

**Bereitstellung von
Daten und Methoden
zur Beurteilung der
Sicherheit bei der
nuklearen Ver- und
Entsorgung sowie
innovativer Kernbrenn-
stoffkonzepte**

Abschlussbericht zum Vorhaben
3610R03350

Bereitstellung von Daten und Methoden zur Beurteilung der Sicherheit bei der nuklearen Ver- und Entsorgung sowie innovativer Kern- brennstoffkonzepte

Abschlussbericht zum Vorhaben
3610R03350

Robert Kilger
Matthias Bock
Florian Rowold
Volker Hannstein
Matthias Behler
Eberhard-Franz Moser

März 2013

Auftrags-Nr.: 867600

Anmerkung:

Das diesem Bericht zu Grunde liegende FE-Vorhaben 3610R03350 wurde im Auftrag des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit durchgeführt. Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt beim Auftragnehmer.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung des Auftragnehmers wieder und muss nicht mit der Meinung des Auftraggebers übereinstimmen.

Kurzfassung

Das bislang nur in Teilen vorliegende GRS „Handbuch zur **Störfallanalyse für Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung**“ wurde im Rahmen des Vorhabens komplettiert und liegt nun als Entwurf vollständig vor. Zudem wurde auf Basis realistischer Anlageninformationen eine probabilistische Sicherheitsanalyse für einen Teilprozess bei der Brennelementfertigung als Machbarkeitsstudie durchgeführt. Diese Arbeiten sind hier kurz zusammengefasst und separat ausführlich dokumentiert.

Im Zuge der Revision und der Aktualisierung des GRS „**Handbuch zur Kritikalität**“ wurden kritische Parameter für homogene Urandioxid–Wasser–Systeme von 3,0 bis 6,0 Gew.–% Anreicherung an ^{235}U neu berechnet, verifiziert und validiert. Ergänzend wurden infinite Multiplikationsfaktoren von homogenen Urandioxid–Wasser–Systemen verschiedener Anreicherung neu berechnet. Zusätzlich wurden kritische Parameter für homogene und heterogene Urandioxid–Wasser–Systeme mit Gadolinium sowie homogene Urandioxid–Grafit–Systeme neu berechnet.

Zur Untersuchung der Unsicherheit in errechneten Multiplikationsfaktoren aufgrund von Unsicherheiten in technischen Eingangsparametern wurde das **modulare stochastische Werkzeug SUnCISTT** entwickelt und erprobt. Es koppelt das etablierte Monte Carlo Sampling Werkzeug SUSA der GRS an ein Kritikalitätsrechenverfahren. Im Rahmen dieses Vorhabens wurde es an einem Testbeispiel sowie durch Teilnahme an einem Rechenbenchmark der OECD/NEA Expert Group on Uncertainty Analysis for Criticality Safety Assessment (UACSA) erprobt und verifiziert.

Zur Implementierung und zum Vergleich moderner Rechenmethoden zur **Strahlungsabschirmung** wurden mit den Verfahren MCNP5 und SCALE6.1/MAVRIC zwei Benchmark–Experimente zur Abschirmung aus der OECD/NEA Benchmarkkollektion SINBAD modelliert und nachgerechnet. Die Ergebnisse wurden mit dem Experiment und auch untereinander verglichen und diskutiert.

Durch eine Recherche und Auswertung der verfügbaren Literatur wurden aktuelle Entwicklungen auf dem Gebiet **innovativer Kernbrennstoffkonzepte** dargestellt. Dies beinhaltet sowohl Neuerungen auf dem Gebiet der Kernbrennstoffe für gegenwärtige Reaktortypen (v. a. Leichtwasserreaktoren) als auch fortgeschrittene Konzepte für künftige Reaktoren z. B. zur Aktinoidenverbrennung. Auch das Konzept der Partionierung und Transmutation wurde untersucht.

Abstract

The up to now rudimentary “GRS Handbook on **Accident Analysis for Fuel Cycle Facilities**” was completed and is now available as draft. Then, based on realistic facility data, an exemplary probabilistic safety analysis for a subprocess of the fuel assembly manufacturing was performed as a feasibility study. This work is briefly described herein and separately documented in detail elsewhere.

In the frame of the review and update of the GRS “**Handbook on Criticality**”, critical parameters for homogeneous uranium dioxide–water–systems with enrichments from 3.0 to 6.0 wt.-% ^{235}U have been recalculated, verified and validated. Complementary infinite multiplication factors have been calculated. Additionally critical parameters for homogeneous and heterogeneous uranium dioxide–water–systems with gadolinium as well as for homogeneous uranium dioxide–graphite–systems have been recalculated.

To investigate the uncertainty in calculated neutron multiplication factors due to uncertainties in technical input parameters, the **modular stochastic tool SUnCISTT** has been developed and proven. It couples the established Monte Carlo sampling tool SUSA from GRS to a criticality calculation code. In the frame of the work at hand it has been tested and verified by application to a test case and by participation to a calculational benchmark exercise organized by the OECD/NEA Expert Group on Uncertainty Analysis for Criticality Safety Assessment (UACSA).

To implement and compare **modern shielding calculation codes**, two shielding benchmark experiments taken from the OECD/NEA benchmark collection SINBAD have been modelled and calculated using MCNP5 and SCALE6.1/MAVRIC. Results have been compared to the experimental results as well as to each other.

By means of a literature study, recent developments in the field of **innovative nuclear fuels** have been investigated and described. This includes both innovations for current reactor types (mainly light water reactors) and advanced concepts for future reactors e.g. for actinide burning. Also the concept of partitioning and transmutation has been investigated.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Bereitstellung von Methoden zur Störfallanalyse für Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung	5
2.1	Handbuch zur Störfallanalyse für Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung	5
2.2	Machbarkeitsstudie zum Einsatz probabilistischer Methoden bei Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung	6
3	Neuberechnung kritischer Parameter für das GRS „Handbuch zur Kritikalität“	8
3.1	Rechenmethoden	8
3.2	Kritische Parameter für homogene Urandioxid–Wasser–Systeme	11
3.3	Kritische Parameter für Urandioxid-Wasser-Systeme mit Gadolinium.....	20
3.3.1	Homogene Urandioxid-Wasser-Systeme mit Gadolinium.....	21
3.3.2	Heterogene Urandioxid-Wasser-Systeme mit Gadolinium	22
3.4	Kritische Parameter für homogene Urandioxid–Grafit–Systeme	26
3.5	Validierung der Daten für homogene Urandioxid-Wasser-Systeme	33
3.5.1	Vergleichswerte mit anderen Rechenverfahren und -Methoden.....	34
3.5.2	Kritische Benchmark-Experimente	45
3.6	Zusammenfassung und Diskussion	58
4	Stochastische Analysen zur Kritikalitätssicherheit	63
4.1	Einführung	63
4.2	Entwicklung des Werkzeuges SUnCISTT	64
4.2.1	Entwicklungsziele und Umsetzung.....	65
4.2.2	Ablauf einer Analyse mit SUnCISTT	69
4.2.3	Ausblick	76

4.3	Anwendungen des Werkzeugs SUnCISTT	78
4.3.1	Testproblem mit vereinfachten Annahmen.....	78
4.3.2	Rechenbenchmark der Expertengruppe UACSA	86
4.4	Zusammenfassung	104
5	Implementierung und Validierung: Vergleichsrechnungen mit MAVRIC und MCNP5 zum Strahlungstransport.....	107
5.1	Experimentnachrechnungen mit Monaco/MAVRIC	107
5.1.1	Experiment Ueki et al.....	107
5.1.2	Experiment ALARM-CF-FE-SHIELD-001.....	129
5.2	Vergleich der Monaco/MAVRIC-Rechnungen mit MCNP5-Rechnungen	153
5.2.1	Ueki-Experiment	154
5.2.2	Experiment ALARM-CF-FE-SHIELD-001.....	159
5.3	Zusammenfassung	169
6	Innovative Kernbrennstoffkonzepte	173
6.1	Innovative Kernbrennstoffkonzepte für bestehende Leicht- und Schwerwasser-moderierte Reaktoren	173
6.1.1	Historische Entwicklung von Brennstoffen für Leichtwasserreaktoren....	173
6.1.2	Brennstoffkonzepte für Leichtwasser-moderierte Reaktoren	175
6.1.3	Brennstoffkonzepte für Schwerwasser-moderierte Reaktoren.....	180
6.2	Brennstoffkonzepte zur Nutzung von Thorium	186
6.2.1	Spezifische Eigenschaften der ²³² Th / ²³³ U Anwendung	187
6.2.2	Einsatz von Thorium in Reaktoren bis 1990.....	188
6.2.3	Aktuelle Forschungsarbeiten zu Thorium-Brennstoff-Konzepten.....	191
6.3	Kernbrennstoffkonzepte für Transmutationsanlagen	197
6.3.1	Allgemeines	197
6.3.2	Strategien zu Partitionierung und Transmutation	197
6.3.3	Brennstoffkonzepte zu Partitionierung und Transmutation	199
6.3.4	Nitrid-Brennstoff.....	204
6.3.5	Carbid-Brennstoff.....	204
6.3.6	Metallische Brennstoffe.....	205

7	Quellenverzeichnis	207
8	Abbildungsverzeichnis.....	218
9	Tabellenverzeichnis.....	229
10	Abkürzungsverzeichnis.....	232
11	Anhang	237

1 Einleitung

Das wesentliche Ziel des Vorhabens 3610R03350 war die Bereitstellung von Daten und Methoden für Störfallanalysen und zur Beurteilung der Sicherheit bei Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung.

Die durchgeführten Arbeiten zur Entwicklung und Bereitstellung von Methoden zur Störfallanalyse werden in dem vorliegenden Bericht nur kurz umrissen und sind in eigenständigen Berichten und Dokumenten ausführlich beschrieben. Umfassend dokumentiert werden dagegen die durchgeführten Arbeiten zum Schwerpunkt Nukleare Sicherheit (Kritikalität, Abschirmung) sowie die durchgeführten Literaturrecherchen zu innovativen Kernbrennstoffkonzepten. Er untergliedert sich in fünf Teilbereiche:

Zusammenfassung der Arbeiten zu den Methoden zur Störfallanalyse

Die Weiterführung der in früheren Vorhaben begonnenen und fortgeführten Arbeiten am GRS „Handbuch zur Störfallanalyse für Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung“ werden umrissen. Alle vorgesehenen Teilkapitel des Handbuchs liegen nun als Entwurf vollständig vor, bedürfen künftig aber noch der Qualitätssicherung sowie einer redaktionellen Überarbeitung.

Zudem werden die Ergebnisse einer Machbarkeitsstudie von probabilistischen Sicherheitsanalysen für Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung an einem gegenüber früheren Arbeiten aktualisierten Beispiel eines Teilprozesses bei der Brennelementfertigung beschrieben. Diese Machbarkeit ist grundsätzlich gegeben, hängt aber stark von der verfügbaren Datenbasis für relevante Eingangsparameter wie z. B. Ausfallwahrscheinlichkeiten ab. Diese ist aufgrund der weltweit relativ geringen Anzahl derartiger Anlagen eher als gering einzustufen und stellt somit die einschränkende Randbedingung für die Anwendung von detaillierten PSA-Methoden auf derartige Anlagen dar.

Aktualisierung des GRS „Handbuch zur Kritikalität“

Die Notwendigkeit zur Überprüfung und ggf. Aktualisierung der z. T. vor mehr als 40 Jahren berechneten kritischen Parameter im GRS „Handbuch zur Kritikalität“ /KIL 09/ ist zweifach begründet. Zum einen ergeben sich heutzutage gegenüber damals geän-

derte Randbedingungen bei der Handhabung von Spaltmaterial zur Herstellung von Brennelementen für Leichtwasserreaktoren, z. B. durch die Verwendung höherer Anreicherungen sowie der Beimengung abbrennbarer Absorber zum Brennstoff. Zum anderen liegen mittlerweile neue, verbesserte Datenbibliotheken und Rechenverfahren vor, die genauere Abschätzungen der kritischen Parameter erlauben und das Aufdecken von eventuellen nicht-konservativen Werten bei kritischen Parametern ermöglichen. Im Einzelnen werden in diesem Bericht die Berechnungen zu Systemen aus homogenen Urandioxid-Wasser-Systemen bis 6,0 Gew.-% ^{235}U sowie homogener und heterogener Urandioxid-Wasser-Systeme mit Gadoliniumbeimischung wiedergegeben. Außerdem wurden kritische Parameter für homogene Urandioxid–Grafit–Systeme mit Anreicherungen zwischen 10 und 20 Gew.-% ^{235}U neu berechnet. Zur Qualifizierung der kritischen Parameterkurven und insbesondere der daraus abgeleiteten kleinsten kritischen Uran-Kugelmassen müssen diese Kurven anhand von kritischen Experimenten validiert werden. Durch Nachrechnung von 29 kritischen Experimenten mit insgesamt 230 Einzelkonfigurationen wurde eine Datenbasis geschaffen, anhand der durch verschiedene Techniken wie z. B. klassische Trendanalysen systematische Abweichungen des verwendeten Berechnungssystems quantifiziert werden. Auf internationaler Ebene gewinnt dabei auch die Anwendung von Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalysen (S/U) zunehmend an Bedeutung, die hier ebenfalls eingesetzt wurden. Zusätzlich wurden vergleichende Rechnungen mit verschiedenen, unabhängigen Berechnungssystemen durchgeführt, sowie die Ergebnisse mit Daten aus anderen nationalen und internationalen Referenzquellen verglichen. Ergänzend wurden infinite Multiplikationsfaktoren von homogenen Urandioxid–Wasser–Systemen verschiedener Anreicherung für das „Handbuch zur Kritikalität“ neu berechnet. Zusätzlich daraus abgeleitet wurden maximale infinite Multiplikationsfaktoren sowie kleinste kritische Urankonzentrationen dieser Systeme. Der vorliegende Bericht dokumentiert die in diesem Zusammenhang durchgeführten Arbeiten.

Stochastische Methoden in der Kritikalitätssicherheitsanalyse

Der Einsatz stochastischer Methoden zur Quantifizierung der Unsicherheiten nuklearer Systeme wird dank stetig steigender Rechnerleistung in zahlreichen Gebieten immer mehr zum Stand von Wissenschaft und Technik. Im Rahmen dieses Vorhabens wurde eine entsprechende Methode entwickelt, die es ermöglicht, Unsicherheits- und Sensitivitätsanalysen in Kritikalitätsrechnungen durchzuführen. Das Augenmerk liegt hierbei auf der Variation von technischen Parametern und Fertigungstoleranzen, die als Eingangsparameter die in der Kritikalitätsrechnung betrachteten Modelle bestimmen. Mit

dem GRS-Programm SUSAs („Software für Unsicherheits- und Sensitivitätsanalysen“) /HOF 93/ steht ein statistisches Verfahren zur Verfügung, das es ermöglicht die mit Unsicherheiten behafteten Eingangsparameter stochastisch zu variieren und die Auswertung der Rechenergebnisse der Einzelrechnungen durchzuführen. Die Ankopplung eines Codes zur Kritikalitätsberechnung an SUSAs, um Unsicherheitsanalysen im Rahmen von Kritikalitätssicherheitsanalysen durchzuführen, resultierte in dem modularen Werkzeug SUnCISTT („**S**ensitivities and **U**ncertainties in **C**riticality **I**nventory and **S**ource **T**erm **T**ool“). Bei dem dabei realisierten Monte Carlo Sampling Verfahren werden eine Vielzahl von Einzelrechnungen durchgeführt, in denen die Eingangsparameter unabhängig voneinander variiert und in das zu untersuchende Modell eingesetzt werden. Es folgt eine statistische Analyse der resultierenden k_{eff} -Werte. Aus dieser Analyse kann die Unsicherheit des betrachteten Systems ermittelt werden, welche sich durch die Unsicherheit in den Eingangsparametern ergibt. Auch kann ermittelt werden, welcher der unsicheren Eingangsparameter den größten Einfluss auf die Unsicherheit der Ergebnisgröße k_{eff} bewirkt. Darüber hinaus können auch weitere statistische Größen wie z. B. eine obere einseitige 95%/95% Toleranzgrenze bestimmt werden. Zusätzlich zu Verifikations- und Testrechnungen an einem einfachen Beispiel wurde an einem Rechenbenchmark der OECD/NEA WPNCs „Expert Group on Uncertainty Analysis for Criticality Safety Assessment“ (UACSA) mit SUnCISTT teilgenommen.

Implementierung und Validierung: Vergleichsrechnungen mit MAVRIC und MCNP

In der GRS werden für nukleare Sicherheitsanalysen häufig auch Codes von externen Entwicklergruppen eingesetzt. Im Rahmen der Kritikalitätssicherheitsanalyse sowie des Strahlungstransports bei Abschirmungs- und Dosisleistungsberechnungen sind dies zumeist die verschiedenen deterministischen und statistischen Methoden aus dem SCALE-Paket /SCA 09/ und der Monte Carlo Code MCNP5 /MCN 06/. Diese Codes werden innerhalb der GRS installiert, zur Verfügung gestellt und hinsichtlich ihrer korrekten Funktionsweise verifiziert. Zudem ist es unerlässlich, diese Verfahren hinsichtlich ihrer Leistungsfähigkeit und Ergebnisqualität zu überprüfen. Zu diesem Zweck wurden ein Experiment zum Strahlungstransport aus der OECD/NEA Datenbank SINBAD /OEC 10b/ sowie ein Abschirmungsexperiment einer japanischen Arbeitsgruppe /UEK 83/ bis /UEK 96/ ausgewählt und mit den Verfahren MAVRIC aus SCALE Version 6.1 sowie MCNP5 Version 5 1.51 modelliert und nachgerechnet. Die Ergebnisse wurden sowohl mit den experimentellen Daten als auch untereinander verglichen und bewertet. Dabei zeigte sich im Rahmen der erreichbaren Genauigkeit eine qualitativ und im Wesentlichen auch quantitativ gute Übereinstimmung.

Innovative Kernbrennstoffkonzepte

Im Rahmen von Literaturrecherchen wurde der aktuelle Kenntnisstand zur Entwicklung und zum Einsatz innovativer Kernbrennstoffe dargestellt. Die Dokumentation erfolgte unterteilt in Konzepte für bestehende Leichtwasserreaktoren und CANDU-Reaktoren, zum Einsatz von Thorium, sowie für innovative, gegenwärtig noch nicht großtechnisch realisierte Konzepte mit schnellem Neutronenspektrum v. a. unter den Gesichtspunkten von Partitionierung und Transmutation.

Beschrieben wurden dabei u. a. Historie, Stand und Ausblick zum Einsatz abbrennbarer Neutronengifte wie Bor, Gadolinium oder Erbium, auch bei Urananreicherungen für LWR-Brennelemente über 5,0 Gew.-% ^{235}U hinaus, sowie der Einsatz von Thoriumhaltigen Brennstoffen und dem weiteren Einsatz von bestrahlten LWR-Brennstoffen in schwerwassermoderierten Reaktoren zur weiteren Ausnutzung des verbliebenen spaltbaren Materials (OREOX- bzw. DUPIC-Konzept).

Der potentielle Einsatz von Thorium als Brutmaterial für das spaltbare Isotop ^{233}U in Leichtwasserreaktoren, Schwerwasserreaktoren und fortschrittlichen Reaktorkonzepten wird beschrieben und diskutiert.

Im dritten Teil wurden Strategien und v. a. Brennstoffkonzepte zu Partitionierung und Transmutation langlebiger transuraner Radionuklide beschrieben. Schwerpunkt sind Brennstoffkonzepte mit erhöhten Gehalten höherer Aktinoide, v. a. Neptunium und Americium, ferner Curium. Diskutiert werden neben oxidischen auch keramische Brennstoffe, Nitrid-Brennstoff, Carbid-Brennstoff, und metallische Brennstoffe.

2 Bereitstellung von Methoden zur Störfallanalyse für Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung

2.1 Handbuch zur Störfallanalyse für Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung

Das in früheren Vorhaben begonnene und fortgeführte, bislang aber unvollständig vorliegende GRS „Handbuch zur Störfallanalyse für Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung“ wurde im Rahmen des Vorhabens komplettiert und liegt nun im Entwurf vollständig vor.

Zunächst wurde eine Anpassung der inhaltlichen Struktur des Handbuchs an aktuelle Gegebenheiten vorgenommen, sowie um für eine stringenteren Behandlung der Einzelthemen zu sorgen. Durchgeführt wurden darauf eine Durchsicht und Überarbeitung der (nach der aktualisierten Struktur so gelisteten) in Hauptteil A geführten Kapitel 1 „Der nukleare Brennstoffkreislauf“, und Kapitel 2: „Grundlagen für Störfallanalysen“, und der in Hauptteil B geführten Kapitel 4 „Radionuklid-Inventar“, Kapitel 6 „Freisetzung von Radionukliden“ sowie Kapitel 8 „Ablagerungs- und Rückhalte-mechanismen“. Erstellt bzw. fertiggestellt wurden die in Hauptteil C geführten Kapitel 11: „Mechanische Beschädigung, Absturz von Lasten“, Kapitel 12 „Leckage, Auslaufstörfälle“, Kapitel 13 „Brand“, Kapitel 14 „Explosion“, Kapitel 15 „Kritikalität“, Kapitel 16 „Ausfall von Systemkomponenten“ und Kapitel 17 „Einwirkungen von außen“. Die Kapitel des Hauptteils C katalogisieren und diskutieren die bislang eingetretenen und in der VIBS-Datenbank aufgeführten Vorkommnisse in Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung, und führen erste, grundlegende statistische Auswertungen zu den jeweiligen Störfallkategorien auf.

Alle vorgesehenen Teilkapitel des Handbuchs liegen damit als Entwurf vollständig vor, bedürfen aber künftig noch der Qualitätssicherung sowie einer redaktionellen Überarbeitung.

2.2 Machbarkeitsstudie zum Einsatz probabilistischer Methoden bei Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung

Zur Risikobewertung komplexer technischer Anlagen wird neben der deterministischen Sicherheitsanalyse in zunehmendem Maße zusätzlich die probabilistische Sicherheitsanalyse (PSA) angewendet. Dies betrifft neben kerntechnischen Anlagen z. B. Anlagen der chemischen Industrie. Eine PSA ist geeignet, die Basis für die Risikobewertung zu erweitern und die üblichen deterministischen Analysen zu ergänzen, wodurch die bisherigen Sicherheitsstandards der betreffenden Anlage ggf. verbessert werden können. Dazu sind verschiedene Analysemethoden vorhanden um Auswirkungen zu untersuchen, die bedingt durch das Versagen einzelner Systemkomponenten oder durch menschliche Fehlhandlungen auftreten können. Im vorliegenden Bericht werden die wichtigsten Methoden zur Risikobewertung von technischen Systemen zusammengestellt, beschrieben und hinsichtlich der Eignung für die Ermittlung des Risikos von Kernkraftwerken und für Nichtreaktor-Nuklearanlagen (NRN-Anlagen) bewertet.

Als Schwerpunkt der Arbeiten wurde dann auf der Basis der Methode der „Quantitative Risk Analysis“ (QRA) ein Grundkonzept für eine PSA für eine NRN-Anlage erarbeitet. Beispielhaft wird dieses Konzept auf einen ausgewählten Teilprozess in einer Anlage zur Fertigung von Brennelementen angewandt. Die den Modellierungen des Fertigungsprozesses zugrunde gelegten Daten wurden teilweise dem Aufbau einer älteren, mittlerweile stillgelegten Anlage entnommen und punktuell anhand aktueller, z. T. anlagenspezifischer Informationen mit Hilfe von Antworten durch einen Betreiber auf einen abgestimmten Fragenkatalog zum untersuchten Teilprozess modifiziert. Die verwendeten Zuverlässigkeitskenngrößen sind zum Teil einer auf den untersuchten Teilprozess bezogenen Zusammenstellung früherer meldepflichtiger Ereignisse entnommen, ein Großteil der verwendeten Zuverlässigkeitskenngrößen ist jedoch generischer Natur.

Die Untersuchung dieses Teilprozesses aus der Brennelemente-Herstellung als Anwendungsbeispiel zeigt, dass PSA-Methoden auf Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung prinzipiell anwendbar sind. Das Augenmerk lag in diesem Beispiel auf der Modellierung von möglichen Fehlerkombinationen, die zu einem unerwünschten Anlagenzustand führen. Die quantitativen Ergebnisse dieser beispielhaften, generischen Untersuchung wurden als Punktwerte der bedingten Wahrscheinlichkeiten für unerwünschte Anlagenzustände ausgewiesen. Diese Werte sind aber aufgrund der begrenzten, z. T. generischen Unterlagen- und Datenlage und der daraus resultierenden großen Kenntnisunsicherheiten rein qualitativ zu interpretieren, und haben den Charak-

ter einer methodischen Machbarkeitsstudie. Es werden zwar quantitative Werte ausgewiesen, für belastbare Aussagen bezüglich eines realen Prozesses sind aber deutlich weitergehende Informationen und Datenbasen zu allen enthaltenen Prozesskomponenten und -abläufen unbedingt erforderlich.

Die im Rahmen des Vorhabens durchgeführten Arbeiten zeigen damit, dass probabilistische Sicherheitsanalysen (PSA) für Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung und des Weiteren für Anlagen der chemischen Industrie grundsätzlich machbar sind, und zur Bewertung des aus dem Betrieb dieser Anlagen resultierenden Risikos einsetzbar sind. Notwendige Voraussetzung für belastbare Aussagen auf Basis quantitativer Ergebnisse ist allerdings, dass ausreichend Daten zum Anlagenbetrieb (Zuverlässigkeitsdaten der relevanten Anlagenkomponenten und der Betriebsorganisation) und zur Systemkonfiguration vorliegen, wobei anzustreben ist, anlagenspezifische Daten zu verwenden.

Die durchgeführten Arbeiten sind im Detail in /GÄN 13/ dokumentiert.

3 Neuberechnung kritischer Parameter für das GRS „Handbuch zur Kritikalität“

3.1 Rechenmethoden

Für homogenisierte Systeme von Urandioxid und Wasser wurden Kurven für kritische Parameter unter voller Wasserreflexion in Abhängigkeit von der Urankonzentration neu berechnet. Dazu gehören kritische Kugelmassen und -volumina, kritische Zylinderdurchmesser sowie kritische Schichtdicken. Betrachtet wurden Anreicherungen zwischen 3,0 und 6,0 Gew.-% ^{235}U im Gesamturan.

Als theoretisch maximal mögliche Dichte von Urandioxid wurde $10,96 \text{ g/cm}^3$ angenommen, während für Wasser eine Dichte von $0,9984 \text{ g/cm}^3$ angenommen wurde. Uran wurde als nur aus ^{235}U und ^{238}U bestehend angenommen; ^{234}U wurde in den Rechnungen vernachlässigt, und ^{236}U nicht unterstellt. Der Sauerstoff des Dioxids wurde zu 100 % aus ^{16}O bestehend angenommen. Alle Temperaturen wurden zu 300 K angenommen. Die mittlere Uranmasse m wurde in Abhängigkeit von Volumenanteil und Anreicherung berechnet zu

$$m(VFRAC_U, A) = VFRAC_U \times (A \times 235,0441u + (1 - A) \times 238,0510u)$$

Hier bezeichnen $VFRAC_U$ den Volumenanteil des Urandioxids im System und A die Anreicherung an ^{235}U , ausgedrückt als Gewichtsanteil im Gesamturan. Die beiden Werte 235,0441 u und 238,0510 u bezeichnen die jeweiligen Atomgewichte der Uranisotope ^{235}U und ^{238}U nach /MAG 09/. Zur Berechnung der entsprechenden Dioxid-Molekülmasse wurde das Atomgewicht des Sauerstoffs als 15,9954 u angenommen. Das verbleibende freie Volumen der jeweiligen Systeme wurde als vollständig mit Wasser gefüllt angenommen („Restwasserauffüllung“), und Urandioxid und Wasser homogenisiert. Zur Berechnung der Kernzahldichten wurde die Loschmidtzahl $L = 0,602214179$ verwendet. Alle betrachteten Systeme wurden als von einem 30 cm starken Wasserreflektor der Dichte $0,9984 \text{ g/cm}^3$ und Temperatur 300 K umgeben angenommen. **Abb. 3.1** stellt das resultierende Atomzahl-Moderationsverhältnis H/U_{gesamt} der homogenisierten Urandioxid-Wasser-Mischung (ohne Reflektor) in Abhängigkeit von der Urankonzentration in dem kritischen System für 5,0 Gew.-% ^{235}U grafisch dar.

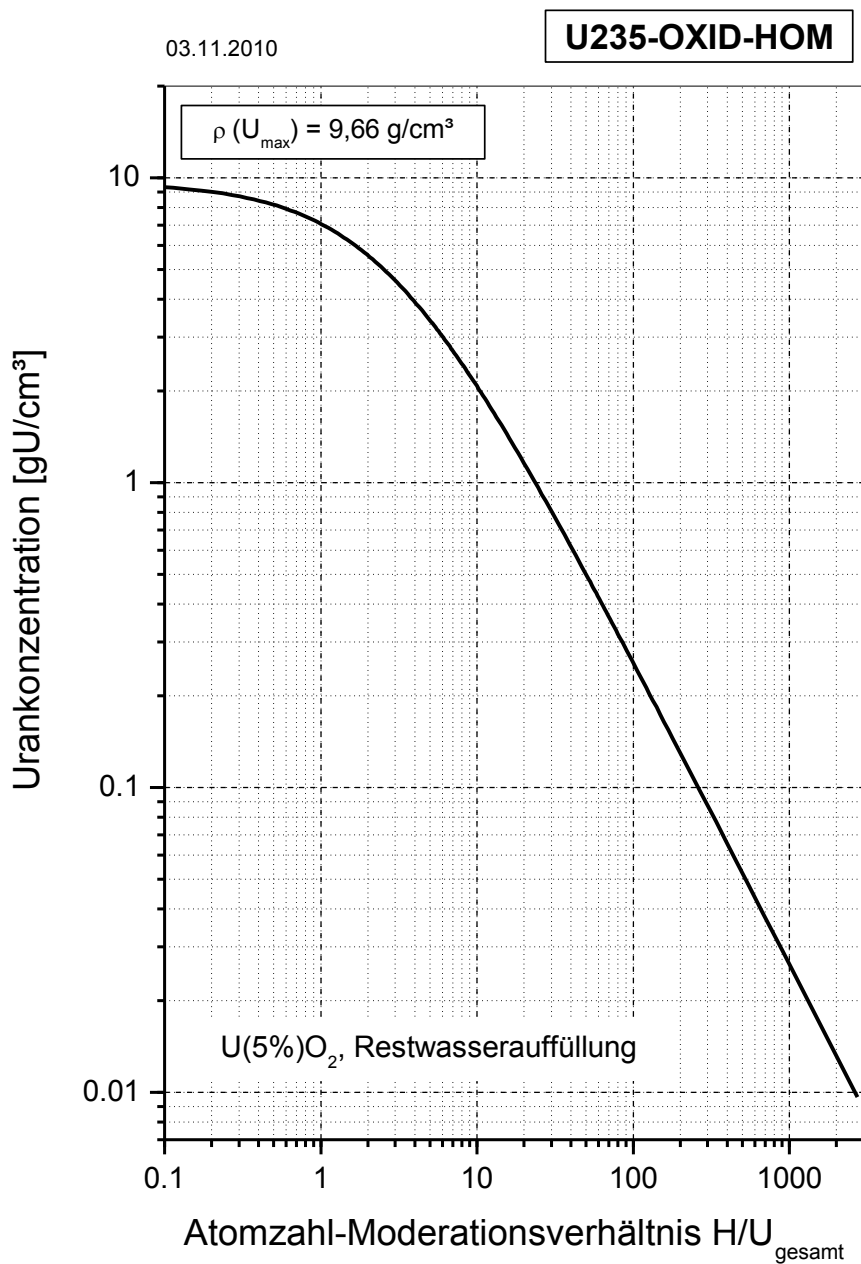


Abb. 3.1 Zusammenhang zwischen Urankonzentration und Atomzahl-Moderationsverhältnis im Modell der Restwasserauffüllung

Als Berechnungssystem kam das amerikanische Codepaket SCALE 6 inklusive aller offizieller Patches, welche bis einschließlich 21.12.2010 verfügbar waren, zum Einsatz. Verwendet wurden die mitgelieferten ENDF/B-VII.0 Wirkungsquerschnitte in 238 Energiegruppen. Zur Berechnung der kritischen Dimensionen der Systeme, d. h. derjenigen Kugel- und Zylinderradien sowie Schichtdicken, für welche $k_{\text{eff}} = 1,0$ berechnet wird,

wurde die Rechensequenz CSAS1 im Modus „critical dimension search“ verwendet. Eine exemplarische Eingabedatei ist im Anhang wiedergegeben.

Da für jede der Parameterkurven jeweils über einhundert Einzelrechnungen durchgeführt wurden, kamen zur automatisierten Erstellung der jeweiligen Eingabedateien und zur Auswertung der Einzelrechnungen entsprechende, speziell für diese Anwendung gefertigte Skripte zum Einsatz. Kernzahldichten für alle beteiligten Nuklide wurden in Microsoft Excel für alle betrachteten Urkonzentrationen berechnet, in eine Textdatei exportiert, und automatisiert in vorgefertigte Template-Dateien für CSAS1 eingesetzt. Die korrekte Implementierung dieser Daten wurde durch eine hinreichend große Anzahl an Stichprobenkontrollen für alle Parameterkurven zuverlässig verifiziert. Da die Güte der errechneten kritischen Parameter u. a. von dem vorgegebenen Startwert dieses Parameters für die Iterationen der Routine CSAS1 abhängt („initial guess“), wurde in einer Vorrechnung der jeweilige Parameter, z. B. der kritische Radius einer Kugel, für alle Konzentrationen mit einem festen Startwert berechnet. Die so errechneten Werte wurden dann für eine verbesserte Konvergenz des „critical dimension search“ um + 5 cm modifiziert, und als Ausgangswerte für eine zweite Rechensequenz verwendet. Die in dieser zweiten Serie errechneten kritischen Parameter wurden als verbesserte Abschätzung der Kurvenparameter akzeptiert und für die Gegenrechnungen zur Validierung verwendet. Auch dieses Vorgehen wurde mit Hilfe spezieller Skripte automatisiert durchgeführt und durch Stichprobenkontrollen verifiziert. Infinite Multiplikationsfaktoren wurden mit CSAS1 und ENDF/B-VII.0 Wirkungsquerschnitten in 238 Energiegruppen direkt, d. h. ohne „critical dimension search“ berechnet.

Vergleichsrechnungen zur Verifizierung des Multiplikationsfaktors $k_{\text{eff}} = 1,0$ für die ermittelten kritischen Dimensionen wurden mit den Codes XSDRN, TSUNAMI-1D und KENO-V.a aus SCALE 6 mit der Querschnittsbibliothek v7-238, sowie mit MCNP5 Version 1.51 und ENDF/B-VII.0 Punktwirkungsquerschnitten durchgeführt. Die Benchmarkrechnungen kritischer Experimente zur Validierung der eingesetzten Verfahren wurden mit KENO-V.a und TSUNAMI-3D aus SCALE 6 durchgeführt.

3.2 Kritische Parameter für homogene Urandioxid–Wasser–Systeme

Zur Aktualisierung der kritischen Parameter im GRS „Handbuch zur Kritikalität“ wurden mit der in Kapitel 3.1 beschriebenen Methodik kritische Kugelmassen und -volumina, kritische Zylinderdurchmesser sowie kritische Schichtdicken von homogenen Urandioxid-Wasser-Systemen mit Anreicherungen zwischen 3,0 und 6,0 Gew.-% ^{235}U unter voller Wasserreflexion neu berechnet. In den folgenden Abbildungen dieses Kapitels sind diese Parameterkurven grafisch dargestellt. Die jeweils kleinsten kritischen Parameterwerte sind in **Tab. 3.1** zusammengefasst. Zusätzlich wurden speziell hierfür die kleinsten kritischen Kugelmassen und -volumina für 2,0 und 2,5 Gew.-% ^{235}U Anreicherung sowie die kleinste kritische Zylinderdurchmesser und Schichtdicke für 2,0 Gew.-% ^{235}U Anreicherung ermittelt. Detaillierte Untersuchungen zur Genauigkeit dieser Rechenergebnisse sind in Kapitel 3.5 beschrieben.

Aus Konsistenzgründen und der Vollständigkeit halber wurden ergänzend homogene Urandioxid-Wasser-Systeme für Anreicherungen bis 100 Gew.-% ^{235}U zum Ersatz der entsprechenden bestehenden Parameterkurven im „Handbuch zur Kritikalität“ die infiniten Multiplikationsfaktoren k_{inf} ebenfalls neu berechnet. Diese Daten sind in **Abb. 3.6** grafisch dargestellt. Daraus abgeleitet wurden die maximalen infiniten Multiplikationsfaktoren für Anreicherungen bis 30 Gew.-% ^{235}U , die in **Abb. 3.7** aufgezeichnet sind. Für höhere Anreicherungen tritt der maximale infinite Multiplikationsfaktor k_{inf} nicht mehr in Lösungssystemen sondern in unmoderierten, metallischen Systemen durch Spaltung mittels schneller Neutronen auf. Ebenfalls aus diesen Rechnungen abgeleitet wurden die minimalen Urankonzentrationen in Abhängigkeit von der Anreicherung, welche für einen kritischen Zustand erforderlich sind. Diese Daten sind in **Abb. 3.8** dargestellt. Da die Daten für infinite Systeme nicht stringent validiert sind, ist bei deren Verwendung ein geeigneter, konservativer Sicherheitsfaktor zu berücksichtigen.

