germany  
Andreas.Pautz@grs.de; Ulrich.Hesse@grs.de

### **ABSTRACT**

The well-known Discrete Ordinates code DORT has been implemented into the fuel assembly and nuclide inventory code system KENOREST, which in turn comprises the Monte-Carlo code KENO for stochastic transport and the fuel inventory code OREST for microscopic depletion. In this framework, DORT acts as an alternative, deterministic 2D-transport code for solving the neutron transport equation for fuel lattice geometries. A special modeling option for fuel rod arrays and a dedicated cross section collapsing and homogenization module have been added to DORT and extensively benchmarked for fresh fuel states. By coupling DORT and OREST, a new lattice code system DORTOREST has been conceived, thus facilitating the usage of DORT for depletion of LWR fuel assemblies. First comparisons between the stochastic KENOREST and the deterministic DORTOREST system indicate good agreement in eigenvalues, pin powers and nuclide inventory over the entire fuel depletion range. By means of a quadratic flux extrapolation algorithm, the expensive DORT transport calculations have also been substantially accelerated.

*Key Words:* Neutron transport, lattice code, discrete ordinates, fuel assembly, depletion

### **1. DEVELOPMENT OF A DORT-VERSION OPTIMIZED FOR LATTICE CODE APPLICATIONS**

Originally inspired by the C5G7-MOX benchmark [1] (which was launched in 2000 to test the ability of contemporary transport codes to treat fuel lattices without spatial homogenization), simplified input options for fuel rod arrays as well as cross section collapsing and homogenization capabilities for the well-known Discrete Ordinates code DORT were invented at GRS (Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit, Germany) over the past few years. In [2], first evidence was reported that DORT can, despite its restriction to regular geometrical grids, well be used to treat LWR fuel lattices in full geometric detail and heterogeneity. The growing experience with DORT and the encouraging results from the C5G7-MOX benchmark provided confidence that it may be worthwhile to consider the DORT code as transport solver module in the extended framework of a lattice physics code system. As starting point for those studies and in order to demonstrate DORT's applicability to full-scale problems, two benchmark exercises taken from the OECD series "Physics of Plutonium Recycling" were chosen, the first one dealing with the estimation of void effects in PWR lattices, the second one with BWR MOX fuel assemblies under different voiding conditions [3]. DORT has also been employed for numerous other LWR-type fuelled systems and has extensively been verified through code-to-code comparisons and been validated versus experimental benchmarks [4,5]. Moreover, the cross section

generation capabilities were improved by implementation of an SPH-algorithm for pin cell homogenization, energy group collapse and reflector treatment [6].

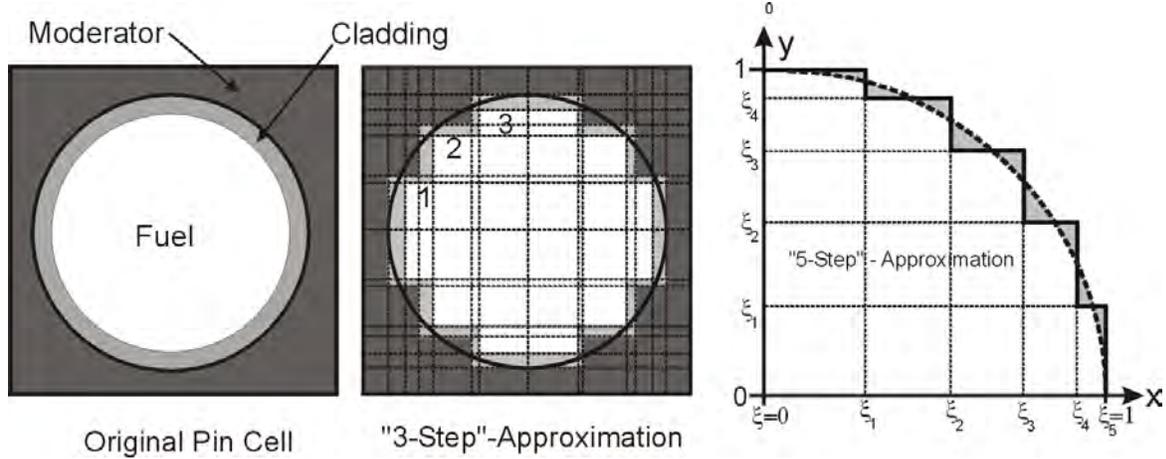
To extend the capabilities of DORT towards full lattice code functionality, it was decided to make DORT part of the GRS fuel assembly depletion and nuclide inventory code system KENOREST. KENOREST [7,8] combines the multi-group Monte-Carlo transport codes KENO Va/VI with numerous other well-known modules, such as the point depletion code ORIGEN for the computation of nuclide inventories and HAMMER for the Nordheim integral treatment of resonance nuclides, to name only two codes. Particularly the usage of ORIGEN with its almost complete compilation of nuclear reaction data for all important nuclides promotes KENOREST to a versatile reference tool, which is in some respects superior to commercial lattice codes (which e.g. typically implement fewer, sometimes simplified nuclide burn-up chains). A specially tailored JEF2.2-based 83-group burn-up library is also part of KENOREST and provides a broad and well proven cross section basis. GRS has successfully participated with KENOREST in several recent benchmarks and has also commercialized the code for nuclear waste disposal applications. An update of the JEF2.2 data base towards JEFF3.1/3.2 is planned for the near future.

The usage of KENO as the major transport module of this code system has, besides several clear advantages, also some major drawbacks. While Monte-Carlo methods offer the possibility to model even 3D configurations with advanced geometric flexibility, they certainly suffer from the inevitable statistical uncertainties and in particular from the dramatic increase in CPU time, when local quantities like pin-wise fluxes or fission rates must be evaluated. Particularly this latter feature makes Monte-Carlo methods currently unfavorable for the generation of homogenized and group-collapsed cross sections, since such tasks require an accurate knowledge of the spatial flux distribution over the extent of the heterogeneous assembly. Here is where the DORT code enters into the development: by adding DORT as an alternative transport solver (though restricted to 2D) to the KENOREST system (thus effectively replacing the KENO component), a new code system DORTOREST has been conceived, which can provide well-converged and highly-resolved spatial flux distributions. Moreover, inside the KENOREST/DORTOREST framework, KENO and DORT can run in parallel, thus allowing a one-to-one comparison between both codes; this is possible since both the deterministic and the stochastic computational model use exactly the same anisotropic (up to  $P_3$ -scattering) group-wise cross sections from OREST. Hence, in this framework the extended DORT version can be comfortably verified against KENO, which in this context serves as a kind of reference code.

## 2. DORT MODELLING APPROACH

To model fuel rod arrays with DORT, one has to represent the circular fuel rods inside the rectangular moderator pin cells by means of a Cartesian grid. In such a model, the circular perimeters of each fuel pin are described by a “stair case” or “step” function, which is constructed such as to approximate the circular fuel pin, gap and cladding structures as close as possible. The principle is depicted in Fig. 1 for a 3- and a 5-“step” approximation. For the generation of the step values  $\xi_0$  to  $\xi_5$  in Fig. 1 (right), we were guided by the idea of strictly conserving the volumetric fraction of the fuel pin, while the geometric “distances” between fuel perimeter and step function have to

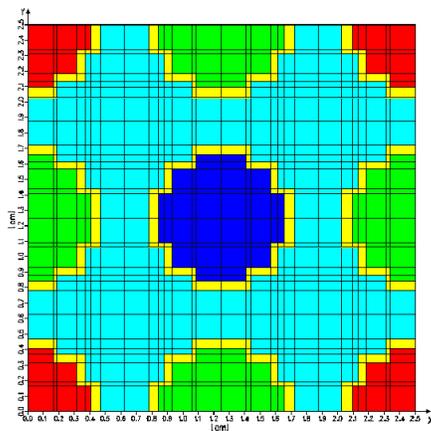
be minimized. This approach leads to a functional, which can easily be minimized and yields the desired step coordinates. An  $n$ -step approximation of a pin cell having fuel, cladding and moderator would then consist of  $(4n+2) \times (4n+2)$  Cartesian meshes.