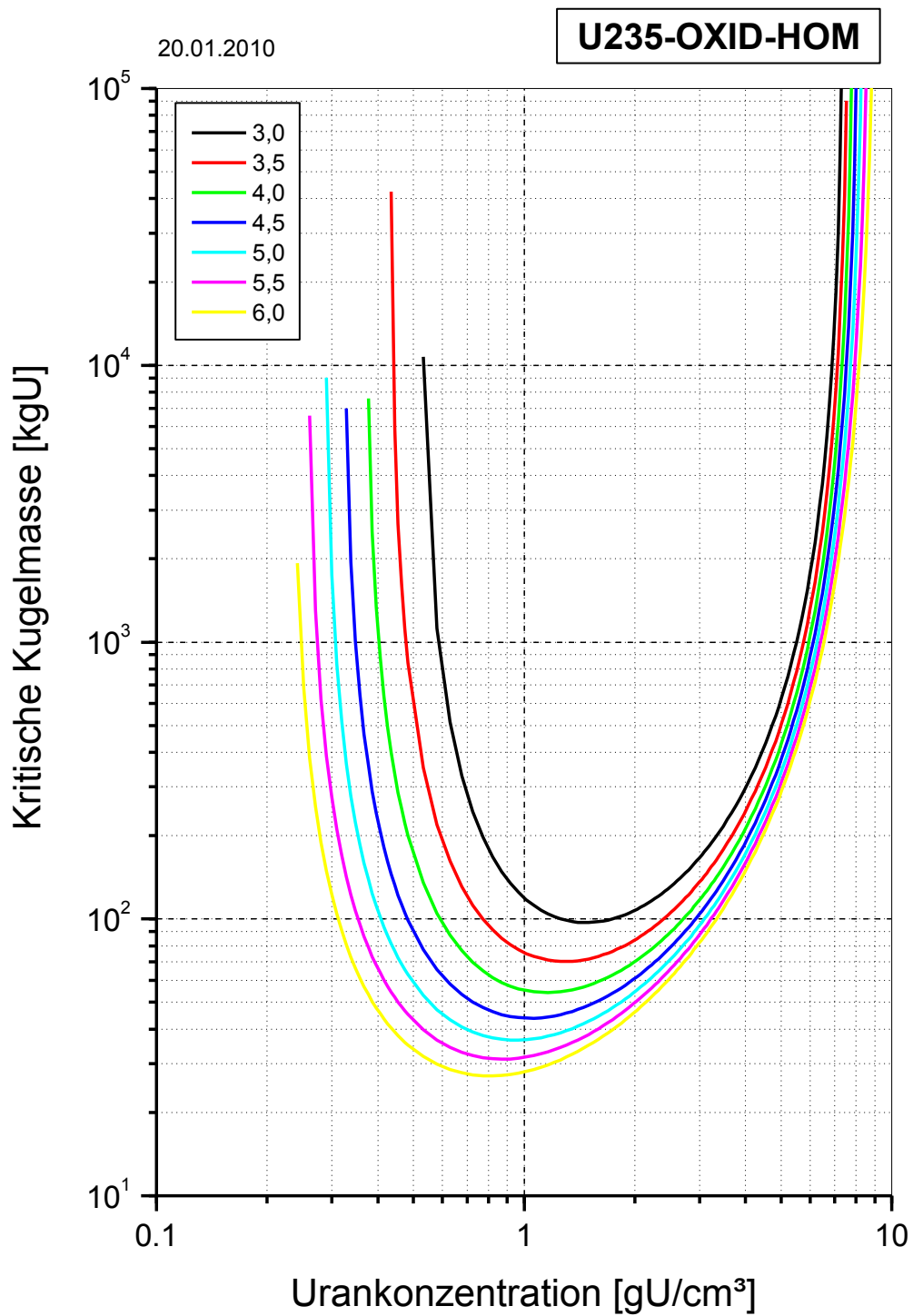


Abb. 3.2 Kritische Kugelmassen für homogene Urandioxid-Wasser-Systeme mit 30 cm Wasserreflektor

08.02.2011

U235-OXID-HOM

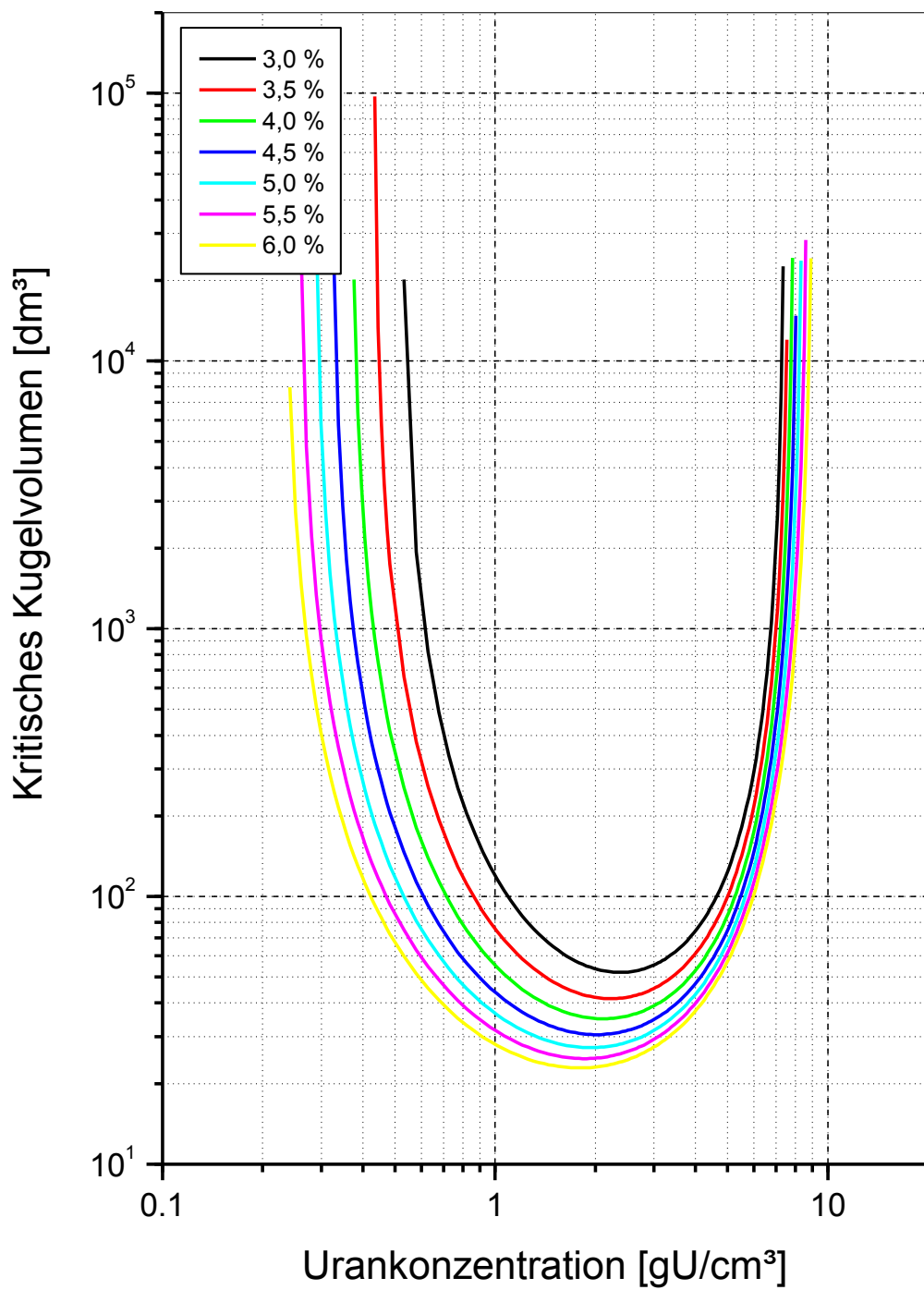


Abb. 3.3 Kritische Kugelvolumina für homogene Urandioxid-Wasser-Systeme mit 30 cm Wasserreflektor

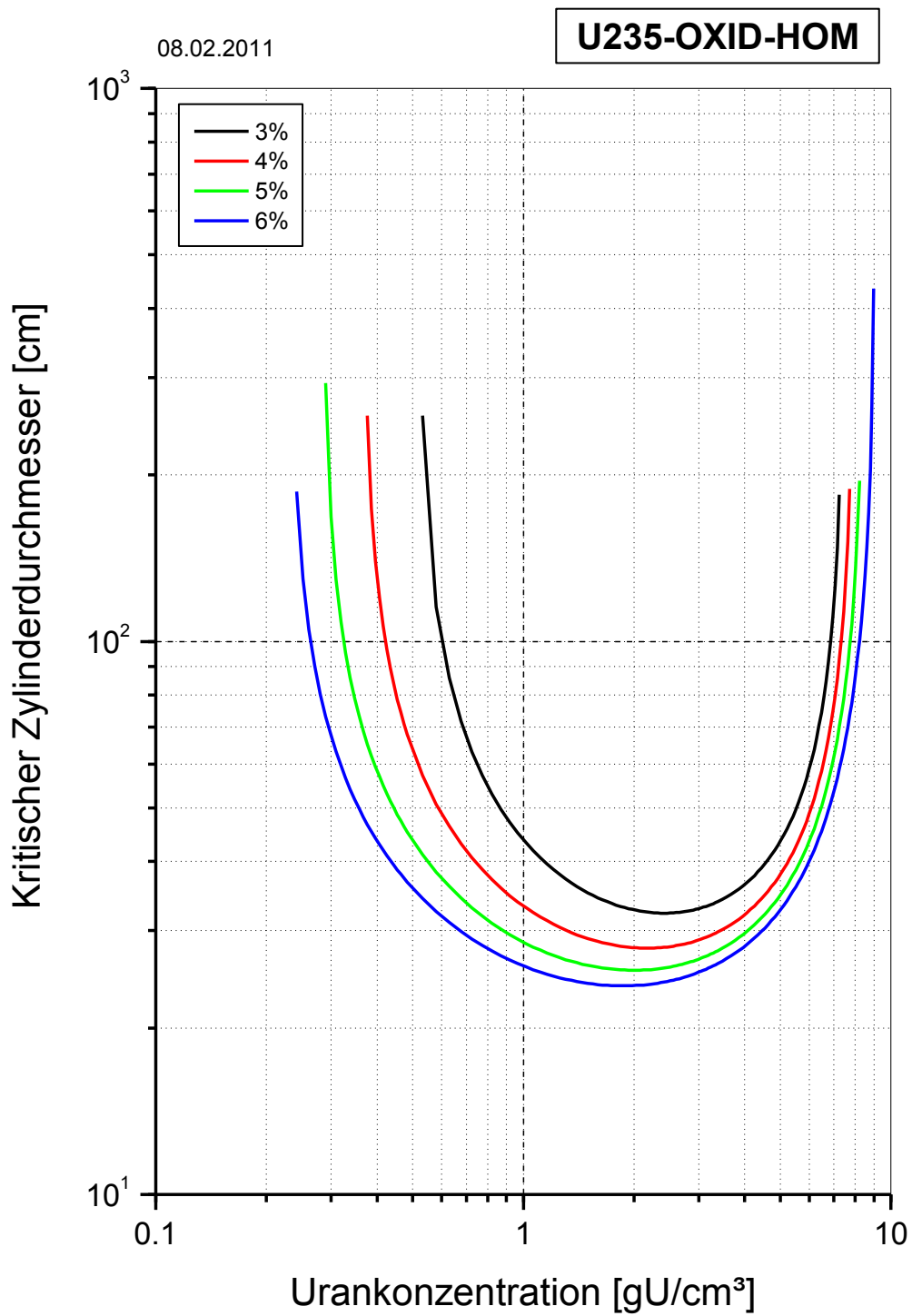


Abb. 3.4 Kritische Zylinderdurchmesser für homogene Urandioxid-Wasser-Systeme mit 30 cm Wasserreflektor

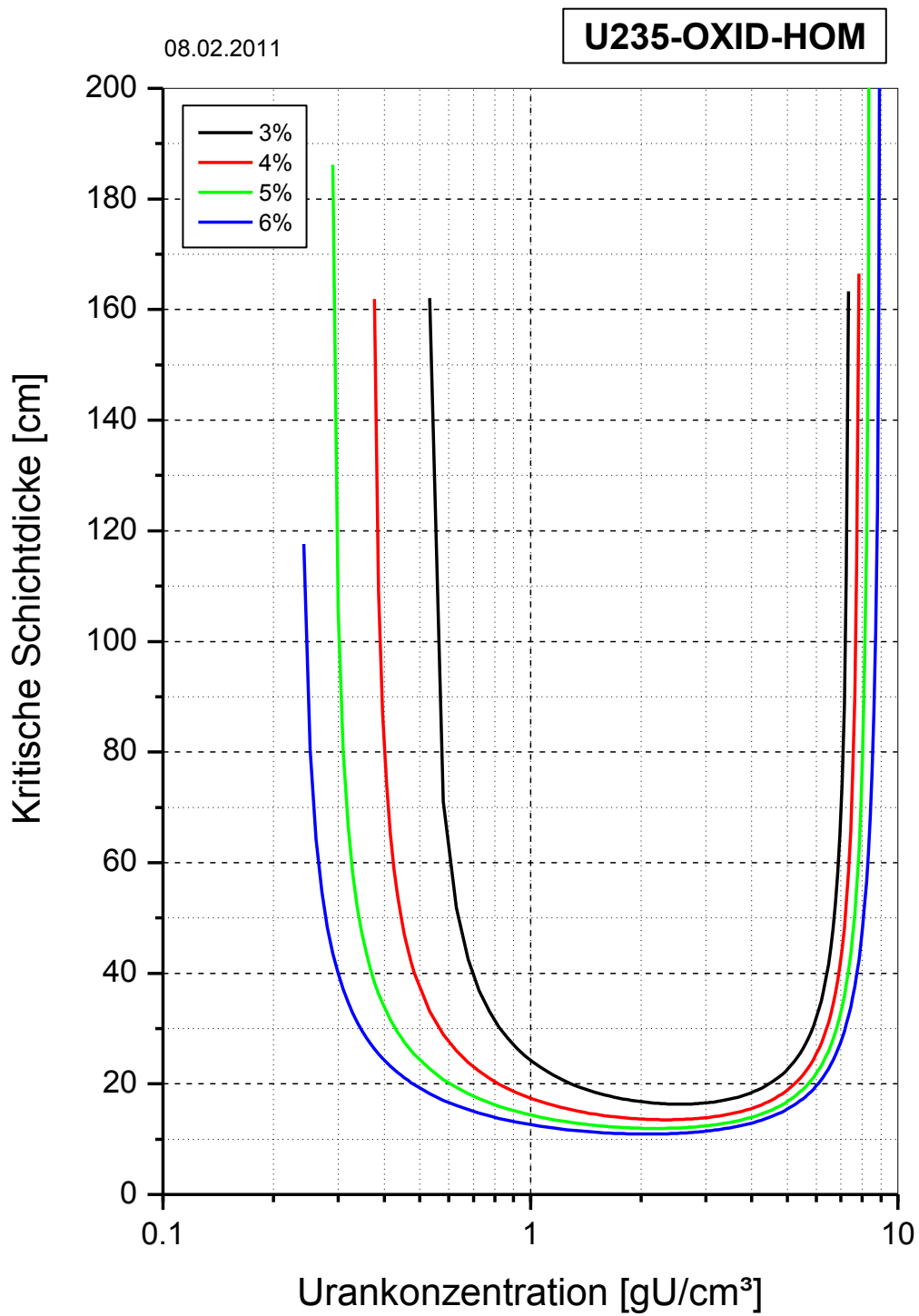


Abb. 3.5 Kritische Schichtdicken für homogene Urandioxid-Wasser-Systeme mit 30 cm Wasserreflektor

Tab. 3.1 Neuberechnete kleinste kritische Parameterwerte für niedrig angereicherte homogene Urandioxid–Wasser–Systeme mit 30 cm Wasserreflektor

Anreicherung Gew.–% ²³⁵ U	Uran–Kugelmasse kgU (gU/cm ³)	Uran–Kugelvolumen Liter (gU/cm ³)	Zylinderdicke cm (gU/cm ³)	Schichtdicke cm (gU/cm ³)
2,0	280 (2,053)	116,9 (2,778)	43,16 (2,80–2,85)	23,36 (2,80–2,95)
2,5	149,5 (1,715)	71,52 (2,560)	–	–
3,0	97,07 (1,497)	52,10 (2,367)	32,26 (2,37–2,46)	16,33 (2,51–2,56)
3,5	70,18 (1,304)	41,51 (2,222)	–	–
4,0	54,22 (1,159)	34,94 (2,125)	27,88 (2,17–2,22)	13,52 (2,32–2,37)
4,5	43,80 (1,063)	30,49 (2,029)	–	–
5,0	36,52 (0,966)	27,26 (1,932)	25,44 (1,93–2,07)	11,95 (2,17–2,22)
5,5	31,14 (0,870)	24,80 (1,860)	–	–
6,0	27,11 (0,821)	22,88 (1,812)	23,84 (1,79–1,93)	10,92 (2,03–2,08)

Die Werte in Klammern in der Tabelle bezeichnen die Urankonzentration in Gramm Uran pro Kubikzentimeter, bei der die jeweiligen kleinsten kritischen Parameter auftreten.

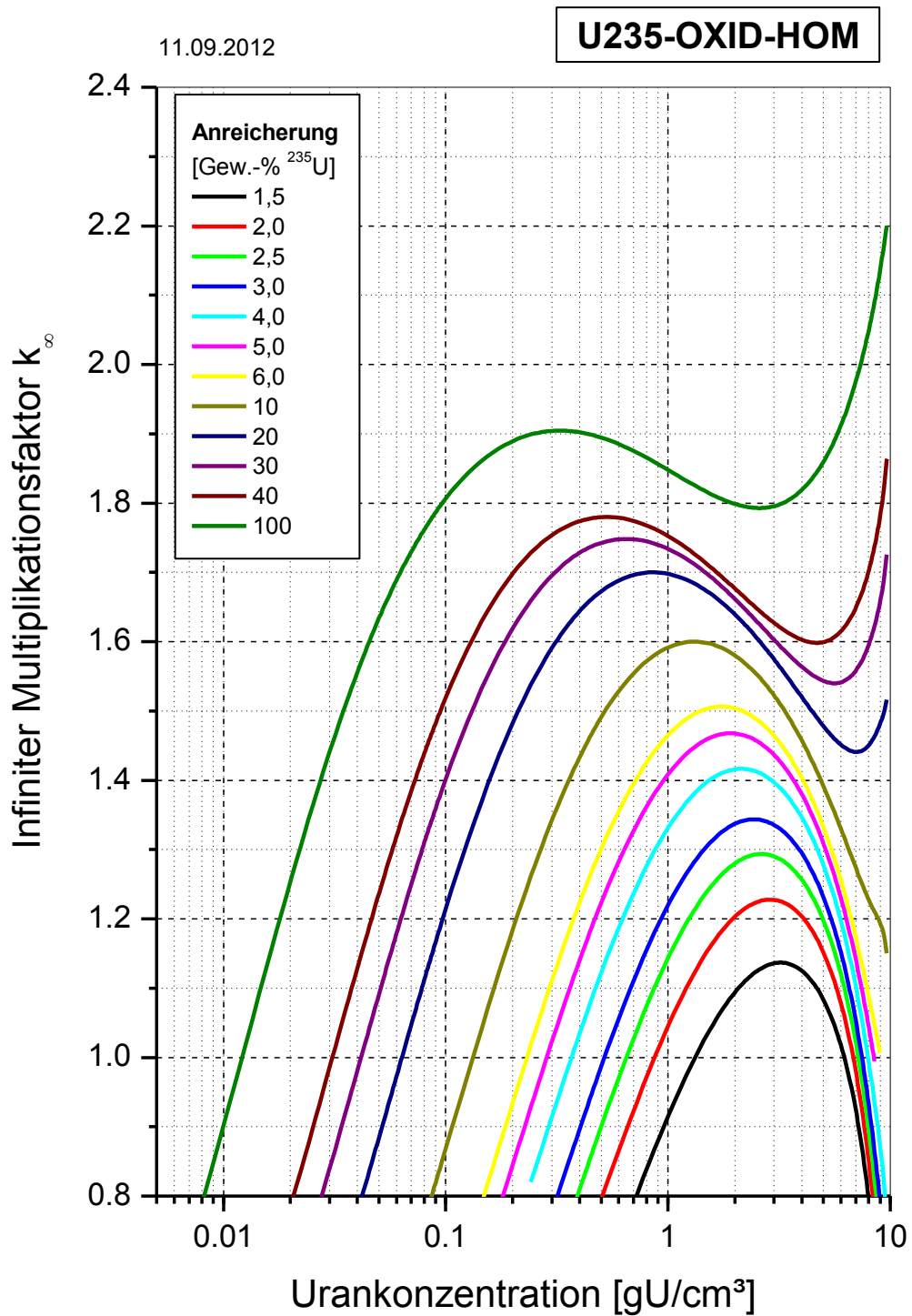


Abb. 3.6 Infiniter Multiplikationsfaktor k_{inf} von homogenen Urandioxid–Wasser–Systeme verschiedener Anreicherung

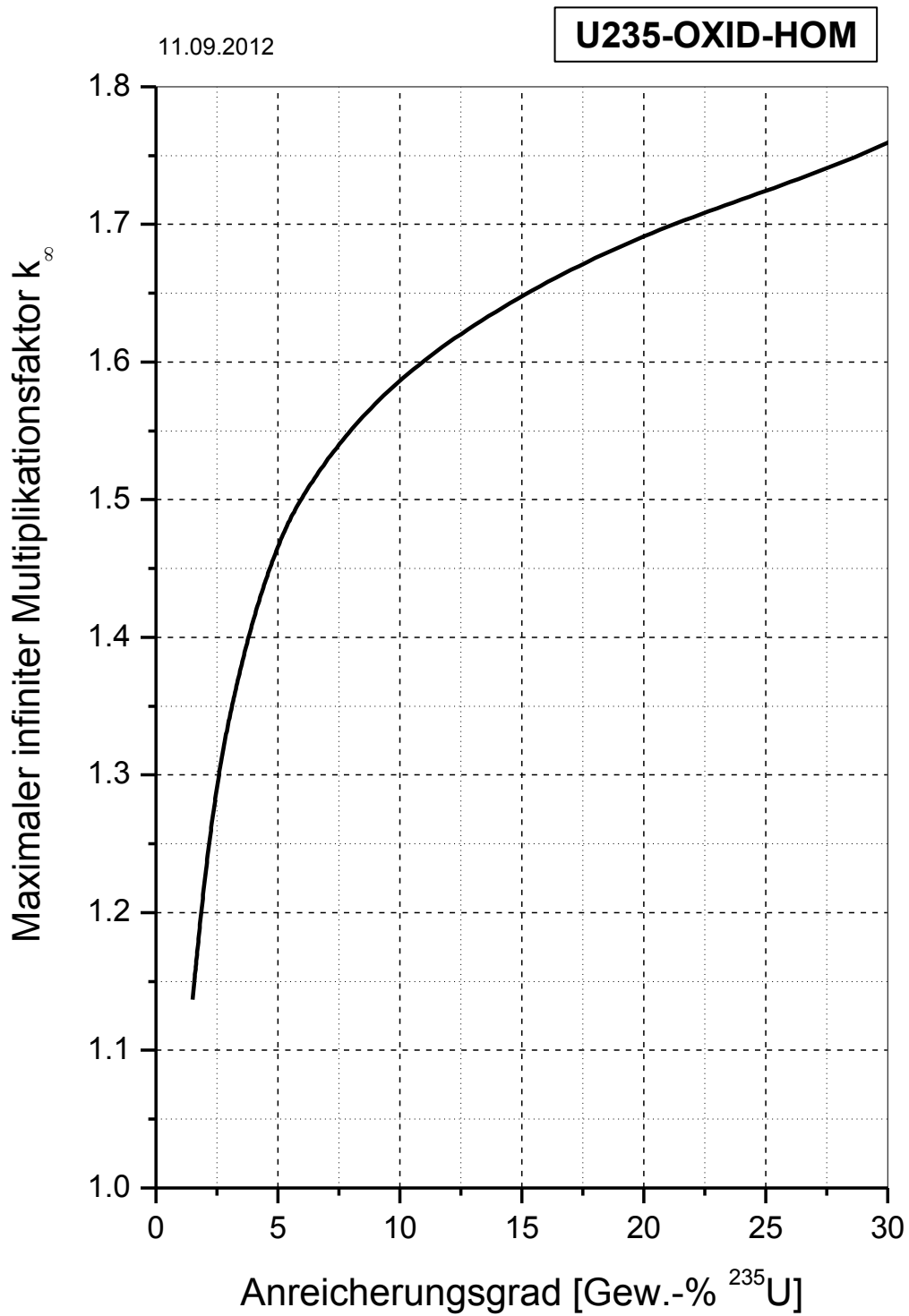


Abb. 3.7 Maximaler infiniter Multiplikationsfaktor k_{inf} von homogenen Uranoxid-Wasser-Systemen verschiedener Anreicherung

11.09.2012

U235-OXID-HOM

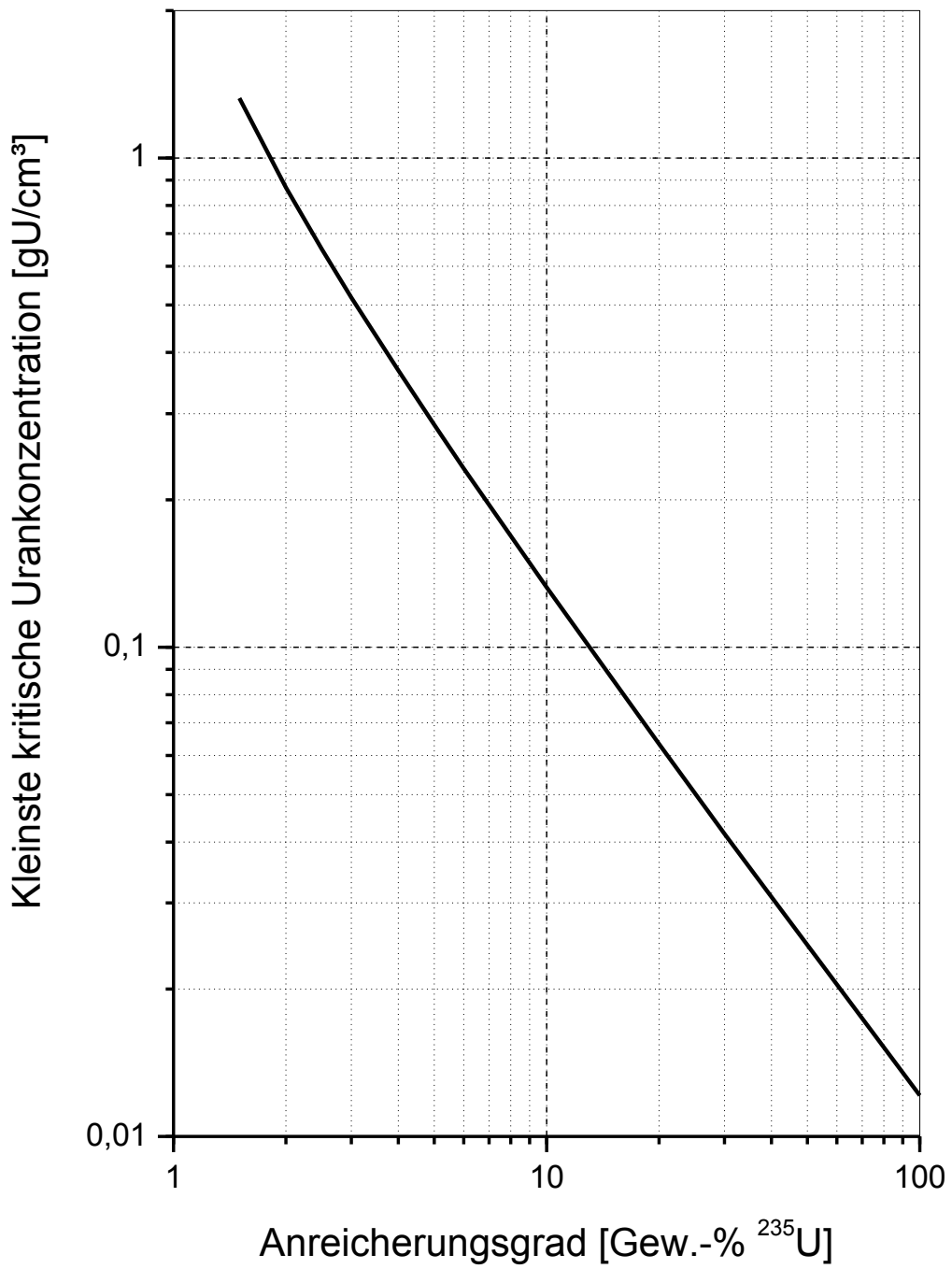


Abb. 3.8 Kleinste kritische Urankonzentration von homogenen Urandioxid-Wasser-Systemen verschiedener Anreicherung

Tab. 3.2 Kleinste kritische Urankonzentration von homogenen Urandioxid-Wasser-Systemen verschiedener Anreicherung

Anreicherung [Gew.-% ²³⁵ U]	Minimale kritische Urankonzentration [gU/cm ³]
1,5	1,324
2,0	0,871
2,5	0,651
3,0	0,519
4,0	0,368
5,0	0,285
6,0	0,232
10	0,133
20	0,0635
30	0,0416
40	0,0309
100	0,0121

3.3 Kritische Parameter für Urandioxid-Wasser-Systeme mit Gadolinium

In modernen Brennelementen für Leichtwasserreaktoren sind häufig in einigen Brennstäben abbrennbare Absorber zur Dämpfung von Leistungsspitzen beim Einsatzbeginn enthalten. Dies gilt v. a. für Anfangsanreicherungen oberhalb von 4,0 Gew.-% ²³⁵U. Der zu diesem Zweck am häufigsten verwendete Absorber ist Gadolinium, typischerweise als Gadoliniumoxid Gd₂O₃. Dieses Material besitzt eine theoretische Dichte von 7,41 g/cm³ [WIK 12] und wird bei der Brennstabfertigung als Pulver homogen in das Urandioxid-Pulver eingemischt. Übliche Mengen sind dabei etwa 3,0 bis 7,0 Gew.-% Gadoliniumoxid im Brennstoff. Somit sind diese Mischungen Bestandteil der nuklearen Versorgung.

Um auch diese Mischungen im GRS „Handbuch zur Kritikalität“ mit abzudecken, wurden kritische Daten für homogene und heterogene Urandioxid-Wasser-Systeme mit Beimengungen bis zu 5,0 bzw. 9,0 Gew.-% Gadoliniumoxid betrachtet. Damit werden Daten für entsprechende Pulver und verschiedene Brennstabanordnungen bereitgestellt. Als Anreicherung wurde hierbei abdeckend 5,0 Gew.-% ²³⁵U angenommen.

3.3.1 Homogene Urandioxid-Wasser-Systeme mit Gadolinium

Für homogene Urandioxid-Wasser-Systeme mit Beimischungen von Gadoliniumoxid Gd_2O_3 bis 5 Gew.-% Anteil im Feststoff wurde der infinite Neutronenmultiplikationsfaktor k_{inf} berechnet. Wie in Kapitel 3.1 beschrieben wurde auch hier die Methode der Restwasserauffüllung verwendet. Es ist zu beachten, dass bei vorgegebener Urankonzentration durch den Zusatz von Gadoliniumoxid weniger freies Volumen für den Moderator zur Verfügung steht und somit bei gleicher Urankonzentration ein niedrigeres Moderationsverhältnis H/U herrscht als bei den absorberfreien Systemen, die in Kapitel 3.2 beschrieben sind.

Die Ergebnisse sind jeweils in Abhängigkeit von der Urankonzentration in **Abb. 3.9** grafisch dargestellt.

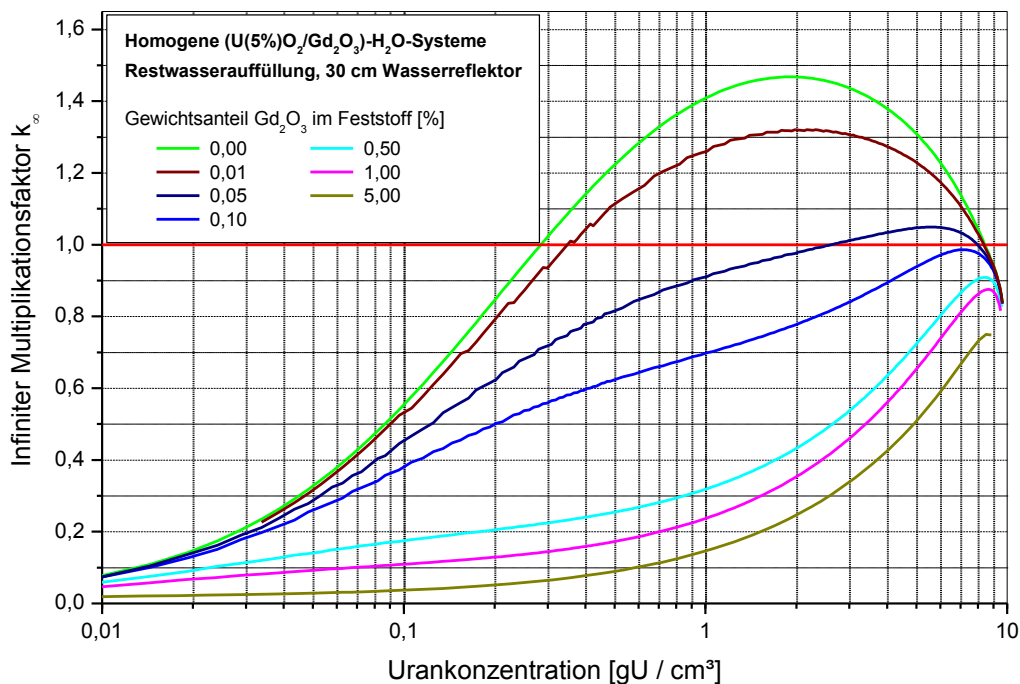


Abb. 3.9 Infiniter Neutronenmultiplikationsfaktor k_{inf} für homogene Urandioxid-Wasser-Systeme mit unterschiedlichen Gadolinium-Beimischungen

Man erkennt in der Abbildung, dass bereits bei Beimengungen ab 0,1 Gew.-% Gadoliniumoxid im Urandioxid der infinite Multiplikationsfaktor k_{inf} bei keiner Urankonzentration im Gemisch den Wert 1,0 übersteigt. Dies liegt wesentlich an dem hohen thermi-

schen Absorptionsquerschnitt von $\sigma_{\text{therm}} = 254.000$ barn des Gadoliniumisotops ^{157}Gd , das zu 15,65 % in natürlichem Gadolinium enthalten ist. Somit ist Kritikalität für derartige Systeme ausgeschlossen.

Auf die Berechnung von zugehörigen kritischen Uran-Kugelmassen wurde verzichtet, da Systeme mit einem so geringem Anteil an Gadoliniumoxid, der Kritikalität noch zu lassen würde, in der Praxis so gut wie ausgeschlossen sind und durch die Daten für absorberfreie Urandioxid-Wasser-Systeme konservativ abgedeckt sind. Dieser Umstand gilt gleichermaßen für die entsprechenden Zylinder- und Schichtdicken.

3.3.2 Heterogene Urandioxid-Wasser-Systeme mit Gadolinium

Als heterogene Urandioxid-Wasser-Systeme mit Gadolinium wurden Brennstabanordnungen in Wasser betrachtet. Dabei wurde ein Stababstand unterstellt, wie er typischerweise in Brennelementen für Leichtwasserreaktoren besteht. Dies ist aus reaktorphysikalischen Gründen zumeist auch der nahezu reaktivste Zustand. Die verwendeten Brennstabdaten sind in **Tab. 3.3** aufgeführt. Die Daten entsprechen in etwa den Bedingungen der Brennelemente eines Druckwasserreaktors vom Typ Konvoi, die nach derzeitigem Stand noch bis 2022 in Deutschland zum Einsatz kommen werden.

Tab. 3.3 Brennstabkenngrößen der heterogenen Urandioxid-Wasser-Systeme mit Gadolinium

Parameter	Größe [cm]
Pelletradius	0,405
Hüllrohrinnenradius	0,411
Hüllrohraußenradius	0,475
Brennstabmittenabstand	0,636
Steuerstabführungsrohr Außenradius	0,500
Steuerstabführungsrohr Innenradius	0,550

Anordnungen welche ausschließlich aus gadoliniumhaltigen Stäben bestehen, werden aufgrund der starken Absorptionwirkung des Gadoliniums nicht kritisch, vgl. auch Kapitel 3.3.1. In einem realen Brennelement sind allerdings je nach Auslegung und Design nur etwa 10 % aller Stäbe mit Gadolinium beladen. Deshalb wurden in der vorliegenden Untersuchung verschiedene Stabanordnungen aus unterschiedlichen Anteilen aus gadoliniumhaltigen und gadoliniumfreien Brennstäben sowie Steuerstabführungs-

rohren untersucht. Für alle Brennstäbe wurde eine einheitliche Anreicherung von 5,0 Gew.-% ^{235}U verwendet. Die Einheitszellen der betrachteten Anordnungen sind mit ihrer Nomenklatur in **Abb. 3.10** grafisch dargestellt.

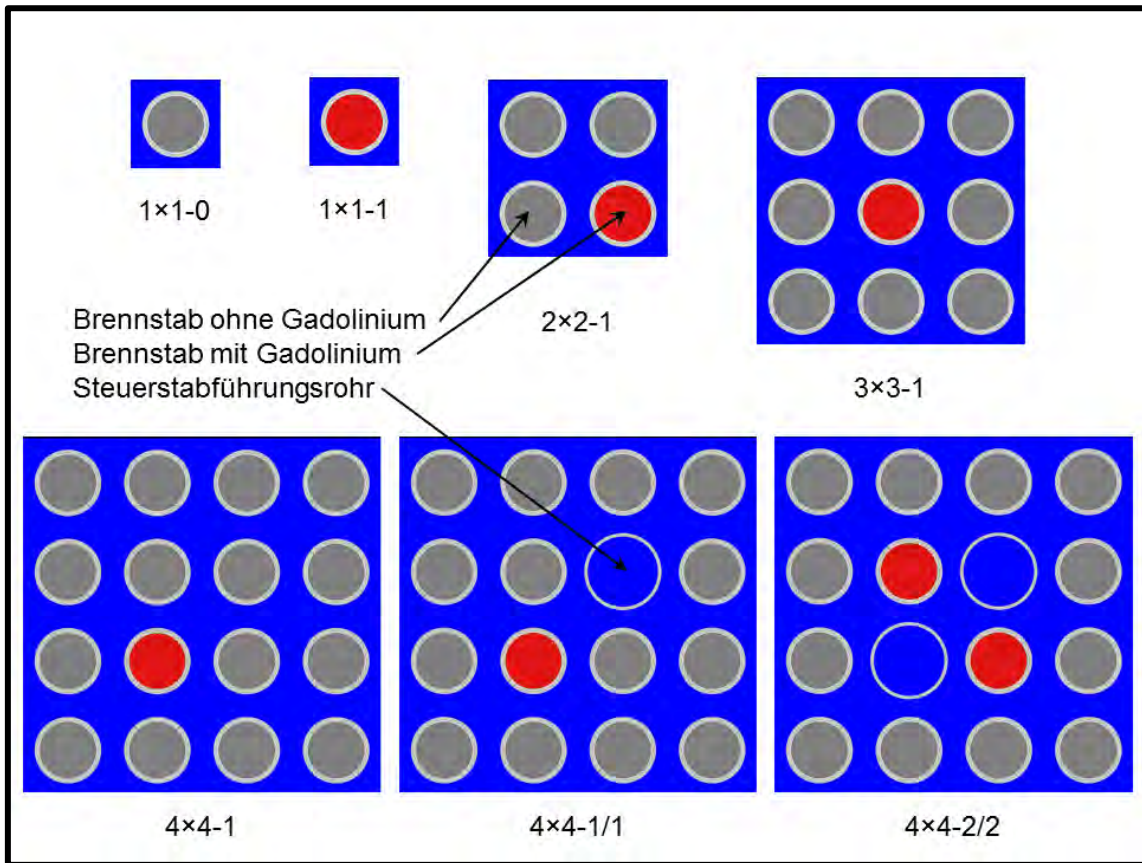


Abb. 3.10 Einheitszellen der betrachteten heterogenen Urandioxid-Wasser-Systeme mit Gadolinium

Die dargestellten Einheitszellen wurden in alle Raumrichtungen als periodisch unendlich fortgesetzt angenommen. Unterstellt wurden für alle Einheitszellen Gadoliniumbeladungen von 1,0 bis 9,0 Gew.-% Gadoliniumoxid Gd_2O_3 im Feststoff.

Die Berechnungen der Multiplikationsfaktoren wurden mit der Rechensequenz CSAS5 (KENO-V.a) und der Wirkungsquerschnittsbibliothek v7-238 aus SCALE6 durchgeführt. Verfolgt wurden 1100×20000 Neutronenschicksale, wobei die ersten 100 Generationen verworfen wurden. Dadurch wurde in allen Rechnungen eine Standardabweichung von $\sigma < 0,00015$ erreicht. In **Tab. 3.4** sind die berechneten Werte für k_{eff} zusammengefasst. Dabei beinhalten die Zeilen die Werte entsprechend der Gadoliniumbeladung und die Spalten entsprechend der in **Abb. 3.10** definierten Nomenklatur der Stab-anordnungen.

Tab. 3.4 Berechnete Multiplikationsfaktoren k_{eff} für heterogene Urandioxid-Wasser-Systeme mit Gadolinium

Gd [%]	1×1-0	1×1-1	2×2-1	3×3-1	4×4-1	4×4-1/1	4×4-2/2
1	1,48613	0,49594	1,05032	1,27131	1,36232	1,36412	1,20683
2	1,48613	0,42629	1,00082	1,24440	1,34631	1,34740	1,17525
3	1,48613	0,39031	0,97370	1,22895	1,33725	1,33837	1,15881
4	1,48613	0,36452	0,95459	1,21857	1,33086	1,33188	1,14709
5	1,48613	0,34504	0,93930	1,20985	1,32566	1,32657	1,13794
6	1,48613	0,32920	0,92695	1,20256	1,32156	1,32280	1,13058
7	1,48613	0,31538	0,91622	1,19662	1,31753	1,31857	1,12417
8	1,48613	0,30349	0,90704	1,19137	1,31445	1,31533	1,11855
9	1,48613	0,29280	0,89826	1,18642	1,31141	1,31266	1,11330

Zur Validierung der errechneten Multiplikationsfaktoren wurde das „International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments“ /NEA 10/ bezüglich geeigneter Benchmark-Experimente überprüft. Experimente mit Uranlösungen und Gadolinium sind nicht dort nicht verfügbar. Ebenso fehlen Experimente mit Urandioxid und Gadolinium in der Brennstoffmatrix. Experimente, die zumindest eine gewisse Ähnlichkeit im Aufbau zu den hier betrachteten Brennstabanordnungen aufweisen, sind die Benchmark-Experimente LEU-COMP-THERM-043 und -091. Diese bestehen aus Brennstäben mit einer ^{235}U -Anreicherung von 4,35 Gew.-% in einem Wassertank mit zusätzlichen einzelnen Absorberstäben aus Gadoliniumoxid (Gd_2O_3). Aufgrund der geringen Datenmenge zur Validierung wird hier nur eine sehr vereinfachte Abschätzung einer möglichen systematischen Abweichung des Berechnungssystems vorgenommen.

Die Nachrechnungen der beiden Benchmark-Experimente LEU-COMP-THERM-043 und -091 mit jeweils 9 Fällen, die beide aus derselben Experimentserie stammen, ergaben die in **Tab. 3.5** aufgeführten Multiplikationsfaktoren. Die Unsicherheiten in den Multiplikationsfaktoren aufgrund der Unsicherheiten der Wirkungsquerschnitte wurden mithilfe der TSUNAMI-Methodik des SCALE-Pakets /BRO 04/, /REA 11/ für jedes Benchmark-Experiment ermittelt und betragen etwa $\sigma_k = 0,0067$. Die erwarteten Neutronenmultiplikationsfaktoren für die Benchmark-Experimente wurden in /NEA 10/ zu $k_{\text{eff}} = 1,0005 \pm 0,0010$ abgeschätzt.

Um eine – soweit möglich – konservative Abschätzung der möglichen systematischen Abweichungen der Nachrechnungen von den Benchmark-Resultaten zu erhalten, wur-

den hier die Fälle mit der größten Abweichung zwischen Nachrechnung und Benchmark-Experiment betrachtet. Dies sind die Fälle 7 bis 9 des Experiments LEU-COMP-THERM-091, die im Mittel eine Abweichung von $\Delta k_{\text{eff}} = 0,0035$ zum Benchmark-Resultat zeigen. Da zwischen den Experimenten hohe Korrelationen zu erwarten sind, empfiehlt es sich an dieser Stelle, die Unsicherheit auf Δk_{eff} durch die Unsicherheiten einer einzelnen Nachrechnung abzuschätzen, die in der Summe etwa $\sigma_{\Delta k} = 0,0068$ ergeben. Damit kann hier eine mögliche systematische Abweichung des Berechnungssystems zu $\Delta k_{\text{eff}} = 0,0035 \pm 0,0068$ abgeschätzt werden. Nimmt man die Unsicherheit als normalverteilt an, so ergibt sich daraus ein 95 %-Konfidenzlimit für die mögliche Abweichung von etwa 0,0147, welches den Resultaten in **Abb. 3.9** und **Tab. 3.4** hinzuzurechnen ist.

Tab. 3.5 Berechnete Multiplikationsfaktoren k_{eff} für die Benchmark-Experimente LEU-COMP-THERM-043 und LEU-COMP-THERM-091 mit Gadolinium

Fall	LEU-COMP-THEM-043	LEU-COMP-THERM-091
1	1.00086 ± 0,00007	1.00032 ± 0,00007
2	1.00106 ± 0,00007	1.00065 ± 0,00007
3	1.00077 ± 0,00007	1.00006 ± 0,00007
4	1.00091 ± 0,00007	1.00068 ± 0,00007
5	1.00063 ± 0,00007	1.00110 ± 0,00007
6	1.00077 ± 0,00007	1.00089 ± 0,00007
7	1.00092 ± 0,00007	0.99654 ± 0,00007
8	1.00061 ± 0,00007	0.99725 ± 0,00007
9	1.00043 ± 0,00007	0.99732 ± 0,00007

Exemplarische Neutronenflussverteilung

Zu Anschauungszwecken wurde zusätzlich mit dem zweidimensionalen deterministischen S_N -Rechenverfahren NEWT aus SCALE 6 die räumliche Verteilung der thermischen Neutronenflussdichte in der Anordnung 4×4-2/2 bei 5 Gew.-% Gadoliniumoxid in den entsprechenden Brennstäben berechnet. Diese Verteilung ist in **Abb. 3.11** grafisch dargestellt. Bereiche mit hoher Neutronenflussdichte sind rot gekennzeichnet, während Bereiche mit niedriger Neutronenflussdichte blau gekennzeichnet sind. Orange, gelbe

und grüne Bereiche liegen entsprechend dazwischen. Dies korrespondiert qualitativ zu den Verhältnissen in einem moderierten, unbestrahlten Brennelement.

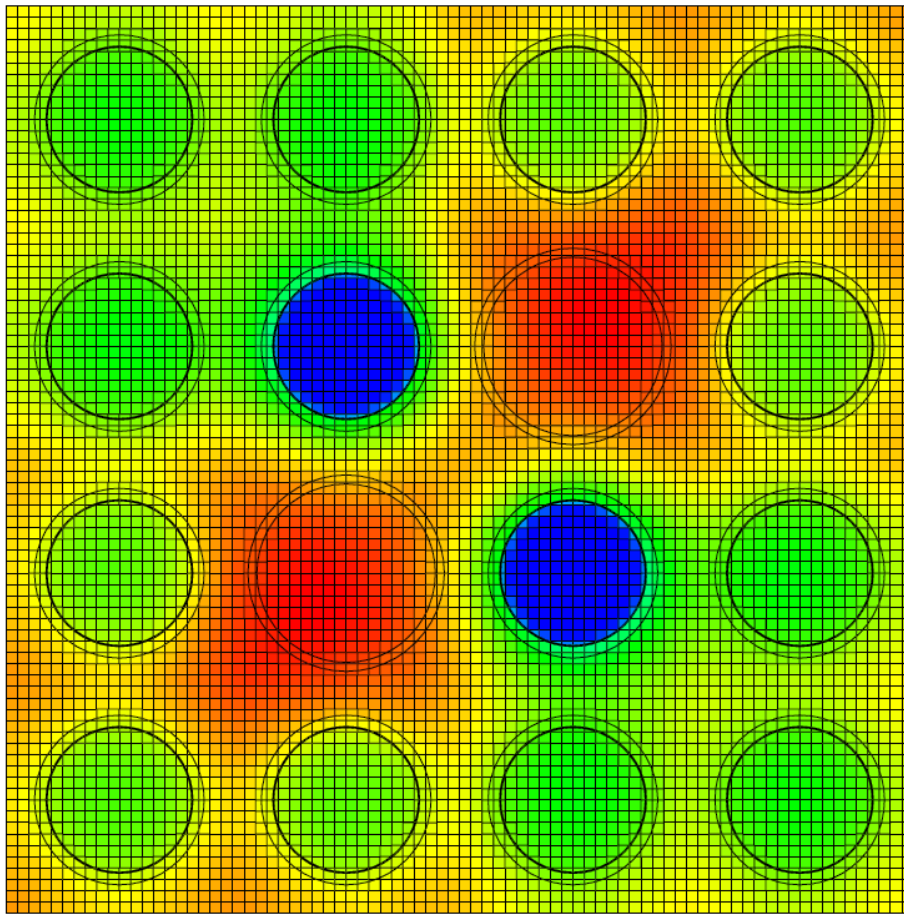


Abb. 3.11 Mit SCALE6/NEWT berechnete exemplarische thermische Neutronenflussdichteverteilung der infiniten 4×4-2/2 Brennstabanordnung mit zwei gadoliniumhaltigen Brennstäben und zwei Steuerstabführungsrohren

Gut zu erkennen sind der stark thermalisierte Bereich der Steuerstabführungsrohre (roter Bereich) sowie die starke thermische Absorption im Bereich der gadoliniumhaltigen Brennstäbe (blau).

3.4 Kritische Parameter für homogene Urndioxid–Grafit–Systeme

Es wurden kritische Kugelparameter für homogene Urndioxid-Grafit-Systeme mit Anreicherungen von 10 bis 20 Gew.-% ^{235}U in Schritten von 2,5 neu berechnet. Hierfür wurde ebenfalls die in Kapitel 3.1 beschriebene Rechensequenz CSAS1 eingesetzt und zur Modellierung bei vorgegebener Urandichte die Methode der Restvolumenauf-

füllung mit Grafit angewendet. Als Reflektor wurden alternativ 30 cm Wasser oder 100 cm Grafit angenommen. Die neu berechneten Kugelmassen und -volumina sind in **Abb. 3.12** bis **Abb. 3.15** grafisch dargestellt.

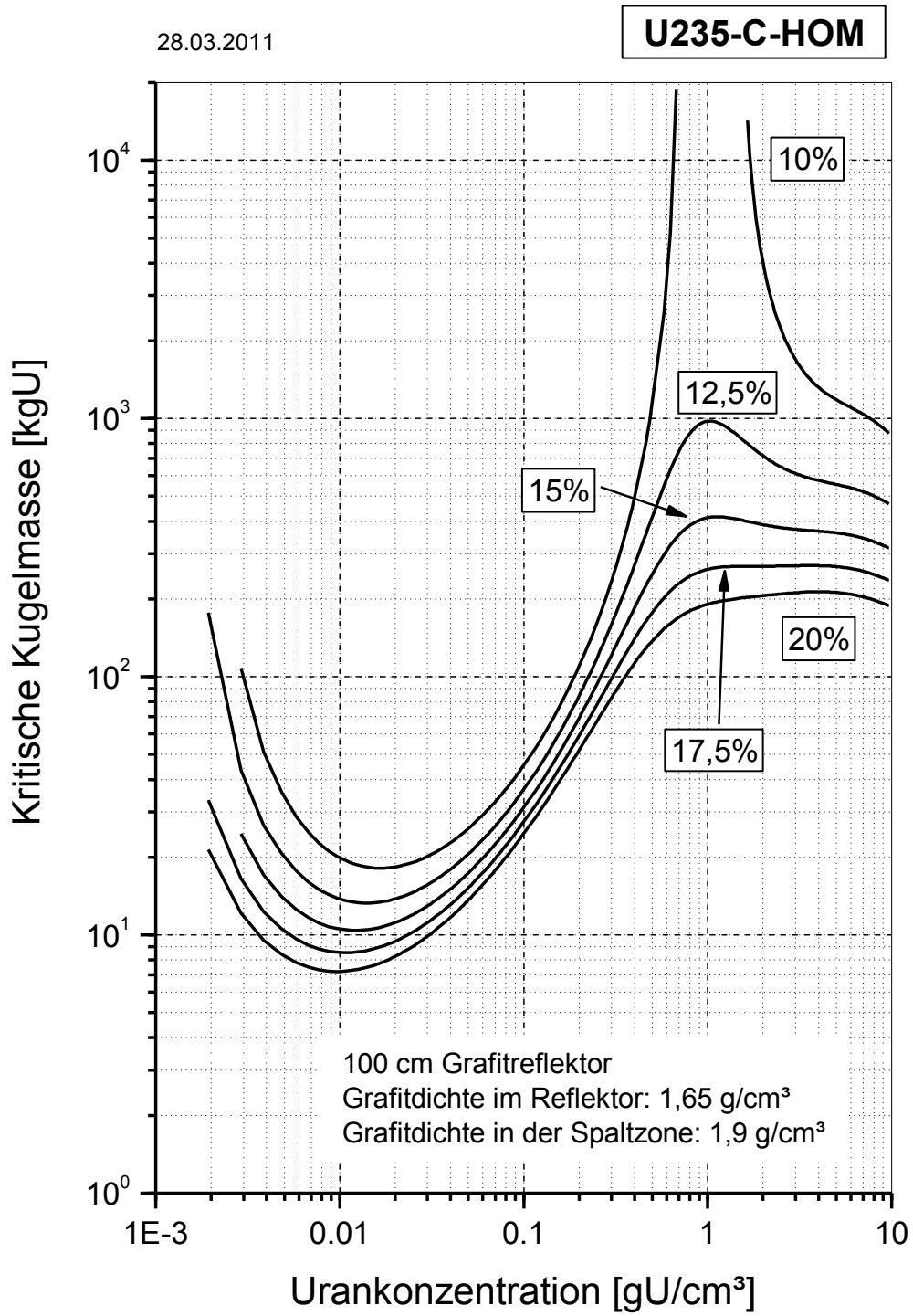


Abb. 3.12 Kritische Kugelmassen von homogenen Urandioxid-Grafit-Mischungen mit 100 cm Grafitreflektor

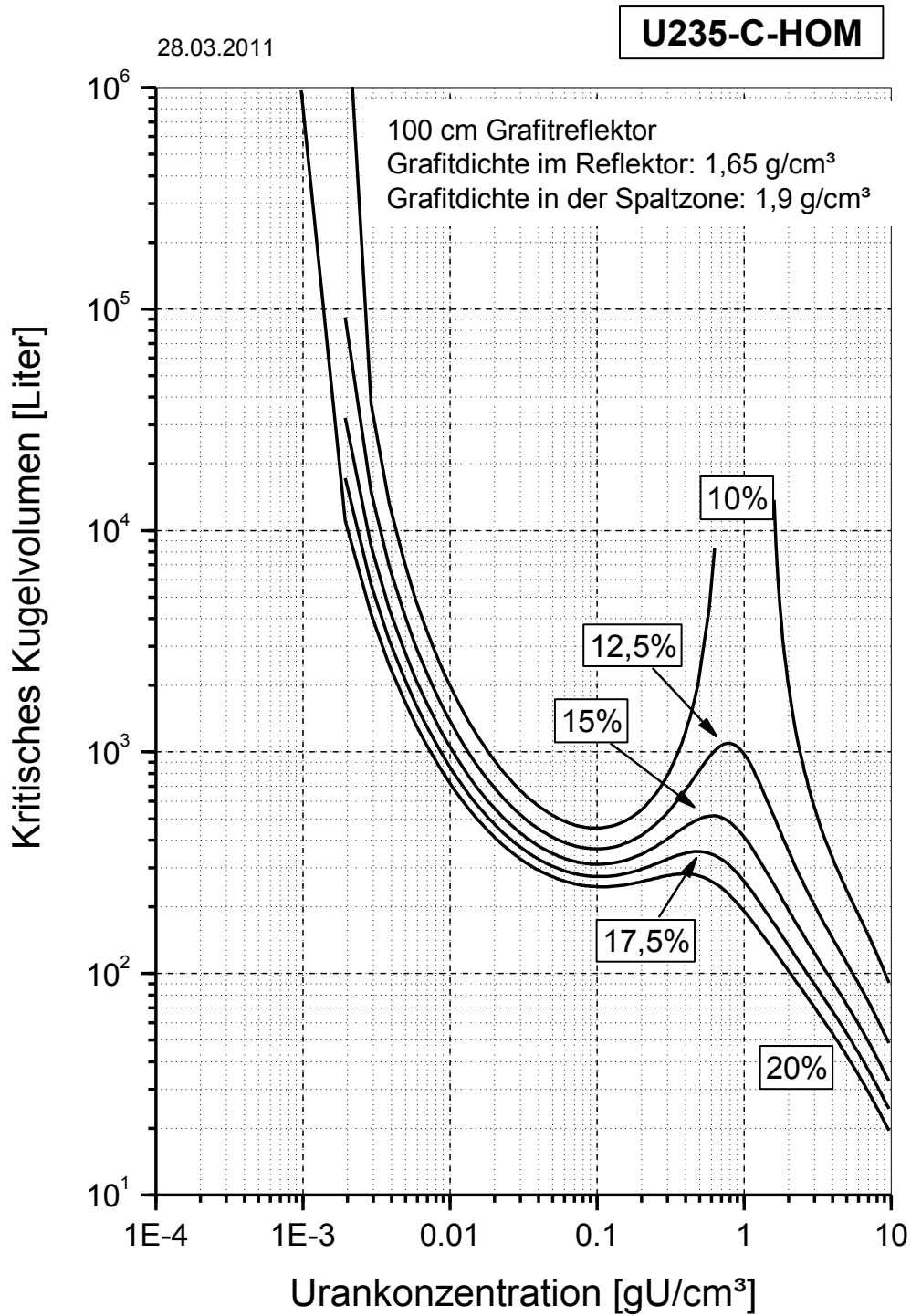


Abb. 3.13 Kritische Kugelvolumina von homogenen Urandioxid-Grafit-Mischungen mit 100 cm Grafitreflektor

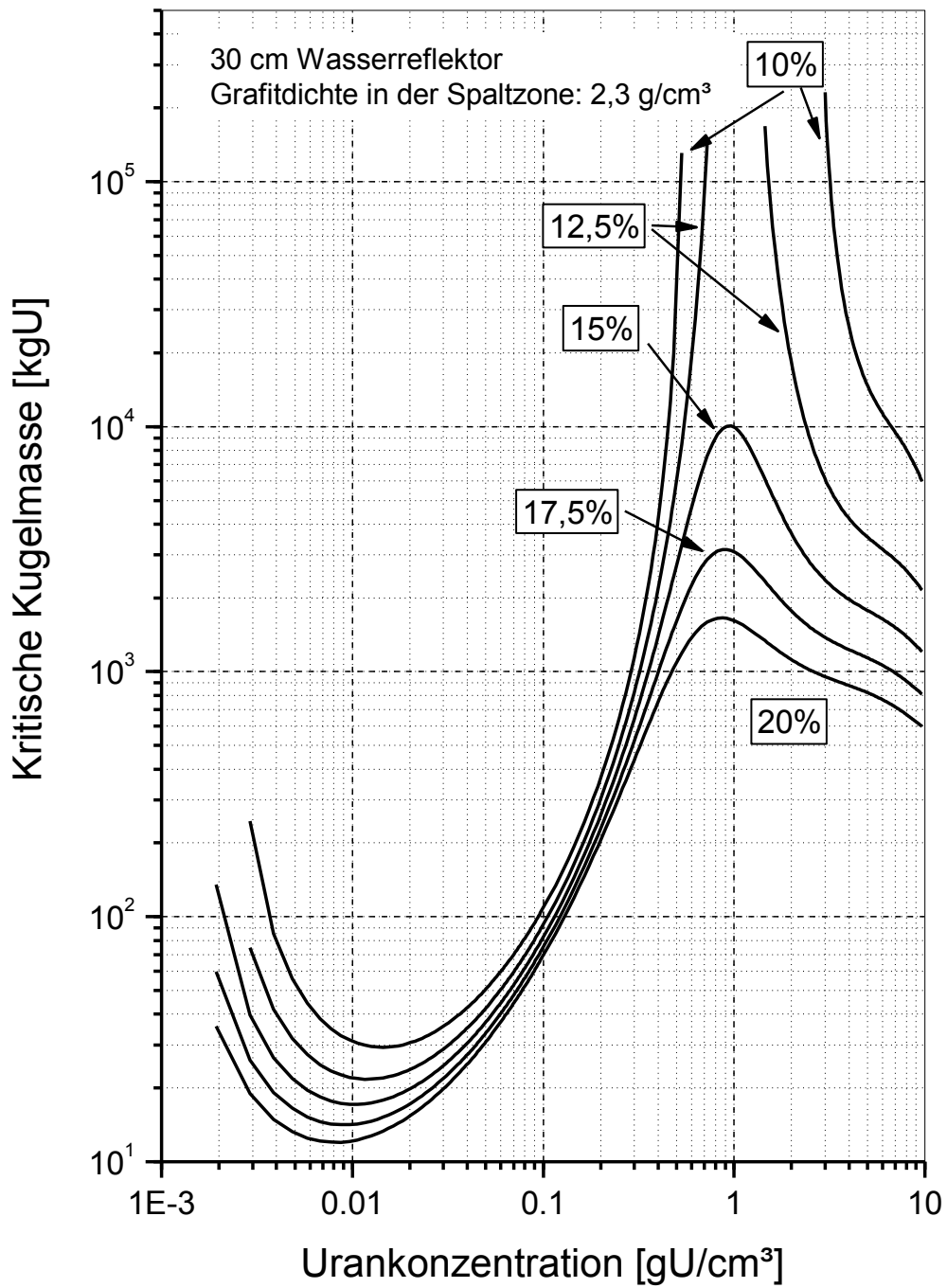


Abb. 3.14 Kritische Kugelmassen von homogenen Urandioxid-Grafit-Mischungen mit 30 cm Wasserreflektor

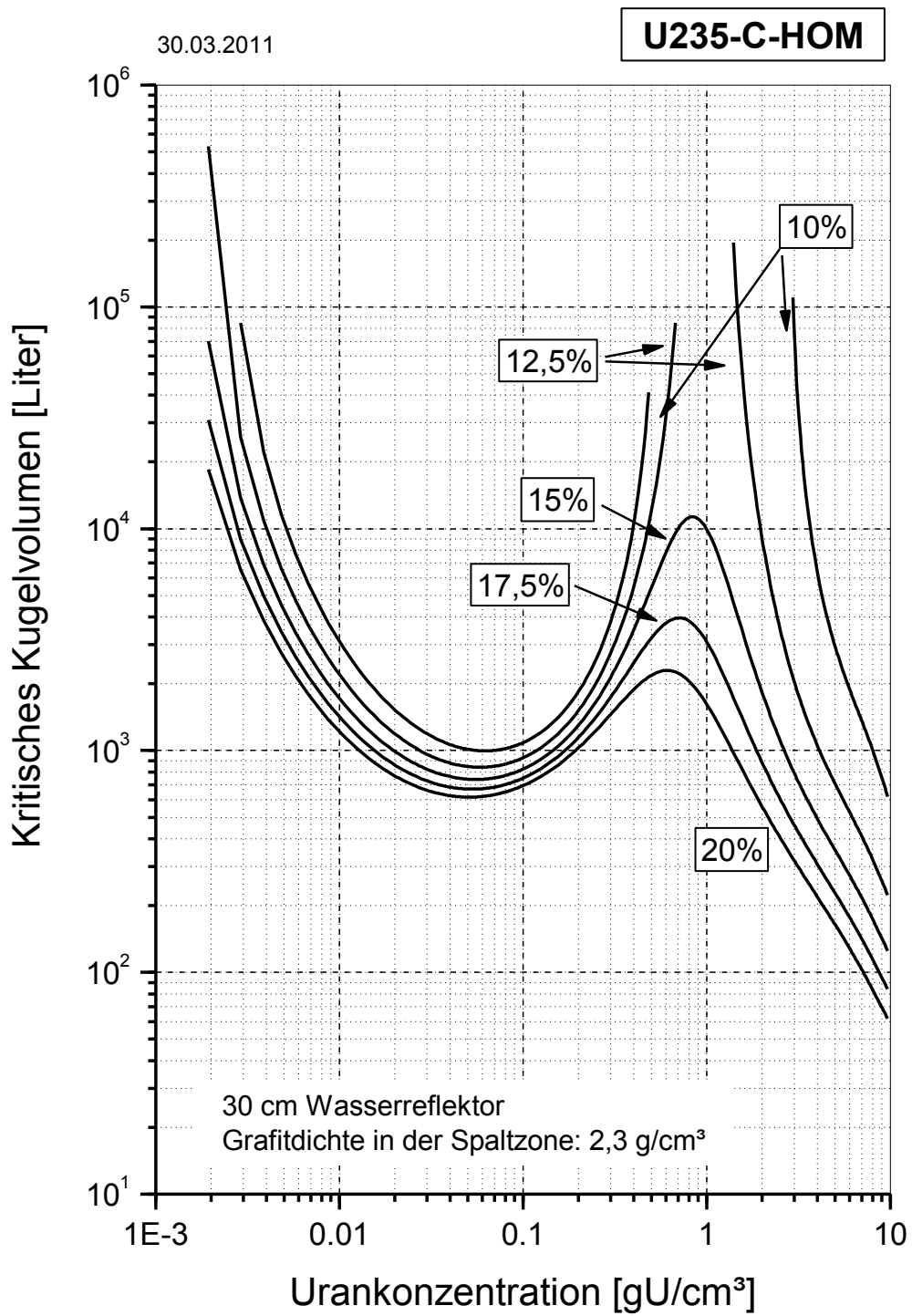


Abb. 3.15 Kritische Kugelvolumina von homogenen Urandioxid-Grafit-Mischungen mit 30 cm Wasserreflektor

Im Falle der Systeme mit Grafitreflektor wurde eine Grafitdichte von $1,65 \text{ g/cm}^3$ in der Reflektorzone und von $1,9 \text{ g/cm}^3$ in der Spaltstoffzone angenommen. Dies entspricht den Annahmen der in der bisherigen Ausgabe des „Handbuchs zur Kritikalität“ enthaltenen kritischen Parameterkurven für dieses System. Dagegen wurde in dem durch Wasser reflektierten System eine Grafitdichte von $2,3 \text{ g/cm}^3$ angenommen. Dieser Wert entspricht der Standardvorgabe des Materialprozessors der SCALE6 Codepakets.

Auffallend sind die lokalen Maxima bzw. Diskontinuitäten der Parameterkurven bei ca. 1 gU/cm^3 in den gezeigten Abbildungen. Sie sind begründet durch den Übergang von einem Bereich, in dem das Neutronenspektrum des Gesamtsystems aufgrund seiner Größe durch den Grafit als Moderator in der Spaltzone dominiert wird. Bei kleiner werdenden Kugelradien (vgl. **Abb. 3.13** und **Abb. 3.15**, kritische Kugelvolumina) wird – auch aufgrund der großen freien Weglänge der Neutronen im Grafit – das Neutronenspektrum zunehmend durch den Reflektor beeinflusst. Zudem erhöht sich die Dichte des Spaltstoffs und wird letztlich so hoch, dass der Anteil an Spaltungen, welche durch epithermische und schnelle anstelle von thermischen Neutronen bewirkt wird, deutlich zunimmt. Dies ist auch durch die deutlich höhere Anreicherung gegenüber den wässrigen Systemen, die in den Kapiteln 3.2 und 3.3 beschrieben sind, bewirkt. In **Tab. 3.5** sind die jeweils kleinsten kritischen Kugelmassen der betrachteten Systeme zusammengefasst. In **Abb. 3.16** sind die Daten aus **Tab. 3.5** grafisch dargestellt.

Tab. 3.6 Kleinste kritische Kugelmassen für homogene Urandioxid–Grafit–Systeme mit 100 cm Grafit- und mit 30 cm Wasserreflektor

Anreicherung / Reflektor	Kugelmasse [kg Uran]
10,0 % / Grafit	18,13
12,5 % / Grafit	13,29
15,0 % / Grafit	10,42
17,5 % / Grafit	8,53
20,0 % / Grafit	7,22
10,0 % / Wasser	29,34
12,5 % / Wasser	21,72
15,0 % / Wasser	17,17
17,5 % / Wasser	14,15
20,0 % / Wasser	12,01

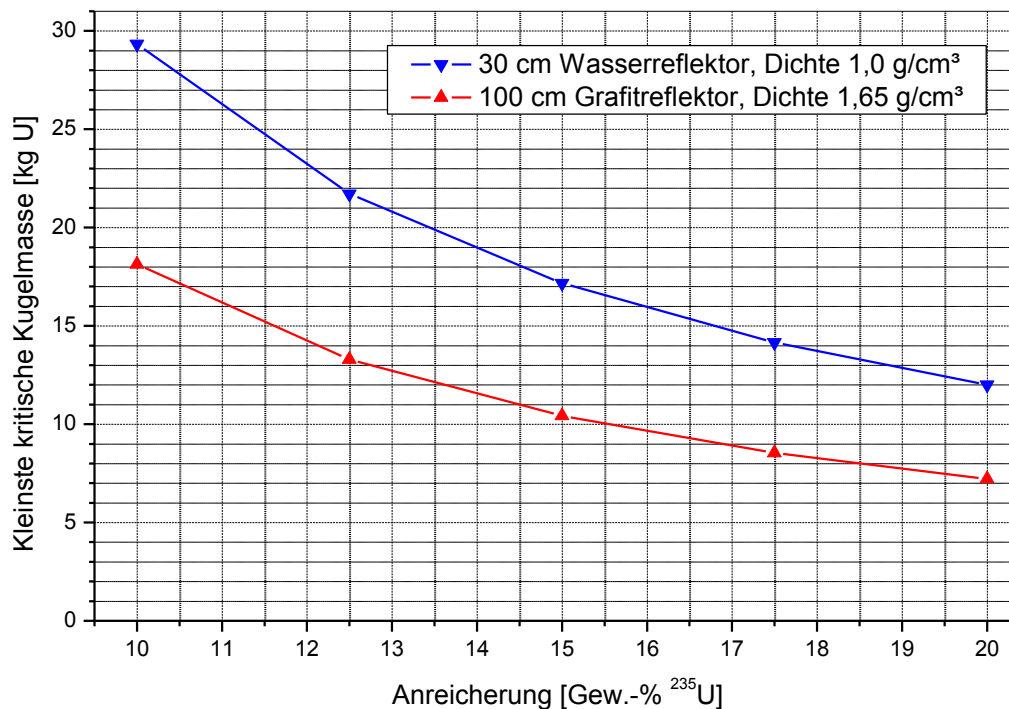


Abb. 3.16 Kleinste kritische Kugelmassen für homogene Urandioxid–Grafit–Systeme mit 100 cm Grafit- und mit 30 cm Wasserreflektor

Man erkennt, dass bei jeweils gleicher Anreicherung der Grafitreflektor zu kleineren Werten für die kleinsten kritischen Massen führt als im Fall des Wasserreflektors. Dies ist durch die um etwa zwei Größenordnungen höhere (parasitäre) Neutronenabsorption des Wasserstoffs (^1H : 0,332 barn bei einer Neutronenenergie $E_N = 0,0253$ eV /MAG 09/) im Wasser gegenüber derjenigen des Kohlenstoffs (^{12}C : 0,0035 barn bei $E_N = 0,0253$ eV /MAG 09/) im Grafit begründet (siehe hierzu auch Kapitel 3.5.2.2).

Eine stringente Validierung dieser Daten wurde nicht durchgeführt, da in der wichtigsten Quelle für kritische Benchmark-Experimente, dem "International Handbook of evaluated Criticality Benchmark Experiments" der OECD/NEA /OEC 09/, nur wenige geeignete Experimente mit Grafit und entsprechender Anreicherung an ^{235}U gefunden wurden. Diese wiederum wiesen eine geometrische Komplexität auf, die eine Modellierung im Rahmen dieses Vorhabens aus zeitlichen Gründen nicht erlaubten.

Stichprobenartig durchgeführte Vergleichsrechnungen zu den Systemen der kleinsten kritischen Kugelmassen mit MCNP5 und ENDF/B-VII.0 Wirkungsquerschnittsdaten zeigten allerdings gegenüber CSAS1 systematisch etwa 0,25 % bis 0,55 % niedrigere

Multiplikationsfaktoren. Die mit CSAS1 berechneten Daten sind also bei diesen Bedingungen, d. h. bei Urankonzentrationen $c_U \approx 0,01 \text{ gU/cm}^3$, gegenüber den mit MCNP5 ermittelten Werten als konservativ anzusehen. Für deutlich über- oder untermoderierte Systeme wurden dagegen mit MCNP5 Stichprobenwerte für k_{eff} berechnet, welche 0,1 % bis 0,2 % über 1,0 liegen, sodass hier die CSAS1-Werte nicht als konservativ anzusehen sind. Wegen den deutlich höheren Absolutwerten der kritischen Massen besitzen diese Systeme jedoch insgesamt eine geringere Bedeutung als diejenigen der kleinsten kritischen Massen bei optimaler Moderation.

3.5 Validierung der Daten für homogene Urandioxid-Wasser-Systeme

Beim Einsatz von Berechnungssystemen zum Nachweis der Kritikalitätssicherheit von Kernbrennstoffanordnungen treten im Allgemeinen Rechenunsicherheiten auf. Diese Unsicherheiten sind zum einen den Berechnungssystemen inhärent, und sie sind zum anderen auf Toleranzen und Varianzen derjenigen Parameter zurückzuführen, welche die neutronenphysikalisch relevanten Merkmale der Kernbrennstoffanordnungen beschreiben, sowie derjenigen Parameter, welche die neutronenphysikalisch relevanten Merkmale der Benchmarkkonfigurationen spezifizieren, die zum Zweck der Validation der Berechnungssysteme mit diesen Systemen analysiert werden /DIN 11/. Da die in dieser Arbeit berechneten kritischen Parameter keine realen technischen Anordnungen repräsentieren sondern Referenzwerte darstellen, sind Parameter wie technische Toleranzen der Modellanordnungen bei der Validierung nicht zu berücksichtigen. Vielmehr sind Zusammensetzungen und Dimensionen vorgegeben und somit wohldefiniert. Unsicherheiten entstehen erst bei der Berechnung des Multiplikationsfaktors mit dem Berechnungssystem, d. h. aufgrund von Näherungen und Schwächen in der Transportrechnung sowie aufgrund der Wirkungsquerschnitte selbst einerseits sowie deren Prozessierung andererseits (vgl. hierzu auch /OEC 06/).

Um diese Fehler abzuschätzen, wurden eine Reihe von unterschiedlichen Berechnungen durchgeführt, um die berechneten kritischen Parameter auf Konsistenz zu prüfen sowie sie zu verifizieren und zu validieren. Dies beinhaltet Sensitivitätsstudien hinsichtlich der Empfindlichkeit des berechneten kritischen Multiplikationsfaktors auf den durch den Code mittels Suchmodus abgeschätzten kritischen Parameter. Weiterhin wurden v. a. bei den jeweiligen kleinsten kritischen Parametern die entsprechenden Multiplikationsfaktoren auch mit anderen, unabhängigen Rechenverfahren überprüft. Weiterhin wurden diese auch mit Referenzwerten aus anderen nationalen und internationalen

Quellen verglichen. Zudem wurde die systematische Abweichung des Berechnungssystems durch Nachrechnung und Analyse kritischer Benchmark-Experimente abgeschätzt. Dazu gehören sowohl klassische Trendanalysen von wichtigen, die Anordnung neutronenphysikalisch charakterisierenden Parametern, als auch modernere Ansätze mittels Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalysen auf Basis der Unsicherheiten in den nuklearen Wirkungsquerschnitten. Dabei ist zu beachten, dass aufgrund der Komplexität der meisten Experimente eine direkte Vergleichbarkeit zu den vergleichsweise trivialen Anordnungen der Referenzparameter oft nicht gegeben ist. Die durchgeführten Analysen sind in den folgenden Unterkapiteln im Detail wiedergegeben.

3.5.1 Vergleichswerte mit anderen Rechenverfahren und -Methoden

3.5.1.1 Parameterstudien mit CSAS1

Die kritischen Parameter wurden mit der Rechensequenz CSAS1 bestimmt, wobei der Code denjenigen Parameterwert, z. B. den Kugelradius, ermittelte, bei dem der Multiplikationsfaktor gerade 1,0 betrug. Um die Sensitivität des Verfahrens zu überprüfen, wurden für die Anreicherungen 3,0, 4,0, 5,0 und 6,0 Gew.-% bei der jeweiligen Konzentration der kleinsten kritischen Masse die Suchläufe wiederholt, jedoch mit von $k_{\text{eff}} = 1,0$ verschiedenen Zielwerten des Multiplikationsfaktors.

Es sei an dieser Stelle daran erinnert, dass CSAS1 im "critical dimension search"-Modus primär den zur k_{eff} -Vorgabe gehörigen (also zumeist $k_{\text{eff}} = 1,0$ und damit den kritischen) Kugelradius berechnet. Die Uran-Kugelmasse berechnet sich daraus zu

$$M_U = C_U \frac{4\pi}{3} r^3$$

mit der Uran-Kugelmasse M_U , der Urankonzentration C_U , und dem von CSAS1 berechneten Kugelradius r . Da letzterer in der dritten Potenz in die Uran-Kugelmasse eingeht, reagiert das Ergebnis für M_U folglich sehr empfindlich auf geringfügige Schwankungen in dem errechneten Kugelradius. In **Abb. 3.17** ist die errechnete Uran-Kugelmasse für einen Bereich von $0,9 < k_{\text{eff}} < 1,1$ grafisch dargestellt. **Abb. 3.18** zeigt den vergrößerten Ausschnitt daraus in einem Bereich von $0,99 < k_{\text{eff}} < 1,01$.

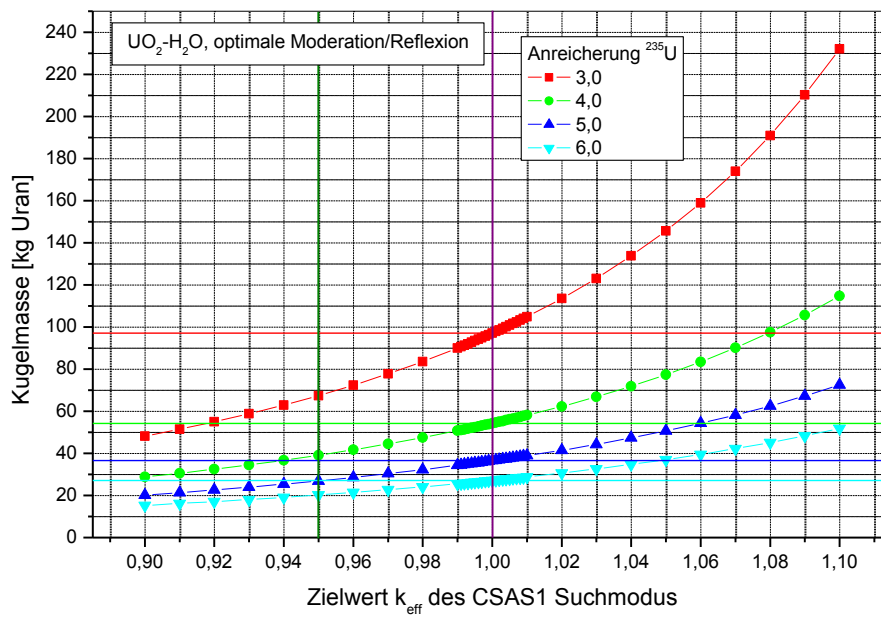


Abb. 3.17 Bei gegebenem k_{eff} -Wert berechnete Uran-Kugelmassen unter optimaler Moderation und Reflexion für 3,0 bis 6,0 Gew.-% Anreicherung ^{235}U

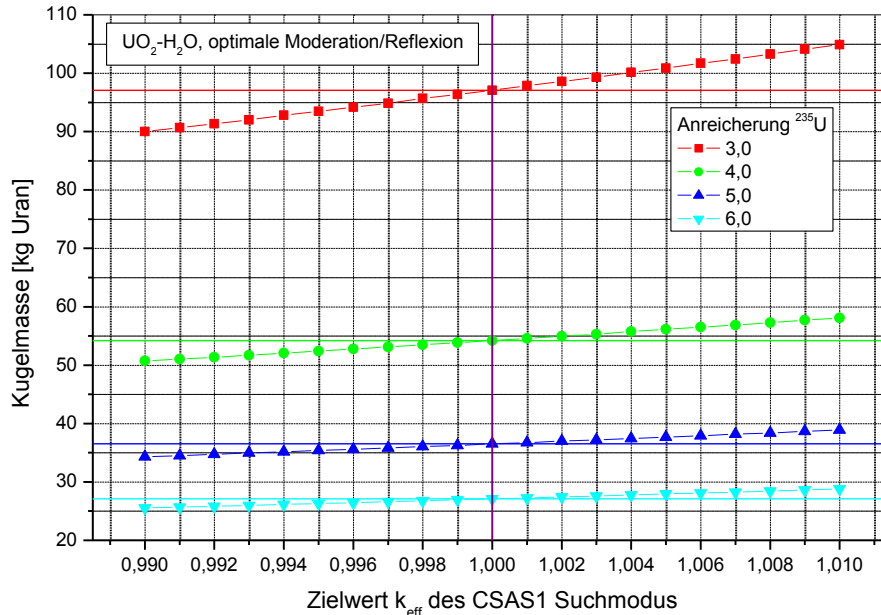


Abb. 3.18 Bei gegebenem k_{eff} -Wert berechnete Uran-Kugelmassen unter optimaler Moderation und Reflexion für 3,0 bis 6,0 Gew.-% Anreicherung ^{235}U (Ausschnitt)

Um die Sensitivität der errechneten Uran-Kugelmasse auf den Zielwert des Multiplikationsfaktors zu quantifizieren, wurde an die vier dargestellten Kurven eine Fitfunktion der Form

$$y(x) = a + b \times x^c$$

angelegt. Hierbei bedeutet y die Uran-Kugelmasse und x den Zielwert des Multiplikationsfaktors. Die Größen a , b und c sind Fitparameter. Über die Ableitung dieser Funktion, nämlich

$$\frac{dy}{dx} = c \times b \times x^{c-1}$$

an der Stelle $x = 1$, also durch das Produkt $c \times b$, erhält man die lokale Steigung der Fitfunktion am kritischen Punkt.

In **Abb. 3.19** bis **Abb. 3.26** sind die Datenpunkte mit den jeweiligen Fitkurven in je zwei Wertebereichen für k_{eff} für die vier betrachteten Anreicherungen aufgetragen. Mit eingezeichnet sind die Werte der Fitparameter, das jeweilige 0,95-Konfidenzlimit, sowie die Residuen der einzelnen Datenpunkte in Bezug auf das Fitergebnis. Die aus den Fitkurven in den jeweils kleineren Intervallen für die Zielwerte von k_{eff} abgeleiteten (gerundeten) Parameter a , b und c sowie die zugehörigen Produkte $c \times b$ sind in **Tab. 3.6** zusammengefasst.

Die Verteilung der Residuen jeder Fitkurve erscheint teilweise willkürlich, so z. B. in **Abb. 3.19**, in anderen Fällen folgt sie offenbar einer gewissen Systematik, so z. B. in **Abb. 3.21**. Dabei dürfte es sich um codebedingte Artefakte handeln. Die genaue Ursache hierfür ist nicht bekannt. Es ist zu vermuten, dass sie in der codeinternen Wahl der numerischen Stützstellen in dem S_N -Verfahren XSDRN begründet liegen, welches der Steuersequenz CSAS1 zugrunde liegt. Diese hängt u. a. von der Spaltmaterialdichte, dem Moderationsverhältnis sowie den geometrischen Ausdehnungen des Systems ab und ist ganzzahlig, also nicht kontinuierlich. Dagegen ist die Ergebnisgröße, d. h. die kritische Dimension kontinuierlich, so dass diese Artefakte vorstellbar erscheinen. Man erkennt auch, dass alle hier aufgeführten Residuen beim Wert $k_{\text{eff}} = 1,0$ betragsmäßig sehr klein sind und zumeist deutlich niedriger als bei den meisten anderen Zielwert-Multiplikationsfaktoren liegen.