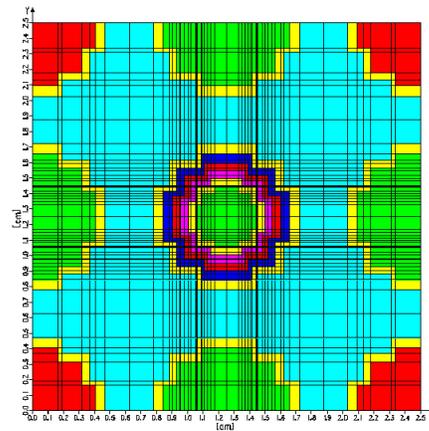
**Figure 1: Original pin cell geometry; middle: an approximate fuel pin model for a 3-step representation; right: a sketch of the minimization principle used to evaluate the 5-step or stair case coordinates.**

In order to minimize the effort to set up such a fairly complicated grid (especially if rods of different diameters, Gadolinium-rods with multi-zone burnup etc. are existent within a fuel assembly, cf. Fig. 2 below), a dedicated input processor was developed for DORT, which eases the usage of the code such that the input structure for a complete assembly now looks very much like in commercial lattice physics packages. This input processor also allows superimposing other structural elements like water channels in BWR assemblies or water boxes surrounding the assembly to be added to fuel rod lattices.

**3-step Approximation with Cladding**



**3-step Approximation with Multi-Region in one Rod**



**Figure 2: Example of a DORT fuel rod discretization including cladding (left) and multi-zone regions (right). Three steps are used for representing the circular fuel perimeter.**

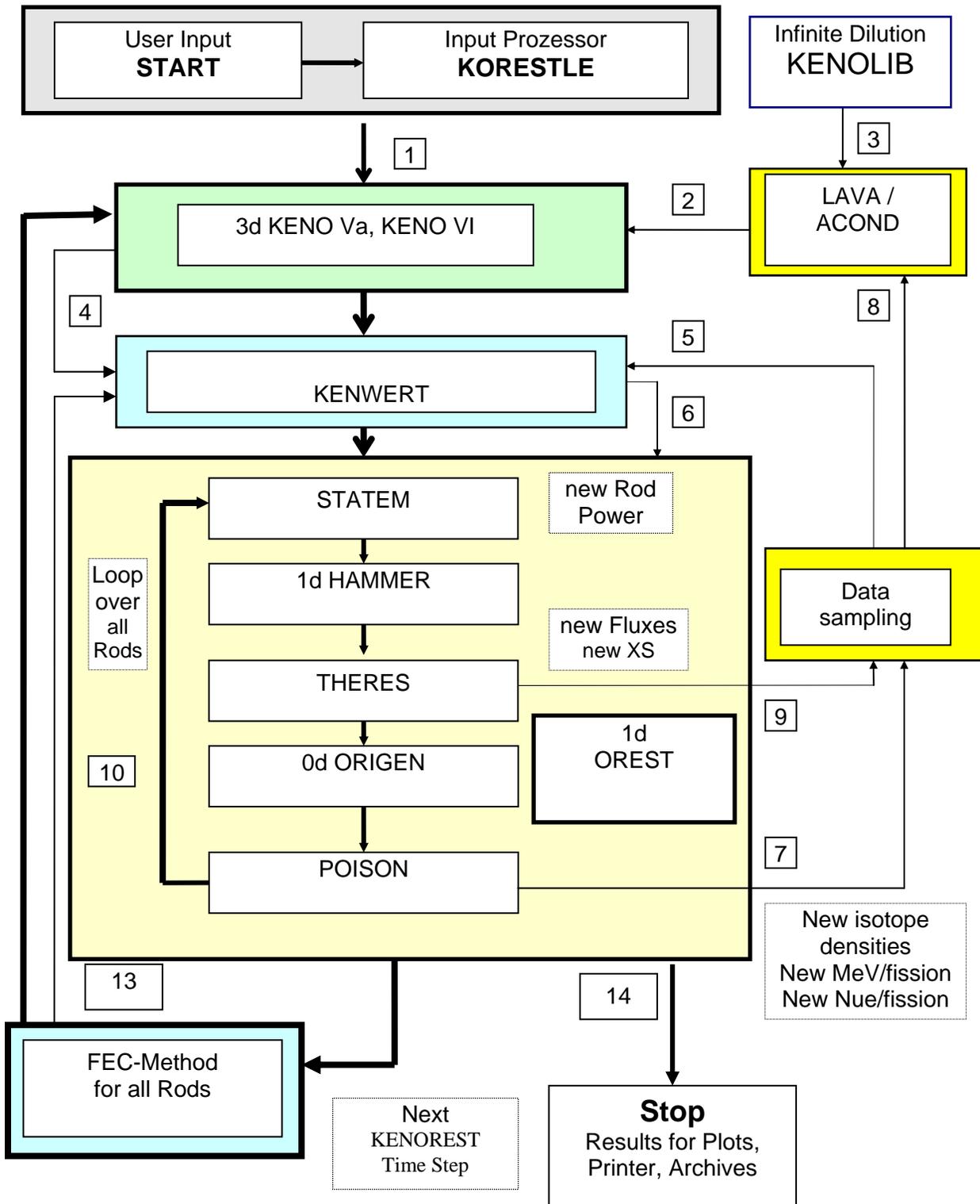
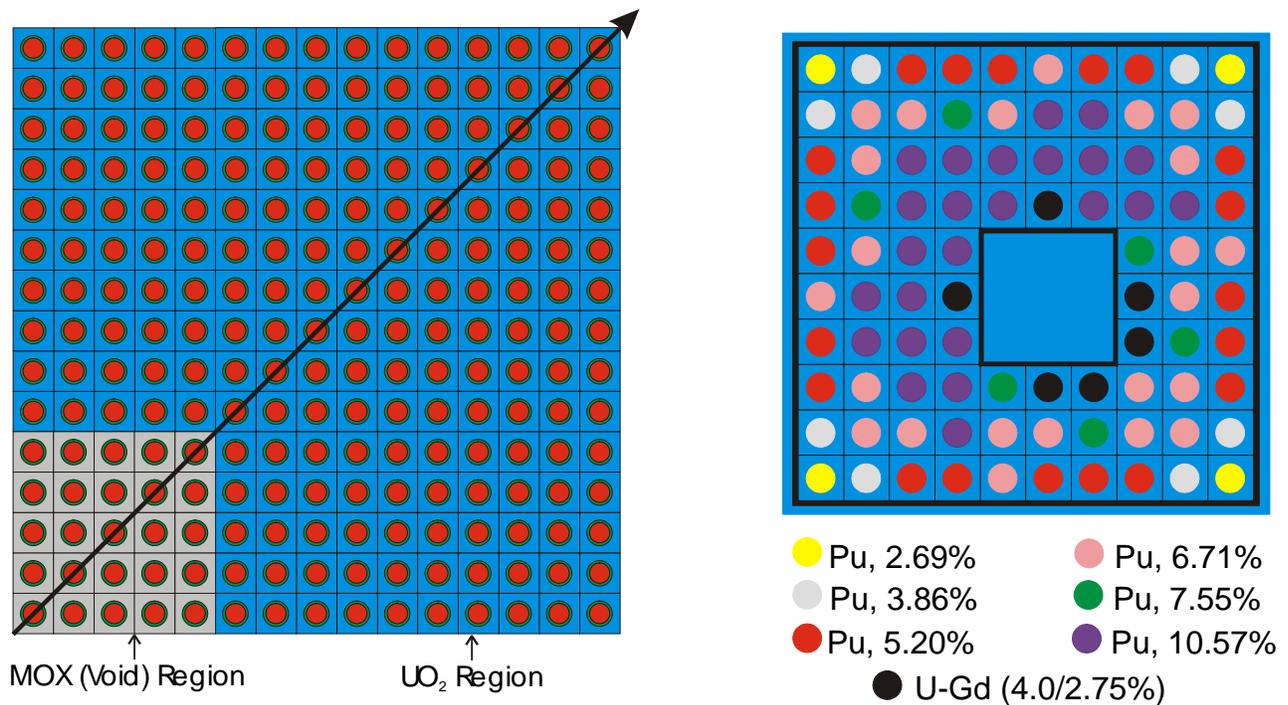