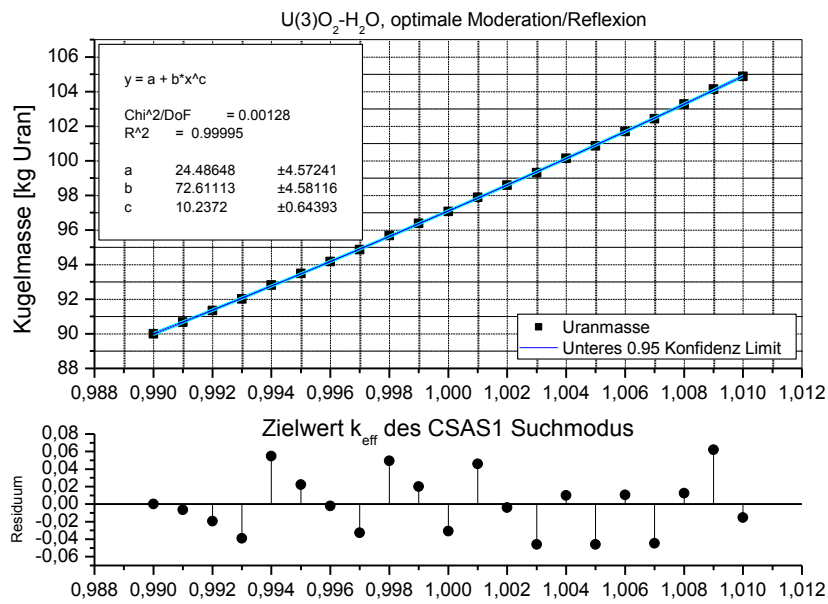


Abb. 3.19 Bei gegebenem k_{eff} -Wert berechnete Uran-Kugelmassen unter optimaler Moderation und Reflexion für 3,0 Gew.-% Anreicherung ²³⁵U (1)

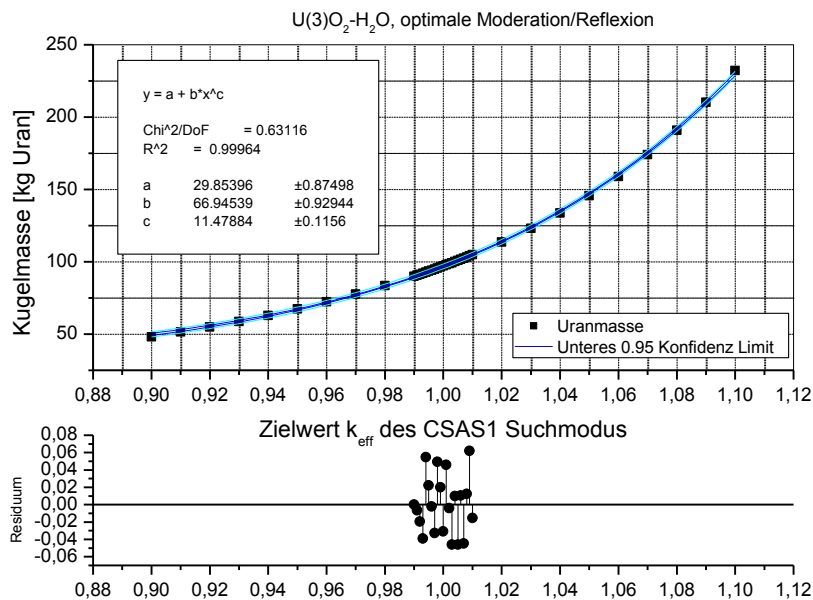


Abb. 3.20 Bei gegebenem k_{eff} -Wert berechnete Uran-Kugelmassen unter optimaler Moderation und Reflexion für 3,0 Gew.-% Anreicherung ²³⁵U (2)

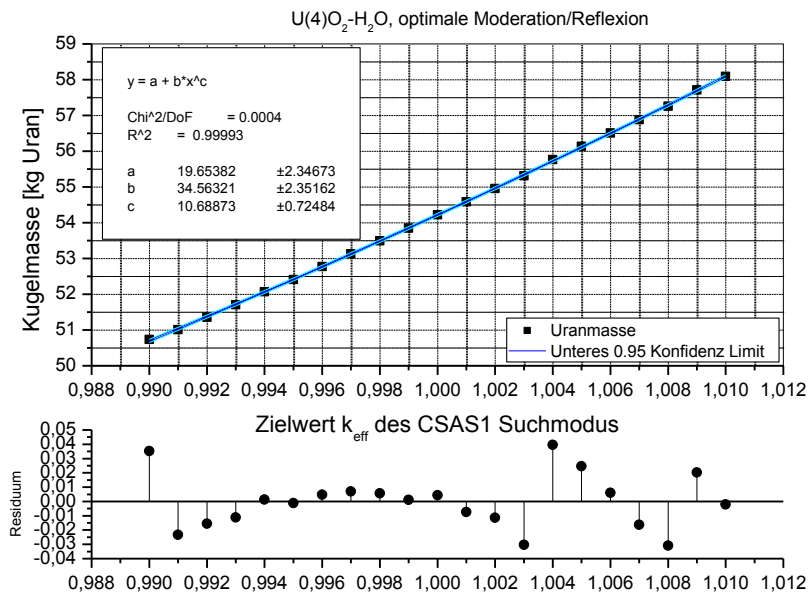


Abb. 3.21 Bei gegebenem k_{eff} -Wert berechnete Uran-Kugelmassen unter optimaler Moderation und Reflexion für 4,0 Gew.-% Anreicherung ²³⁵U (1)

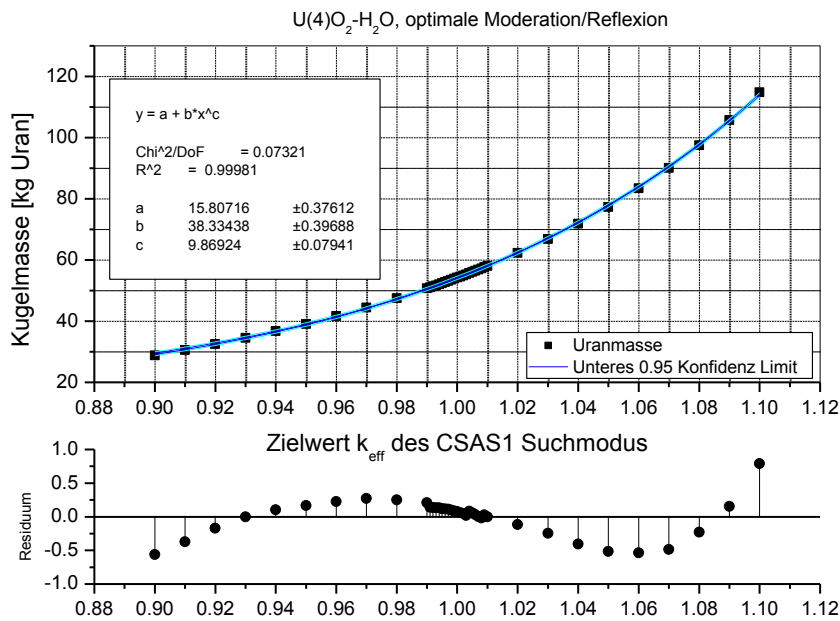


Abb. 3.22 Bei gegebenem k_{eff} -Wert berechnete Uran-Kugelmassen unter optimaler Moderation und Reflexion für 4,0 Gew.-% Anreicherung ²³⁵U (2)

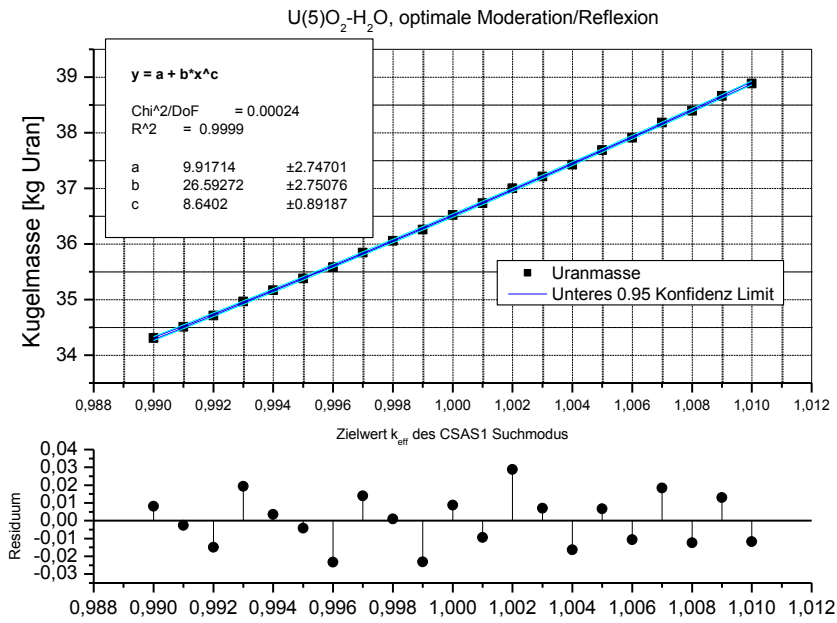


Abb. 3.23 Bei gegebenem k_{eff} -Wert berechnete Uran-Kugelmassen unter optimaler Moderation und Reflexion für 5,0 Gew.-% Anreicherung ²³⁵U (1)

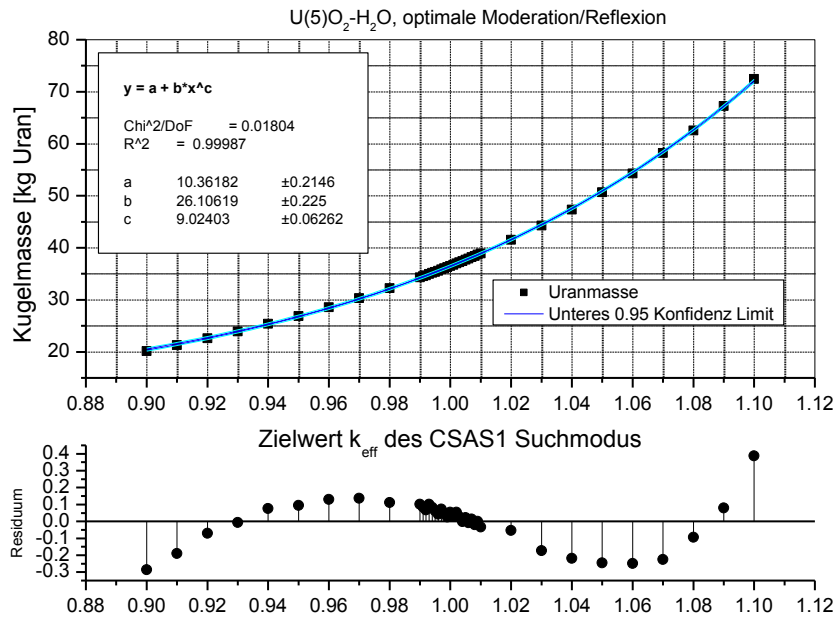


Abb. 3.24 Bei gegebenem k_{eff} -Wert berechnete Uran-Kugelmassen unter optimaler Moderation und Reflexion für 5,0 Gew.-% Anreicherung ²³⁵U (2)

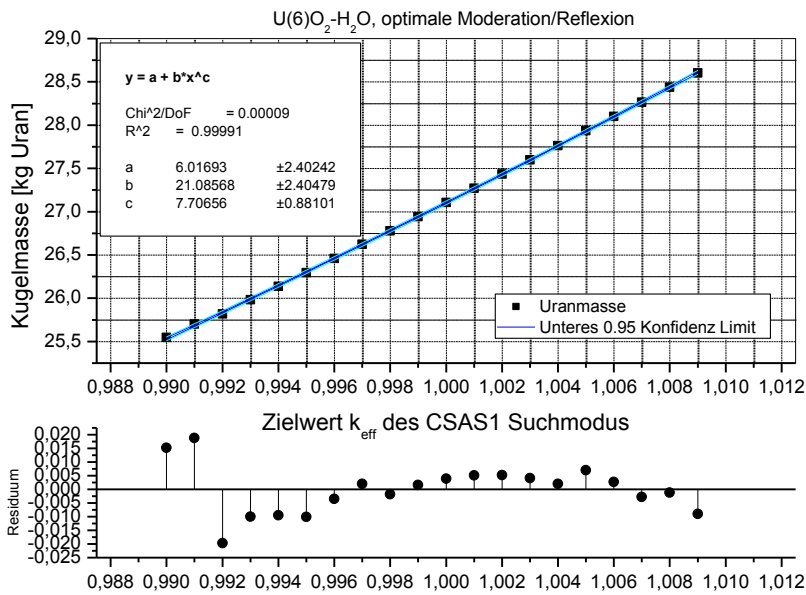


Abb. 3.25 Bei gegebenem k_{eff} -Wert berechnete Uran-Kugelmassen unter optimaler Moderation und Reflexion für 6,0 Gew.-% Anreicherung ²³⁵U (1)

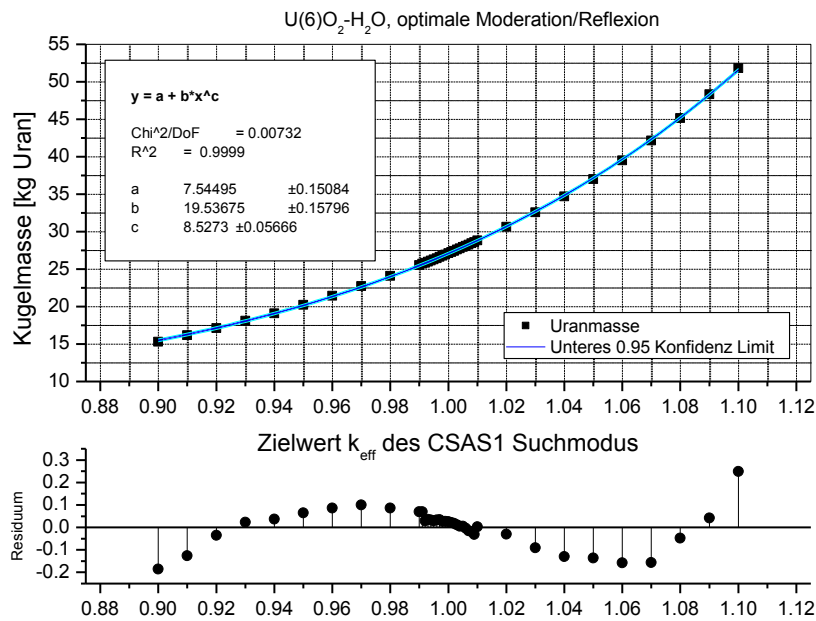


Abb. 3.26 Bei gegebenem k_{eff} -Wert berechnete Uran-Kugelmassen unter optimaler Moderation und Reflexion für 6,0 Gew.-% Anreicherung ²³⁵U (2)

Tab. 3.7 Fitparameter aus den Kurvenfits der Variation der Zielwert-Multiplikationsfaktoren für niedrig angereicherte Urandioxid-Wasser-Systeme bei der Urankonzentration der jeweiligen kleinsten kritischen Uran-Kugelmasse

Anreicherung	Fitparam. <i>a</i>	Fitparam. <i>b</i>	Fitparam. <i>c</i>	Produkt $c \times b$
3,0	24,486	72,611	10,237	743,32
4,0	19,654	34,563	10,688	369,41
5,0	9,917	26,593	8,640	229,76
6,0	6,017	21,086	7,707	162,51

Aus der Tabelle erkennt man anhand des Produkts $c \times b$, dass – wie nach **Abb. 3.17** bzw. **Abb. 3.18** zu erwarten ist – die Sensitivität der errechneten Uran-Kugelmasse für k_{eff} auf den Zielwert des Multiplikationsfaktors mit zunehmender Anreicherung deutlich abnimmt. Bei höher angereichertem und damit reaktiverem Uran bewirkt eine Änderung in der Uran-Kugelmasse einen stärkeren Einfluss auf k_{eff} als die gleiche relative Massenänderung bei niedriger angereichertem Uran. Im Umkehrschluss bedeutet dies, dass die kritischen Parameter für die geringeren Anreicherungen mit einer größeren, rechentechnisch bedingten Unsicherheit verbunden sind als diejenigen für die höheren Anreicherungen.

3.5.1.2 Vergleichsrechnungen mit KENO-V.a und MCNP5

Als Konsistenztest wurde zunächst für das mit CSAS1 bestimmte System der kleinsten kritischen Uran-Kugelmasse bei 5,0 Gew.-% Anreicherung ^{235}U der Multiplikationsfaktor k_{eff} mit alternativen Rechenverfahren und Wirkungsquerschnittsdaten ermittelt. Dazu gehören neben der Sequenz CSAS1 aus SCALE 6 (nun ohne „critical dimension search“ Modus) auch die Sequenz CSAS5 (KENO-V.a) mit ENDF/B-VII.0 Wirkungsquerschnitten in 238 Gruppen sowie in kontinuierlicher Darstellung. Zudem wurde der Monte Carlo Code MCNP5 mit einer Reihe von unterschiedlichen Wirkungsquerschnittsdaten verwendet. Die errechneten Multiplikationsfaktoren sind in **Tab. 3.7** zusammengefasst.

Tab. 3.8 Mit verschiedenen Rechenverfahren ermittelte Werte von k_{eff} für das mit CSAS1 bestimmte System der kleinsten kritischen Uran-Kugelmasse bei 5,0 Gew.-% Anreicherung ^{235}U

Berechnungssystem	$k_{\text{eff}} \pm 1\sigma$
SCALE 6 CSAS1 (XSDRN) v7-238	0,99998 ($\varepsilon = 10^{-5}$)
SCALE 6 CSAS5 (KENO-V.a) v7-238	0,99996 \pm 0,00013
SCALE 6 CSAS5 (KENO-V.a) CE-v7	0,99907 \pm 0,00013
MCNP5 JENDL 3.2	1,00145 \pm 0,00024
MCNP5 ENDF/B-V	1,00026 \pm 0,00047
MCNP5 ENDF/B-VI.2	0,99448 \pm 0,00048
MCNP5 ENDF/B-VI.6	0,99709 \pm 0,00026
MCNP5 ENDF/B-VII.0	0,99848 \pm 0,00025
MCNP5 JEFF 3.1	0,99890 \pm 0,00024

Man erkennt anhand der Tabelle, dass die Werte für k_{eff} , die mittels CSAS1 und CSAS5 bei identischen Wirkungsquerschnittsdaten in hervorragender Übereinstimmung sind. Dies zeigt, dass die entsprechende CSAS5 Rechnung eine gute Referenz für die Validierung der kleinsten kritischen Uran-Kugelmasse bei 5,0 Gew.-% Anreicherung ^{235}U durch Nachrechnung kritischer Benchmarkexperimente darstellt.

Weiterhin zeigt sich, dass sämtliche anderen Vergleichsrechnungen insbesondere mit MCNP5 Werte für k_{eff} nahe bei 1,0 bzw. knapp darunter liefern. Ausnahmen bilden lediglich die beiden Rechnungen mit den vergleichsweise alten Wirkungsquerschnittsdaten aus JENDL 3.2 und ENDF/B-V, die Werte für k_{eff} knapp über 1,0 liefern. Dies kann tendenziell so beurteilt werden, dass die Rechnungen mit CSAS1 dem gegenüber zu konservativen Ergebnissen für k_{eff} und damit auch für die kleinste kritische Uran-Kugelmasse führen. Eine genauere Quantifizierung dieser Konservativität ist mit dieser Methode jedoch nicht möglich.

Zusätzlich wurde mit MCNP5 und kontinuierlichen ENDF/B-VII.0 Wirkungsquerschnittsdaten sowie CSAS5 (KENO-V.a) und ENDF/B-VII.0 in 238 Energiegruppen auch die Multiplikationsfaktoren für die Systeme der kleinsten kritischen Uran-Kugelmassen für die anderen in dieser Arbeit betrachteten Urananreicherungen berechnet. Diese Werte sind zusammen mit einer Standardabweichung aus den Monte Carlo Rechnungen in **Abb. 3.27** grafisch dargestellt.

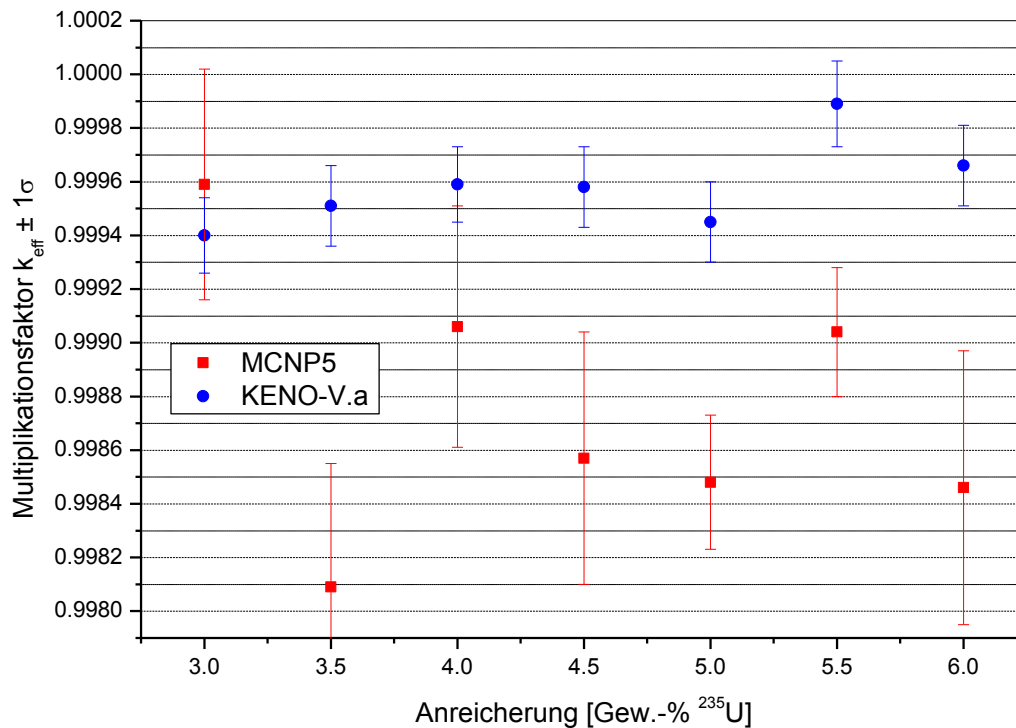


Abb. 3.27 Durch MCNP5 und KENO-V.a mit ENDF/B-VII.0 Wirkungsquerschnitten berechnete Multiplikationsfaktoren für die Systeme kleinster kritischer Uran-Kugelmassen für Anreicherungen von 3,0 bis 6,0 Gew.-% ²³⁵U

Auch hier zeigt sich, dass alle errechneten Werte sowohl mit MCNP5 als auch CSAS5 für k_{eff} geringfügig unterhalb von 1,0 liegen und somit die Rechnungen mit CSAS1 in Vergleich dazu als konservativ anzusehen sind. Die größeren Standardabweichungen bei den MCNP5-Rechnungen ergeben sich aus den unterschiedlich gewählten Parametern zur Neutronenstatistik und sind keine Charakteristika der Rechenverfahren selbst an sich.

3.5.1.3 Vergleich mit kritischen Daten aus anderen Referenzquellen

Neben Vergleichswerten aus eigenen Rechnungen mit unterschiedlichen Codesystemen wurden auch Daten aus einer Reihe von internationalen Referenzquellen für die kleinste kritische Uran-Kugelmasse für homogene Urandioxid-Wasser-Systeme mit 5,0 Gew.-% Anreicherung an ²³⁵U unter voller Wasserreflexion herangezogen. Aufgeführt sind Daten aus Deutschland, USA, Japan, Frankreich, Russland und Großbritan-

nien, sowie ein Mittelwert, der von der OECD/NEA "Expert Group on Minimum Critical Values" (EGMCV) aus den Beiträgen der beteiligten Experten abgeleitet wurde. Diese Referenzwerte beinhalten Ergebnisse, die von verschiedenen Arbeitsgruppen mit unterschiedlichen, zumeist unabhängigen Berechnungssystemen abgeleitet wurden. Die entsprechenden Daten sind zusammen mit den jeweiligen Quellenangaben in der nachfolgenden **Tab. 3.8** zusammengefasst.

Tab. 3.9 Kleinste kritische Uran-Kugelmassen für 5,0 Gew.-% Anreicherung an ²³⁵U aus verschiedenen internationalen Referenzquellen

Quelle	Wert (kg Uran)
„Neuer“ Wert (diese Arbeit)	36,52
GRS "Handbuch zur Kritikalität" /KIL 09/	37,7
DIN 25403 Teil 4 /DIN 95/	36,79
ARH-600 /CAR 83/	≈ 37 ¹
JAERI-Review 95-013 /JAE 95/	36,7
IRSN/CEA 1978 /MAU 78/	35,4 ²
IPPE ABBN93 /DIE 84/, /OEC 06/	36,7
SERCO MONK9A/ICASPA 2011 /PUT 11/	37,5
OECD/NEA EGMCV Durchschnitt /OEC 06/	37,0 ± 1,0

Man erkennt zunächst, dass der in dieser Arbeit abgeleitete „neue“ Wert von 36,52 kgU für die betrachtete Uran-Kugelmasse deutlich unterhalb dem „alten“ Wert von 37,7 kgU liegt, der in der bisherigen Ausgabe des GRS Handbuchs zur Kritikalität aufgeführt ist. Beide Werte liegen jedoch im Bereich der übrigen aufgeführten Werte, und insbesondere innerhalb der von der EGMCV abgeleiteten Bandbreite von 37,0 ± 1,0 kgU. Da der „neue“ Wert niedriger liegt, ist er jedoch als konservativ gegenüber dem „alten“ Wert anzusehen.

Zudem ist der „neue“ Wert in besserer Übereinstimmung mit den Daten aus der zweiten wichtigen Referenzquelle in Deutschland, nämlich der Datensammlung in der Norm DIN 25403 Teil 4, welche 36,79 kgU als kleinste kritische Uran-Kugelmasse für das betrachtete System angibt.

¹ Wert aus einer grafischen Abbildung mit begrenzter Genauigkeit entnommen

² Hier wurden bei der Berechnung 20 cm Wasserreflektor statt 30 cm verwendet.

In **Abb. 3.28** sind abschließend die vorliegenden Ergebnisse für die kleinsten kritischen Uran-Kugelmassen für die Anreicherungen von 3,0 bis 6,0 Gew.-% ^{235}U zusammen mit den entsprechenden Werten aus dem bisherigen GRS Handbuch zur Kritikalität sowie den Werten der EGMCV vergleichend grafisch aufgetragen.

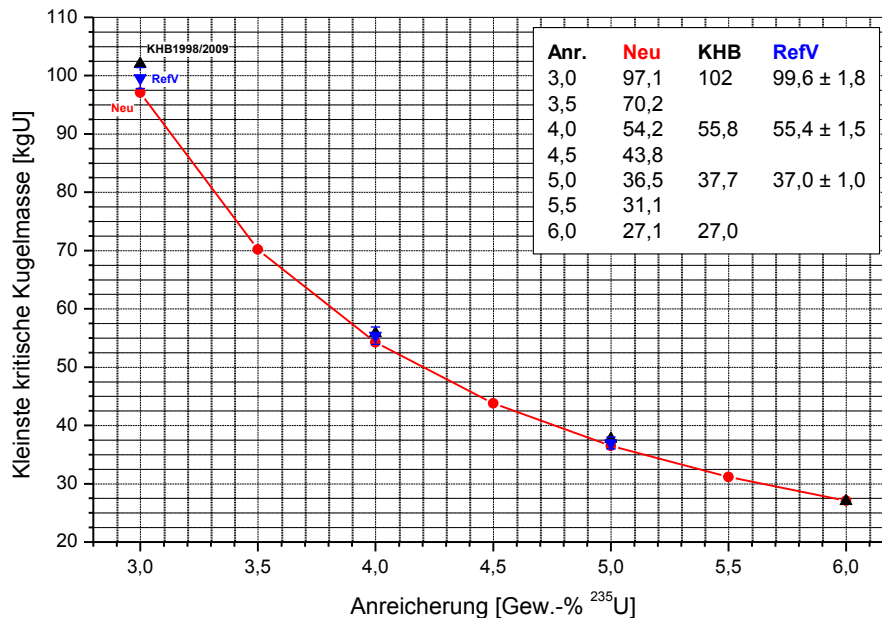


Abb. 3.28 Neuberechnete kleinste kritische Uran-Kugelmassen im Vergleich zum bisherigen GRS Handbuch zur Kritikalität und zu Werten der OECD/NEA EGMCV

Man sieht, dass sich die für 5,0 Gew.-% ^{235}U erkennbaren Tendenzen hinsichtlich der Vergleichbarkeit der jeweiligen Werte auch für 3,0 und 4,0 Gew.-% abzeichnen.

3.5.2 Kritische Benchmark-Experimente

Zur Validierung der Rechenergebnisse wurden 29 Experimente mit insgesamt 230 Einzelkonfigurationen aus dem "International Handbook of evaluated Criticality Benchmark Experiments" /OEC 09/ der OECD/NEA mit der Sequenz CSAS5 (KENO-V.a) modelliert. Die Auswahl der Experimente erfolgte hinsichtlich ihrer neutronenphysikalischen Ähnlichkeit im Vergleich zu den Referenzsystemen. Dazu gehören u. a. die Art des Spaltmaterials, also niedrig angereichertes Urandioxid, sowie das Vorliegen in einer homogenen Verteilung mit ähnlichem Moderationsverhältnis sowie vergleichbaren Re-

flektorbedingungen. Da aber keine Experimente zur Verfügung stehen, welche mit den Referenzsystemen exakt entsprechen, kann nicht für alle einzelnen Randbedingungen eine gute Übereinstimmung der Experimente erreicht werden. Dennoch lassen sich über verschiedene Evaluierungsmethoden belastbare Aussagen ableiten. Aus den mit CSAS5 errechneten Multiplikationsfaktoren der experimentellen Anordnungen und den Abweichungen von k_{eff} vom experimentellen Wert $k_{\text{eff}} = 1,0$ kann durch unterschiedliche Methoden versucht werden, systematische Abweichungen und Fehler des angewendeten Berechnungssystems (Bias) für die Anwendungsfälle unter Betracht abzuleiten. In den folgenden Unterkapiteln werden unterschiedliche Ansätze dazu vorgestellt.

Ein Teil dieser Ergebnisse wurde bei der "International Conference on Nuclear Criticality" (ICNC) in Edinburgh (UK), stattgefunden vom 19. - 22. September 2011, präsentiert und diskutiert /KIL 11/.

3.5.2.1 Klassische Trendanalysen

Systematische Abweichungen in Rechenverfahren können in ihrer Höhe und Unsicherheit variieren in Abhängigkeit von neutronenphysikalischen Kenngrößen, welche das betrachtete System charakterisieren. Um derartige Trends zu erkennen und zu quantifizieren, kann man für die ausgewählten experimentellen Benchmark-Systeme die berechneten Multiplikationsfaktoren über geeignete, maßgebliche physikalische Kenngrößen auftragen und linear fitten. Dabei ist darauf zu achten, dass der Wert des Parameters für den Anwendungsfall innerhalb des Intervalls des entsprechenden Parameters für die Benchmark-Experimente liegt, d. h. dass die systematische Abweichung durch eine Interpolation innerhalb des Wertebereichs der Kenngrößen der Experimente gewonnen werden kann.

Die in dieser Arbeit betrachteten Kenngrößen sind die Anreicherung in Gew.-% ^{235}U , die Moderationsverhältnisse H/U und $H/^{235}\text{U}$, sowie die zur mittleren spaltungsinduzierenden Neutronenlethargie u korrespondierende Neutronenenergie E_N ("energy of average lethargy causing fission") EALF in eV. Der Zusammenhang zwischen der Energie und der Lethargie lautet dabei:

$$u = \ln \frac{E_{\text{ref}}}{E_N}$$

Dabei bedeutet E_{ref} eine willkürliche Referenzneutronenenergie, die üblicherweise zu 10 MeV gewählt wird, siehe z. B. /SCA 09/ Kap. F2.5.26 oder F8.1.4, oder /STA 07/. Diese Energie E_{ref} entspricht gemäß obiger Formel einer Lethargie $u = 0$. Je nach Berechnungssystem kann dieser Wert aber auch vom Code problemspezifisch selbst gewählt werden.

Experimentelle Unsicherheiten sowie bestehende Korrelationen zwischen den Konfigurationen v. a. einzelner Experimentserien wurden in der vorliegenden Untersuchung bei den klassischen Trendanalysen nicht berücksichtigt, leisten aber grundsätzlich einen Beitrag zur Gesamtunsicherheit. Für die betrachteten Anwendungsfälle dürfte dieser jedoch vernachlässigbar sein.

Die für die genannten Kenngrößen durchgeführten Trendanalysen sind in den folgenden Abbildungen grafisch aufgetragen. **Tab. 3.9** fasst die daraus gewonnenen Fitgrößen zusammen.

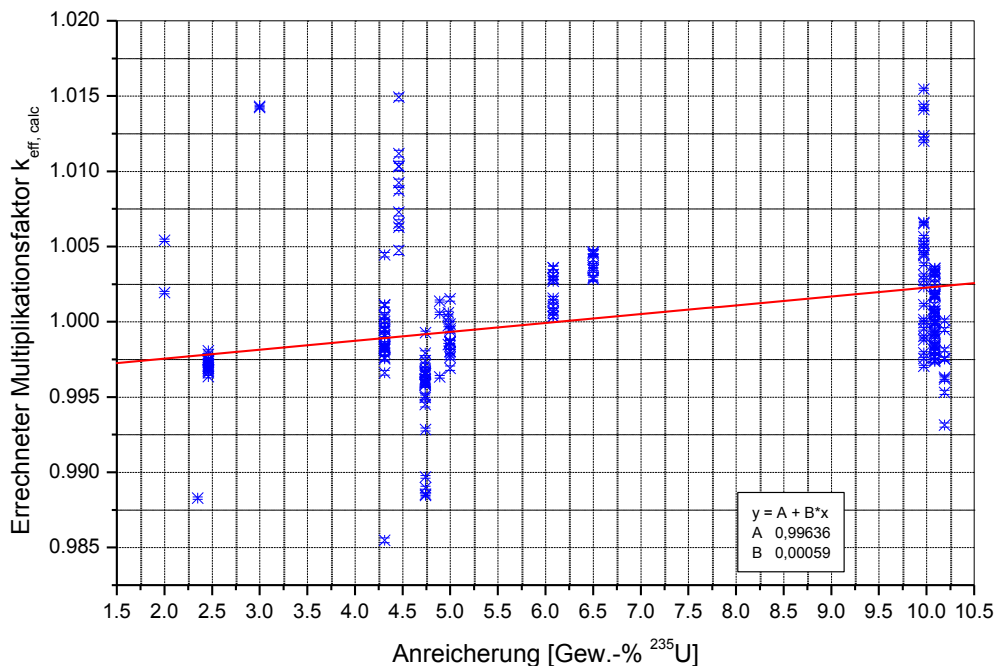


Abb. 3.29 Trendanalyse der für die Benchmark-Experimente errechneten k_{eff} -Werte über der Anreicherung

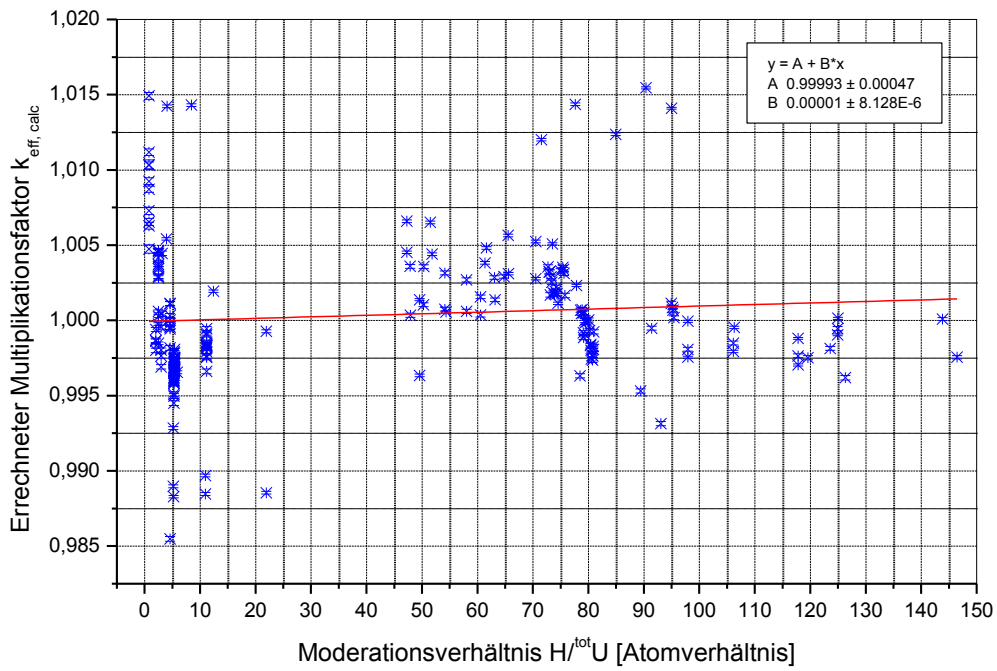


Abb. 3.30 Trendanalyse der für die Benchmark-Experimente errechneten k_{eff} -Werte über dem Moderationsverhältnis $H/t^{\text{tot}}U$

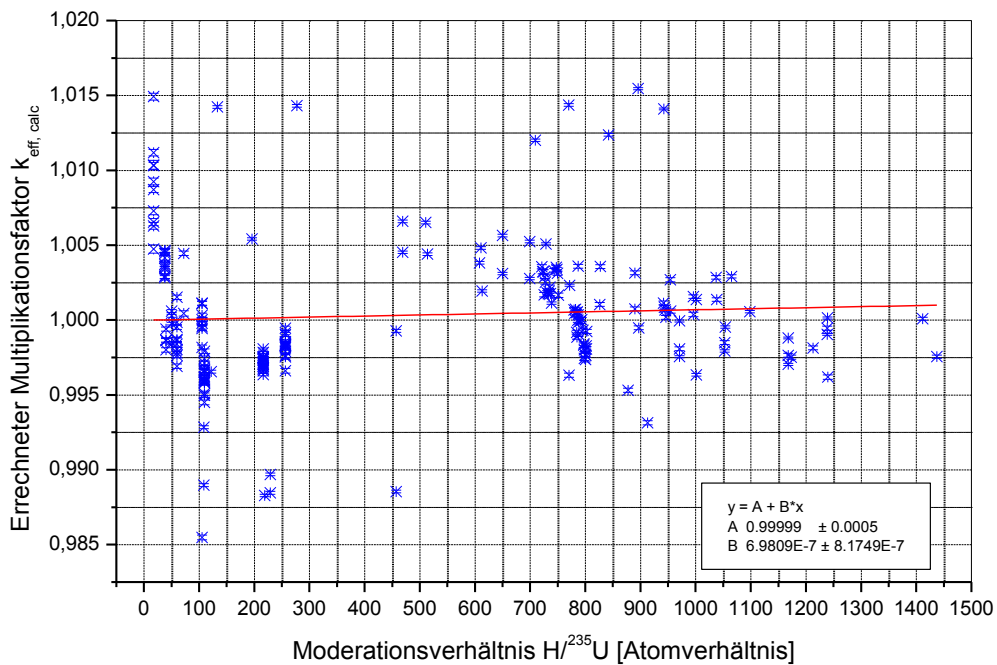


Abb. 3.31 Trendanalyse der für die Benchmark-Experimente errechneten k_{eff} -Werte über dem Moderationsverhältnis $H/^{235}U$

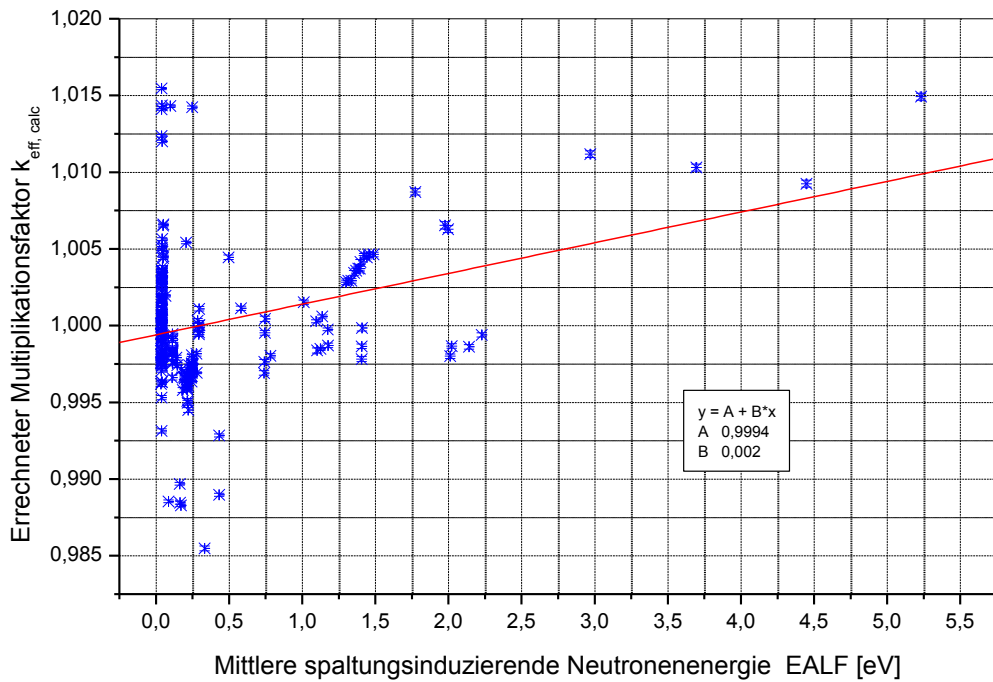


Abb. 3.32 Trendanalyse der für die Benchmark-Experimente errechneten k_{eff} -Werte über der zur mittleren spaltungsinduzierenden Neutronenlethargie korrespondierenden Energie EALF

Tab. 3.10 Zusammenstellung der aus den Trendanalysen resultierenden Trendparameter

Trendgleichung $Y = A + Bx$	Wert bei kkM, 5,0% Anreicherung	Wert bei kkM, 6,0% Anreicherung	Achsenabschnitt A	Geradensteigung B	Linearer Trendwert Y
Anreicherung Gew.-% ^{235}U	5,0	6,0	0,99636	0,00059	5%: 0,9995 6%: 0,9999
Moderations- verhältnis H/totU	24,5656	29,3791	0,99993	$1,0 \times 10^{-5}$	5%: 0,9996 6%: 1,0002
Moderations- verhältnis $H/^{235}\text{U}$	485,418	483,837	0,99999	$6,98 \times 10^{-7}$	5%: 1,0002 6%: 1,0003
EALF eV	0,05183	0,04958	0,99940	0,0020	5%: 0,9995 6%: 0,9995

In den Abbildungen **Abb. 3.29** bis **Abb. 3.32** sowie **Tab. 3.9** sind zwei wesentliche Aspekte dieser Trendanalysen deutlich zu erkennen. Erstens sieht man anhand der Geradensteigungen B der jeweiligen Parameter, dass bei den Moderationsverhältnissen $H^{tot}U$ und $H^{235}U$ kein signifikanter Trend in den Multiplikationsfaktoren k_{eff} erkennbar ist. Dagegen zeigen die Multiplikationsfaktoren einen deutlichen Trend über den Parametern Anreicherung und vor allem der Energie EALF. Es zeigt sich aber auch, dass diese Trends für die in dieser Arbeit betrachteten Anwendungssysteme in keinem bzw. nur einem geringen Bias in k_{eff} resultieren. Bei den Parametern Anreicherung und EALF wird der kritische Wert $k = 1,0$ für 5,0 und 6,0 Gew.-% ^{235}U um jeweils 50 pcm bzw. 10 pcm unterschätzt, so dass sich ein Gesamtbias von 100 pcm für 5,0 Gew.-% bzw. 60 pcm für 6,0 Gew.-% ^{235}U ergibt. Da die unterschiedlichen Parameter für den gewählten Satz an Benchmarkexperimenten nicht völlig unabhängig voneinander sind, werden die zugehörigen positiven Bias-Werte linear und nicht quadratisch addiert. So ergibt sich ein Bias von 0,0016. Addiert bzw. subtrahiert man diesen Wert von $k_{eff} = 1,0$, so erhält man 1,0016 bzw. 0,9984. Wählt man diese Werte als Zielvorgabe für den „critical dimension search“ Modus von CSAS1, so leiten sich daraus Uran-Kugelmassen von 36,89 kgU bzw. 36,15 kgU ab. Dies entspricht einer Schwankung von $\pm 0,37$ kgU bzw. $\pm 1,01$ % gegenüber dem neu berechneten Tabellenwert. Dabei handelt es sich allerdings lediglich um einen besten Schätzwert, der die Unsicherheit aus dem linearen Fit, z. B. in Form eines unteren oder oberen 95 % Konfidentlimits, sowie experimentelle Unsicherheiten noch nicht angemessen berücksichtigt. Dies wird in Kapitel 3.5.2.3 in Zusammenhang mit einer in Kapitel 3.5.2.2 beschriebenen verbesserten Auswahl an geeigneten Benchmark-Experimenten weiter ausgeführt.