Figure 3: Program flow (thick lines) and data transfer (thin lines) in KENOREST

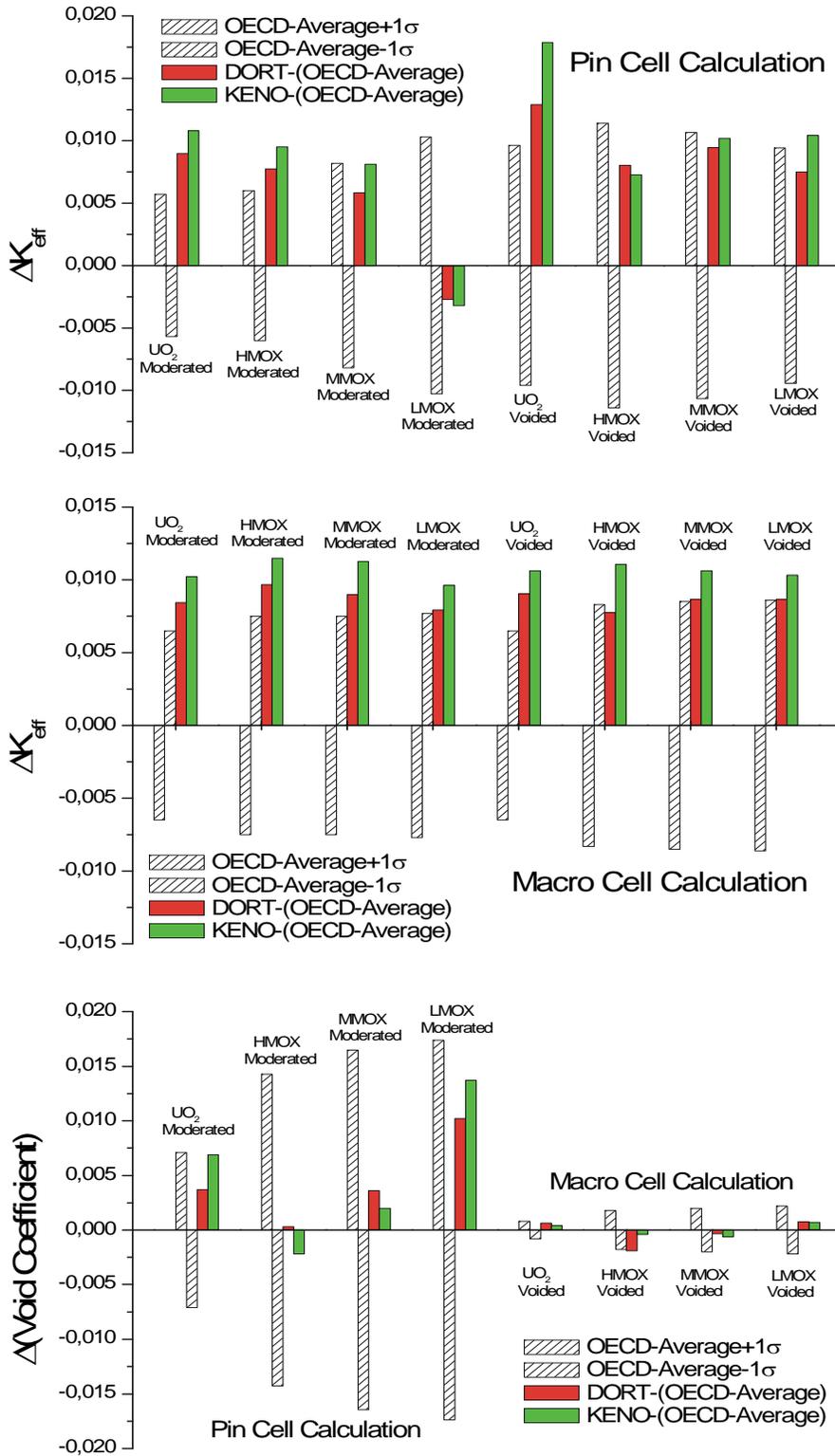
### 3. FEATURES OF KENOREST

As already mentioned above, the data basis of KENOREST is an 83-group library, which was collapsed from a 292-group, JEF2.2-based reference library. The burn-up code OREST combines the 1D-spectral code HAMMER with the nuclide inventory code ORIGEN. KENO Va and more recently also KENO VI are used to generate 2D or 3D transport solutions (pin powers, fluxes) for arbitrary LWR fuel assembly geometries. The main objective of the whole code system is to achieve an improved modeling of plutonium and actinide build-up for modern heterogeneous fuel assembly designs. In this context, information about the reactivity behavior during burn-up, pin power distributions and in particular reactor safety parameters can be retrieved. It was not the original purpose of the code system, however, to generate consistent few-group cross sections for subsequent reactor calculations.



**Figure 4 (left): The benchmark geometry of the OECD30X benchmark on void effects in PWR [9]; (right): the geometry of the BWR MOX benchmark (ATRIUM-10 fuel assembly design) [10].**

From the physics point of view, the coupling between the neutron transport part KENO and the burn-up part OREST is achieved via the transfer of the 3D KENO power and flux results for each fuel rod position to the 1D spectrum code HAMMER, which performs an approximate fuel lattice simulation, and to the 0D burn-up code ORIGEN. After a burn-up step, the cross sections and nuclide inventories are returned to KENO. Initially, the system starts from a problem independent infinite-dilution cross section library. After some KENOREST iteration steps without burn-up, the hot and resonance-shielded cross sections, together with the rod temperatures and the rod power densities are generated for each rod position in the user-specified environment.



**Figure 5: Deviations of KENOEST from the OECD30X benchmark reference [9]. Top: eigenvalue deviations for the pin cell. Middle: eigenvalue deviations for the macro cell. Bottom: deviations of the void coefficient for both pin and macro cell.**

During the burn-up phase, the lattice cell calculation is performed by HAMMER, using resonance parameters for the Nordheim resonance treatment at each burn-up step. Resonance shielding is accounted for by the so called Flux Equivalent Cell (FEC) (see reference [7]) method for all rod positions. The burnout of fissionable nuclides, the build-up of fission products and the depletion of isotopes like Gadolinium including all decay and transmutation processes are calculated by ORIGEN with stepwise feedback to HAMMER and KENO. The user communicates with KENOREST via a simple input interface, which requires only the description of the fuel assembly geometry, the fresh fuel composition data and the irradiation history. The further program flow is fully controlled by automated scripting language commands and runs under numerous UNIX-type environments. A diagram of the program flow and data transfer between the numerous KENOREST modules is shown in Fig. 3 above.

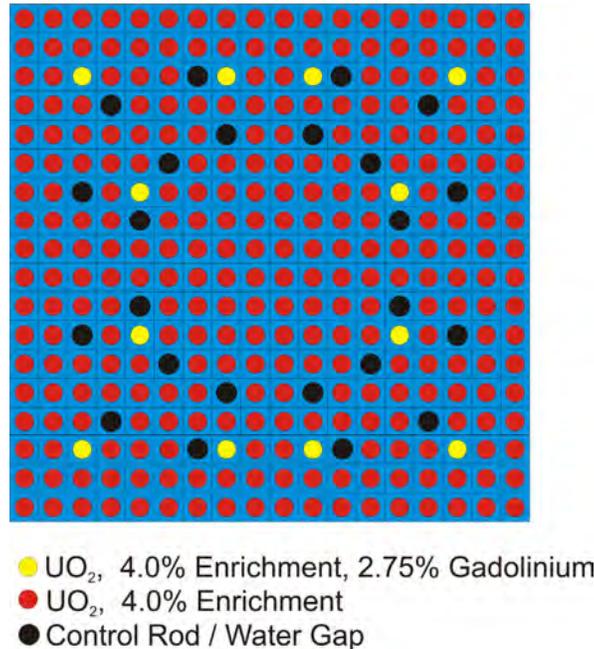
#### 4. COMPARISONS OF DORTOREST AND KENOREST

Our current work is the verification and validation of the DORT fuel assembly calculation and depletion mode and its implementation into the KENOREST framework. For that purpose, the extended DORT version (including the improved input processor, the modules for homogenization, SPH-treatment and group collapse) was inserted into the current KENOREST program flow, such that it mimics KENO, both with respect to input and output. Therefore it can actually either fully replace KENO or run in parallel with it. To check for the compatibility of KENO and DORT results, we first compare two test cases without burn-up; these two cases, taken from OECD benchmark exercises are depicted in Fig. 4; the first one is an artificial PWR fuel lattice with a central MOX region (with different MOX enrichments, called LMOX, MMOX and HMOX) and surrounding UO<sub>2</sub> fuel [9], the second one is an ATRIUM-10 BWR fuel assembly with different MOX enrichments and U-Gd rods [10]. In Figure 5 (top) we show for the PWR benchmark (voided and unvoided configurations) the deviation of our KENO and DORT  $k_{\text{eff}}$ -values from the benchmark-averages, as well as the statistical  $\pm 1\sigma$ -error interval. DORT and KENO results do mutually agree very well, both for the pin cell cases as well as for the macro cell of Fig. 4 (left). However, the KENO eigenvalues are systematically larger than the DORT eigenvalues for both voided and non-voided systems by approximately 0.1-0.3%. This effect is well known to the authors and has been found in numerous other problems; investigations on its origin are currently underway. A more serious drawback of our results is the fact that both DORTOREST and KENOREST systematically overestimate the benchmark averages (except for the moderated LMOX case). This effect has been found by several other benchmark participants as well, particularly by those whose cross section data were also based on the JEF2.2 compilation. We therefore believe this effect to be a cross section data issue, which may be partly resolved by the yet to come JEFF3.1 data basis. Despite these inconsistencies, the probably most relevant quantity, i.e. the void coefficient, compares very well with the benchmark average results. The deviations between DORT/KENO and the benchmark average are shown in Fig. 5 (bottom) and lie well inside the  $\pm 1\sigma$ -error bands. The reader may notice, however, the rather large benchmark uncertainties of  $\pm 1\%$ , encountered in this important safety parameter. The results on  $k_{\text{eff}}$  for the BWR-MOX benchmark are given in Table I, where solutions from DORT-(OREST), KENO(REST) and MCNP are compared against each other for different operating conditions and voiding states. The reader may observe that both DORT and KENO eigenvalues and power peaking factors are in very good mutual agreement, but both tend to underestimate the

MCNP assembly eigenvalue. Finally, we employed a standard German 18x18-fuel assembly design (cf. Fig. 6) to verify also the depletion capabilities of the new DORTOREST system vs. KENOREST. The fuel assembly features an enrichment of 4.0% w/o UO<sub>2</sub> and contains, besides 24 guide tubes, 12 U-Gd fuel rods. For an overall burnup range of approx. 1000 full power days (~40 MWd/kg HM), we used both code systems and extracted eigenvalues and pin powers over burnup. Fig. 7 shows the eigenvalue deviation of KENOREST vs. DORTOREST: the reader may observe that the agreement at zero burnup is very good (less than 50 pcm in eigenvalue), but deteriorates slightly with increasing burnup up to 500 pcm. We attribute this to the fact that DORTOREST does currently not yet update the fission spectrum, i.e. it uses the Uranium fission spectrum throughout the whole depletion calculation, while the fission spectrum in KENOREST is adapted from step to step and thus takes into account the increasing Plutonium content. For the pin powers, we have evaluated a RMS difference between KENO and DORT of 0.49% at zero burnup and 0.57% at 40 MWd/kg, with the maximum deviation being ~1%. From this we conclude that the DORTOREST results appear to be in reasonably good agreement with the KENOREST solution.

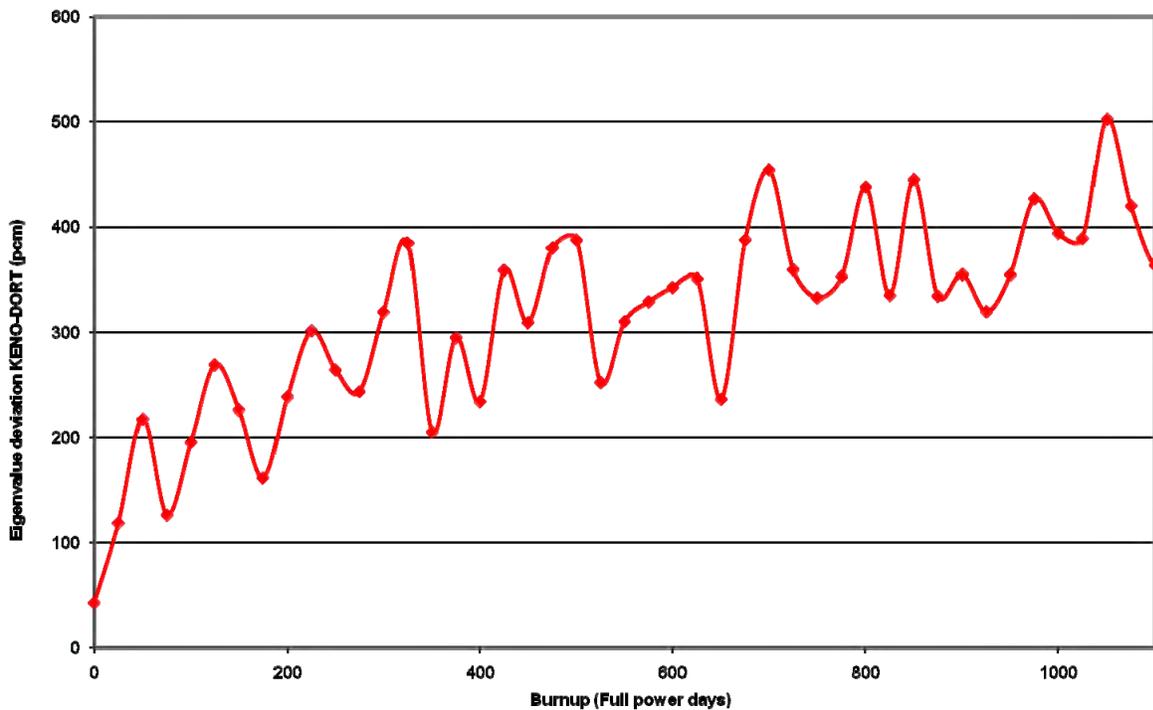
**Table I: The effective multiplication factor for different solution methods and the peaking factor for the BWR MOX benchmark.**

| Voiding State        | $K_{eff}$ (DORT/KENO/MCNP)  | Power Peaking Factor (DORT/KENO/MCNP) |
|----------------------|-----------------------------|---------------------------------------|
| 0% (cold)            | 1.17484 / 1.17555 / 1.17580 | 1.335 / 1.339 / 1.340                 |
| 0% (hot, full power) | 1.16195 / 1.16392 / 1.16730 | 1.234 / 1.231 / 1.241                 |
| 40%                  | 1.13152 / 1.13316 / 1.13840 | 1.222 / 1.218 / 1.229                 |
| 80%                  | 1.09385 / 1.09690 / 1.10710 | 1.232 / 1.233 / 1.226                 |