3.5.2.2 Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalysen mit TSUNAMI

In jüngerer Zeit kommen zur Unterstützung von Validierungsrechnungen verstärkt Methoden zu Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalysen von spaltstoffhaltigen Systemen zum Einsatz. Der Einsatz der zu diesem Zweck im SCALE-Paket enthaltenen unterschiedlichen TSUNAMI-Steuersequenzen und deren Möglichkeiten wurde bereits in dem Abschlussbericht GRS-A-3532 /KIL 09/ zum Arbeitspunkt „Nukleare Sicherheit“ des Vorläufervorhabens 3606R02536 demonstriert und diskutiert. In der vorliegenden Arbeit kamen die entsprechenden aktualisierten Module TSUNAMI-1D, -3D und -IP /BRO 04/, /REA 11/ mit ENDF/B-VII.0 Wirkungsquerschnitts- und Kovarianzdaten aus SCALE 6 zum Einsatz. Mit dem Stichwort „Sensitivität“ ist im Zusammenhang dieser Arbeit die Änderung von k_{eff} durch eine Änderung in einem problemspezifischen Wir-

kungsquerschnitt für ein Nuklid und eine spezifische Nuklidreaktion in einer Energiegruppe bzw. einem Lethargieintervall zu verstehen. Das Stichwort „Unsicherheit“ bezeichnet äquivalent dazu die Unsicherheit in k_{eff} , die aus einer Unsicherheit in einem problemspezifischen Wirkungsquerschnitt für ein Nuklid und eine spezifische Nuklidreaktion in einer Energiegruppe bzw. einem Lethargieintervall resultiert.

Mittels der Steuersequenz TSUNAMI-1D wurde für das System der kleinsten kritischen Uran-Kugelmasse bei 5,0 Gew.-% ^{235}U Anreicherung die Unsicherheit in k_{eff} aufgrund der Unsicherheiten in den nuklearen Daten berechnet. Dabei wurden in einem Rechenlauf mittels Störungstheorie erster Ordnung die Unsicherheit in k_{eff} , welche sich aus den problemspezifischen nuklearen Daten für alle enthaltenen Nuklide, Nuklidreaktionen und Neutronenenergiegruppen ergeben, berechnet. Die resultierende relative Standardabweichung von k_{eff} ($\% \Delta k/k$) aufgrund der Varianz- und Kovarianzdaten der Wirkungsquerschnitte beträgt für dieses System $\pm 0,6643 \% \Delta k/k$. Die größten Einzelbeiträge zu dieser Unsicherheit liefern für das betrachtete System die Varianzen der problemspezifischen nuklearen Einzeldaten der Reaktionen ^{235}U χ (chi, Spaltspektrum), ^1H elastische Streuung und ^{235}U $\bar{\nu}$ („nubar“). Dies ist die Unsicherheit aus den nuklearen Daten für diese singuläre Einzelrechnung, ohne Validierungsrechnungen anhand geeigneter kritischer Benchmark-Experimente mit demselben Rechensystem und denselben Wirkungsquerschnittsdaten.

Überträgt man die so errechnete integrale Unsicherheit direkt in den CSAS1 “critical dimension search” Modus, d. h. wählt man einen Multiplikationsfaktoren von $k_{\text{eff}} = 0,993357$ bzw. $k_{\text{eff}} = 1,006643$ als Zielwert des Suchmodus, so resultiert daraus eine um ca. $\pm 1,5$ kgU veränderte Uran-Kugelmasse. Dies entspricht einer relativen Schwankung von ca. $\pm 4,11 \%$ gegenüber dem Ergebnis des Suchlaufs für $k_{\text{eff}} = 1,0$ (vgl auch die Parameterstudie Kapitel 3.5.1.1).

In **Abb. 3.33** sind die energieabhängigen Sensitivitätsprofile für die totalen Wirkungsquerschnitte der Nuklide, welche in der Spaltstoffzone des betrachteten Systems vorkommen, über einer logarithmischen Skala grafisch dargestellt, also für ^{235}U , ^{238}U , ^1H und ^{16}O . In **Tab. 3.10** sind die integralen Sensitivitäten in k_{eff} auf die Unsicherheiten in den totalen Wirkungsquerschnitten aller enthaltenen Nuklide aufgelistet.

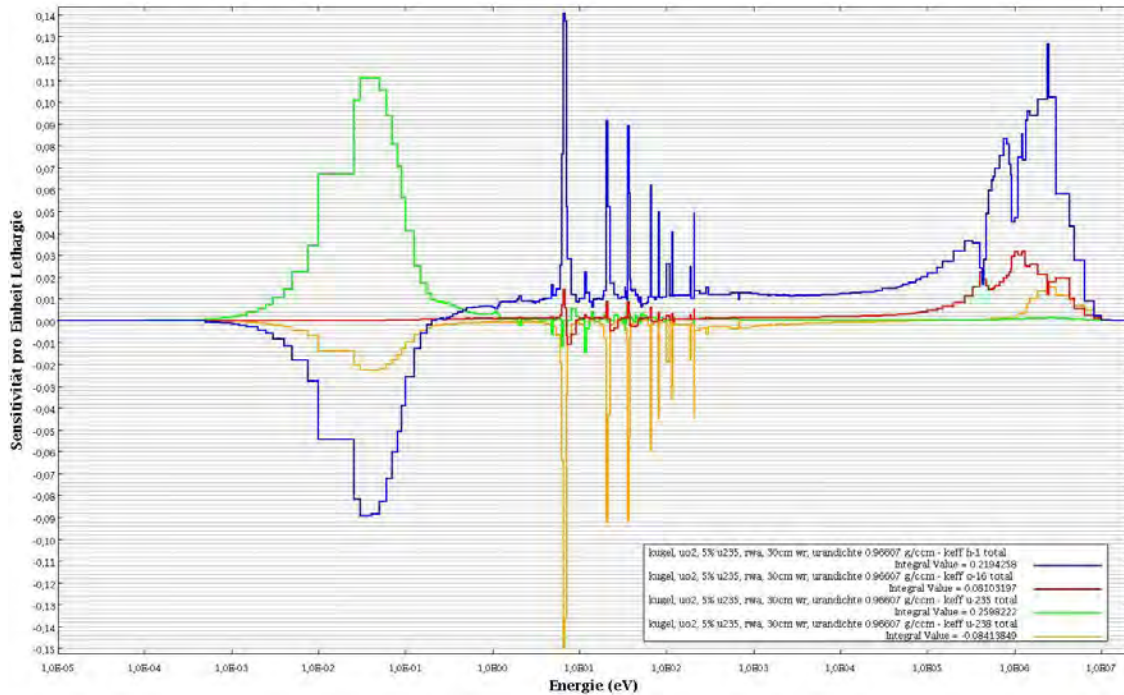


Abb. 3.33 Mit TSUNAMI-1D berechnete nuklidweise Sensitivitätsprofile für das System der wassermoderierten kleinsten kritischen Uran-Kugelmasse bei 5,0 Gew.-% Anreicherung ^{235}U in der Spaltstoffzone

Tab. 3.11 Mit TSUNAMI-1D berechnete integrale Sensitivitäten von k_{eff} auf die Wirkungsquerschnitte der in dem System der wassermoderierten kleinsten kritischen Uran-Kugelmasse bei 5,0 Gew.-% Anreicherung ^{235}U enthaltenen Nuklide

Nuklid	Bereich	Kernzahldichte	Sensitivität
^{235}U	Spaltstoffzone	1,2376E-04	2,5982E-01
^1H	Spaltstoffzone	6,0078E-02	2,2023E-01
^{16}O	Spaltstoffzone	3,4930E-02	5,6483E-02
^{16}O	Reflektor	3,3377E-02	2,4549E-02
^1H	Reflektor	6,6753E-02	-8,0749E-04
^{238}U	Spaltstoffzone	2,3218E-03	-8,4138E-02

Zum Vergleich und der Vollständigkeit halber wurde dieselbe Rechnung auch für das System der kleinsten kritischen Kugelmasse homogener Urandioxid-Grafit-Systeme mit 20 Gew.-% Anreicherung und 100 cm Grafitreflektor (vgl. auch Kapitel 3.4) durchgeführt. Die Daten sind analog in **Abb. 3.34** dargestellt und in **Tab. 3.11** aufgelistet.

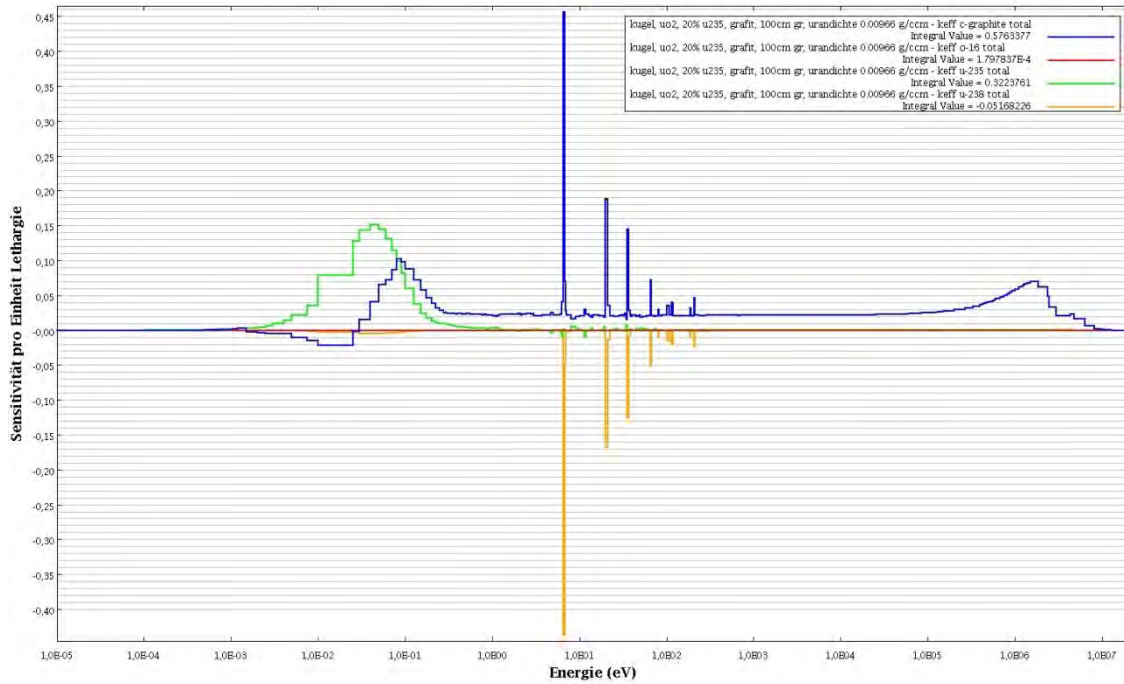


Abb. 3.34 Mit TSUNAMI-1D berechnete nuklidweise Sensitivitätsprofile für das System der grafitmoderierten kleinsten kritischen Uran-Kugelmasse bei 20 Gew.-% Anreicherung ^{235}U in der Spaltstoffzone

Tab. 3.12 Mit TSUNAMI-1D berechnete integrale Sensitivitäten von k_{eff} auf die Wirkungsquerschnitte der in dem System der grafitmoderierten kleinsten kritischen Uran-Kugelmasse bei 20 Gew.-% Anreicherung ^{235}U enthaltenen Nuklide

Nuklid	Bereich	Kernzahldichte	Sensitivität
^{12}C	Spaltstoffzone	9,5247E-02	3,4700E-01
^{235}U	Spaltstoffzone	4,9494E-06	3,2238E-01
^{12}C	Reflektor	8,2797E-02	2,2934E-01
^{16}O	Spaltstoffzone	4,8994E-05	1,7978E-04
^{238}U	Spaltstoffzone	1,9548E-05	-5,1682E-02

Die resultierende relative Standardabweichung von k_{eff} (% $\Delta k/k$) aufgrund der Varianz- und Kovarianzdaten der Wirkungsquerschnitte beträgt für dieses System $\pm 0,6805\%$ $\Delta k/k$. Die größten Einzelbeiträge zu dieser Unsicherheit liefern für das betrachtete System die Varianzen der problemspezifischen nuklearen Einzeldaten der Reaktionen $^{12}\text{C}_{\text{Grafit}}(n,\gamma)$, $^{12}\text{C}_{\text{Grafit}}$ elastische Streuung und ^{235}U .

Die teils deutlichen Unterschiede in den Sensitivitätsprofilen in **Abb. 3.33** und **Abb. 3.34** sind v. a. in zwei wesentlichen Unterschieden zwischen Wasserstoff ^1H und Kohlenstoff ^{12}C als Moderator bedingt. Zum einen ist die Moderationswirkung von ^1H deutlich stärker: Während in Grafit im Mittel 114 Stöße an Kohlenstoffkernen notwendig sind, um ein durch Kernspaltung entstandenes Neutron auf thermische Energie abzu-bremsen, genügen in Wasser bereits 18 Stöße an Wasserstoffkernen [EM 82]. Das bedeutet, dass die Resonanzentkommwahrscheinlichkeit in grafitmoderierten Systemen im Vergleich deutlich geringer ist, und somit die Sensitivität von k_{eff} auf die Resonanzabsorptionslinien von ^{238}U im epithermischen Bereich zwischen 10^1 eV und 10^3 eV sehr scharf zu Tage tritt. Im wasserstoffmoderierten System weisen diese Sensitivitätslinien relativ nur ein Drittel der Höhe bei ^{12}C auf und sind deutlich verbreitert. Auch erhöht sich durch die langsamere Moderation durch ^{12}C die Sensitivität auf die Spaltungsreaktion von ^{235}U , da die Anzahl an Neutronen, die so niedrige Energie aufweisen, dass sie in ^{235}U ohne Spaltung absorbiert werden und eine Umwandlung zu ^{236}U bewirken können, ebenfalls verringert ist. Im Vergleich der beiden Abbildungen ist dies im Energiebereich um 0,025 eV zu erkennen. Zudem ist die thermische Absorption von ^1H selbst deutlich höher als die von ^{12}C (vgl. Kapitel 3.4), was insbesondere in **Abb. 3.33** ebenfalls durch dessen negative Sensitivität in diesem Energiebereich erkennbar ist.

Codeintern liegen diese Sensitivitätsprofile für alle Nuklidreaktionen und für alle Energiegruppen vor. Sie sind charakteristisch für das jeweilige spaltstoffhaltige System. Werden derartige Sensitivitätsprofile für mehrere Systeme berechnet, z. B. für kritische Benchmarkexperimente – alternativ auch mittels TSUNAMI-3D –, so können diese Systeme auf Basis der Unsicherheiten in den problemspezifischen nuklearen Wirkungsquerschnitten hinsichtlich ihrer neutronischen Ähnlichkeit verglichen werden. Im SCALE-Paket wird dies durch das Werkzeug TSUNAMI-IP geleistet. Damit wird u. a. als Maß für die Ähnlichkeit zweier Systeme auf Basis der Unsicherheiten in den problemabhängigen Wirkungsquerschnitten der Parameter c_K berechnet, wobei ein Wert von 1,0 die vollständige Korrelation zweier Systeme, d. h. deren Identität bedeutet, und ein Wert von 0,0 die vollständige Unkorrelation zweier Systeme, d. h. deren vollständige Verschiedenheit bedeutet. Hinsichtlich der Eignung von kritischen Benchmark-Experimenten zur Validierung von Anwendungssystemen – hier der Systeme der kleinsten kritischen Uran-Kugelmassen – geht man davon aus, dass Werte von $c_K > 0,9$ eine gute Eignung des entsprechenden Experiments bedeuten, und Werte von

$0,9 > c_k > 0,8$ eine zumindest bedingte Eignung. Weiterführende Einzelheiten sind z. B. in /BRO 04/ beschrieben.

Um die entsprechende Analyse im Rahmen der vorliegenden Arbeiten durchzuführen, wurden die CSAS5 Modelle der 230 Benchmark-Konfigurationen für den Einsatz mit TSUNAMI-3D erweitert und damit die korrespondierenden Sensitivitätsprofile erzeugt. Der Vergleich dieser Profile mit dem System der kleinsten kritischen Uran-Kugelmasse mit 5,0 Gew.-% Anreicherung mittels TSUNAMI-IP zeigt, dass aus dem Satz der 230 Konfigurationen 123 Fälle mit $c_k > 0,9$ und insgesamt 156 Fälle mit $c_k > 0,8$ enthalten sind.

Wie oben erwähnt bedeutet ein Wert von $c_k = 1,0$ die Identität zweier spaltstoffhaltiger Systeme. Im Satz der Benchmark-Experimente ist keine Konfiguration enthalten, die im Vergleich mit dem Anwendungssystem diesen Wert liefert. Führt man allerdings eine Trendanalyse über c_k für diejenigen Experimente durch, welche aufgrund des Kriteriums $c_k > 0,9$ gut für eine Validierung geeignet sind, so kann man durch Extrapolation auf den Wert $c_k = 1,0$ – also auf den Anwendungsfall – einen Bias auf Basis der Nachrechnung der Benchmark-Experimente abschätzen.

Es ist anzumerken, dass im Sinne einer klassischen Trendanalyse lediglich eine Interpolation auf den Anwendungsfall zulässig ist, was hier methodisch bedingt ausgeschlossen ist. Eine Extrapolation ist typischerweise nur in Ausnahmefällen und mit zusätzlichen Sicherheitsabschlägen zulässig. Allerdings ist diese Art der c_k -Trendanalyse eher als eine Ergänzung denn als Ersatz für klassische Validierungsmethoden anzusehen. Ausführlichere Sensitivitäts- und Unsicherheitsstudien können z. B. dann gewinnbringend zur Abschätzung systematischer Unsicherheiten im Rechenverfahren eingesetzt werden, wenn für einen spezifischen Anwendungsfall keine oder nur sehr wenige gut geeignete Benchmark-Experimente zur Verfügung stehen. Auch eignet sich das Verfahren grundsätzlich zur Auswahl geeigneter Benchmark-Experimente. Im vorliegenden Fall soll v. a. die Methodik als solche demonstriert und auf Konsistenz zu anderen Verfahren überprüft werden.

In **Abb. 3.35** ist diese Trendanalyse für das System der kleinsten kritischen Uran-Kugelmasse mit 5,0 Gew.-% Anreicherung grafisch dargestellt. In dieser Analyse sind die experimentellen Unsicherheiten in der Bestimmung des Multiplikationsfaktors durch TSUNAMI-IP mit berücksichtigt. Mit eingezeichnet ist hier das aus den Unsicherheiten

resultierende untere 95 % Konfidenzlimit $k(c_k) - w(c_k)$ für eine einzelne weitere Rechnung.

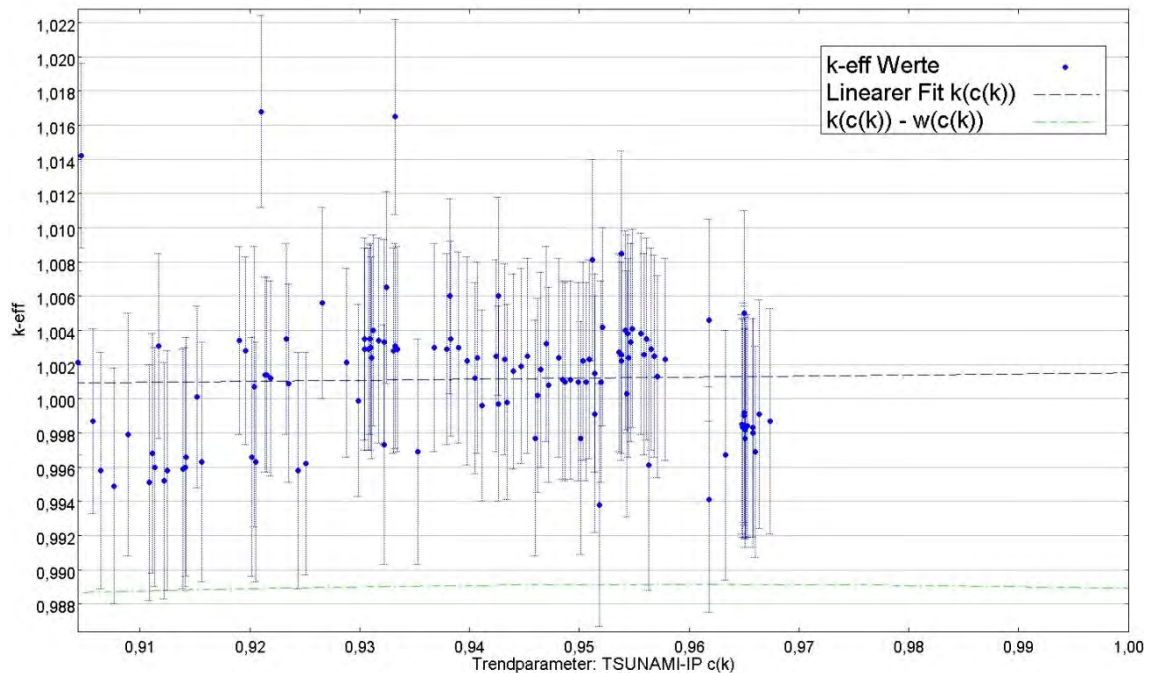


Abb. 3.35 Trendanalyse der für die Benchmarkexperimente errechneten k_{eff} -Werte über den TSUNAMI-IP Parameter c_k in Bezug auf das System der kleinsten kritischen Uran-Kugelmasse bei 5,0 Gew.-% Anreicherung ^{235}U

Man erkennt in der Abbildung, dass der lineare Fit $k(c_k)$ im gesamten Fitintervall oberhalb von 1,0 liegt. Die Extrapolation von $k(c_k)$ auf $c_k = 1,0$ liefert für den Multiplikationsfaktor den Wert $k_{\text{eff}} = 1,00154$. Der Wert für das untere 95 % Konfidenzlimit an dieser Stelle beträgt $k_{\text{eff}} = 0,9889$.

Das bedeutet, dass zwar die systematische Abweichung des Berechnungssystems für den Anwendungsfall positiv ist, jedoch zusammen mit seiner Unsicherheit, resultierend aus Rechengenauigkeit und experimenteller Genauigkeit, einen negativen Wert annimmt. Wählt man den Wert $k_{\text{eff}} = 0,9889$ als Zielwert in den CSAS1 "dimension search modus" für das Anwendungssystem, so errechnet sich daraus eine Uran-Kugelmasse von $M_U = 34,05 \text{ kgU}$, als ca. 1,5 kg weniger als den in **Tab. 3.1** tabellierten Wert. Dies kann man als erste obere Abschätzung für die sichere Uran-Kugelmasse (ohne Berücksichtigung einer möglichen Doppelbeschickung, d. h. ohne Halbierung des Zahlenwerts) betrachten. Der Wert ist in guter Übereinstimmung mit dem bisherigen „Handbuch zur Kritikalität“ /KIL 09/, wo ein Wert von 17,0 kgU als sichere Masse (bei

einer möglichen Doppelbeschickung) angegeben ist, der sich aus Sicherheitsfaktoren³ ableitet – obwohl der dort angegebene Wert der kleinsten kritischen Uran-Kugelmasse von 37,7 kgU von demjenigen dieser Arbeit (36,52 kgU) um 1,2 kgU verschieden ist.

3.5.2.3 Gewichtetes arithmetisches Mittel

Um einen realistischen Bias abzuschätzen, wurde das gewichtete arithmetische Mittel der errechneten Multiplikationsfaktoren derjenigen Experimente gebildet, welche am besten zu den Anwendungssystemen, d. h. der Systeme der kleinsten kritischen Kugelmassen, passen. Dies ist zulässig, da wie in Kapitel 3.5.2.1 beschrieben die Auswahl an Benchmark-Experimenten in dem für das Anwendungssystem relevanten Parameterbereich keine signifikanten Trends aufweist und zudem weiter verfeinert wurde (siehe unten). Dieses Mittel errechnet sich zu

$$\bar{k}_{eff} = \frac{\sum_{i=1}^n w_i \cdot k_{eff,i}}{\sum_{i=1}^n w_i}, \quad w_i = 1/\sigma_i^2.$$

Die Werte σ_i sind hierbei die einfachen Standardabweichungen aus den einzelnen Monte Carlo Rechnungen, während i die einzelnen Benchmark-Fälle mit den zugehörigen berechneten Multiplikationsfaktoren $k_{eff,i}$ bedeuten.

Als Eignungskriterium für die Experimente wurde der TSUNAMI-IP Parameter c_K herangezogen. In dem vorliegenden Satz von insgesamt 230 Benchmark-Experimenten liegen 123 Fälle mit $c_K > 0,9$ und insgesamt 156 Fälle mit $c_K > 0,8$ vor (vgl. Kapitel 3.5.2.2). Im ersten Fall liegt das gewichtete arithmetische Mittel von k_{eff} für diese ausgewählten Experimente bei 1,00157, im zweiten Fall bei 1,00111. In beiden Fällen liegt die zugehörige Varianz dieser Mittel jeweils im Bereich von $2-3 \times 10^{-7}$, die zweifache Standardabweichung liegt also maximal bei etwa $1,1 \times 10^{-3}$. Somit liegen beide Werte des Mittels abzüglich der zweifachen Standardabweichung (2σ) noch über $k_{eff} = 1,0$, d. h. für diese Experimente wird der wirkliche Wert von k_{eff} durch das Berechnungssystem systematisch überschätzt.

³ GRS „Handbuch zur Kritikalität“ / DIN 25403 Teil 4 (10/95) /DIN 95/: Die sichere Masse beträgt 45 % der kleinsten kritischen Masse (Doppelbeschickung möglich) bzw. 80 % der kleinsten kritischen Masse (Doppelbeschickung konstruktiv ausgeschlossen), und gleichzeitig ist erforderlich: $k_{eff} < 0,98$.

Zusätzlich ist die Unsicherheit der experimentell ermittelten Multiplikationsfaktoren zu berücksichtigen. In dem für diese Analyse berücksichtigten Satz an Experimenten ($c_K > 0,9$) liegt diese Unsicherheit im Mittel etwas niedriger als $\pm 0,003$. Da die experimentelle Unsicherheit von der Rechengenauigkeit als unabhängig angenommen werden kann, werden diese beiden quadratisch miteinander addiert, was zu einer Gesamtunsicherheit von $\sigma = 0,0032$ für k_{eff} führt. Bei einer 95 % Konfidenz (2σ) erhält man $k_{\text{eff}} = 1,00157 - 2 \times 0,0032 = 0,99517$ als Limit. Wählt man diesen Wert als Zielwert für den CSAS1 "dimension search modus" für das Anwendungssystem, so errechnet sich daraus eine Uran-Kugelmasse von $M_U = 35,43 \text{ kgU}$, als ca. 1,1 kg weniger als den in **Tab. 3.1** tabellierten Wert. Diesen Wert kann man ebenfalls als obere Abschätzung für die sichere Uran-Kugelmasse (ohne Berücksichtigung einer möglichen Doppelbeschickung) betrachten. Er ist geringfügig höher als der in Kapitel 3.5.2.2 abgeleitete Wert von 34,05 kgU.

3.6 Zusammenfassung und Diskussion

Zur Überprüfung und Aktualisierung von Daten im GRS „Handbuch zur Kritikalität“ wurden kritische Parameter für homogene Urandioxid-Wasser-Systeme mit Anreicherungen bis 6,0 Gew.-% mit einem aktuellen Rechenverfahren neu berechnet.

Zur Ableitung von sicheren Werten aus den kleinsten kritischen Parametern wurden dabei, entsprechend den Angaben im ‚Handbuch‘ sowie in DIN 25403 /DIN 95/, folgende Sicherheitsfaktoren angewendet:

- Sichere Masse (sM) ≤ 45 % der kleinsten kritischen Masse (kkM) und gleichzeitig $k_{\text{eff}} \leq 0,98$;
- Sicheres Volumen (sV) ≤ 80 % des kleinsten kritischen Volumens (kkV) und gleichzeitig $k_{\text{eff}} \leq 0,98$;
- Sichere Dimension (sZD , sSD) ≤ 90 % der kleinsten kritischen Dimension ($kkZD$, $kkSD$) und gleichzeitig $k_{\text{eff}} \leq 0,98$.

Die 45 % im Fall der sicheren Masse gewährleisten, dass auch bei einer eventuellen Doppelbeschickung z. B. eines Transport- oder Aufbewahrungsbehälters ein Sicherheitsfaktor von 90 % der kleinsten kritischen Masse eingehalten wird. In den in dieser Arbeit betrachteten Systemen wurde das zweite Kriterium, $k_{\text{eff}} \leq 0,98$, bei Reduzierung des jeweiligen kleinsten kritischen Parameters um den angegebenen Sicherheitsfaktor

stets erfüllt. In **Tab. 3.12** sind die bisher im Handbuch angegebenen kleinsten kritischen und sicheren Parameter den entsprechenden neu berechneten Werten gegenüber gestellt.

Tab. 3.13 Vergleich der neu berechneten kleinsten kritischen Parameter für homogene Urandoxid-Wasser-Systeme mit den bisherigen Daten im GRS „Handbuch zur Kritikalität“

Anr. % ²³⁵ U	kkM	sM	kkV	sV	kkZD	sZD	kkSD	sSd
2	303	136	129	103	47,6	42,8	25,0	22,4
2 neu	280	126	116,9	93,5	43,1	38,8	23,3	21,0
3	102	45,8	55,3	44,2	33,2	30,0	17,0	15,5
3 neu	97,1	43,7	52,1	41,7	32,2	29,0	16,3	14,6
4	55,8	25,1	36,6	29,3	28,6	25,7	14,0	12,3
4 neu	54,2	24,4	34,9	27,9	27,8	25,0	13,5	12,1
5	37,7	17,0	28,9	23,1	26,1	23,5	12,4	11,0
5 neu	36,5	16,4	27,2	21,7	25,4	22,8	11,9	10,7
6	27,0	12,1	23,1	18,4	23,9	21,5	11,1	10,0
6 neu	27,1	12,2	22,8	18,2	23,8	21,4	10,9	9,8

Es zeigt sich, dass die neu berechneten Werte bis 5,0 Gew.-% Anreicherung gegenüber den bisherigen Daten niedriger liegen, d. h. konservativ sind. Diese früheren Daten basieren auf Wirkungsquerschnitten nach ENDF/B-IV. So ist z. B. die neu berechnete kleinste kritische Masse bei 5,0 Gew.-% ²³⁵U mit 36,5 kgU signifikant niedriger als der bisherige Wert von 37,7 kgU. Allerdings liegen beide Werte, wie bereits in Kapitel 3.5.1.3 angesprochen und in **Tab. 3.8** dargestellt, innerhalb des Rahmens weiterer, international publizierter Referenzquellen und insbesondere im Bereich des Wertes 37,0 ± 1,0 kgU, der von der OECD/NEA EGMCV /OEC 06/ abgeleitet wurde. Da die neu berechneten Parameter im Vergleich zu den alten Daten niedriger liegen, also konservativer sind, wurden deshalb die entsprechenden Parameterkurven im Handbuch durch diese ersetzt. In der ‚Handbuch‘-Tabelle der kleinsten kritischen Parameter wurden dagegen beide Werte aufgeführt und mit einem entsprechenden Kommentar versehen. Bei 6,0 Gew.-% Anreicherung liegen die beiden neu berechneten Massenwerte geringfügig über den bisherigen Daten, welche auf Wirkungsquerschnitten nach ENDF/B-V basieren; es ist dabei bemerkenswert, dass die Werte der Zylinderdurchmesser und Schichtdicken dennoch unterhalb der bisherigen Daten liegen.

Stichprobenartige Vergleichsrechnungen einzelner Punkte auf den neu berechneten Parameterkurven v. a. mit CSAS5 (KENO-V.a) und MCNP5 zeigen eine gute Konsistenz der Rechenergebnisse der Codes untereinander. Auch dies bestätigt die grundsätzliche Gültigkeit der abgeleiteten kritischen Parameter.

Die Validierung der neu berechneten Daten anhand kritischer Benchmark-Experimente auf direktem Weg ist für das eindimensionale Rechenverfahren CSAS1 nicht möglich. Deshalb wurden die Systeme der kleinsten kritischen Uran-Kugelmassen unter Verwendung identischer Wirkungsquerschnittsdaten mit dem dreidimensionalen Monte Carlo Verfahren CSAS5 (KENO-V.a) modelliert. Dieser Code erlaubt die detaillierte Modellierung kritischer Benchmark-Experimente. Da die Multiplikationsfaktoren für die betrachteten Systeme, die mit CSAS1 und CSAS5 errechnet wurden, in sehr guter Übereinstimmung sind (vgl. **Tab. 3.7**), kann eine Validierung von CSAS5 für die kleinsten kritischen Uran-Kugelmassen in guter Näherung auch auf diese speziellen CSAS1-Ergebnisse übertragen werden.

Die neu berechneten kritischen Parameter können als beste Schätzwerte des verwendeten Rechenverfahrens angesehen werden. Die Validierung des Verfahrens anhand von 29 kritischen Benchmark-Experimenten mit insgesamt 230 Einzelkonfigurationen zeigt, dass die Multiplikationsfaktoren vor allem im Moderationsbereich der kleinsten kritischen Uran-Kugelmassen von dem Rechenverfahren systematisch geringfügig überschätzt werden, d. h. dass die zugehörigen kritischen Parameter unterschätzt werden. Das bedeutet, dass die besten Schätzwerte konservativ sind. Berücksichtigt man die Unsicherheit in den systematischen Abweichungen sowie in den experimentellen Daten, so ergibt sich dennoch eine gewisse Wahrscheinlichkeit, dass die errechneten Daten nichtkonservativ sein können. Die auf Basis der Validierung in Kapitel 3.5.2.2 bzw. Kapitel 3.5.2.3 quantitativ abgeschätzten sicheren Werte für die Uran-Kugelmasse liegen mit 17,0 kgU bzw. 17,2 kgU für 5,0 Gew.-% Anreicherung (im Falle möglicher Doppelbeschickung) höher als der Wert 16,4 kgU, der sich aufgrund des pauschalen Sicherheitsfaktors von 45 % aus der neu berechneten kleinsten kritischen Uran-Kugelmasse ergibt. Diese sicheren Werte entsprechen dem bisherigen Wert von 17,0 kgU bzw. liegen sogar über diesem, obwohl die neu ermittelte kleinste kritische Masse dieses Systems mit 36,5 kgU deutlich unterhalb des bisherigen Werts von 37,7 kgU liegt. Die mit dieser Methodik ermittelten Unsicherheiten werden also durch die im „Handbuch zur Kritikalität“ empfohlenen pauschalen Sicherheitsfaktoren konservativ abgedeckt. Aus **Abb. 3.17** ergibt sich, dass dies ebenso durch die üblicherweise

angewendete administrative Sicherheitsmarge erfüllt ist, die durch die Anforderung $k_{\text{eff}} < 0,95$ definiert ist: Dort erkennt man, dass ein Zielwert von 0,95 im CSAS1 „critical dimension search“ Modus für dieses System zu einer Uran-Kugelmasse von etwa 26,9 kgU (Hälfte: 13,45 kgU) führt. Eine stringente Validierung mit modernen Methoden ist also geeignet ist, hohe Konservativitäten zu verringern, die aus pauschalen Sicherheitsfaktoren resultieren.

Ein Teil der Unsicherheiten in dem berechneten Multiplikationsfaktor k_{eff} und damit in den darüber abgeleiteten kritischen Parametern ergibt sich aus den Unsicherheiten in den nuklearen Wirkungsquerschnitten. Betrachtet man z. B. die CSAS1-Rechnung für die kleinste kritische Uran-Kugelmasse bei 5,0 Gew.-% Anreicherung für sich alleine, so ergibt sich nach Kapitel 3.5.2.2 eine Unsicherheit von $\pm 1,5$ kgU alleine aus den nuklearen Daten. Da allerdings bei der Nachrechnung der kritischen Benchmark-Experimente der gleiche Satz an Wirkungsquerschnittsdaten verwendet wurde, kann davon ausgegangen werden, dass die Unsicherheit in den nuklearen Daten in dem aus den Benchmark-Nachrechnungen ermittelten systematischen Abweichungen implizit enthalten ist. Durch die große Anzahl an Experimentnachrechnungen wird die resultierende Unsicherheit entsprechend reduziert.

Weiterhin wurden kritische Parameter für homogene und heterogene Urandioxid-Wasser-Systeme mit dem Absorber Gadolinium neu berechnet, sowie für homogene Urandioxid-Grafit-Systeme. Diese Daten wurden jedoch nicht durch die Nachrechnung von kritischen Benchmark-Experimenten validiert, sondern lediglich durch Konsistenzprüfung auf Basis unabhängiger Stichprobenrechnungen mit MCNP5 verifiziert. Zwar konnte eine gute Konsistenz der Rechenergebnisse nachgewiesen werden; dennoch wird empfohlen, diese Daten bei Verwendung mit geeignet gewählten Sicherheitsfaktoren zu beaufschlagen.

4 Stochastische Analysen zur Kritikalitätssicherheit

4.1 Einführung

Der Einsatz stochastischer Methoden zur Quantifizierung der Unsicherheiten nuklearer Systeme wird dank anwachsender Rechnerleistung immer mehr zum Stand von Wissenschaft und Technik. Dies zeigt sich auch durch den Einzug Monte Carlo basierter Methoden in nationale Normen. In Deutschland trifft dies insbesondere auf die Norm DIN 25478 „Einsatz von Berechnungssystemen beim Nachweis der Kritikalitätssicherheit“ /DIN 94/ zu, die sich derzeit in der Überarbeitung befindet. Ein weiteres Beispiel ist die Norm DIN 25712 „Kritikalitätssicherheit unter Anrechnung des Brennstoffabbrands bei Transport und Lagerung bestrahlter Leichtwasserreaktor-Brennelemente in Behältern“. Auch hierin wird der Einsatz statistischer Methoden zur Analyse zugelassen. Im Arbeitspunkt 2 dieses Vorhabens wurden Methoden entwickelt, die es ermöglichen sollen Unsicherheits- und Sensitivitätsanalysen in Kritikalitätsrechnungen durchzuführen. Das Augenmerk liegt hierbei auf der Variation von technischen Parametern und Fertigungstoleranzen, die als Eingangsparameter die in der Kritikalitätsrechnung betrachteten Modelle bestimmen. Sie sind mit einer Wahrscheinlichkeitsdichteverteilung auf einem bestimmten Bereich definiert. Diese Informationen können z. B. aus Qualitätssicherungsprozessen der Kernbrennstoff-Hersteller stammen. Beim Monte Carlo Sampling Verfahren werden eine Vielzahl unabhängiger Einzelrechnungen durchgeführt, in denen die Eingangsparameter unabhängig voneinander variiert und in das zu untersuchende Modell eingesetzt werden. Es folgt eine statistische Analyse der resultierenden k_{eff} -Werte. Aus dieser Analyse kann die Unsicherheit des betrachteten Systems ermittelt werden, welche sich durch die Unsicherheit in den Eingangsparametern ergibt. Darüberhinaus können auch weitere statistische Größen, wie z. B. eine obere, einseitige 95%/95% Toleranzgrenze bestimmt werden, die sich in den o. g. Normen wiederfinden. Die statistische Analyse liefert jedoch nicht nur Aussagen über die Unsicherheiten des Systems, sondern ermöglicht es auch Sensitivitätsuntersuchungen anzustellen – eine ausreichende Anzahl unabhängiger Einzelrechnungen vorausgesetzt. Die Ergebnisse der Sensitivitätsanalyse erlauben Rückschlüsse dar-

über, welcher Eingangsparameter mit seiner Unsicherheit den größten Einfluss auf die gesamte Unsicherheit des Multiplikationsfaktors des Systems hat.

Mit dem Programm SUSA („Software für Unsicherheits- und Sensitivitätsanalysen“) /HOF 93/ steht in der GRS ein statistisches Verfahren zur Verfügung, das es ermöglicht die unsicheren Eingangsparameter zu variieren und die Auswertung der Rechenergebnisse der Einzelrechnungen durchzuführen. Anwendung fand SUSA bisher insbesondere in Unsicherheitsanalysen mit dem Thermohydraulik-Programm ATHLET, für den SUSA eine vordefinierte Schnittstelle mitliefert. Ziel dieses Arbeitspakets war es, die Ankopplung eines Programmes zur Kritikalitätsberechnung an SUSA bereitzustellen, um Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalysen im Rahmen von Kritikalitätssicherheitsanalysen durchführen zu können. Diese Aufgabe resultierte in dem neuen Werkzeug SUnCISTT („**S**ensitivities and **U**ncertainties in **C**riticality **I**nventory and **S**ource **T**erm **T**ool“), das in den folgenden Kapiteln ausführlich behandelt wird. Dabei werden in Kapitel 4.2 die grundlegenden Ziele der Entwicklung sowie der Ablauf einer Analyse mit SUnCISTT erläutert. In Kapitel 4.3 werden Analysen vorgestellt, die mit SUnCISTT durchgeführt wurden. Deren Resultate werden mit Ergebnissen traditioneller Analysemethoden verglichen und interpretiert. Kapitel 4.4 schließlich fasst den erreichten Stand der Entwicklung zusammen und stellt einen Ausblick auf weitere künftige Arbeiten vor.