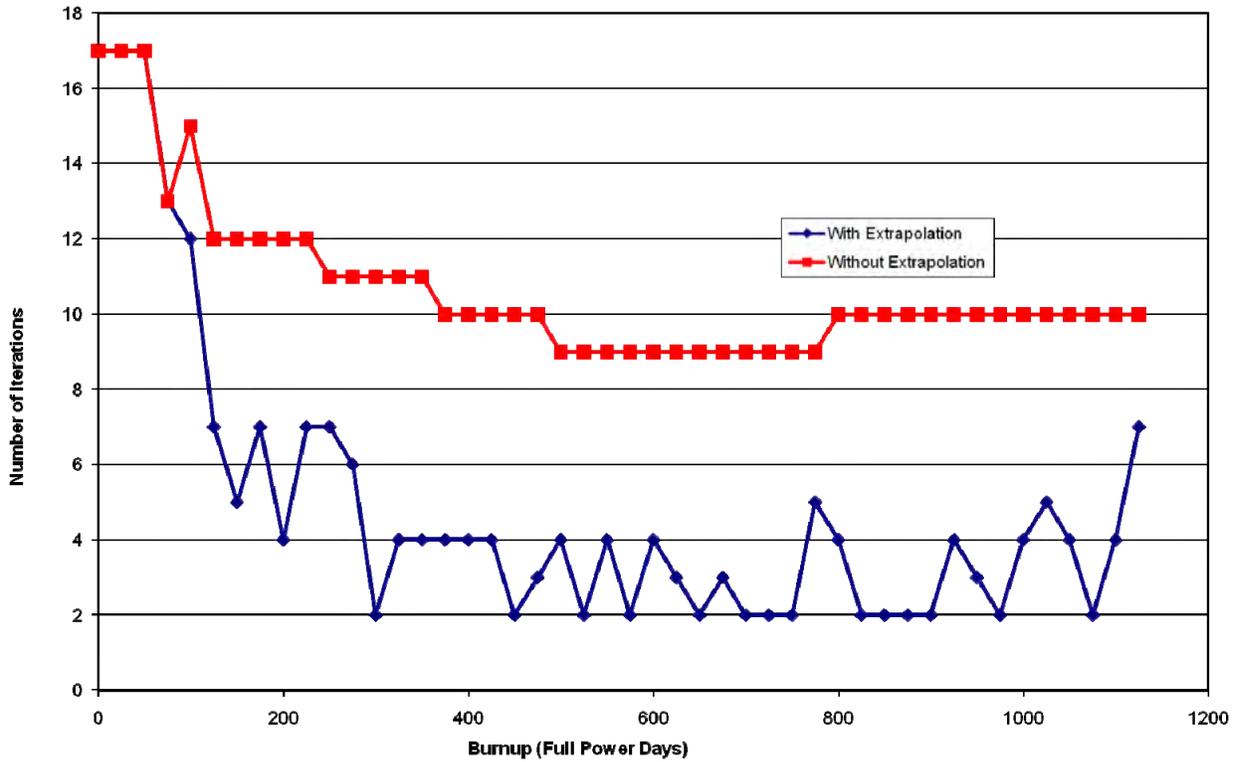
**Figure 6: The fuel assembly geometry used to test the DORTOREST depletion capabilities**

Given this, the major advantage of the DORT over the KENO implementation is the fact that one can now easily generate, at each burnup step, a few-group cross section library, e.g. by homogenisation on the assembly level or even on pin-by-pin basis. The collapsed libraries can have any number of energy groups which is compatible with the group structure of the base 83-group library. SPH treatment to guarantee reaction rate conservation for pin-by-pin cross sections is also available. Another major advantage is the fact that within the deterministic framework of DORT, the flux distributions from previous transport/depletion steps can very efficiently be re-used to construct a reasonable flux guess for the next depletion step. Within DORTOREST, we store the flux distributions of the three previous flux distributions to construct this kind of guess from quadratic forward extrapolation to the next burnup step. The efficiency of this method is demonstrated in Figure 8, where the number of outer iterations necessary to bring the transport fuel assembly calculation to convergence is plotted over burnup.



**Figure 7: Eigenvalue deviation of KENOREST vs. DORTOREST for the  $\text{UO}_2\text{-Gd}$  fuel assembly. The burnup range corresponds to approx. 40 MWd/kg HM.**

As can nicely be seen, the extrapolation becomes effective only after the three initial burnup steps, i.e. when enough information is available to build a quadratic extrapolate. After these initial steps, the number of outer iterations per depletion step is 9 to 10 without extrapolation and between 2 and 4 with extrapolation. As a matter of fact, also lesser inner iterations per outer iteration are necessary in DORT when the extrapolation becomes effective, hence the CPU times for this case are even more favorable than suggested from Fig. 8.



**Figure 8: Efficiency of the forward extrapolation mechanism in DORTOREST.**

## 5. CONCLUSION

The development of DORTOREST led to a viable tool complementary to the KENOREST code, which has all the characteristics of a lattice code system, including the capability of building few-group cross section libraries nodal for full-core reactor calculations and advanced SPH-factor determination for pin-by-pin 3D reactor calculations. First tests on the depletion of a standard U-Gd fuel assembly showed that the results from the DORT transport calculation compare fairly well with those from stochastic transport with KENO. Work is ongoing to further improve the performance of the code system, e.g. by exponential instead of quadratic forward flux extrapolation and parallelization of DORT.

## ACKNOWLEDGEMENTS

This work is supported by the German Federal Ministry of Economics and Technology.

## REFERENCES

1. Nuclear Energy Agency: “*Benchmark on Deterministic Transport Calculations without Spatial Homogenization, a 2-D/3-D MOX Fuel Assembly Benchmark*“, NEA#03135, ISBN: 92-64-02139-6, available from [www.nea.fr](http://www.nea.fr) (Report No. NEA/NSC/DOC(2003)16), (2003).
2. A. Pautz, U. Hesse, W. Zwermann, S. Langenbuch, “*Fuel Assembly Calculations Using the Method of Discrete Ordinates*“, Nuclear Science and Engineering, **Vol. 149**, pp. 197-210, (2005).
3. A. Pautz: “*Application of the Discrete Ordinates Code DORT to Fuel Lattices: Benchmark Results and Improved Cross Section Generation Capabilities*“, Mathematics &Computation 2005, Avignon, France, Sep. 12-15, (2005).
4. W. Timm, St. Misu, A. Pautz: “*VENUS-7 Plutonium Recycling Benchmark, Results of AREVA NP*“, PHYSOR 2006, Vancouver, Canada, (2006)
5. A. Pautz, “*Results on the OECD/NEA C5G7-MOX benchmark obtained with the Discrete Ordinates code DORT*“, Prog. Nucl. Energy **45**, No. 2-4 (2004) 153
6. A. Pautz, “*Improved Strategies for Fuel Assembly, Pin Cell and Reflector Cross Section Generation Using the Discrete Ordinates Code DORT*“, PHYSOR 2006, Vancouver, Canada, (2006)
7. U. Hesse, S. Langenbuch, W. Zwermann: “*Nuclear Codes and Data Libraries at GRS for Reactivity and Nuclide Inventory Calculations*“, Eurosafe 2003, Paris, Nov. 25-26, (2003), see also: U.Hesse, S.Langensbuch, “*KENOREST, eine direkte Kopplung von KENO und OREST*“, GRS report GRS-A-2783, December 1999.
8. U. Hesse et al., “*KENOREST-98: A New Three Dimensional Fuel Assembly Code System Combining KENO-Va and OREST-98 for Reactivity and Inventory Calculations*“, PHYSOR 2000, Pittsburgh, May 7-11, (2000).
9. Nuclear Energy Agency: “*Physics of Plutonium Recycling, Vol. III: Void Reactivity Effect in Pressurized Water Reactors*“, ISBN: 92-64-14591-5, (1995).
10. Nuclear Energy Agency: “*Physics of Plutonium Recycling, Volume VII: BWR MOX Benchmark, Specification and Results*“, NEA#03038, ISBN: 92-64-19905-5, (2003).