4.2 Entwicklung des Werkzeuges SUnCISTT

In diesem Kapitel wird das neu entwickelte Werkzeug SUnCISTT detailliert beschrieben. In Kapitel 4.2.1 wird erläutert, welche Anforderungen an das Programmsystem gestellt wurden und wie diese in der Implementierung umgesetzt wurden. Darüberhinaus werden die weiteren Grundsätze dargestellt, auf die in der Entwicklung im Hinblick auf Modularität und vielfältige Einsatzmöglichkeiten geachtet wurde. Diese sollen dafür Sorge tragen, dass zukünftige Weiterentwicklungen und Anwendungen in anderen Bereichen mit vergleichsweise geringem, zusätzlichem Aufwand ermöglicht werden sollen. Der abstrakte Ablauf einer Analyse mit SUnCISTT wird in Kapitel 4.2.2 skizziert und erläutert. Kapitel 4.2.3 stellt künftiges Potential für weitere Entwicklungen vor.

4.2.1 Entwicklungsziele und Umsetzung

Das übergeordnete Ziel der Entwicklung des SUnCISTT war, ein eigenes, unabhängiges Programmsystem für die Durchführung von Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalysen zu schaffen. Wie das Akronym SUnCISTT, „Sensitivities and Uncertainties in Criticality Inventory and Source Term Tool“, andeutet, wurde in der Entwicklung darauf geachtet, ein vielseitiges Werkzeug zu schaffen, welches auf Grund seines modularen Aufbaus in unterschiedlichen Bereichen zum Einsatz kommen kann. Die Durchführung von Unsicherheitsanalysen in Kritikalitätssicherheitsanalysen stellt eine der ansteuerbaren Möglichkeiten dar und wurde als erste Anwendung im Rahmen dieses Vorhabens entwickelt. SUnCISTT ist ein Werkzeug, das bestehende Programme aneinander koppelt, die für die Aufgabenstellung der Unsicherheitsanalyse relevant sind.

Für die Variation der Eingabeparameter und die spätere statistische Auswertung der Ergebnisse wird das in der GRS entwickelte Programm SUSA eingesetzt. Es ermöglicht die Definition unsicherer Parameter auf bestimmten Intervallen mit zugeordneten Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen. Aus den so definierten Parametern können statistisch unabhängige Stichproben erzeugt werden, die Grundlage für die Erstellung zugehöriger unabhängiger Rechenmodelle sind. Mit diesen Rechenmodellen werden dann Einzelrechnungen durchgeführt, mit denen die Ergebnisgrößen bestimmt werden können. Nach Rückführung der zu untersuchenden Ergebnisgrößen (im betrachteten Fall der Neutronenmultiplikationsfaktor k_{eff}) hält SUSA diverse Funktionalitäten bereit, diese Ergebnisse nach statistischen Gesichtspunkten auszuwerten und sie mit den unsicheren Eingangsgrößen ins Verhältnis zu setzen.

Zur Berechnung von k_{eff} wurde die CSAS5-Sequenz der SCALE-Programmsammlung des Oak Ridge National Laboratory in Version 6 eingesetzt /SCA 09/. Die Transportrechnung wird in der vorliegenden Anwendung über die Steuersequenz CSAS5 mit dem Monte Carlo Kritikalitätsrechensystem KENO-V.a durchgeführt.

Da die Benutzeroberfläche von SUSA auf dem Programm Microsoft Excel aufsetzt, besitzt SUSA bereits einige Fähigkeiten zur Visualisierung von Eingangsparametern und Analyseergebnissen. Diese werden in SUnCISTT um die vielfältigen Möglichkeiten erweitert, die das ROOT-Paket /BRU 96/, welches an der Europäischen Organisation für Kernforschung (CERN) entwickelt wird, bereithält. In einer SUnCISTT-Analyse können neben den Eingangsdaten, deren Umsetzung in der Modellierung des zu analysierenden Systems und den Resultaten der Einzelrechnungen noch beliebige weitere für die

Rechnungen relevanten Werte mit dieser Software abgespeichert, ausgewertet und visualisiert werden. Im Falle der Kritikalitätsanalysen mit der CSAS5-Sequenz handelt es sich dabei z. B. um die erzielte statistische Unsicherheit des k_{eff} -Wertes der Einzelrechnungen oder der Anzahl der berechneten Neutronengenerationen. Diese Informationen können in nachträglichen Auswerteschritten analysiert und visualisiert werden.

Um die einfache Ankopplung unterschiedlicher Rechenprogramme in SUnCISTT zu gewährleisten, wurde mit Python 3 /PYT 11/ eine objekt-orientierte Programmiersprache gewählt. Diese ermöglicht es die Basisfunktionalitäten, die in einer mit SUnCISTT durchgeführten Analyse auftreten, abstrakt zu definieren. Die einzelnen Ausprägungen von SUnCISTT, wie die Kritikalitätssicherheitsanalyse mit CSAS5 eine darstellt, werden dann durch Vererbung der Basis-Steuerungsklasse und durch anwendungsspezifische Re-Implementierung einiger weniger Methoden bewerkstelligt. Als Beispiel sei hier die Verarbeitung der Rechenresultate der Einzelrechnungen in SUnCISTT genannt. Die Basis-Klasse enthält eine Methode *extractSUSAResultsFromResultFile*. Diese Basis-Methode selbst hat keinerlei Funktionalität. In der Re-Implementierung der CSAS5-Ankopplung wurde darin die Abfolge von spezifischen Methoden festgelegt, die benötigt wird, um aus den Ausgabedateien der KENO-V.a-Rechnungen den resultierenden k_{eff} -Wert zu extrahieren und ihn in einer für SUnCISTT aufbereiteten Form zurückzugeben.

Ein weiterer Grund für die Wahl der Programmiersprache Python 3 ist ihre Plattformunabhängigkeit. Wissenschaftliches Rechnen, wozu auch die Durchführung der hier beschriebenen Unsicherheitsanalysen gehört, findet zu einem Großteil auf Rechenclustern statt, deren Betriebssystem auf Unix basiert. Da SUSA wie bereits erwähnt auf Elementen von Excel aufsetzt, sollte der Einsatz des SUnCISTT jedoch ebenfalls unter dem Windows-Betriebssystem möglich sein. Die Plattformunabhängigkeit trägt somit beispielsweise dazu bei, unnötiges manuelles und fehleranfälliges Kopieren von Dateien von Windows-Systemen auf Unix-Systeme und zurück zu vermeiden.

Ein wichtiges Augenmerk der Entwicklung wurde auf eine hohe Flexibilität für Eingriffsmöglichkeiten des Endanwenders gelegt. In der Anwendung treten immer wieder Fälle auf, an denen die in SUSA definierten, unsicheren Parameter noch nachbearbeitet werden müssen, damit sie in der Modellierung berücksichtigt werden können. Als stark vereinfachtes Beispiel sei die Angabe der Unsicherheit der Dicke des Hüllrohres eines Brennstabes erwähnt. Während diese Dicke in SUSA als unsicherer Parameter variiert wird, muss sie in einem KENO-V.a-Modell als Radius bezüglich des Brenn-

stabmittelpunktes spezifiziert werden. Um Umrechnungen dieser Art und beliebige weitere Berechnungen durchführen zu können, die zum Aufstellen des endgültigen Rechenmodelles notwendig sind, können in SUnCISTT vom Anwender definierbare, unabhängige Python-Module in die Rechensequenz eingebracht werden, in denen die zur Berechnung der endgültigen Werte von Parametern notwendigen Methoden realisiert werden.

In diesem Zusammenhang stehen die beiden unterschiedlichen Arten von Parametern, die in SUnCISTT implementiert sind. Die erste Art ist vom Typ *UncertainParameter*. Er stellt die SUnCISTT-Instanz eines in SUSA definierten unsicheren Parameters dar. Da wie im oben erwähnten Beispiel beschrieben die im Kritikalitätsmodell umgesetzte Größe eines solchen Parameters von der in SUSA variierten Größe differieren kann, besitzt dieser Parameter einen *InitialValue* sowie einen *FinalValue*. Im *InitialValue* wird der Wert gespeichert, den SUSA diesem Parameter auf Grund der Variation zuordnet. In der Variablen *FinalValue* wird der letztlich in das Rechenmodell zu übertragende, möglicherweise aus Umrechnungen resultierende Wert gespeichert. Die Speicherung beider Werte ermöglicht es die durchgeführten Berechnungen nachträglich nachzuvollziehen und zu verifizieren. In der Anwendung tritt es häufig auf, dass die Anzahl der Parameter, die benötigt werden um ein Modell vollständig zu beschreiben, größer ist als die Anzahl der in SUSA zu definierenden Parameter. Dies resultiert daraus, dass z. B. in der Modellierung geometrische Größen oftmals voneinander abhängen. Wird innerhalb dieser Abhängigkeitskette ein Parameter variiert, müssen die Werte der anderen Modellgrößen möglicherweise nachgezogen werden, auch wenn ihnen selbst keine Unsicherheit zugeordnet wurde. Es obliegt dem Anwender diese Modellgrößen neu zu berechnen und anzupassen. Hierfür stehen ihm Parameter der zweiten Art, nämlich der Klasse *AdditionalParameter*, zur Verfügung. Dieser Parameter-Typ besitzt Abhängigkeiten von anderen Parametern, deren Werte zur Berechnung seines finalen Wertes beitragen. Diese Abhängigkeiten werden in SUnCISTT automatisiert daraufhin überprüft, ob eine Berechnung durchführbar ist. Sollte diese Bedingung erfüllt sein, so wird die Berechnung des Resultates durch den Aufruf der entsprechenden Methode in dem vom Anwender angegebenen Python-Modul angestoßen.

Zur Berechnung bestimmter finaler Parameterwerte können Zwischenrechnungen notwendig sein, deren Ergebnisse auf die finalen Werte anderer Parameter Einfluss haben können. Um diese Zwischenrechnungen nicht für jeden Parameter neu zu starten, sind in SUnCISTT Möglichkeiten gegeben, die Ergebnisse dieser Zwischenrechnungen ab-

zuspeichern und in der Folge wieder darauf zugreifen zu können. Insgesamt wurden zwei Speichermöglichkeiten geschaffen. Die erste ermöglicht es Ergebnisse von Vorrechnungen abzuspeichern, die für alle zu erstellenden Einzelmodelle Gültigkeit besitzen. Diese Möglichkeit kam in den hier behandelten Kritikalitätsanalysen noch nicht zum Einsatz; sie wurde im Hinblick auf mögliche künftige Erweiterungen des SUnCISTT und auf komplexere Folgeanwendungen abstrakt implementiert. Die zweite Möglichkeit ist für die Ablage von Zwischenergebnissen konzipiert, die lediglich innerhalb eines Samples von Bedeutung sind. Ein Beispiel hierfür ist die Berechnung des Anteils von ^{11}B in Gewichtsprozent aus einer Variablen Isotopenhäufigkeit des ^{10}B . Bei der Umrechnung der Isotopenhäufigkeit von ^{10}B in Gewichtsprozent kann das korrespondierende Ergebnis für ^{11}B gleichzeitig berechnet werden. Es wird im Speicher abgelegt und der finale Wert der selbst nicht als unsicheren Parameter definierten Isotopenhäufigkeit ^{11}B kann bei Bedarf wieder direkt aus dem Speicher ausgelesen werden. Eine erneute Nebenrechnung ist somit nicht erforderlich.

Ein weiteres Ziel der Entwicklung ist, den Code nicht nur anhand seiner Ergebnisse zu validieren, sondern ihn selbst mit einem hohen Qualitätsstandard zu versehen. Hierfür werden mehrere Maßnahmen zur Qualitätssicherung des SUnCISTT Quellcodes durchgeführt. Der Code wird mittels eines Subversion Versionskontrollsystems verwaltet /SUB 11/. Neuentwicklungen und Veränderungen an bestehenden Quellcode-Zeilen werden hierin registriert und nachverfolgt.

Darüberhinaus wird der Quellcode umfassend dokumentiert. Hierfür werden die in Python integrierten sogenannten *docstrings* benutzt. Mit ihnen können Module, Klassen, Methoden und Variablen einfach dokumentiert werden. Python selbst bietet viele Möglichkeiten an, mit denen diese *docstrings* ausgelesen und verarbeitet werden können. Um die im Quellcode hinterlegte Dokumentation auch außerhalb von Python verfügbar zu machen, wird zusätzlich das Quellcode Dokumentationswerkzeug Doxygen eingesetzt /DOX 11/. Es liest die Dokumentationen der einzelnen Komponenten aus und bereitet sie auf. Beispielsweise werden Vererbungsdiagramme oder Übersichtstabellen über definierte Klassen erstellt. Aktuell wird von der Möglichkeit Gebrauch gemacht, sich die Doxygen-Ergebnisse im HTML-Format erzeugen zu lassen, das in einem Browser angezeigt werden kann.

4.2.2 Ablauf einer Analyse mit SUnCISTT

In diesem Kapitel werden die verschiedenen Schritte vorgestellt, die bei der Durchführung einer Analyse mit SUnCISTT aufeinander folgen. Dabei werden die Zusammenhänge mit den in Kapitel 4.2.1 diskutierten Entwicklungszielen verdeutlicht. Eine schematische Darstellung eines Analyseablaufs ist in **Abb. 4.1** wiedergegeben.

Die Vorbereitungen zur Unsicherheitsanalyse beginnen mit der Definition der unsicheren Parameter in SUSA. Hierfür wird in SUSA eine zu der Analyse gehörende, sogenannte *Application* erzeugt, in der die entsprechenden Parameter mit ihren Nominalwerten, Definitionsintervallen und den zu Grunde liegenden Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen abgelegt werden. Das genaue Vorgehen in den Analyse-Schritten, die in SUSA selbst durchgeführt werden, kann in /KLO 09/ nachvollzogen werden. Sind die Parameter vollständig definiert, kann die Anzahl der zu erzeugenden, unabhängigen Samples bestimmt werden. Daraufhin erstellt SUSA für jedes Sample einen Satz von Eingangsparametern, in der jedem Parameter ein gemäß seiner Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion variiertes Wert zugewiesen wird. Die Parametersätze der einzelnen Samples werden hintereinander in einem ASCII-Dokument abgespeichert. Diese Datei, in **Abb. 4.1** als *Samples* bezeichnet, stellt das Bindeglied zwischen SUSA und SUnCISTT dar. Sie ist eine der Eingabedateien, die für den ersten Analysemodus in SUnCISTT benötigt werden.

Insgesamt besitzt SUnCISTT drei Modi, welche die unterschiedlichen Aufgaben, die im Rahmen einer Unsicherheitsanalyse vorkommen, koordinieren und steuern. Sind die drei SUnCISTT-Schritte erfolgreich absolviert worden, wurde am Ende eine Ergebnisdatei erzeugt, die in **Abb. 4.1** mit *Results* bezeichnet dargestellt ist. Dabei handelt es sich wiederum um eine Textdatei. Darin befindet sich eine Tabelle mit den erzielten Ergebnissen der Einzelrechnungen, also beispielsweise den k_{eff} -Werten der CSAS5-Sequenz. SUSA bietet die Funktionalität an, diese Datei in eine Binärdatei umzuwandeln. Diese Binärdatei bildet im weiteren Verlauf die Grundlage für die nachfolgenden statistischen Auswertungen in SUSA, deren Ergebnisse die gesuchten Größen der Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalysen sind.

Nach diesem Überblick über die Schnittstellen zwischen SUSA und SUnCISTT sollen in den nachfolgenden Unterkapiteln die drei SUnCISTT-Modi nacheinander vorgestellt und die in ihnen durchgeführten Aufgaben näher erläutert werden.

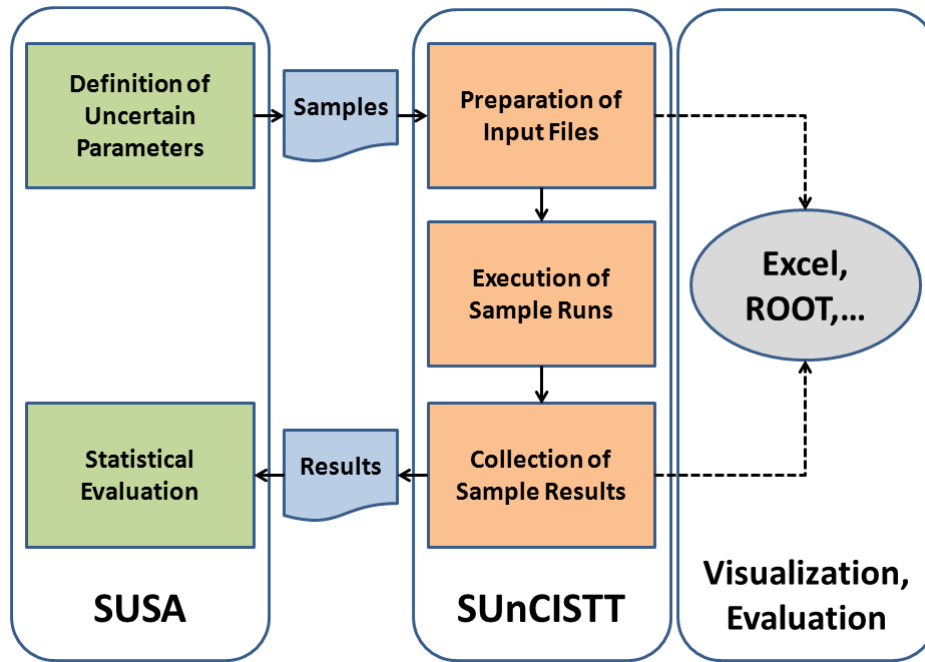


Abb. 4.1 Ablaufschema einer Unsicherheitsanalyse mit SUSA und SUnCISTT.

Modus „prepareSamples“

Die Aufgabe dieses Modus ist in der hier beschriebenen Implementierung des SUnCISTT, gültige Eingabedateien für die CSAS5-Sequenz von SCALE zu erzeugen, in denen die mit Unsicherheiten behafteten Parameter entsprechend der Vorgaben aus SUSA variiert sind. Einen grafischen Überblick über die dafür benötigten Eingabedateien sowie die nach der Ausführung dieses Modus resultierenden Dateien, ist in **Abb. 4.2** dargestellt.

Drei Eingabedateien werden in diesem Schritt benötigt. Eine Datei ist die bereits erwähnte Textdatei, in der für jedes Sample die in SUSA variierten Eingangsparameter stehen. Sie wird in der zur Analyse gehörenden SUSA-*Application* nach der Variation der unsicheren Parameter erstellt. Eine weitere Eingabedatei ist die Template-Datei, aus der durch Einfügen der neuen Werte der Eingangsparameter eine gültige Eingabedatei für die nachfolgende Berechnung entsteht, hier also ein Template für eine CSAS5-Eingabedatei. Sie wird erstellt, indem man den Nominalfall der Aufgabenstellung modelliert und die Stellen, an denen Werte zu variierender Größen stehen, durch Platzhalter ersetzt. Während der Modellerstellung des Nominalfalles wird identifiziert, welche Umrechnungen der unsicheren Parameter notwendig sind, um sie in den Einheiten und der Darstellung vorliegen zu haben, die von den eingesetzten Rechenme-

thoden akzeptiert werden. Außerdem wird hier bestimmt, welche zusätzlichen, in SUnCISTT neu anzulegenden Hilfsparameter notwendig sind, um das Modell nach der Variation der unsicheren Parameter vollständig beschreiben zu können. Das für die Berechnung dieser Parameter vom Anwender zu programmierende, analysespezifische Python-Modul (vgl. Kapitel 4.2.1) ist in **Abb. 4.2** nicht separat aufgeführt.

Die dritte Eingabedatei fungiert als Bindeglied zwischen den beiden anderen Eingabedateien. In ihr werden die Verknüpfungen definiert, die die stochastisch ermittelten Werte aus SUSA den Platzhaltern im Rechenmodell zuordnen. In dieser Datei werden zudem die zusätzlich notwendigen Hilfsparameter definiert. Dazu gehört die Angabe der Abhängigkeiten von den anderen Parametern, sowie die Spezifikation des Python-Moduls, in dem die Methode hinterlegt ist, mit dessen Hilfe der Wert dieses Parameters berechnet werden kann. Auch für diese zusätzlichen Hilfsparameter werden in dieser Eingabedatei die Platzhalter eingetragen, anhand derer später die Ersetzung in der Template-Datei des Rechenmodells stattfindet. Diese Datei ist vom Anwender anzulegen. Im Sinne des Entwicklungsziels möglichst hoher Flexibilität wurde hierzu das Dateiformat JSON /JSO 11/ verwendet.

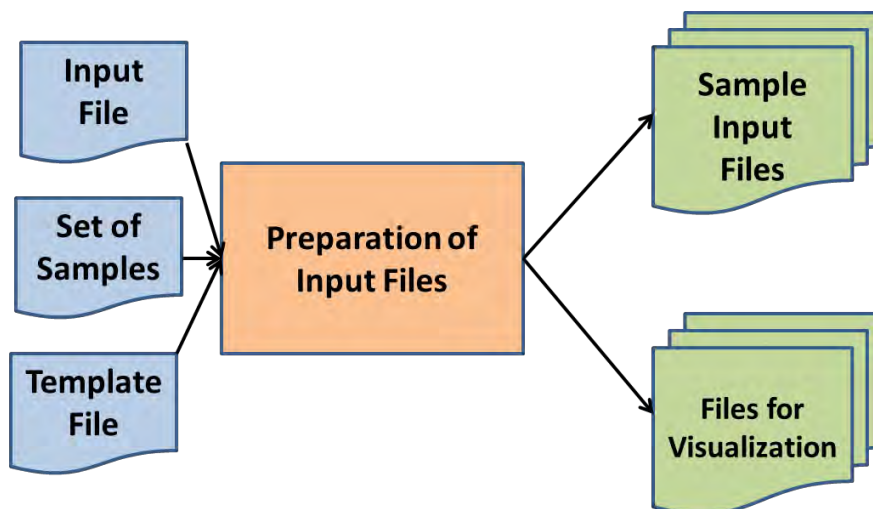


Abb. 4.2 Schematische Darstellung der Abläufe im SUnCISTT-Modus „prepareSamples“

Wurden alle Eingangsdateien bereitgestellt, kann SUnCISTT im Modus „prepareSamples“ gestartet werden. Die Dateien werden eingelesen und für jeden Satz an variierten Parametern entsteht bei erfolgreicher Ausführung eine Eingabedatei für die entsprechende nachfolgende Kritikalitätsrechnung. Eine interne Buchhaltungsfunktion protokolliert, welcher Parameter wie häufig ersetzt wurde. Dies geschieht zum einen unter

Angabe der Zeile in der Template-Datei, in der die Ersetzung stattgefunden hat. Zum anderen als Zusammenfassung in der aufgelistet wird, wie oft welcher Parameter insgesamt eingesetzt wurde. Dies bietet dem Anwender die Möglichkeit zu überprüfen, ob in dem Modus die vorhergesehene Anzahl an Ersetzungen stattgefunden hat. Wurden in einem Rechenmodell z. B. fünf verschiedene Brennstäbe definiert und der Parameter Hüllrohrdurchmesser ist ein zu variierender Parameter, sollte die Zusammenfassung ergeben, dass der zugehörige Platzhalter insgesamt fünf Mal und in fünf unterschiedlichen Zeilen ersetzt wurde.

Dem Anwender stehen Möglichkeiten zur Verfügung während der Ausführung die Berechnungen, die in den Samples durchgeführt werden, zu überprüfen. Hierfür wurden Methoden vorbereitet, die der Anwender in seiner abgeleiteten Anwendung mit wenig Aufwand neu implementieren kann. Diese Funktionalität kann beispielsweise nützlich sein, wenn manche Parameter eines Samples gewisse Normierungsbedingungen erfüllen müssen. Diese können durch Implementierung der entsprechenden Methoden überprüft und sofern notwendig und möglich nachgebessert werden.

Eine ähnliche Funktionalität steht beim Schreiben der Eingabedateien der einzelnen Modellrechnungen zur Verfügung, die ebenfalls automatisiert auf Korrektheit überprüft werden können. Mögliche Kriterien sind z. B. die maximale Anzahl der Zeichen pro Zeile, da diese in älteren Programmen oftmals begrenzt sind. Sollte sich hier eine Inkonsistenz ergeben, könnte man z. B. an dieser Stelle versuchen, die Zeilen so umzuformatieren, dass sie von dem anzusteuernenden Programm eingelesen werden können. Kann kein gültiges Sample erzeugt werden, gibt SUnCISTT eine mit Fehlermeldung aus.

Die Resultate dieses Modus sind CSAS5-Eingabedateien für jeden in SUSA generierten Satz variierter Parameter. Darüberhinaus werden Dateien erzeugt, die zur Visualisierung der Verteilungen der Parameter genutzt werden können. Diese Dateien enthalten sowohl die Werte der Parameter, wie sie in SUSA erzeugt wurden, als auch die resultierenden, ins KENO-V.a-Modell übernommenen Werte, die sich aus den Berechnungen in den vom Anwender definierten Python-Modulen und auf Grund der Abhängigkeiten der Parameter untereinander ergeben. Standardmäßig wird eine Datei mit Tabellenformat ausgegeben, die einfach in Werkzeuge wie Excel eingelesen werden kann. Wurde das ROOT-Programm auf dem Computer vorgefunden, erzeugt SUnCISTT mit den genannten Werten zusätzlich eine ROOT-Datei mit einem sogenannten

TTree-Objekt, mit dessen Hilfe weitere Analysen und Visualisierungen durchgeführt werden können.

Modus „runSamples“

Der Modus „runSamples“ ist in SUnCISTT vorgesehen und anwählbar, konnte im Rahmen dieses Vorhabens jedoch noch nicht implementiert werden. Ziel dieses Modus ist, die Steuerung der Berechnung der im Modus „prepareSamples“ erzeugten Eingangsdateien für die CSAS5-Rechnungen zu koordinieren. Dafür sollte in diesem Modus erkannt werden, auf welchem Berechnungssystem (Hardware, Betriebssystem, ...) sich der Anwender aktuell befindet, und es sollte überprüft werden, inwieweit auf diesem System ausreichend Rechenressourcen zur Verfügung stehen. Weiterhin wird überprüft werden, ob die zum Einsatz kommenden Programme, z. B. SCALE/CSAS5, in der gewünschten Version installiert sind. Wurden alle Überprüfungen erfolgreich abgeschlossen, werden die Einzelrechnungen je nach Rechnerverfügbarkeit entweder in das Batch-System eines Rechenclusters übergeben, oder auf dem aktuellen System in serieller Abfolge durchgeführt. Nach Möglichkeit sollte dieser Modus es ermöglichen, Zwischenstände über den Fortschritt der Berechnungen anzuzeigen. Nach Ablauf der Einzelrechnungen sollen deren Ergebnisdateien so aufbereitet werden, dass sie für den nächsten SUnCISTT-Modus zur Verfügung stehen. Den „runSamples“-Modus abstrakt genug zu implementieren, damit auch er für unterschiedliche Anwendungen flexibel und unter minimalem Zeitaufwand erweiterbar gewesen wäre, hätte den Rahmen der Entwicklungen, wie sie in diesem Vorhaben vorgesehen waren, gesprengt. Seine Entwicklung ist jedoch für die Zukunft vorgesehen.

Viele der in diesem Modus vorgesehenen automatisierten Aufgaben mussten für die in der vorliegenden Arbeit durchgeführten Unsicherheitsanalysen manuell bewerkstelligt werden. Zur Vereinfachung wurde eine Anzahl kleinerer Skripte programmiert, die jeweils Teilaspekte des Gesamtumfangs des anvisierten Modus abdeckten. Hier wurde zum Zwecke der Durchführung von Analysen zunächst auf die Plattformunabhängigkeit verzichtet. Auf die Umsetzung weiterer Elemente, die für den Modus vorgesehen sind, wurde vorerst verzichtet. Zum Beispiel wurden die Unsicherheitsanalysen nur auf Berechnungssystemen durchgeführt, auf denen das SCALE-Paket, in dem die CSAS5-Rechensequenz zur Kritikalitätsrechnung definiert ist, bekanntermaßen installiert war. Somit war eine Überprüfung der Verfügbarkeit nicht mehr notwendig. Auch war die Abfolge der Aufrufe der Shell-Skripte nicht vollständig automatisiert, sodass manuelle Interaktion mit dem Rechensystem notwendig war. Mit diesen Shell-Skripten wurden die

in den durchgeführten Unsicherheitsanalysen vorgesehenen zahlreichen Einzelrechnungen gestartet und nach Durchführung der Berechnungen die Ergebnisdateien unter einem Pfad gesammelt und somit für den dritten Modus des SUnCISTT bereitgestellt.

Modus „collectResults“

In diesem Modus werden die Resultate der Sample-Rechnungen zusammengefasst und von SUnCISTT so aufbereitet, dass sie zur statistischen Auswertung in SUSA eingelesen werden können. In **Abb. 4.3** ist das abstrakte Ablaufschema dieses Modus schematisch dargestellt.

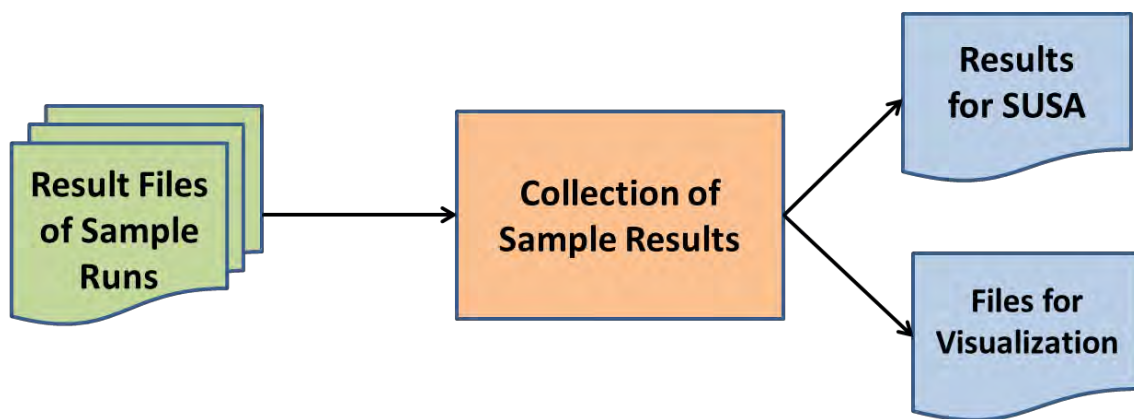


Abb. 4.3 Grafische Darstellung des Ablaufschema des SUnCISTT-Modus „collectResults“

Zuerst wird überprüft, ob die zu analysierenden Ergebnisdateien der Einzelrechnungen in dem vorgegebenen Pfad aufgefunden werden können. Ist dies der Fall, werden diese in einer Schleife abgearbeitet. Zu diesem Modus gibt es eine anwählbare Option in der festgelegt wird, wie viele Ergebnisparameter pro Sample ausgelesen werden sollen. Im Falle der Kritikalitätsanalyse mit CSAS5 interessiert man sich zunächst nur für den erzielten k_{eff} -Wert, dessen Unsicherheit in der nachfolgenden Unsicherheitsanalyse interessiert. Möchte man mehr Informationen über die Einzelrechnungen des zu analysierenden Systems mit den Eingangsdaten in Verbindung setzen, ist es möglich, durch entsprechende Ansteuerung dieser Option weitere Werte aus den Ergebnisdateien auszulesen. Hierzu zählen z. B. die in den Rechnungen erzielte statistische Unsicherheit von k_{eff} , die Anzahl der berechneten Neutronenschicksale, die mittlere Anzahl freigesetzter Neutronen pro Spaltung oder die Dauer der Berechnung insgesamt. Je nach Aufgabenstellung können aus diesen Werten zusätzliche, zum tieferen Verständnis des untersuchten Systems beitragende Erkenntnisse über die berechnete Anord-

nung erhalten werden. Während der Ausführung dieses Modus gibt SUnCISTT regelmäßig Fortschrittmeldungen aus, wie viele Ergebnisdateien prozessiert wurden.

Die für SUSA aufbereitete Datei mit den Ergebnissen der Einzelrechnungen ist eine Textdatei. In ihr steht untereinander zu jeder Sample-Nummer der entsprechende k_{eff} -Wert. Wurden weitere Werte aus den Ergebnisdateien ausgelesen, werden alle angeforderten Werte in einer Tabelle ausgegeben. Dabei entspricht jeweils eine Zeile den Ergebnissen eines Samples.

Zusätzlich zu der Ergebnisdatei für SUSA werden auch in diesem Schritt weitere Dateien erzeugt, die zur Visualisierung der Resultate und deren nachträglicher Analyse dienlich sein können. Es handelt sich hierbei standardmäßig um eine Datei, in der die ausgelesenen Werte derart tabellarisch aufbereitet wurden, dass sie einfach in Programme wie Excel übernommen werden können. Wurde das ROOT-Paket auf dem Rechner vorgefunden, wird zusätzlich eine ROOT-Datei mit einem TTree-Objekt angelegt, in dem die Variablen und deren Werte abgespeichert werden. Sollte die Datei aus dem „prepareSamples“-Modus in der Konfiguration angegeben worden sein, so wird diese aktualisiert und das zugehörige TTree-Objekt darin gespeichert. Somit können die variierten Eingangsdaten sowie deren errechneten, ins Kritikalitätsmodell überführten Werte sehr einfach mit den Ergebnisgrößen in Beziehung gesetzt werden.

Statistische Auswertung in SUSA

Für die finalen Schritte der Unsicherheitsanalyse kommt SUSA mit seinen Möglichkeiten der statistischen Auswertung zum Einsatz. Eine schematische Darstellung des Ablaufs ist in **Abb. 4.4** wiedergegeben. Die in SUnCISTT erstellte Textdatei mit den tabellierten Resultaten der Kritikalitätsrechnungen wird in SUSA eingelesen. Nun können die statistischen Analysen über die grafische SUSA-Eingabemaske angesteuert und konfiguriert werden. Nähere Informationen zu den hier anwählbaren Möglichkeiten sind in /KLO 09/ dokumentiert.

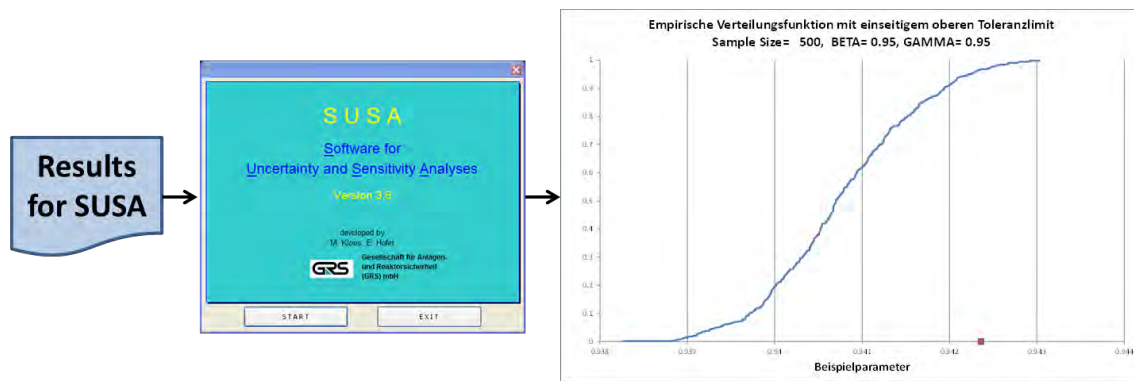


Abb. 4.4 Schematische Darstellung des Ablaufs der statistischen Analyse der SUnCISTT-Resultate mit SUSAs.

Die Ergebnisse der Unsicherheitsanalysen werden von SUSAs in einer Textdatei gespeichert. Zudem kann eine Auswahl an grafischen Darstellungen der Rechenergebnisse erzeugt werden. So zeigt die rechte Grafik in **Abb. 4.4** beispielsweise die resultierende, empirische Verteilungsfunktion des zu analysierenden Parameters, sowie – gekennzeichnet durch das kleine rote Quadrat auf der x-Achse – die Lage der oberen einseitigen 95%/95%-Toleranzgrenze. Die Textdateien sowie die erzeugten Grafiken sind in dem zu der SUSAs-Application gehörenden Verzeichnis abgelegt.

Interessieren neben den Unsicherheiten auch noch die Sensitivitäten, also der Einfluss, den die Unsicherheit eines in SUSAs variierten Parameters auf die gesamte Unsicherheit des Systems besitzt, werden die die Resultate der Einzelrechnungen mit den variierten Eingangsparametersätzen in Verbindung gebracht. In SUSAs stehen mehrere Sensitivitätsmaße zur Auswahl. Im Rahmen dieses Vorhabens wurden die Sensitivitätsanalysen zwar durchgeführt, jedoch nur qualitativ interpretiert. Die Resultate der Sensitivitätsanalyse werden analog zu denen der Unsicherheitsanalyse in einer Textdatei abgespeichert. Zusätzlich können die Ergebnisse über die Excel-Schnittstelle in Schaubildern dargestellt werden.

4.2.3 Ausblick

Die im Rahmen dieses Vorhabens durchgeführte Neuentwicklung der Ankopplung eines Kritikalitätscodes an das GRS-Programm für Unsicherheits- und Sensitivitätsanalysen SUSAs ermöglichten die Durchführung der im folgenden Kapitel beschriebenen, zum Teil komplexen Analysen, in denen die CSAS5-Sequenz des SCALE-Programmpakets zum Einsatz kam. Mit dem implementierten Grad an Abstraktion so-

wie den beschriebenen Möglichkeiten für den Anwender, SUnCISTT gemäß seinen Analyse-Anforderungen zu ergänzen und anzupassen, besitzt das Werkzeug einen Funktionsumfang, der über die notwendige Basisfunktionalität für Unsicherheitsanalysen in der Kritikalitätssicherheit herausgeht. Im Folgenden sollen die Ideen für weitere Entwicklungen skizziert werden, die bisher noch nicht implementiert werden konnten oder deren Bedeutung sich erst im Rahmen der mit SUnCISTT durchgeführten Analysen herauskristallisiert hat.

Als erster Punkt ist hier der bisher behelfsmäßig implementierte Modus „runSamples“ zu nennen. In Kapitel 4.2.1 wurden die Anforderungen an diesen Modus skizziert. Ein aus SUnCISTT heraus ansteuerbarer Modus „runSamples“ würde die Implementierung des Werkzeugs vervollständigen.

Ein wichtiger Schritt in Richtung Anwenderfreundlichkeit wäre die Entwicklung einer grafischen Anwenderoberfläche als benutzerfreundliche Ergänzung zu der bisherigen, Kommandozeilen basierte Schnittstelle. Erste Vorarbeiten, die diesen Entwicklungsschritt ermöglichen können, sind bereits implementiert. Es existiert die Möglichkeit, SUnCISTT über eine Konfigurationsdatei zu steuern. Eine grafische Benutzeroberfläche könnte dafür genutzt werden für jeden Modus von SUnCISTT die entsprechende Konfigurationsdatei bereitzustellen. Bei der Entwicklung dieser Oberfläche sollten die Entwicklungsziele wie Plattformunabhängigkeit weiterhin berücksichtigt werden. Bei der Implementierung der Konfigurationsdatei wurde darauf bereits geachtet. Sie ist wie die Eingabedatei für den Modus „prepareSamples“ im JSON-Format abgespeichert.

Eine weitere Möglichkeit für zukünftige Entwicklungen besteht in der Visualisierung der Ergebnisse. Bisher werden in SUnCISTT Dateien in ASCII-Textform ausgegeben, die eine nachträgliche Analyse und grafische Aufbereitung der Ergebnisse ermöglichen. Eine automatisierte grafische Darstellung der Ergebnisse, ggf. als vierter SUnCISTT-Modus implementiert, würde es dem Anwender ermöglichen, einen schnellen Überblick über die erzielten Resultate zu erhalten. Bei einer eindimensionalen Häufigkeitsverteilung des k_{eff} -Wertes angefangen, hin zu zweidimensionalen Verteilungen, in denen der k_{eff} -Wert sowohl mit den ursprünglich gewürfelten Parametern als auch mit den letztlich im Modell umgesetzten Werten der Parameter in Beziehung gesetzt wird, würden diese Schaubilder dazu beitragen, ein tieferes Verständnis für das untersuchte System zu erhalten.

Um die Möglichkeiten des SUnCISTT weiter zu testen und um zu überprüfen, ob die gesetzten Entwicklungsziele tatsächlich eingehalten wurden, könnten Ankopplungen an andere Codesysteme erfolgen. Dies können andere Systeme zur Kritikalitätsberechnung wie z. B. MCNP5 /MCN 06/ sein, oder aber Systeme, mit denen andere wichtige Größen der Störfallanalyse auf ihre Unsicherheiten untersucht werden. Als Beispiele seien hier die Ankopplung an ein Programm zur Bestimmung des Inventars in abgebranntem Kernbrennstoff oder die Untersuchung der Unsicherheiten in der Nachzerfallswärmeleistung dieses Kernbrennstoffs genannt.

4.3 Anwendungen des Werkzeugs SUnCISTT

Im Rahmen dieses Vorhabens wurden zwei Modelle mit der entwickelten SUnCISTT-Kopplung an die CSAS5-Sequenz analysiert. Das erste Modell diente als Testfall, um die Entwicklungen überprüfen zu können und um Erfahrung mit der Durchführung und Interpretation der resultierenden Ergebnisse zu gewinnen. Untersucht wurde ein von Wasser umgebenes, generisches Brennelement. Details der mit diesem Modell durchgeführten Berechnungen sind in Kapitel 4.3.1 dargestellt.

Die in Kapitel 4.3.2 dargestellten Analysen beziehen sich auf eine Nasslagergestellanordnung für unbestrahlte unterstellte Brennelemente. Für diese Anordnung wurde der Einfluss von Fertigungstoleranzen und unsicheren, technischen Parametern auf den Neutronenmultiplikationsfaktor untersucht. Die Definition des Modells und der unsicheren Parameter entstammen einer Benchmark-Spezifikation der Expert Group on Uncertainty Analysis for Criticality Safety Assessment (UACSA) der NEA Working Party on Nuclear Criticality Safety (WPNCS) /OEC 10a/.