# IMPROVEMENTS AND APPLICATIONS OF THE MONTEBURNS DEPLETION CODE

C. Röttgen<sup>1,2</sup>, R. Macián-Juan<sup>1</sup>, A. Pautz<sup>2</sup>, W. Zwermann<sup>2</sup>

1) NTECH Lehrstuhl für Nukleartechnik, Garching

2) Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, Garching

Carsten.Roettgen@grs.de, Rafael.Macian@ntech.mw.tum.de, Andreas.Pautz@grs.de,  
Winfried.Zwermann@grs.de

## Introduction

The Monte Carlo method with continuous energy nuclear data is well suited to describe the neutron physics of fissionable systems. The problem geometry can be modeled with practically any degree of precision, and no spectral calculations with their typical approximations are necessary. Therefore, the accuracy of the results is mainly determined by the quality of the nuclear data used, and by the statistical uncertainties. This suggests the application of the Monte Carlo method also for calculating the neutron flux in fuel depletion calculations by coupling with a nuclide inventory code. The necessity of determining the flux in small fuel volumes with sufficient precision for the subsequent inventory calculation requires large numbers of neutron histories. This, together with the large number of flux calculations required during the burn-up of the fuel assembly, makes this reference method very time consuming. In this paper, we describe the application of the Monte Carlo depletion sequence MONTEBURNS to PWR and BWR fuel assembly burn-up calculations. To successfully do so, the code was extended to a larger number of burnable materials, and coupled to an up-to-date nuclear data basis. By performing the Monte Carlo calculations in a multi-processor environment, production calculations with MONTEBURNS for fuel assembly depletion calculations up to high burn-up have become possible.

## Code Description and Improvements

The code MONTEBURNS [1] combines the Monte Carlo code MCNP5 [2] with the inventory code ORIGEN2 [3]. It consists of a FORTRAN program which is responsible for the data transfer between the codes, and a PERL script that controls the sequence of the codes.

In its standard version, MONTEBURNS uses the nuclear data supplied with the MCNP version with which it is applied. In the case of MCNP5, the most recent data are mainly ENDF/B-VI based. These data are only of restricted applicability for LWR systems, and available only for a limited number of temperatures. Therefore the JEFF-3.1 based nuclear data library provided by the NEA data bank [4], which is available on a 100 K grid in the temperature range of interest, was connected with MONTEBURNS and used for the calculations performed in this work.

Due to the statistical nature of Monte Carlo calculations the computation time is a determining factor regarding the feasibility for depletion problems. Using a parallel processor environment makes it possible to execute depletion calculations in an acceptable amount of time. Therefore, MONTEBURNS was applied with an MCNP5 installation using the MPICH implementation Message Passing Interface (MPI). The ORIGEN2 decay steps are run in their original sequential version; the CPU time used for ORIGEN2 plays a minor role in comparison to the time necessary for the transport

calculation in MCNP5. As an example a calculation which would need more than 19 hours to finish on a single processor was done in 2 hours using 16 CPUs in a parallel environment. As MONTEBURNS couples two stand-alone codes, the data exchange plays a considerable role for the performance. Due to this overhead the efficient use of parallel calculation is limited in the number of CPUs. Tests have shown that when using more than 16 CPUs the relative speed-up per CPU decreases below 50 %.

In its original version MONTEBURNS is capable to treat 49 different burnable materials. This results from the tally numbering MONTEBURNS uses to calculate the cross sections and energy spectra for ORIGEN2 with MCNP5. For complex geometries to be modeled, this number may not be sufficient for an accurate description of the depletion process. Therefore, the MONTEBURNS code itself was modified to double the number of materials to be depleted independently.

## Calculations Performed and Results

To survey the capabilities of MONTEBURNS, the following fuel assembly calculations were performed, and the results were compared with those available from earlier code comparisons.

- PWR fuel assembly  $\text{UO}_2$  (4 w/o  $^{235}\text{U}$ ) [5]
- PWR fuel assembly  $\text{UO}_2/\text{Gd}_2\text{O}_3$  (4 w/o  $^{235}\text{U}$ ) [6]
- BWR MOX fuel assembly [7]

According to the respective specifications, the multiplication constant  $k_{\text{eff}}$ , the pin wise power distribution, the energy spectra and the nuclide inventories were calculated.

### 1. PWR Fuel Assembly $\text{UO}_2$ (4 w/o $^{235}\text{U}$ )

The calculations were performed for a standard PWR fuel assembly with 18x18 pin cells of which 24 contain control rod guide tubes. The fuel is  $\text{UO}_2$  with a  $^{235}\text{U}$  enrichment of 4 %. The state of the fuel assembly during burn-up is hot full power. The geometry of the PWR fuel assembly possesses reflective symmetry on the x and y axes, therefore only one quarter needs to be modeled. The assembly modeled has reflective boundary conditions. To perform a most accurate calculation from which the pin power distribution can be determined in the course of burn-up, all pins were modeled as separate materials. These 41 materials all had the same initial composition but were treated as distinct fuel types by MONTEBURNS. The integral quantities like the multiplication factor in dependence of burn-up were calculated with 5 million neutron histories. Local quantities like the pin wise power distribution at a given burn-up state were calculated with 62.5 million histories to obtain results with acceptably small uncertainties.

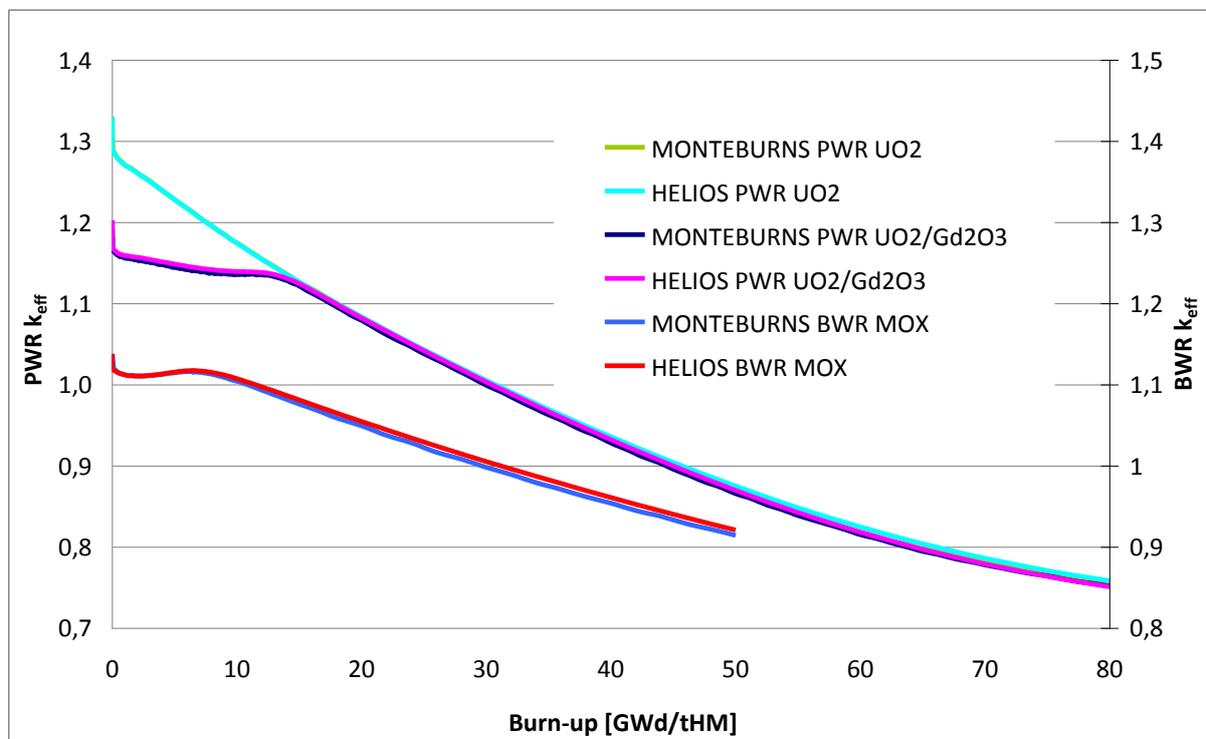
### 2. PWR Fuel Assembly $\text{UO}_2/\text{Gd}_2\text{O}_3$ (4 w/o $^{235}\text{U}$ )

This fuel assembly is based on the standard  $\text{UO}_2$  fuel assembly mentioned above but with 12 fuel rods with burnable absorber ( $\text{Gd}_2\text{O}_3$  in  $\text{UO}_2$ ). The fuel is  $\text{UO}_2$  with a  $^{235}\text{U}$  enrichment of 4.0 % in the fuel rods without burnable absorber and 2.8 % enrichment in the fuel rods with burnable absorber. Here basically the same model was used. The fuel rods containing Gadolinium were modeled in a five zone ring model, with equal volume of each ring. Each zone contains the same initial fuel material, but is defined as a separate material to be depleted. This was done because the Gadolinium absorber depletes mostly due to neutrons coming from outside those

rods. So the depletion is not homogeneous but starts at the pellet surface and continues to the centre of the rod with further burn-up.