4.3.1 Testproblem mit vereinfachten Annahmen

Die erste Anwendung der SUnCISTT-Ankopplung an die CSAS5-Sequenz des SCALE6-Programmpaketes war die Analyse eines von Wasser umgebenen Brennelementes, siehe **Abb. 4.5**. Das Brennelement stellt ein generisches Brennelement eines Druckwasserreaktors dar. Es besteht aus 17x17 Brennstäben mit einer aktiven Höhe von 4,26 m. Die Anreicherung des Brennstoffs an ^{235}U beträgt 5 Gew-%, das restliche Uran wird als ^{238}U angenommen. Der Brennstabmittenabstand beträgt 1,26 cm. An 25 Positionen des Gitters wurden die Brennstäbe durch Steuerstabführungsrohre er-

setzt. Die genaue Anordnung ist in **Abb. 4.6** wiedergegeben. Die Brennstäbe sind als gefüllte Kreise, die Steuerstäbe als leere Kreise dargestellt.

Das umgebende Wasser dient als Reflektor für die im Brennstoff entstandenen Neutronen. Die Dicke der Wasserschicht beträgt 30 cm in allen Raumrichtungen. Da damit volle Neutronenreflexion gewährleistet ist, wurde die Vakuum-Randbedingung in allen Richtungen gewählt.

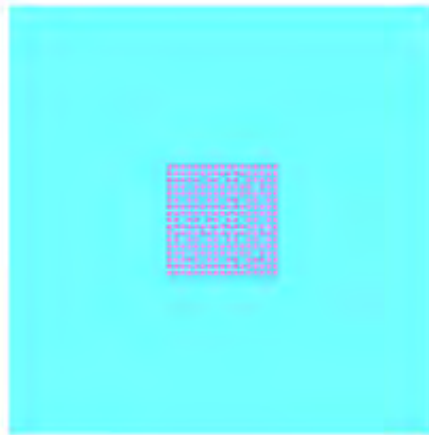


Abb. 4.5 KENO3D-Aufsicht auf einen Schnitt der untersuchten Anordnung

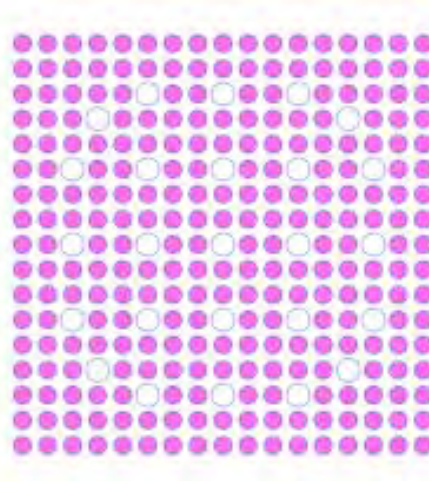


Abb. 4.6 KENO3D-Aufsicht auf das modellierte, generische 17x17-25 DWR-Brennelement in der untersuchten Anordnung

Um erste Erfahrungen mit Unsicherheits- und Sensitivitätsanalysen und der Interpretation der Ergebnisse zu gewinnen, wurde die Anzahl der in der Unsicherheitsanalyse zu variierenden, unsicheren Parameter der Überschaubarkeit halber auf vier begrenzt. Dabei handelt es sich um drei Parameter, die Unsicherheiten in geometrische Größen

der Brennstäbe bzw. des Führungsrohres beschreiben. Ein Parameter definiert die Unsicherheit in der Brennstoffdichte. Für jeden Parameter wurde ein Referenzwert gewählt und ein Intervall definiert, in dessen Grenzen sich der Wert des Parameters bewegen kann. Darüber hinaus wurde jedem Parameter eine Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion zugeordnet, die die Wahrscheinlichkeit des Auftretens des Wertes des Parameters im Definitionsintervall definiert. Während den drei geometrischen Parametern symmetrische Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen – definiert als Beta-Funktionen – zugeordnet wurden, wurde für die Brennstoffdichte eine unsymmetrische Beta-Verteilung gewählt. Details der einzelnen Parameter sind in **Tab. 4.1** aufgelistet.

Tab. 4.1 Details zu den Definitionen der unsicheren Parameter für die Unsicherheitsanalyse des DWR-Brennelements

Parameter	Einheit	Referenzw.	Verteilungsfkt.	Min.	Max.
Außendurchmesser Pellet	cm	0,4095	Beta(4,4)	0,40894	0,41021
Außendurchmesser Hüllrohr	cm	0,475	Beta(4,4)	0,47308	0,476885
Skalierungsfaktor Brennstoffdichte		0,975	Beta(4,2)	0,96360	0,986405
Außendurchmesser Führungsrohr	cm	0,61214	Beta(4,4)	0,61024	0,614045

Als Datenbasis für die in der mit KENO-V.a durchgeführten Transportrechnung eingesetzten Wirkungsquerschnitte wurden die im SCALE-Paket mitgelieferten ENDF/B-VII Bibliotheken in einer Darstellung mit 238 Energiegruppen genutzt. Die Resonanzbehandlung wurde mit dem CENTRM-Modul des SCALE-Programmsystems durchgeführt. Dabei handelt es sich um die Standardeinstellung der CSAS5-Sequenz. CENTRM ist ein eindimensionaler, deterministischer Code der für die Spektralrechnung eingesetzt werden kann. Die Entscheidung für eine Gruppendarstellung der nuklearen Daten und gegen eine Rechnung mit Punktwirkungsquerschnitten fiel im Hinblick auf die Anzahl der in der Unsicherheitsanalyse durchzuführenden Rechenläufe. Hier führt die Zeitersparnis der Multigruppenrechnung gegenüber der Rechnung mit Punktwirkungsquerschnitten über alle Einzelrechnungen summiert zu einem deutlich schnelleren Analyseresultat. Für den Testfall zur Verifikation von SUnCISTT ist dies völlig ausreichend.

In **Tab. 4.2** sind die Ergebnisse von zwei Einzelrechnungen gezeigt. Zum einen wurde der Neutronenmultiplikationsfaktor k_{eff} für das Modell berechnet, in dem die Werte aller Parameter auf ihre Nominalwerte gesetzt wurden. Zum anderen wurden die unsicheren

Parameter innerhalb ihres Definitionsbereichs so gewählt, dass das resultierende Modell ein möglichst konservatives Ergebnis liefert (abdeckende Annahmen). Die Wahl der den unsicheren Parametern zugeordneten Werten für die konservativen Annahmen wurde wie folgt durchgeführt: die Brennstoffdichte sowie der Außendurchmesser des Brennstoff-Pellets wurden maximiert, um möglichst viel Brennstoff in den Brennstäben anzusammeln, die geometrischen Parameter der Hüll- und Führungsrohre wurden minimiert, um die Moderation der Neutronen zu erhöhen. Die in der Rechnung unter konservativen Annahmen eingesetzten Werte für die unsicheren Parameter sind in **Tab. 4.3** zusammengefasst.

Tab. 4.2 Ergebnisse der Einzelrechnungen mit nominalen sowie konservativ angenommenen Werten der unsicheren Parameter

Analyse	Datenbasis	k-eff	stat. Unsicherheit
Nominalfall	ENDF/B-VII 238 Gruppen	0,940391	0,000050
Kons. Annahmen	ENDF/B-VII 238 Gruppen	0,943595	0,000049

Tab. 4.3 Wahl der Werte der unsicheren Parameter für die Untersuchung des konservativen Falles

Parameter	Einheit	Referenzwert	konservative Annahme
Außendurchmesser Pellet	cm	0,4095	0,41021
Außendurchmesser Hüllrohr	cm	0,475	0,473075
Skalierungsfaktor Brennstoffdichte		0,975	0,986405
Außendurchmesser Führungsrohr	cm	0,61214	0,610235

Der Unterschied in k_{eff} zwischen nominalem und konservativem Modell beträgt etwa 0,6 %.

Der in der CSAS5-Sequenz zur Berechnung von k_{eff} zum Einsatz kommende Transport-Code KENO-V.a basiert selbst auf einer Variante der Monte Carlo Sampling Technik. Um die inhärente Unsicherheit der k_{eff} -Berechnung eines Modells durch eine Rechnung mit KENO-V.a herauszufinden, muss dieses Modell mehrmals unter Variation des Startwerts des Pseudo-Zufallszahlen-Generators berechnet werden. Als Kon-

vergenzkriterium für jede Einzelrechnung wurde hierbei eine bestimmte konstante statistische Unsicherheit vorgegeben, die in jeder Rechnung erreicht werden musste. Um dies zu gewährleisten wurde die Anzahl der Generationen mit 20100 und die Anzahl der Neutronen pro Generation mit 15000 pro Rechnung auf hinreichend hohe Werte gesetzt. Die drei durchgeführten Analysen unterscheiden sich durch die Wahl der zu erreichenden statistischen Unsicherheit der Einzelrechnungen, sowie durch die Anzahl der übersprungenen Generationen die herangezogen werden, um die Konvergenz der Neutronenquellverteilung zu garantieren. In jeder Analyse wurden 500 unabhängige Einzelrechnungen durchgeführt. Einzelheiten zu den Konfigurationen der Analysen sind in **Tab. 4.4** aufgelistet. In dieser Tabelle sind auch die Ergebnisse aufgeführt. Die interessierenden Ergebnisgrößen sind der sich aus den Einzelrechnungen ergebende Mittelwert von k_{eff} , die resultierende Unsicherheit, sowie die obere, einseitige 95%/95% Toleranzgrenze. Die Unsicherheit dieser Analysen muss im Folgenden mit der resultierenden Unsicherheit der Unsicherheitsanalyse verglichen werden um festzustellen, inwieweit die Monte Carlo basierte Rechenmethodik einen Einfluss auf das Ergebnis der Unsicherheitsanalyse hat.

Tab. 4.4 Konfigurationen und Ergebnisse zu drei Analysen, in denen der Startwert des Pseudo-Zufallszahlen-Generators für die Monte Carlo basierte KENO-V.a-Transportrechnung variiert wurde.

Analyse	Anzahl übersprungener Generationen	angestrebtes Konvergenzkriterium	Mittelwert	Standardabweichung	obere, einseitige 95%/95% Toleranzgrenze
1	100	0,0005	0,94023	4,7858E-04	0,94112
2	500	0,0005	0,94038	2,3595E-04	0,94082
3	100	0,005	0,94023	5,0360E-04	0,94116

Die Auflistung der Ergebnisse zeigt, dass alle drei Analysen zu vergleichbaren Resultaten für den Mittelwert kommen. Die Unsicherheit verringert sich mit zunehmender Anzahl an übersprungenen Generationen. Daraus lässt sich folgern, dass bei der hier definierten Anzahl von Neutronen pro Generation 100 übersprungene Generationen nicht ausreichen, um die Konvergenz der Quellverteilung zu erreichen. Die geringere Unsicherheit, die in Analyse 2 erzielt wurde, spiegelt sich auch im Ergebnis für die obere, einseitige 95%/95% Toleranzgrenze wider. Sie fällt für diese Analyse etwas geringer aus als für die anderen beiden Varianten, d. h. sie kann durch die verbesserte Konvergenz genauer bestimmt werden. Vergleicht man die erzielte Unsicherheit mit der anvi-

sierten statistischen Unsicherheit der Einzelrechnungen, so fällt auf dass alle Analysen ein Ergebnis liefern, das besser ist als durch das Konvergenzkriterium zu erwarten war. Im Fall der Analyse 3 ist hier fast eine Größenordnung Unterschied festzustellen. Diese scheinbare Diskrepanz rührt von der Tatsache her, dass in jeder Einzelrechnung immer genau 301 Generationen analysiert wurden. Die Forderung nach einer Konvergenz der Einzelrechnung von $5,0E-03$ hat zusammen mit den 15000 Neutronen pro Generation dazu geführt, dass dieses Konvergenzkriterium bereits erreicht wurde, bevor die in der CSAS5-Sequenz definierte Mindestanzahl an 200 aktiven Generationen (Verdoppelung der Anzahl der übersprungenen Generationen) erreicht wurde. Somit spiegelt die Standardabweichung der 3. Analyse einen anderen Wert wider als ursprünglich geplant war.

Für die eigentliche Unsicherheitsanalyse, in der die Parameter gemäß der zugewiesenen Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen innerhalb ihres Definitionsbereichs variiert werden, wurden Analysen gemäß den in **Tab. 4.5** genannten Konfigurationen durchgeführt. Zu den Analysen tragen jeweils 500 Einzelrechnungen bei. Getestet wurde der Einfluss unterschiedlicher Konvergenzkriterien sowie verschiedener Konfigurationen für die Anzahl der Neutronen pro Generation bzw. die Anzahl der Generationen. In der dritten Analyse wurde das Konvergenzkriterium als zusätzlicher, fünfter variabler Parameter eingeführt. Er wurde auf dem Intervall $[5,0E-05, 5,0E-04]$ definiert und mit einer Gleichverteilung als Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion modelliert. Damit sollte der Einfluss der zu erzielenden, statistischen Unsicherheiten der Einzelrechnungen bestimmt werden.

In allen Einzelrechnungen der drei Analysen wurden die ersten 100 Generationen übersprungen, um eine Konvergenz der Neutronenquellverteilung zu erreichen. Die Anzahl der übersprungenen Generationen wurde gering gewählt, um bei kleinen Konvergenzkriterien die Problematik des Erreichens der Konvergenz zu vermeiden, bevor die Mindestanzahl an aktiven Generationen simuliert werden konnte. Die Resultate der Analysen sind ebenfalls in **Tab. 4.5** aufgeführt. Als Ergebnisgrößen sind die resultierenden Mittelwerte des Neutronenmultiplikationsfaktors k_{eff} , die aus den Einzelrechnungen abgeleitete Unsicherheit von k_{eff} und die obere, einseitige 95%/95% Toleranzgrenze bestimmt.

Tab. 4.5 Konfigurationen und Ergebnisse der durchgeführten Unsicherheitsanalysen

Analyse	Anzahl Samples	Anzahl Generationen	Neutronen/ Generation	angestrebtes Konvergenzkriterium	Mittelwert	Standardabweichung	einseitige, obere 95%/95% Toleranzgrenze
1	500	20100	30000	0,00005	0,94085	6,9462E-04	9,4209E-01
2	500	10100	10000	0,00050	0,94077	8,5205E-04	9,4236E-01
3	500	20100	30000	0.00005 - 0.00050	0,94072	7,5677E-04	9,4205E-01

Die Ergebnisse der Mittelwerte der drei durchgeführten Analysen stimmen im Rahmen der erzielten Unsicherheiten miteinander überein. Die Unsicherheit ist für die erste Analyse am geringsten, bei der das strengste Konvergenzkriterium für die Einzelrechnungen angewandt wurde. Sie hat auch – gemeinsam mit Analyse drei, bei der das Konvergenzkriterium als zusätzlicher, unsicherer Parameter gewürfelt wurde – eine niedrigere obere, einseitige 95%/95% Toleranzgrenze als Analyse 2 mit dem schwächeren Konvergenzkriterium der Einzelrechnungen. Die resultierende Unsicherheit in Analyse 1 ist um eine Größenordnung höher als die im Konvergenzkriterium angepeilte statistische Unsicherheit der Einzelrechnungen. Damit ist – nach den Erkenntnissen aus den Analysen mit variiertem Startzufallszahl – der Einfluss des Konvergenzkriteriums auf die Unsicherheit des betrachteten Systems vernachlässigbar. Diese Folgerung kann für Analyse 2 nicht getroffen werden. Die Variation der Startzufallszahl hatte für ein Konvergenzkriterium von $5.0E-04$ eine Unsicherheit von etwa $5.0E-04$ ergeben. Somit ist diese Unsicherheit von der gleichen Größenordnung wie die sich aus der Variation der unsicheren Eingabeparameter ergebende.

Ziel der Unsicherheitsanalysen ist es unter anderem die Konservativitäten in den zu untersuchenden Systemen zu reduzieren. Um zu überprüfen, wie viel Gewinn zu erzielen ist, werden die Ergebnisse der abdeckenden Annahmen mit den Ergebnissen für das obere, einseitige 95%/95% Toleranzintervall verglichen. Exemplarisch ist dies in **Tab. 4.6** für das Ergebnis aus der Unsicherheitsanalyse 1 dargestellt. Durch die statistische Analyse kann in diesem Beispiel ein Konservativitätsgewinn von 0,16 % erreicht werden. Der Unterschied ist gering. Dies kann darauf hindeuten, dass die Unsicherheiten der Eingabeparameter für dieses Testsystem zu gering gewählt wurden.

Tab. 4.6 Vergleich des Ergebnisses der Analyse mit konservativen Annahmen mit dem Ergebnis der Unsicherheitsanalyse 1 und darauf resultierender Gewinn an Konservativität.

Analyse	Neutronen-multiplikationsfaktor
Einzelrechnung unter konservativ abdeckenden Annahmen	0,943595
obere, einseitige 95%/95% Toleranzgrenze d. Unsicherheitsanalyse	0,942090
Konservativitätsgewinn [%]	0,159

Mit den besprochenen Beispielanalysen konnte gezeigt werden, dass der SUnCISTT-Programmablauf grundsätzlich funktioniert und sinnvolle Ergebnisse liefert. Darüber hinaus konnten erste Erkenntnisse für spätere Anwendungen des SUnCISTT erlangt werden. So gilt es für Analysen mit der CSAS5-Sequenz darauf zu achten, dass das Zusammenspiel des Konvergenzkriteriums, der Anzahl der für die Konvergenz der Quelle zu überspringenden Generationen sowie die Anzahl der Neutronen pro Generation sinnvoll aufeinander abgestimmt sind. Sinnvoll ist hierbei so zu interpretieren, dass nach Möglichkeit jede Einzelrechnung das Konvergenzkriterium erst dann erreicht, wenn ausreichend aktive Generationen simuliert wurden. Somit kann sichergestellt werden, dass jede Einzelrechnung garantiert die gewünschte Genauigkeit erreicht und die Streuung der Genauigkeiten der Einzelrechnungen nicht allzu groß wird. Somit kann der Einfluss des Konvergenzkriteriums auf das Ergebnis der eigentlichen Unsicherheitsanalyse minimiert werden. Dafür ist es jedoch notwendig, dass das Konvergenzkriterium signifikant kleiner ist, als die aus der Variation der unsicheren Parameter resultierende Unsicherheit. Um dies sicherzustellen, kann es sich lohnen einige wenige der Samples mit variierten technischen Parametern zu starten und zu analysieren, um eine Abschätzung treffen zu können, ob das Konvergenzkriterium ausreichend tief genug angesetzt wurde. Ein zu tief angesetztes Konvergenzkriterium kann dazu führen, dass die Rechenzeiten für jede Einzelrechnung zu stark anwachsen ohne dass in Bezug auf die Gesamtunsicherheit des zu analysierenden Systems zusätzliche Erkenntnisse gewonnen werden würden.

4.3.2 Rechenbenchmark der Expertengruppe UACSA

Nach den im vorherigen Kapitel beschriebenen Testrechnungen wurde SUnCISTT an einer umfangreicheren Aufgabe mit realistischeren Annahmen eingesetzt. Zu diesem Zweck wurde der Benchmark /NEU 10/ der Arbeitsgruppe „Uncertainty Analysis for Criticality Safety Assessment“ (UACSA) der OECD/NEA /OEC 10a/ nachgerechnet. Ziel des Benchmarks mit dem Titel „Proposal for an UACSA benchmark study on the reactivity impacts of manufacturing tolerances of parameters characterizing a fuel assembly configuration“ ist, den Einfluss von Fertigungstoleranzen und von Unsicherheiten in den Brennstoff definierenden Parametern auf den Neutronenmultiplikationsfaktor k_{eff} einer generischen Nasslagergestellanordnung zu untersuchen. Das zu analysierende Lagergestell ist in **Abb. 4.7** grafisch dargestellt. Einige der als unsicher definierten Eingangsvariablen sind darin angedeutet /NEU 10/. Es wird im Rahmen des Benchmarks durch reflektierende Randbedingungen in x-, y- und z-Richtung infinit fortgeführt.

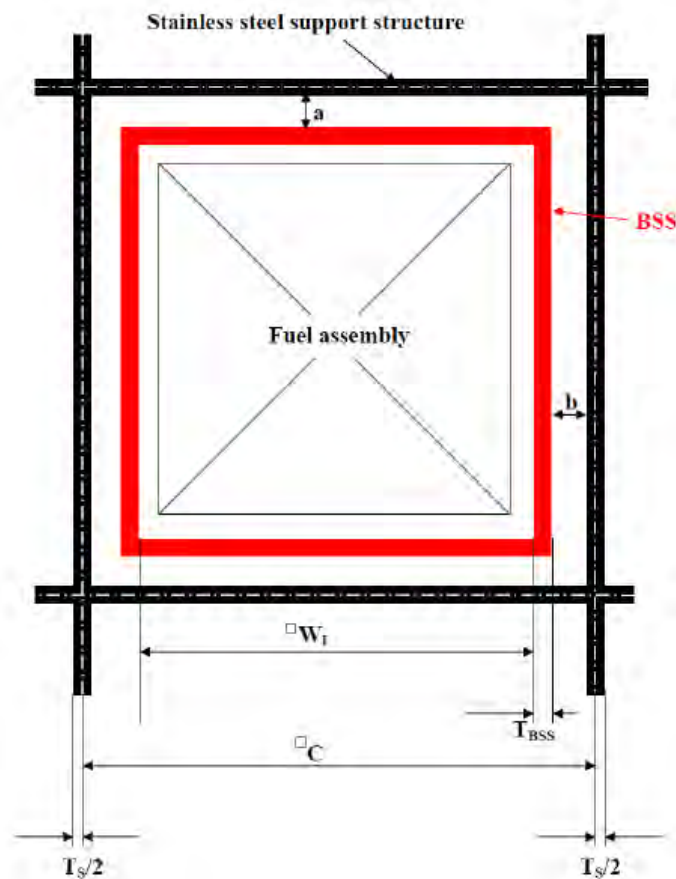


Abb. 4.7 Darstellung des im Benchmark zu untersuchenden Systems

Die Lagergestellanordnung besteht aus einem zentral angeordneten Brennelement, das von einem Kasten aus Borstahl umgeben ist. Dieser Borstahlkasten wiederum befindet sich im eigentlichen Lagergestellkasten aus Stahl. Das Brennelement besteht aus 264 Brennstäben, 24 Führungsrohren sowie einem Instrumentierungsrohr. Die Anordnung dieser einzelnen Elemente ist in **Abb. 4.8** dargestellt. Die Brennstäbe sind als leere Quadrate, Führungsrohre als mit einem Kreis gefüllte Quadrate dargestellt. Mittig ist ein Rohr zur Instrumentierung angebracht /NEU 10/

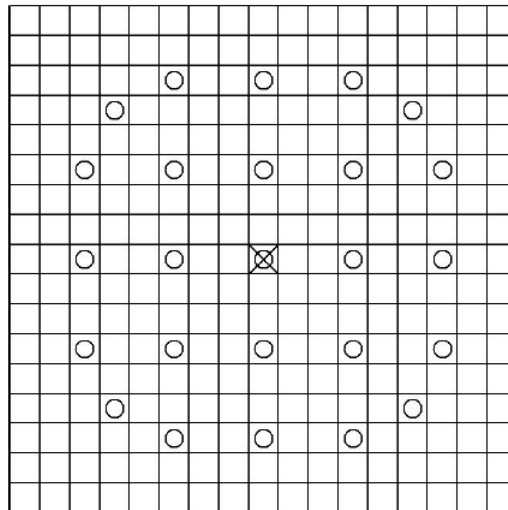


Abb. 4.8 Konfiguration des Brennelements im Lagergestell.

Abb. 4.9 zeigt das in KENO-V.a umgesetzte Modell der Lagergestellanordnung. Das Rechenmodell hat in z-Richtung eine willkürlich gewählte Höhe von 20 cm. Da für alle Raumrichtungen reflektierende Randbedingungen vorgegeben sind, ist es ausreichend, von dem Brennelement lediglich einen Ausschnitt der aktiven Zone zu modellieren. Details wie Kopf- oder Fußstücke sind nicht spezifiziert.



Abb. 4.9 Bild des KENO-V.a-Modells der im Benchmark zu analysierenden Lagergestellanordnung unter Verwendung der Nominalwerte

Bei dem Brennelement handelt es sich um ein Urndioxid-Brennelement mit einer Anreicherung von 4,0 Gew-% ^{235}U . Die restlichen 96,0 Gew-% der Schwermetallmasse bestehen aus dem Isotop ^{238}U . Der Anreicherung der Brennstäbe wird in dieser Studie keine Unsicherheit zugeschrieben, da die Anreicherung von 4,0 Gew-% ^{235}U als abdeckend angenommen wird. Als unsichere, den Brennstoff definierende Parameter gehen jedoch die Brennstoffdichte sowie der Pellet-Durchmesser in die Unsicherheitsanalyse ein. Deren Definitionsbereich, sowie die den Parametern zugewiesenen Verteilungsfunktionen sind für alle hier behandelten Parameter in **Tab. 4.7** aufgeführt. Für jeden Parameter ist der Definitionsbereich sowie die der Variation zugrunde liegende Verteilungsfunktion angegeben. Die Nominalwerte sowie die für die Analyse unter konservativ, abdeckenden Annahmen gewählten Werte der zu variierenden Parameter sind in **Tab. 4.8** aufgelistet.

Tab. 4.7 Zusammenfassung der im UACSA Phase II Benchmark zu variierenden Parameter.

Parameter	Einheit	Definitionsbereich		Verteilungsfunktion
		Min.	Max.	
Brennstoffdichte	g/cm ³	10,525	10,775	Beta(4,2)
Pellet-Durchmesser	cm	0,818	0,821	Beta(4,4)
Innendurchmesser Cladding	cm	0,831	0,841	Beta(4,4)
Außendurchmesser Cladding	cm	0,945	0,955	Beta(4,4)
Innendurchmesser Führrohr	cm	1,125	1,135	Beta(4,4)
Außendurchmesser Führrohr	cm	1,219	1,229	Beta(4,4)
Bor-Anteil im boriierten Stahl	Gew-%	0,016	0,0185	Beta(3,9)
Anteil B-10 im Bor	Atom-%	0,192	0,206	Beta(3,12)
Chrom-Anteil im boriierten Stahl	Gew-%	0,18	0,2	Beta(4,4)
Nickel-Anteil im boriierten Stahl	Gew-%	0,1	0,12	Beta(4,4)
Innere Breite des Kastens aus boriiertem Stahl	cm	22,1	22,3	Beta(1,1)
Wandstärke des Kastens aus boriiertem Stahl	cm	0,4	0,5	Beta(4,2)
Chrom-Anteil im Stahl	Gew-%	0,18	0,2	Beta(4,4)
Nickel-Anteil im Stahl	Gew-%	0,1	0,12	Beta(4,4)
Wandstärke des Stahlkastens	cm	0,45	0,55	Beta(4,2)
Gesamtbreite der Anordnung	cm	25,3	25,6	Histogramm
Lage des Borstahlkastens innerhalb des Stahlkastens in x-Richtung	cm	-0,005	0	Gleichverteilung
Lage des Borstahlkastens innerhalb des Stahlkastens in y-Richtung	cm	-0,005	0	Gleichverteilung

Die den Brennstoff umschließenden Hüllrohre bestehen aus reinem Zirkon einer Dichte von 6,56 g/cm³. Diese Dichte wird nicht variiert. Als unsicher anzusetzende Größen in Bezug auf die Hüllrohre sind deren Innen- und Außendurchmesser. Die gleiche Aussage trifft auch auf das zentral im Brennelement angeordnete Instrumentierungsrohr zu. Es besteht wie die Hüllrohre der Brennelemente aus Zirkon und als unsichere Größen werden der Innen- sowie der Außendurchmesser angesehen.

Der das Brennelement umgebenden Kasten aus boriiertem Stahl wird durch die Gewichtsanteile der vier Elemente Bor, Chrom, Nickel und Eisen bestimmt. Für Bor, Nickel und Chrom sind diese Gewichtsanteile als unsichere Parameter definiert. Der Eisenanteil ergibt sich dann als die Differenz der stochastisch variierten Anteile zu 100 Gew-%. Die Isotopenzusammensetzung von Nickel, Chrom und Eisen entspricht dem natürlich vorkommenden Isotopenverhältnis und unterliegt keiner Variation. Der Anteil des Bor-Isotops ¹⁰B am gesamten Borgehalt ist dagegen einer der mit einer Unsicherheit versehenen Parameter.

Neben den materialspezifischen Eigenschaften des Kastens aus boriiertem Stahl sind auch dessen geometrische Eigenschaften Teil der Unsicherheitsanalyse. Zwei Parameter gilt es zu variieren. Die Innenbreite des Kastens sowie dessen Wandstärke sind im Benchmark als unsichere Parameter definiert.

Tab. 4.8 Zusammenfassung der Nominalwerte und der für die konservative Annahme gewählten Werte der einzelnen zu variierenden Parameter

Parameter	Einheit	Nominalw.	Konserv. Annahme
Brennstoffdichte	g/cm ³	10,65	10,775
Pellet-Durchmesser	cm	0,8195	0,821
Innendurchmesser Cladding	cm	0,836	0,841
Außendurchmesser Cladding	cm	0,95	0,945
Innendurchmesser Führrohr	cm	1,13	1,135
Außendurchmesser Führrohr	cm	1,224	1,219
Bor-Anteil im boriierten Stahl	Gew-%	0,017	0,016
Anteil B-10 im Bor	Atom-%	0,199	0,192
Chrom-Anteil im boriierten Stahl	Gew-%	0,19	0,18
Nickel-Anteil im boriierten Stahl	Gew-%	0,11	0,1
Innere Breite des Kastens aus boriiertem Stahl	cm	22,1	22,3
Wandstärke des Kastens aus boriiertem Stahl	cm	0,45	0,4
Chrom-Anteil im Stahl	Gew-%	0,19	0,18
Nickel-Anteil im Stahl	Gew-%	0,11	0,1
Wandstärke des Stahlkastens	cm	0,5	0,55
Gesamtbreite der Anordnung	cm	25,4	25,3
Lage des Borstahlkastens innerhalb des Stahlkastens in x-Richtung	cm	0,0	x
Lage des Borstahlkastens innerhalb des Stahlkastens in y-Richtung	cm	0,0	x

Analog zum Kasten aus boriiertem Stahl sind auch für den äußeren Stahlkasten des Lagergestells unsichere Parameter definiert. Für die Zusammensetzung dieses Stahls werden lediglich die Elemente Chrom, Nickel und Eisen betrachtet. Die Gewichtsanteile von Chrom und Nickel sind wieder als unsichere Parameter definiert und der Anteil des Eisens am Stahl ergibt sich wiederum aus der Differenz der variierten Gewichtsanteile zu 100 Gew-%. Für alle Elemente wird die natürliche Isotopenhäufigkeit angenommen. Die Dichte des Stahls von 7,9 g/cm³ wird ebenfalls konstant gehalten.

Neben den 18 aufgeführten, als unsicher vorgegebenen Parametern, mussten vier zusätzliche Hilfsparameter definiert werden, um valide Einzelmodelle für jeden von SUSAs gelieferten, unabhängigen Parametersatz in CSAS5 erstellen zu können. In **Tab. 4.9** sind diese Hilfsparameter mit ihren Abhängigkeiten aufgeführt. Zur Berechnung der Hilfsparameter wird die in SUnCISTT implementierte Möglichkeit angewandt, zusätzli-

che Parameter in der Konfigurationsdatei anzugeben und deren Berechnungsvorschrift in einer vom Anwender vorgegebenen, analysespezifischen Python-Modul zu hinterlegen.

Zwei dieser zu berechnenden, zusätzlichen Parameter sind die gerade erwähnten Gewichtsanteile von Eisen im boriierten Stahl sowie im Stahl des Lagergestells. Diese hängen von den in jedem Parametersatz veränderlichen Anteilen an Nickel, Chrom und im Falle des boriierten Stahles auch von Bor ab. Um die Materialzusammensetzungen in den einzelnen CSAS5-Eingabedateien korrekt wiederzugeben, muss der Anteil des Isotops ^{11}B aus dem variierten Anteil des ^{10}B -Isotops ermittelt werden. Als vierter, zusätzlicher Parameter gilt es die Dichte des Borstahls zu berechnen. Diese ist abhängig vom Bor-Anteil, der sich in dem Stahl befindet und der als unsicherer Parameter definiert ist.

Tab. 4.9 Zusätzlich zu definierende Parameter und deren Abhängigkeiten von unsicheren Parametern.

Parameter	Abhängigkeiten
Eisenanteil in boriiertem Stahl	Bor-, Nickel-, Chrom-Anteile
Eisenanteil in Stahl	Nickel- und Chrom-Anteile
Anteil B-11 in Bor	Anteil B-10 in Bor
Dichte des Borstahls	Bor-Anteil im boriierten Stahl

In den Benchmark-Spezifikationen sind für 14 unterschiedliche Bor-Anteile im Stahl die entsprechenden Dichten des Borstahls aufgeführt. Diese Werte sind tabellarisch in **Tab. 4.10** und grafisch in **Abb. 4.10** dargestellt. Für einen in einem Parametersatz vorkommenden, zufälligen Wert des Bor-Anteils wurden zur Ermittlung der zugehörigen Borstahl-Dichte zunächst die beiden spezifizierten Werte in der Tabelle gesucht, die den variierten Wert einschließen. Daraufhin wurde zwischen den Punkten linear interpoliert und somit die in die Berechnung eingehende Dichte für den aktuell zu betrachtenden Bor-Anteil ermittelt.

Tab. 4.10 Im Benchmark vorgegebene Zusammenhänge zwischen dem Bor-Anteil im borierten Stahl und dessen Dichte

Bor-Anteil [Gew-%]	Dichte des borierten Stahls [g/cm ³]
1,0	7,74897
1,1	7,73419
1,2	7,71946
1,3	7,70478
1,4	7,69017
1,5	7,67560
1,6	7,66110
1,7	7,64664
1,8	7,63224
1,9	7,61790
2,0	7,60361
2,1	7,58937
2,2	7,57519

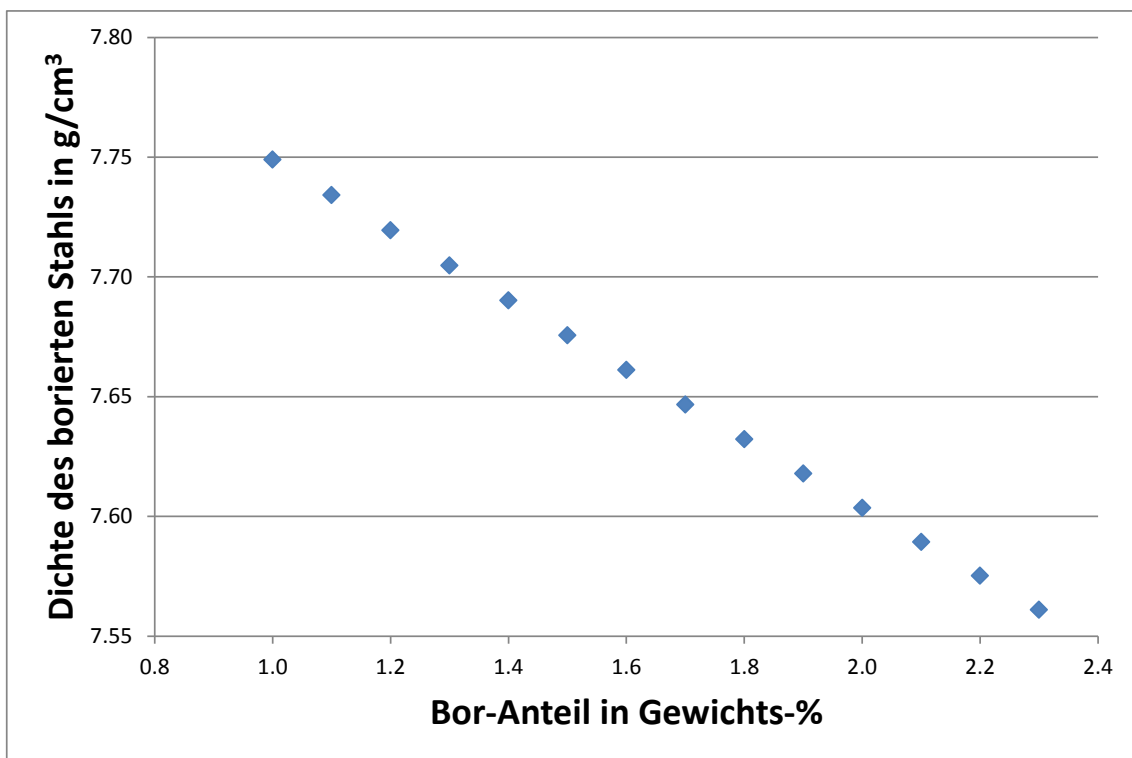


Abb. 4.10 Grafische Darstellung des Zusammenhangs zwischen dem Bor-Anteil im Stahl und der Dichte

Im Rahmen dieses Vorhabens konnten die im Benchmark mit Task 1 und Task 2 benannten Aufgabenstellungen bearbeitet werden. Dies bedeutet, dass folgende Analysen durchgeführt wurden:

- **Untersuchung des Nominalfalles:**
Bei der Analyse des Nominalfalles werden alle unsicheren Parameter an ihrem nominellen Wert betrachtet. Als Ergebnisse sind der Mittelwert, die Standardabweichung des Mittelwertes sowie die obere, einseitige 95%/95% Toleranzgrenze für k_{eff} angefragt. Um für den Nominalfall statistische Aussagen treffen zu können wurden hier nicht die unsicheren Parameter innerhalb ihres Definitionsbereichs variiert, sondern die Startzufallszahl der KENO-V.a-Rechnung. Da es sich bei der k_{eff} -Berechnung mit KENO-V.a um einen auf Monte Carlo-Methoden basierenden Prozess handelt, variiert das erzielte Ergebnis je nach Wahl der Startzufallszahl. Durch deren Variation kann man den Einfluss der Startzufallszahl bei ansonsten gleicher Wahl der Eingangsparameter untersuchen und somit auch die geforderten, statistischen Resultate ableiten.
- **Untersuchung mit abdeckenden Annahmen:**
Die Analyse des Systems unter abdeckenden Annahmen erfolgte analog zur Analyse des Nominalfalles, jedoch wurden die Werte der zu variierenden Parameter durch Expertenschätzung derart gewählt, dass das System den größtmöglichen k_{eff} -Wert aufweist. Die explizite Wahl für die einzelnen Parameter ist in **Tab. 4.8** zusammengefasst. Die angefragten Ergebnisse sind wiederum der Mittelwert, die Standardabweichung des Mittelwertes sowie die obere, einseitige 95%/95% Toleranzgrenze für k_{eff} .
- **Unsicherheitsanalyse:**
Hier werden die einzelnen unsicheren Parameter innerhalb ihres Definitionsbereiches und auf Grund der ihnen zu Grunde liegenden Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion variiert und eine Vielzahl unabhängiger Modelle der Lagergestell-anordnung berechnet. Damit werden die Einflüsse der in der Analyse vorkommenden Fertigungstoleranzen auf den Neutronenmultiplikationsfaktor k_{eff} untersucht. Die Ergebnisgrößen sind wiederum der Mittelwert, die Standardabweichung des Mittelwertes sowie die obere, einseitige 95%/95% Toleranzgrenze von k_{eff} .

Zu der Analyse mit abdeckenden Annahmen ist anzumerken, dass die durch Expertenschätzung durchgeführte Wahl der einzelnen Werte der unsicheren Parameter derart durchgeführt wurde, dass die Werte der Parameter auf entweder der minimalen oder der maximalen Intervallgrenze ihres Definitionsbereichs gewählt wurden. In Systemen wie dem hier vorliegenden gibt es jedoch Eingangsparameter, deren Variation gegenläufige Effekte auf den k_{eff} -Wert ausüben. Ein Beispiel ist die Vergrößerung des Innendurchmessers des Borstahl-Kastens, wodurch die Moderation durch das Wasser steigt. Ob durch diese erhöhte Moderation nun die absorbierende Wirkung des Bors im Borstahl oder aber die Spaltungen im Brennstoff favorisiert werden, ist a priori nicht vorherzusehen. Es kann also Situationen geben, in denen ein einfaches Minimieren bzw. Maximieren der unsicheren Parameter innerhalb ihrer Fertigungstoleranzen nicht zum maximalen Wert für k_{eff} führt. In einem solchen System wäre es durchaus denkbar, dass ein im Rahmen der Unsicherheitsanalyse auftretender Parametersatz einen höheren Wert für den Neutronenmultiplikationsfaktor liefert als durch die Wahl eines Minimums oder Maximums zustande kommen würde. In so einem Fall könnte die Untersuchung dieses Parametersatzes wertvolle Aufschlüsse über das Zusammenspiel der Parameter in dem zu untersuchenden System liefern.

Für jede der drei durchzuführenden Analysen wurden jeweils 500 unabhängige Eingabedateien erstellt. Für die Untersuchung des Nominalfalles und der Betrachtung unter konservativen Annahmen wurde jeweils ein Modell mit den entsprechenden Werten der Parameter erstellt und daraus 500 verschiedene Eingabedateien mit 500 verschiedenen Startzufallszahlen für KENO-V.a erstellt. Für die Unsicherheitsanalyse wurden zunächst die unsicheren Parameter in SUSA definiert. Daraufhin erstellte SUSA 500 unabhängige Parametersätze, in denen die Parameter variiert wurden. Diese Parametersätze wurden dann an SUnCISTT übergeben um letztlich, nach Durchführung der für die zusätzlichen Parameter nötigen Nebenrechnungen, eine entsprechende Anzahl an Eingabedateien zu erhalten.