### 3. BWR MOX Fuel Assembly

The geometry which is representative of modern 10x10 BWR fuel assemblies consists of four ATRIUM-10 (10-9Q) assemblies. The overall design is close to those already in use in modern BWRs. The  $\text{UO}_2$  matrix in the MOX rods is assumed to be composed of depleted uranium with a  $^{235}\text{U}$  enrichment of 0.20 w/o. Here only a MOX assembly is calculated. In this assembly, six distinct plutonium fuel compositions are used. Furthermore, there are fuel rods with a burnable absorber ( $\text{Gd}_2\text{O}_3$  in  $\text{UO}_2$ ) present. These were again modeled in five ring zones. Treating every rod as a separate fuel to obtain the pin wise power distribution and modeling the rods with absorber as explained above, led to a total number of 61 materials to deplete. This is an example which necessitates the use of MONTEBURNS in its modified version with an increased number of burnable materials.



**Figure 1: Multiplication factor as a function of burn-up**

The calculated multiplication factors in dependence of the burn-up are displayed in Fig. 1. Here, only a comparison of MONTEBURNS with HELIOS [8] as an example of a deterministic depletion code is shown to keep the figure clear. A very good agreement between the MONTEBURNS and the HELIOS solution is recognized. As compared to the mean value of all available results [5] for the PWR  $\text{UO}_2$  fuel assembly, the maximum difference of the MONTEBURNS results is -0.23 %. In the calculation of the PWR  $\text{UO}_2/\text{Gd}_2\text{O}_3$  fuel assembly, the MONTEBURNS and HELIOS results are in similarly good agreement. For the BWR MOX fuel assembly, the difference between MONTEBURNS and HELIOS is somewhat larger, but still very satisfactory; it does not exceed 0.8 % over the whole burn-up range.

Table 1 shows the differences of the nuclide concentrations between MONTEBURNS and the mean value of the burn-up codes used in the comparison calculation at intermediate and high burn-up for the PWR  $\text{UO}_2$  calculation. The spread corresponds

to twice the standard deviation. The values calculated by MONTEBURNS are inside the spread for all nuclides.

**Table 1: Spread in nuclide concentrations for PWR UO<sub>2</sub>**

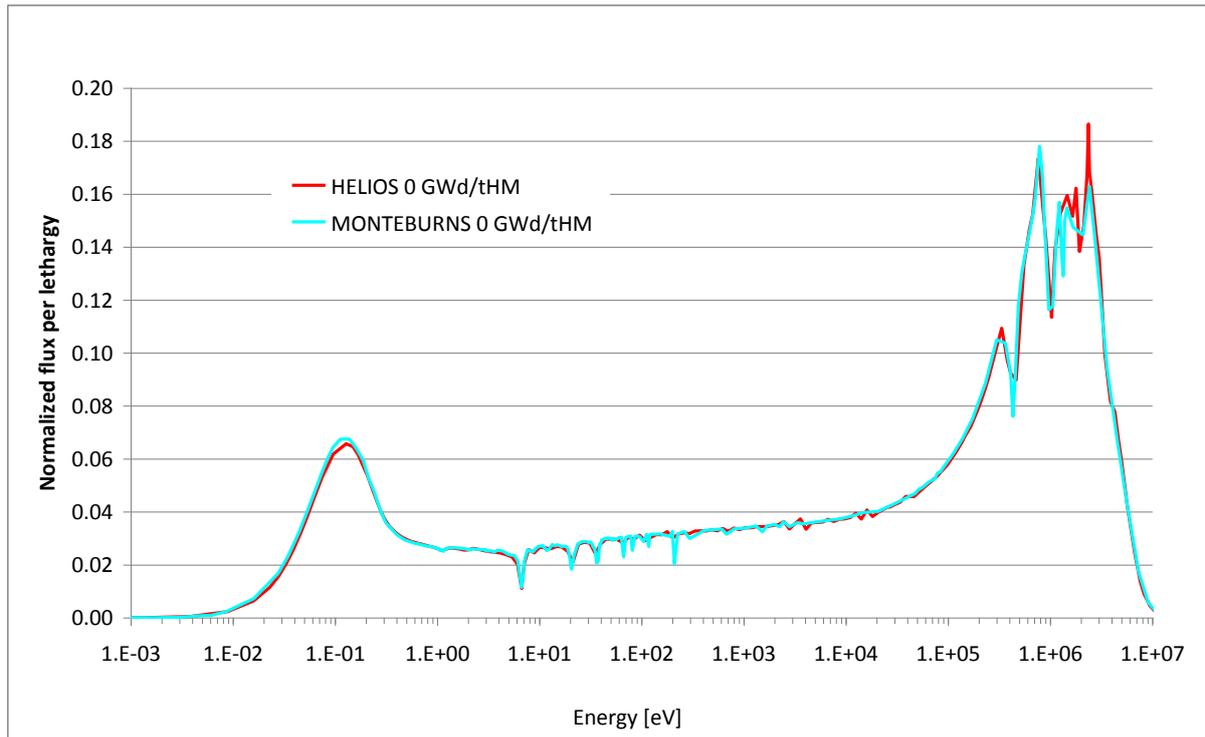
|         | Actinides        |             |                  |             | Fission Products |                  |             |                  |             |
|---------|------------------|-------------|------------------|-------------|------------------|------------------|-------------|------------------|-------------|
|         | 40 GWd/tHM       |             | 80 Gwd/tHM       |             |                  | 40 GWd/tHM       |             | 80 Gwd/tHM       |             |
|         | 2 $\sigma_{rel}$ | $\Delta MB$ | 2 $\sigma_{rel}$ | $\Delta MB$ |                  | 2 $\sigma_{rel}$ | $\Delta MB$ | 2 $\sigma_{rel}$ | $\Delta MB$ |
| U-234   | 2.26%            | 0.89%       | 3.71%            | 1.76%       | Mo-95            | 2.11%            | -0.64%      | 1.65%            | 0.66%       |
| U-235   | 1.80%            | -0.75%      | 10.25%           | -3.20%      | Tc-99            | 3.79%            | -2.42%      | 2.20%            | -1.51%      |
| U-236   | 4.03%            | 1.55%       | 7.50%            | 2.18%       | Ru-101           | 3.02%            | -0.72%      | 2.85%            | 0.40%       |
| U-238   | 0.32%            | -0.11%      | 0.35%            | -0.14%      | Rh-103           | 6.53%            | 1.46%       | 12.83%           | 3.32%       |
| Np-237  | 8.93%            | -1.63%      | 8.01%            | 0.77%       | Ag-109           | 20.85%           | 1.24%       | 28.04%           | 2.52%       |
| Pu-238  | 10.18%           | -4.24%      | 9.02%            | -2.49%      | Cs-133           | 2.14%            | -0.41%      | 4.91%            | -0.15%      |
| Pu-239  | 1.82%            | 0.30%       | 6.15%            | 1.99%       | Cs-134           | 14.25%           | 1.00%       | 9.87%            | 0.43%       |
| Pu-240  | 5.00%            | 2.51%       | 7.84%            | 5.62%       | Cs-137           | 2.37%            | -1.18%      | 2.59%            | -0.79%      |
| Pu-241  | 3.39%            | -1.56%      | 6.53%            | 1.20%       | Xe-135           | 5.68%            | -3.17%      | 8.21%            | 0.92%       |
| Pu-242  | 5.66%            | 2.58%       | 6.73%            | 4.58%       | Sm-147           | 4.78%            | 1.41%       | 7.60%            | 1.45%       |
| Am-241  | 8.08%            | -7.38%      | 14.28%           | -7.97%      | Sm-149           | 10.33%           | -9.64%      | 11.13%           | -6.45%      |
| Am-242m | 28.40%           | -3.19%      | 34.15%           | -3.42%      | Sm-150           | 2.09%            | 0.76%       | 6.27%            | 5.71%       |
| Am-243  | 4.22%            | 0.49%       | 3.29%            | 1.58%       | Sm-151           | 12.35%           | -10.57%     | 13.49%           | -10.20%     |
| Cm-242  | 4.90%            | 2.05%       | 2.42%            | 0.42%       | Sm-152           | 13.04%           | -6.00%      | 17.05%           | -8.16%      |
| Cm-243  | 13.34%           | -1.83%      | 17.69%           | -3.24%      | Nd-143           | 3.36%            | -2.23%      | 4.38%            | -3.36%      |
| Cm-244  | 11.06%           | 1.72%       | 4.00%            | 1.57%       | Nd-145           | 3.02%            | 0.62%       | 6.00%            | 2.38%       |
|         |                  |             |                  |             | Eu-153           | 5.34%            | -0.01%      | 10.82%           | -4.14%      |
|         |                  |             |                  |             | Eu-155           | 97.05%           | -19.36%     | 93.29%           | -22.86%     |
|         |                  |             |                  |             | Gd-155           | 24.10%           | 1.68%       | 35.05%           | -16.61%     |

**Table 2: Spread in nuclide concentrations for BWR MOX**

|        | 30GWd/tHM |        |             | 50GWd/tHM |        |             |
|--------|-----------|--------|-------------|-----------|--------|-------------|
|        | MIN       | MAX    | $\Delta MB$ | MIN       | MAX    | $\Delta MB$ |
| U-235  | -3.92%    | 5.14%  | -1.02%      | -8.77%    | 12.96% | -2.25%      |
| U-238  | -0.24%    | 0.09%  | 0.15%       | -0.36%    | 0.08%  | 0.02%       |
| Pu-238 | -1.62%    | 3.36%  | 1.39%       | -5.05%    | 6.81%  | 2.36%       |
| Pu-239 | -2.97%    | 12.93% | -2.38%      | -6.22%    | 24.10% | -3.78%      |
| Pu-240 | -3.18%    | 2.49%  | 2.16%       | -5.65%    | 3.96%  | 3.07%       |
| Pu-241 | -3.93%    | 6.79%  | -2.05%      | -5.80%    | 11.29% | -2.28%      |
| Pu-242 | -3.65%    | 4.17%  | 1.25%       | -5.89%    | 6.52%  | 2.29%       |
| Am-241 | -6.04%    | 3.66%  | -6.05%      | -11.41%   | 10.01% | -9.66%      |
| Am-243 | -13.98%   | 13.89% | 1.85%       | -13.54%   | 13.85% | 2.38%       |
| Cm-244 | -22.30%   | 19.31% | 0.98%       | -18.45%   | 12.52% | 1.32%       |

In Table 2 the differences of some nuclide concentrations for the BWR MOX fuel assembly is shown. Here the minimum and the maximum deviation from the mean value of the calculation benchmark [7] are shown. Furthermore, the results from the MONTEBURNS calculation are compared to this mean value.

The pin wise power distribution was calculated for all three systems as well. In all cases the results for the peaking factor and the actual power distribution are very close to the results of the comparison calculations. This also applies to the neutron spectra. As an example, in Fig. 2 the energy spectra for the PWR fuel assembly without burnable absorbers, resulting from the MONTEBURNS and HELIOS calculations for the fresh state, are compared, showing very satisfactory agreement.



**Figure 2: Energy spectrum for the fresh PWR fuel assembly without burnable absorbers**

## Conclusions

In this paper, the use of the code package MONTEBURNS for fuel assembly depletion calculations is described. Since MONTEBURNS uses a continuous energy Monte Carlo method, it is a very accurate way to describe nuclear particle interactions. Comparative calculations have shown that the results concerning integral as well as local quantities, namely multiplication factors, nuclide inventories, pin wise power distribution and energy spectra, are comparable to those of other state-of-the-art lattice codes. By using a multi-processor environment, the MONTEBURNS results were obtained in reasonable time with sufficient small statistical uncertainties. Due to the code modifications, the variety of systems that can be calculated increased. The possibility to integrate different nuclear data libraries makes it independent of a specific evaluation. For the present investigation, the European JEFF library in its latest release 3.1 was used.

In conclusion, it was demonstrated that MONTEBURNS is not only capable to calculate the depletion of fuel assemblies in very detailed geometrical representation, with very satisfactory results both for integral and local quantities, but is also an appropriate tool for production calculations in a reasonable amount of time.

## Acknowledgements

This work is supported by the German Federal Ministry of Economics and Technology.

## References

1. D.I. Posten, H.R. Trelue, "User's Manual Version 2.0 for Monteburns, Version 1.0", LA-UR-99-4999 (September 1999)

2. S.M. Girard, Editor, "MCNP – A General Monte Carlo N-Particle Transport Code – Version 5", Los Alamos National Laboratory Report LA-UR-03-1987 (2003).
3. A.G. Croff, "A User's Manual for the ORIGEN2 Computer Code", ORNL/TM-7175 (July 1980)
4. "Processing of the JEFF-3.1 Cross Section Library into a Continuous Energy Monte Carlo Radiation Transport and Criticality Data Library, OECD NEA Data Bank", May 2006, prepared by O. Cabellos, NEA/NSC/DOC(2006)18, NEA-1768.
5. U. Hesse, S. Langenbuch, W. Zwermann, D. Porsch, W. Bernnat, "Comparison of Burn-up Calculations for a UO<sub>2</sub> PWR Fuel Assembly", Jahrestagung Kerntechnik, Karlsruhe, Mai 2007
6. D. Porsch, U. Hesse, W. Zwermann, "Specification of a PWR Fuel Assembly, UO<sub>2</sub>/Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (4 w/o U-235) 18 x 18 – 24, for comparison calculations", (December 2005)
7. "Physics of Plutonium Recycling – Vol. VII – BWR MOX Benchmark – Specification and Results", ISBN: 92-64-19905-5 (2003)
8. J.J. Casal, R.J.J. Stamm'ler, E.A. Villarino, A.A. Ferri, "HELIOS: Geometric Capabilities of a New Fuel-Assembly Program", Intl. Topical Meeting on Advances in Mathematics, Computations, and Reactor Physics, Pittsburgh, USA, April 1991.

## 10 Verteiler

### BMWi

Referat III B 4 1 x

### GRS-PT/B

Internationale Verteilung 40 x

Projektbegleiter (fss) 3 x

### GRS

Geschäftsführung (hah, stj) je 1 x

Bereichsleiter (erv, lim, prg, tes, rot, zir) je 1 x

Abteilungsleiter (gls, poi, bea, paa, som, gma) je 1 x

Projektleiter (lab/paa) 1 x

Projektbetreuung (kgl) 1 x

Informationsverarbeitung (nit) 1 x

Autoren (hse, hum, kig, kih, mof, paa, lab, wag, zww) je 1 x

Bibliothek (Garching, Köln) je 1 x

**Gesamtauflage 72 Exemplare**