Für eine reine Betrachtung der Unsicherheiten sowie zur Ermittlung der oberen, einseitigen 95%/95% Toleranzgrenze sollten nach der Formel von Wilks 59 Einzelrechnungen genügen [WIL 41]. Damit wäre es möglich eine konservative Aussage für die obere, einseitige 95%/95% Toleranzgrenze zu treffen. Das dennoch eine hohe Anzahl von 500 Einzelrechnungen für jede Analyse durchgeführt wurde, hatte zwei maßgebliche Gründe:

1. Bei der in SUSANA durchgeführten Auswertung der Einzelrechnungen handelt es sich um eine statistische Analyse. Diese ist, wie jede statistische Aussage, mit Unsicherheiten verbunden. Je höher die Anzahl der Einzelrechnungen, desto geringer wird die Unsicherheit auf die abgeleiteten Aussagen. Somit kann die Aussage verbessert und Konservativität – unter Beibehaltung des Sicherheitsstandards – reduziert werden.
2. Wurde in SUSANA erst einmal die Unsicherheitsanalyse durchgeführt, liegt es nahe im nächsten Schritt auch eine Sensitivitätsanalyse durchzuführen. In dieser wird dann der Einfluss der Unsicherheiten der variierten Parameter auf die Gesamtunsicherheit des Systems untersucht. Durch die hohe Anzahl an Parametern, durch die diese Lagergestellanordnung beschrieben wird, ist eine hohe Anzahl an Einzelrechnungen notwendig um die Sensitivitätsanalyse derart durchführen zu können, dass die resultierenden Ergebnisse selbst nicht mit einer zu großen Unsicherheit versehen sind.

Um zu gewährleisten, dass jede durchgeführte Einzelrechnung bis zu einem vergleichbaren Grad konvergiert ist, wurden die Konfigurationsparameter der CSAS5-Sequenz wie in **Tab. 4.11** wiedergegeben gewählt. Würde jede Einzelrechnung zu einem anderen Wert konvergieren, könnte das dazu führen, dass die zusätzliche Streuung der statistischen Unsicherheit der Einzelrechnungen einen Beitrag zur resultierenden Unsicherheit des Systems liefert. Daher wurden die Konfigurationsparameter derart gewählt, dass jede der 500 Einzelanalysen das Abbruchkriterium der Rechnung von $5.0E-05$ in k_{eff} problemlos erreicht. Die Wahl der 150.000 Generationen ist daher zweitrangig. Dieser Konfigurationsparameter wurde gezielt auf einen so hohen Wert gesetzt, damit das für alle Einzelrechnungen identische Konvergenzkriterium in jedem Fall erreicht wird, bevor diese Maximalzahl an Generationen erreicht wird. Mit 50.000 Neutronen pro Generation wurde sichergestellt, dass auch in jeder einzelnen simulierten Neutronengeneration ausreichend Neutronenhistorien zur Verfügung stehen, um einen statistisch signifikanten Wert für k_{eff} zu erhalten. Ein weiterer wichtiger Konfigurationsparameter der CSAS5-Sequenz bezüglich einer adäquaten Konvergenz des Multiplikationsfaktors ist die Anzahl der Generationen zu Beginn der Rechnung, die nicht zur Berechnung des Endergebnisses herangezogen werden. Diese hier konfigurierten 1.000 Generationen werden übersprungen, um sicherzustellen, dass die Quellverteilung der Neutronen in KENO-V.a ausreichend konvergiert, um bei der Mittelwertbildung über die einzelnen Generationen das Endergebnis, d. h. den Wert für k_{eff} , nicht zu verzerren.

Tab. 4.11 Wahl der Konfigurationsparameter, anhand derer die Berechnung der CSAS5-Sequenz gesteuert wird.

Parameter	Wert
Anzahl Generationen	150000
Neutronen/Generation	50000
Anzahl übersprungener Generationen	1000
Abbruchkriterium stat. Unsicherheit	5,00E-05

Bei der Modellierung der Template-Datei, in der die in SUSA variierten Parameter eingefügt werden, wurde die Annahme getroffen, dass alle Brennstäbe aus derselben Charge des Herstellungsprozesses stammen. Dies bedeutet für die Unsicherheitsanalyse, dass für die brennstabspezifischen Variablen jeweils nur ein variiertes Parameter eingesetzt wird und nicht für jeden Brennstab einzeln eigene Variationen durchgeführt werden. Wie der KENO3D-Darstellung des Modells in **Abb. 4.9** durch die unterschiedliche Farbgebung der Brennstäbe entnommen werden kann, werden in dem Rechenmodell einige Brennstäbe dennoch unterschiedlich behandelt. Dies hat neutronenphysikalische Gründe. Je nach Position der Brennstäbe im Brennelement und im Borstahlkasten erfahren diese ein anderes Spektrum an Neutronenenergien. Brennstäbe, die an den Ecken des Brennelements angesiedelt sind, werden an zwei Seiten von moderierendem Wasser umgeben, während Brennstäbe im Inneren des Brennelements quasi wie in einem infiniten Brennstabgitter betrachtet werden können. Um diesen unterschiedlichen Spektren Rechnung zu tragen, wurden verschiedene Brennstabgruppen definiert. Die Spektren innerhalb dieser Brennstabgruppen sollten einander ähnlich sein. Für jede dieser Gruppen wurden die notwendigen Materialien für den Brennstoff, die Hüllrohre oder das umgebende Wasser gesondert definiert. Die Resonanzbehandlung für die einzelnen Brennstabgruppen wird mit der Standard-Option der CSAS5-Sequenz durchgeführt, dem eindimensionalen, deterministischen Transportcode CENTRM.

Um bei der Vielzahl der für die unterschiedlichen Analysen durchzuführenden Einzelrechnungen Rechenzeit zu sparen, wurden für die Rechnungen die ENDF/B-VII Wirkungsquerschnittsdaten in 238 Energiegruppen eingesetzt. Diese Vereinfachung im Rechenablauf wurde validiert, indem Einzelrechnungen in der 238 Gruppendarstellung Einzelrechnungen gegenübergestellt wurden, in denen die ENDF/B-VII Wirkungsquerschnitte als Punktdaten vorliegen. Die Ergebnisse für den Nominalfall und für die Betrachtung unter konservativen abdeckenden Annahmen sind in **Tab. 4.12** wiedergege-

ben. Diese Vergleiche zeigen, dass die Ergebnisse mit beiden Formen der Wirkungsquerschnittsbehandlung eine sehr gute Übereinstimmung im Promillebereich aufweisen. Sowohl für den Nominalfall als auch für die abdeckend konservativen Annahmen liegt der mit Hilfe der 238 Energiegruppen berechnete Wert für k_{eff} etwas oberhalb dem mit Punktwirkungsquerschnittsdaten berechneten. Die Berechnungen mit 238 Energiegruppen ist somit die konservativere Wahl und kann daher in den Berechnungen der drei o. g. Analysen eingesetzt werden.

Tab. 4.12 Vergleich der Ergebnisse für den Nominalfall und die Betrachtung unter konservativen Annahmen für die Berechnungen des Lagergestellsystems mit den ENDF/B-VII Wirkungsquerschnitten in Form von Punktwirkungsdaten bzw. aufgeteilt in 238 Energiegruppen.

Analyse	Punktdaten		238 Energiegruppen	
	k_{eff}	stat. Uns.	k_{eff}	stat. Uns.
Nominalfall	0,992735	0,000049	0,993034	0,000049
konservative Annahmen	1,024225	0,000049	1,024514	0,000049

Für jede der drei durchzuführenden Analysen wurden 500 Eingabedateien mit den je nach Aufgabenstellung variierten Eingangsparametern, den ENDF/B-VII Wirkungsquerschnittsdaten in der Darstellung mit 238 Energiegruppen, sowie den zugehörigen Resonanzbehandlungen mit CENTRM durch den SUnCISTT-Modus „prepareSamples“ erstellt. Nach erfolgreicher Durchführung der Rechnungen wurden die k_{eff} -Ergebnisse der Einzelrechnungen mit Hilfe des SUnCISTT-Modus „collectResults“ aus den Ergebnisdateien der CSAS5-Sequenz extrahiert und in ein Format gebracht, welches zur statistischen Auswertung in SUSA eingelesen werden konnte. Mithilfe von SUSA wurden die Ergebnisse analysiert und die für den Benchmark benötigten Größen bestimmt: den Mittelwert, die Standardabweichung des Mittelwertes sowie die obere, einseitige 95%/95% Toleranzgrenze der 500 k_{eff} -Werte je Analyse. Diese Resultate sind in **Tab. 4.13** zusammengefasst und werden im Folgenden diskutiert. Aufgelistet sind der Mittelwert, die Standardabweichung, die Standardabweichung des Mittelwertes sowie die obere, einseitige 95%/95% Toleranzgrenze für die Analyse des Nominalfalls, die Betrachtung des Systems unter konservativ abdeckenden Annahmen sowie die Unsicherheitsanalyse.

Tab. 4.13 Zusammenfassung der Ergebnisse des Benchmarks für die durchgeführten Analysen

Analyse	Mittelwert	Standard-abweichung	Standard-abweichung des Mittelwertes	obere, einseitige 95%/95% Toleranzgrenze
Nominalfall	0.99307	5.0340E-05	2.2513E-06	0.99316
konservative Annahmen	1.0245	5.0936E-05	2.2779E-06	1.02460
Unsicherheitsanalyse	1.0008	7.1232E-03	3.1856E-04	1.01260

Der Mittelwert des Neutronenmultiplikationsfaktors k_{eff} aus den 500 Einzelrechnungen für den Nominalfall ergibt sich zu 0,99307, mit einer Standardabweichung des Mittelwerts von 2,25E-06. Die aus den 500 Einzelrechnungen resultierende Standardabweichung liegt mit 5,034E-05 in derselben Größenordnung wie die erzielte statistische Unsicherheit in den jeweiligen Einzelrechnungen. Dort war eine statistische Unsicherheit des Konvergenzkriteriums für k_{eff} von 5,0E-05 als Abbruchbedingung vorgegeben. Die gute Übereinstimmung dieser beiden Werte zeigt, dass man der als Abbruchbedingung angegebenen Konvergenz vertrauen kann. Weiterhin ergibt sich aus den Resultaten der Einzelrechnungen die Standardabweichung des Mittelwertes zu 2,2513E-06 sowie die obere, einseitige 95%/95% Toleranzgrenze zu 0,99316.

Die Analyse der 500 unter abdeckenden Annahmen durchgeführten Einzelrechnungen mit variiertem Startzufallszahl liefert einen Mittelwert für k_{eff} von 1,0245. Bei einer resultierenden Unsicherheit von 5,0936E-05 ist der kritische Wert für k_{eff} von 1,0 rund 480 Standardabweichungen vom Mittelwert entfernt. Die ermittelte Standardabweichung kann hinsichtlich der statistischen Unsicherheit der Einzelrechnungen analog zum Nominalfall interpretiert werden. Sie liegt in der gleichen Größenordnung wie die als Konvergenzkriterium vorgegebene statistische Unsicherheit von 5,0E-05 in den Einzelrechnungen. Die Standardabweichung des Mittelwertes ergibt sich zu 2,2778E-06 und die obere, einseitige 95%/95% Toleranzgrenze wird zu 1,0246 berechnet.

Auf den Ergebnissen der Unsicherheitsanalyse, bei der jeweils die Eingangsdaten der 500 Einzelrechnungen im Rahmen ihrer Fertigungstoleranzen mit Hilfe von SUnCISTT variiert wurden. Die erzielten k_{eff} -Werte der unterschiedlichen Modelle liegen im Intervall von 0,9837 bis 1,0180. Der niedrigere Wert ist kleiner als der für den Nominalfall berechnete Wert. Es gibt als Kombinationen von Eingabeparametern, die in einem Modell münden, dessen Reaktivität im Vergleich zum Nominalfall geringer ist. Der höchste Wert der erzielten Einzelergebnisse liegt unter dem Wert, der unter der Annahme einer

konservativ abdeckenden Wahl der Eingangsparameter ermittelt wurde. Es ist bei der Interpretation zu berücksichtigen, dass es unwahrscheinlich ist, dass alle Parameter gleichzeitig stochastisch derart gewählt werden, dass das Ergebnis der Kritikalitätsrechnung den maximalen Neutronenmultiplikationsfaktors erreicht.

Der Mittelwert des Neutronenmultiplikationsfaktors über die 500 Einzelrechnungen ergibt sich zu 1,0008. Bei einer Standardabweichung von $7,123E-03$ ergibt sich die Standardabweichung des Mittelwerts zu $3,186E-04$. Die Standardabweichung der Einzelmessungen ist um etwa zwei Größenordnungen größer als das in den Einzelrechnungen als Abbruchbedingung eingesetzte Konvergenzkriterium einer zu erzielenden statistischen Unsicherheit in k_{eff} von mindestens $5,0E-05$. Der Einfluss dieser Unsicherheit aus den Einzelrechnungen ist also in der Betrachtung der Gesamtunsicherheit des Wertes von k_{eff} für das Lagergestellsystems vernachlässigbar. Die für den Nominalfall und das unter abdeckenden Annahmen erstellte Modell unter Variation der Startzufallszahl durchgeführten Analysen zeigten beide eine gute Übereinstimmung zwischen dem Abbruchparameter der Rechnung und der letztlich erzielten Standardabweichung. Auf Grund der aufgabenbedingten Ähnlichkeit der Modelle der Unsicherheitsanalyse mit den beiden analysierten Modellen kann daher davon ausgegangen werden, dass diese Übereinstimmung auch in der Unsicherheitsanalyse zutrifft. Die erzielte Standardabweichung und die Standardabweichung des Mittelwertes reflektieren also keine systematischen Einflüsse des eingesetzten Rechenprogramms, sondern die durch die Fertigungstoleranzen hervorgerufenen Unsicherheiten des Systems. Für die obere, einseitige 95%/95% Toleranzgrenze ergibt sich ein Wert von 1,0126. Diese statistische Größe ist diejenige, die in Normen von Relevanz ist.

Ein Ziel der Unsicherheitsanalyse ist, eine Reduzierung an Konservativität zu erhalten, d. h. dass bei der Auslegung eines Systems nicht von den konservativ abdeckenden Annahmen ausgegangen werden muss. Diese Reduzierung ist für das hier betrachtete Brennelementlagergestell in **Tab. 4.14** zusammengefasst. Er beträgt in diesem Fall 1,17 %.

Tab. 4.14 Durch den Einsatz der Unsicherheitsanalyse erzielte Reduktion der Konservativität

Analyse	Ergebnis
Obere, einseitige 95%/95% Toleranzgrenze der Unsicherheitsanalyse	1.0126
Obere, einseitige 95%/95% Toleranzgrenze des Samplings der Startzufallszahl unter konservativen Annahmen	1.0246
Reduktion der Konservativität [%]	1.1712

Es wurde bereits erwähnt, dass anstatt 500 Einzelrechnungen auch bereits 59 Einzelrechnungen mit variierten Parametersätzen ausgereicht hätten, um eine konservative Abschätzung für die obere, einseitige 95%/95% Toleranzgrenze angeben zu können. Die hohe Anzahl an Einzelrechnungen wurde durchgeführt, um aus SUSA neben den Ergebnissen der Unsicherheitsanalyse auch Ergebnisse zu den Sensitivitäten der einzelnen variierten Parameter zu erlangen. Die hier ermittelten Sensitivitäten beziehen sich auf den Einfluss der Unsicherheit der einzelnen zu variierenden Parameter auf die Gesamtunsicherheit des betrachteten Systems. In **Abb. 4.11** ist das Ergebnis der Auswertung grafisch dargestellt. Das ausgewählte Sensitivitätsmaß ist der sogenannte „Standardized Regression Coefficient with respect to Ordinary Correlation“. Der im Schaubild angegebene R^2 -Wert ist ein Qualitätsmaß für das Vertrauen, das den Berechnungen der Sensitivitäten zugrunde liegt. Der Wert von 0,9997 besagt, dass dieses Sensitivitätsmaß anwendbar ist.

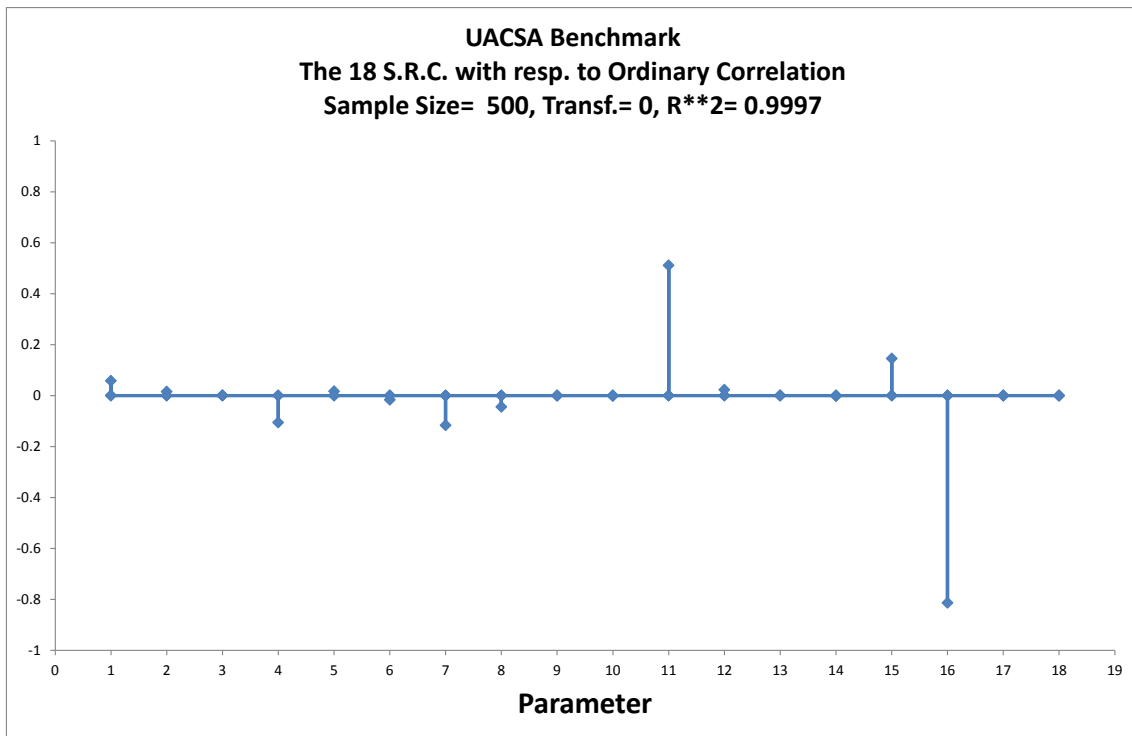


Abb. 4.11 Grafische Darstellung der Sensitivitäten, d. h. den zur Unsicherheit in k_{eff} maßgeblich beitragenden Parametervariationen

Die Auftragung in **Abb. 4.11** zeigt den Wert des Sensitivitätsmaßes in Abhängigkeit der in SUSA hinterlegten Parameternummer. In **Tab. 4.15** wurden die Parameter nach dem Betrag des ihnen zugeordneten Sensitivitätswertes sortiert und zusätzlich der Parametername angegeben. Darüber hinaus ist das Vorzeichen des Sensitivitätswertes angegeben. Das Vorzeichen gibt Auskunft darüber, in welche Richtung sich k_{eff} verändert, wenn sich der Parameterwert erhöht.

Tab. 4.15 Tabellarische Darstellung der Ergebnisse der Sensitivitätsanalyse

Parameter-nummer	Parametername	Vorzeichen d. Sensitivitätsmasses
16	Gesamtbreite der Anordnung	-
11	Innere Breite des Kastens aus boriertem Stahl	+
15	Wandstärke des Stahlkastens	+
7	Bor-Anteil im borierten Stahl	-
4	Außendurchmesser Cladding	-
1	Brennstoffdichte	+
8	Anteil ¹⁰ B im Bor	-
12	Wandstärke des Kastens aus boriertem Stahl	+
5	Innendurchmesser Führungsrohr	+
6	Außendurchmesser Führungsrohr	-
2	Pellet-Durchmesser	+
14	Nickel-Anteil im Stahl	-
10	Nickel-Anteil im borierten Stahl	-
3	Innendurchmesser Cladding	+
17	Lage des Borstahlkastens innerhalb des Stahlkastens in x-Richtung	+
13	Chrom-Anteil im Stahl	+
18	Lage des Borstahlkastens innerhalb des Stahlkastens in y-Richtung	-
9	Chrom-Anteil im borierten Stahl	-

Die Rangfolge der Sensitivitäten zeigt, dass die Unsicherheiten der geometrischen Parameter am höchsten zur Unsicherheit des Gesamtsystems beitragen, insbesondere die Fertigungstoleranzen der größeren Kasten-Strukturen, die den Brennstoff umgeben. Dies spiegelt sich in den Sensitivitäten der Parameter mit den Nummern 16 und elf wider. Deren Sensitivitätsmaße ergeben sich zudem noch mit unterschiedlichen Vorzeichen. Beide Parameter haben einen Einfluss auf die Moderation der Neutronen um den Kasten aus boriertem Stahl. Auf diesen Aspekt wird im folgenden Abschnitt noch detaillierter eingegangen werden. Die geometrischen Parameter, die das Brennelement betreffen, haben geringere Absolutbeträge des Sensitivitätsmaßes und tragen somit kaum zur Gesamtunsicherheit des untersuchten Systems bei. Während die Unsicherheiten in den Zusammensetzungen der Stähle – mit Ausnahme des Boranteils im Borstahl – nur einen geringen Einfluss auf die Unsicherheit des Neutronenmultiplikationsfaktors besitzen, tauchen andere materialspezifische Parameter wie die Brennstoffdichte oder der Anteil des ¹⁰B-Isotops im Bor in der oberen Hälfte der Tabelle auf.

Ausgehend von der in dieser Analyse als sensitivsten Parameter identifizierten Gesamtbreite der Anordnung wurden die in SUnCISTT implementierten Ankopplungen an zusätzliche Auswertemethoden dazu genutzt, um das Zusammenspiel der Parameter des Systems noch besser zu verstehen. Es zeigte sich, dass der bestimmende Parameter des Systems die Breite des Wasserspaltes zwischen dem Lagergestellkasten und dem das Brennelement umgebenden Kasten aus borierter Stahl ist. Die Abhängigkeit von k_{eff} von der Breite dieses Wasserspaltes ist in **Abb. 4.12** als zweidimensionale Häufigkeitsverteilung aller 500 Parametersätze dargestellt. Man erkennt eine klare Korrelation: je breiter der Wasserspalt, umso geringer der aus der Rechnung resultierende Wert für k_{eff} . Das Wasser in diesem Spalt moderiert die Neutronen, sodass letztlich mehr Neutronen Energien im thermischen Energiebereich aufweisen. Diese können dann von dem Bor des borierten Stahls absorbiert werden. Eine Verbreiterung des Wasserspaltes unterstützt also letztlich die Wirksamkeit des Absorbers im System.

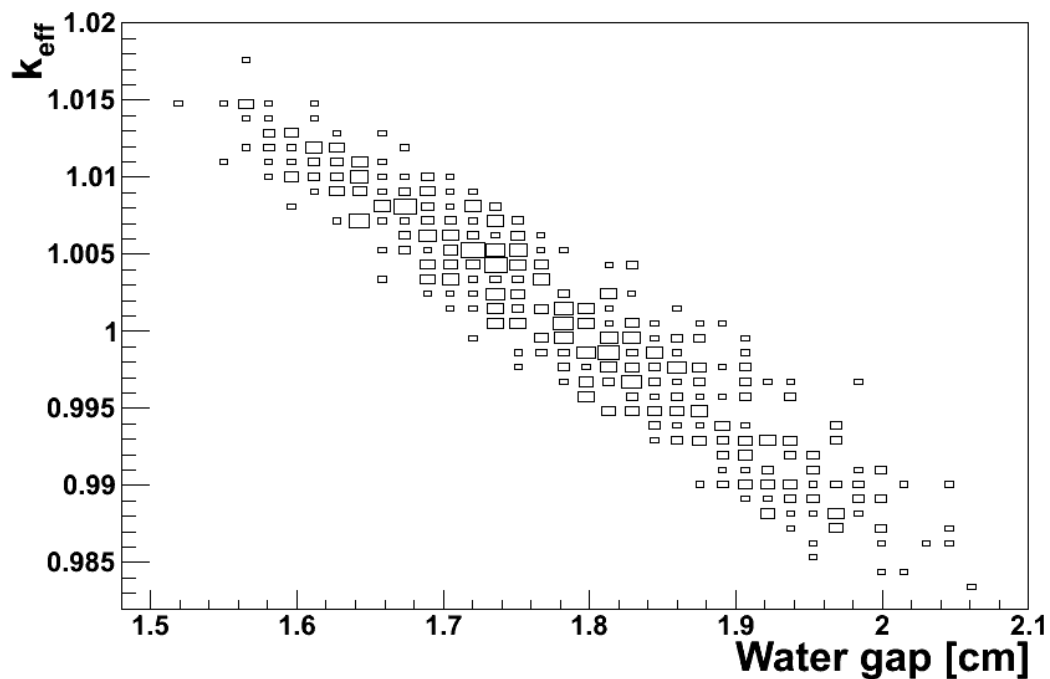


Abb. 4.12 Zusammenhang zwischen Neutronenmultiplikationsfaktor und der Breite des Wasserspaltes zwischen dem Kasten aus Borstahl und dem Lagergestellkasten

4.4 Zusammenfassung

Im Rahmen des Arbeitspunktes 2 dieses Vorhabens wurde mit dem SUnCISTT ein Werkzeug entwickelt, das Unsicherheits- und Sensitivitätsanalysen in Kritikalitätssicherheitsuntersuchungen ermöglicht. Dabei koppelt das SUnCISTT an das etablierte GRS Programm für Unsicherheits- und Sensitivitätsanalysen SUSA an, welches sowohl für die Bereitstellung variiertes Parametersätze als auch für die Analyse der Ergebnisse der Einzelrechnungen eingesetzt wird. Für die dazwischen liegenden Analyseschritte bietet SUnCISTT einen allgemein definierten Analyseablauf an, mit dem Eingabedateien für Modelle von Kritikalitätsrechnungen erstellt werden können. Obwohl SUSA verschiedene Möglichkeiten der Kopplung an andere Programme zur Verfügung stellt, war die Ankopplung an ein Programm zur Kritikalitätssicherheitsanalyse bis dato noch nicht realisiert. Im Rahmen dieses Vorhabens wurde eine solche Ankopplung an die CSAS5-Sequenz des SCALE-Programmpaketes definiert, worin der Monte Carlo basierte Code KENO-V.a über die Steuersequenz CSAS5 zur Bestimmung des Neutronenmultiplikationsfaktors k_{eff} genutzt wird. Damit vollständige und korrekte Eingabedateien erstellt werden können, können in SUnCISTT zusätzliche, für die Modellierung des Problems notwendige Parameter berechnet werden. Diese Berechnungsvorschriften können analysespezifisch durch den Anwender in gesonderten Python-Modulen definiert und über die SUnCISTT-Steuerdatei in den Modus „*prepareSamples*“ einbezogen werden. In dieser Steuerdatei werden auch die Abhängigkeiten dieser zusätzlich zu berechnenden Parameter von anderen Parametern definiert. Diese Abhängigkeiten werden während der Ausführung geprüft und sofern möglich aufgelöst. Konnten alle Modellparameter berechnet werden, wird zu jedem Eingangsparametersatz eine Eingabedatei für die CSAS5-Sequenz erstellt. Nachdem die Berechnung aller Einzelrechnungen abgeschlossen ist, liest SUnCISTT im Modus „*collectResults*“ deren Ergebnisdateien aus, extrahiert jeweils den erzielten Wert für den Neutronenmultiplikationsfaktor und bereitet diese Daten derart auf, dass in SUSA die Unsicherheitsanalyse sowie durch die Verknüpfung mit den variierten Eingangsparametern auch die Sensitivitätsanalyse durchgeführt werden kann.

Dieser Analyseablauf wurde anhand von einem vereinfachten Modell mit lediglich vier unsicheren Eingangsparametern ausgiebig getestet. Daraus konnten erste Schlüsse gezogen werden, auf welche Konfigurationen für die Einzelrechnungen geachtet werden muss und es konnten aus der Erfahrung der Anwendung Programmanpassungen

vorgenommen werden, die zur Stabilisierung des Codes beigetragen haben. Vor allem wurde dadurch aber die Funktionalität von SUnCISTT verifiziert.

In der im Rahmen dieses Vorhabens vorgesehenen Endausbaustufe wurde das Werkzeug SUnCISTT dann in einem Benchmark der UACSA der WPNCS der OECD/NEA eingesetzt. Es wurde eine generische Nasslageregestellanordnung für Brennelemente mit insgesamt 18 mit Fertigungstoleranzen versehenen Parametern untersucht und der Einfluss dieser Unsicherheiten auf den Neutronenmultiplikationsfaktor k_{eff} der Anordnung bestimmt. Zusätzlich wurden Analysen durchgeführt, in denen die Startzufallszahl für den Monte Carlo Transportcode KENO-V.a variiert wurden. Dies geschah sowohl für eine Konfiguration, in denen alle Parameter auf ihre nominalen Werten gesetzt waren als auch für den Fall, in dem die Werte der Parameter unter konservativ abdeckenden Annahmen gewählt wurden. Die erzielten Ergebnisse der Berechnungen der behandelten Aufgabenstellungen des Benchmarks wurden bei der UACSA eingereicht. Die Ergebnisse der anderen Teilnehmer dieses Benchmarks sowie dessen Auswertung lagen zum Zeitpunkt der Berichterstellung noch nicht vor.

5 Implementierung und Validierung: Vergleichsrechnungen mit MAVRIC und MCNP5 zum Strahlungstransport

Seit Version 6 enthält das amerikanische Softwarepaket SCALE /SCA09/ mit der Sequenz MAVRIC ein zusätzliches Werkzeug zur Durchführung von Strahlungstransportrechnungen. Diese Sequenz wurde im Rahmen der im Folgenden diskutierten Arbeiten erprobt. Dabei wurde eine Abschätzung der Genauigkeiten der damit erzielten Resultate sowie ein Test der in MAVRIC implementierten Varianzreduktionsmethoden vorgenommen. Zusätzlich wurden die Analysen mit Ergebnissen verglichen, die mit dem etablierten Simulationscode MCNP5 5 /MCT 08/ erzielt wurden. Eine ausführliche Beschreibung der Arbeiten ist in /BOC 13/ wiedergegeben. Da für umfangreiche Modelle auch auf modernen Computersystemen die Rechenzeit einen limitierenden Faktor darstellen kann, werden die entsprechend erzielbaren Zeitgewinne zwischen den Methoden und Konfigurationen bei gleicher Ergebnislösung ebenfalls untersucht.

Als Grundlage zur Durchführung der Test- und Vergleichsrechnungen wurde zum einen das Experiment ALARM-CF-FE-SHIELD-001 aus dem „International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments“ /NEA 10/, zum anderen ein Experiment von Ueki et al. /UEK 83/ herangezogen. Letzteres wird im weiteren Verlauf als „Ueki-Experiment“ bezeichnet. Beide Experimente bzw. die auf diesen Experimenten basierenden vereinfachten (Benchmark-)Modelle werden kurz beschrieben.

5.1 Experimentnachrechnungen mit Monaco/MAVRIC

5.1.1 Experiment Ueki et al.

5.1.1.1 Experimentaufbau

In den 80er und 90er Jahren des 20. Jahrhunderts wurden von Ueki et al. im Bereich Kerntechnik des „Ship Research Insitutes“ in Japan zahlreiche Studien über die Güte von Abschirmmaterialien durchgeführt /UEK 83/. Experimentiert wurde sowohl mit

Neutronen- (^{252}Cf) als auch mit Photonenquellen (^{60}Co). Bei den Abschirmmaterialien kamen unterschiedliche wasserstoffhaltige Materialien, zudem Stahl und Graphit zum Einsatz. Diese wurden entweder einzeln oder in Lagen unterschiedlichen Materials geschichtet den Quellen ausgesetzt. Mit einem Neutronen-Dosimeter wurden die die Abschirmung durchdringenden Neutronen detektiert. Die folgenden Analysen konzentrieren sich auf diejenigen Experimente, in denen Graphit als einziges Abschirmmaterial einer ^{252}Cf -Neutronenquelle ausgesetzt wurde. In **Abb. 5.1** ist der schematische Aufbau dieser Experimentserie dargestellt.

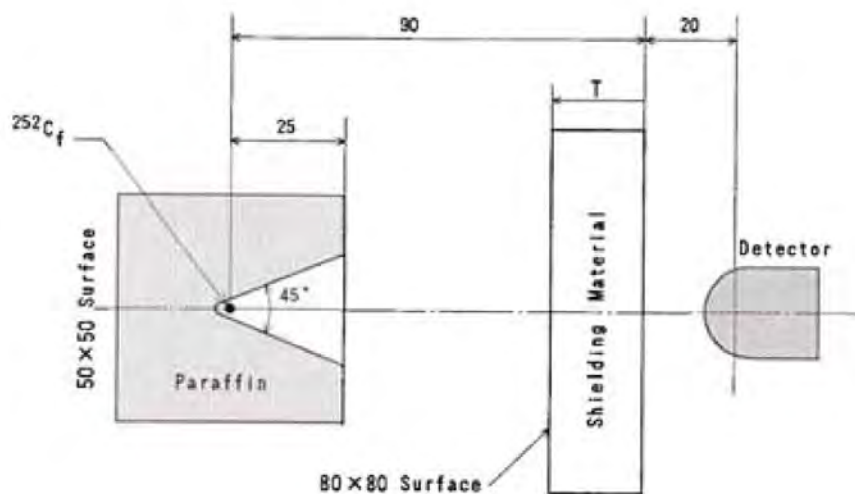


Abb. 5.1 Schematische Skizze des experimentellen Aufbaus der Experimente von Ueki et al.

Die Neutronenquelle befand sich im Zentrum eines $50 \text{ cm} \times 50 \text{ cm}$ messenden Blocks aus Paraffin. Aus diesem Block wurde in Richtung der Abschirmung ein Kegel mit einem Öffnungswinkel von 45° entfernt. Das hintere Ende der Abschirmung war 90 cm von der Neutronenquelle entfernt und jeweils 80 cm lang und breit. Die Dicke der Abschirmung ist der Parameter, der in der Experimentserie variiert wurde. Ausgehend von dem nicht-abgeschirmten Fall (0 cm) wurden Graphit-Platten mit folgenden Dicken als Abschirmung verwandt: 2 cm , 5 cm , 10 cm , 15 cm , 20 cm , 25 cm , 30 cm und 35 cm . Der Neutronendetektor befand sich in allen Fällen der Experimentserie im Abstand von 20 cm von der Abschirmung auf der Höhe der Neutronenquelle. In den Nachrechnungen wurde das Graphit zu 100% aus Kohlenstoff bestehend, ohne Verunreinigungen und mit einer Dichte von $1,7 \text{ g/cm}^3$ angenommen.

Das Ansprechverhalten der Neutronendetektoren ist nicht genau bekannt. Im Rahmen der folgenden Nachrechnungen wurden daher die ANSI-Dosiskonversionsfaktoren

(1977) zur Ermittlung der gesuchten Äquivalenzdosis angewandt, obwohl der typischerweise von Ueki et al. verwendete Detektor (Studsvik 2202D) bekanntermaßen für hochenergetische Neutronen in seinem Ansprechverhalten z. T. von den ANSI Dosis-konversionsfaktoren abweicht. Der Detektor wurde nicht explizit modelliert, da auch hier Unsicherheiten z. B. über die exakte Position des Neutronendetektors innerhalb der Polyäthylen-Kugel bestehen. Stattdessen wurde der Detektor rechnerisch durch einen Punktdetektor angenähert.

Die Neutronenquelle aus ^{252}Cf wird ebenfalls als Punktquelle approximiert. Dem Neutronenspektrum liegt die Annahme eines Watt-Spaltpektrums mit den Parametern $a = 1,025 \text{ MeV}$ und $b = 2,926 \text{ MeV}$ zu Grunde. Die Halbwertszeit von ^{252}Cf beträgt $2,654 \text{ Jahre}$. Es zerfällt zu $96,91\%$ durch Alpha-Zerfälle. Die verbleibenden $3,09\%$ der Zerfälle können der Spontanspaltung zugeordnet werden. Die Quellstärke wurde von Ueki et al. mit $4,05\text{E}+07 \text{ n/s}$ angegeben.

Die Experimente fanden in einem Raum bei Zimmertemperatur statt. Der Einfluss dieses Raumes selbst auf die experimentellen Ergebnisse wurde durch zusätzliche Messungen subtrahiert. Daher ist explizite eine Modellierung des Raumes nicht notwendig.

Die Ergebnisse des Experiments sind als Verhältnis der gemessenen Äquivalenzdosen der abgeschirmten Quelle zur nicht-abgeschirmten Quelle ausgedrückt und werden im Folgenden als Abschwächungsfaktoren bezeichnet.

5.1.1.2 Modellierung

Die Modellierung der neun Fälle erfolgte nach den im vorherigen Kapitel beschriebenen Vereinfachungen mit Hilfe der Sequenz MAVRIC des SCALE Programmpaketes Version 6.1. Für die Dicke der Graphit-Abschirmung von 35 cm ist eine Keno-3d-Darstellung (Schnitt entlang der Symmetrieachse) des umgesetzte Modell in **Abb. 5.2** wiedergegeben.

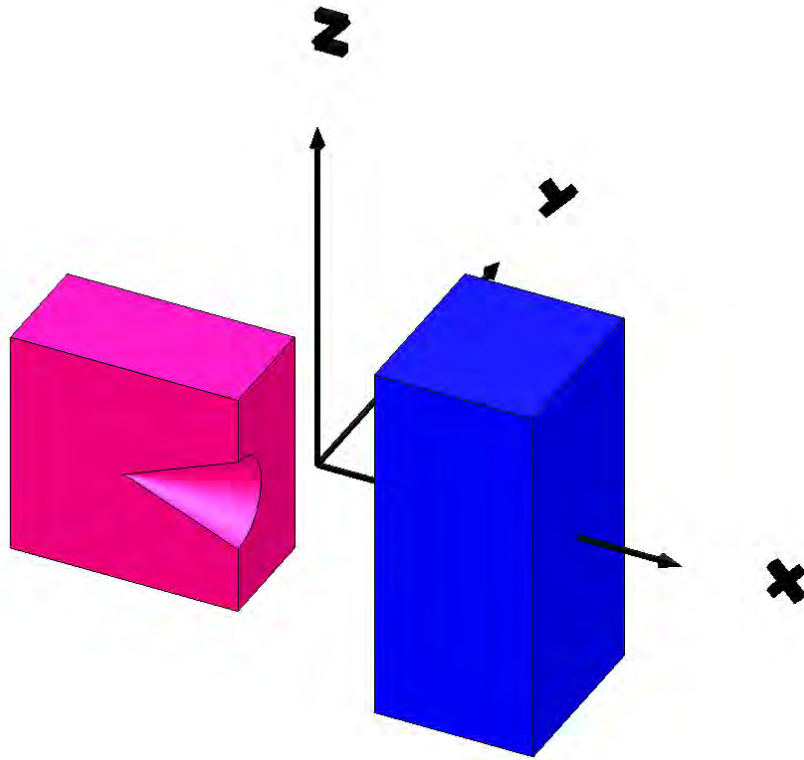


Abb. 5.2 Schnitt durch das erstellte MAVRIC-Modell für den Fall der Abschirmdicke von 35 cm

In der MAVRIC-Sequenz wird das für Abschirmrechnungen optimierte Monte Carlo Programm Monaco für die Berechnung des Strahlungstransports eingesetzt. Dabei handelt es sich um ein Programm, das mit Multigruppen-Wirkungsquerschnitten arbeitet. Kontinuierliche Punktwirkungsquerschnitte können bislang nicht direkt verwendet werden; diese Möglichkeit soll aber in einer künftigen Programmversion folgen. Bei der Nachrechnung der Experimentserie wurden die beiden auf ENDF/B-VII basierenden, in SCALE hinterlegten Wirkungsquerschnittsbibliotheken mit 200 bzw. 27 Energiegruppen für Neutronen sowie 47 bzw. 19 Energiegruppen für Photonen eingesetzt, von denen hier hauptsächlich die mit der feineren Bibliothek ermittelten Resultate diskutiert werden. Da in den Experimenten keine Photonen gemessen wurden, wurde die Erzeugung von Photonen über (n,γ) -Prozesse in den Rechnungen vernachlässigt.

Bei den „reinen“ Monaco-Rechnungen, d. h. ohne Vorrechnungen mittels CADIS (siehe unten), kamen die sogenannten „Weight Windows“ auf Basis von Expertenschätzung als Mittel zur Varianzreduktion zum Einsatz. Dabei wird das Gewicht der Neutronen, die eine räumliche oder energetische Grenze überschreiten, mit einem Zielgewicht in der neuen Umgebung verglichen. Ist das Gewicht höher als das zulässige Intervall des

Zielgewichts vorgibt, wird das Neutron in mehrere Neutronen mit geringerem Gewicht geteilt, und diese werden weiter verfolgt. Im umgekehrten Fall wird „Russisches Roulette“ eingesetzt, d. h. es wird – unter Erhaltung des Gewichtes der Neutronen im statistischen Mittel – entschieden, ob das Neutron weiter verfolgt wird oder nicht. Somit soll vermieden werden, dass Neutronen mit geringem Gewicht, die zum Endergebnis wenig beitragen, unnötig viel Rechenzeit verbrauchen, und die Konvergenz der Rechnung deutlich, d. h. um bis zu Größenordnungen in der Rechenzeit, beschleunigt wird. In den Nachrechnungen wurden die Weight Windows auf die Energiegruppen der Neutronen bezogen. Das Zielgewicht in jeder Energiegruppe für Neutronen wurde auf den Wert 1 und das Window-Ratio, also das Verhältnis zwischen oberer Grenze und unterer Grenze des zulässigen Gewichtsbereichs, auf den Wert 10 gesetzt. Eine räumliche Unterteilung der Weight Windows ist ebenfalls möglich, fand hier aber nicht statt.

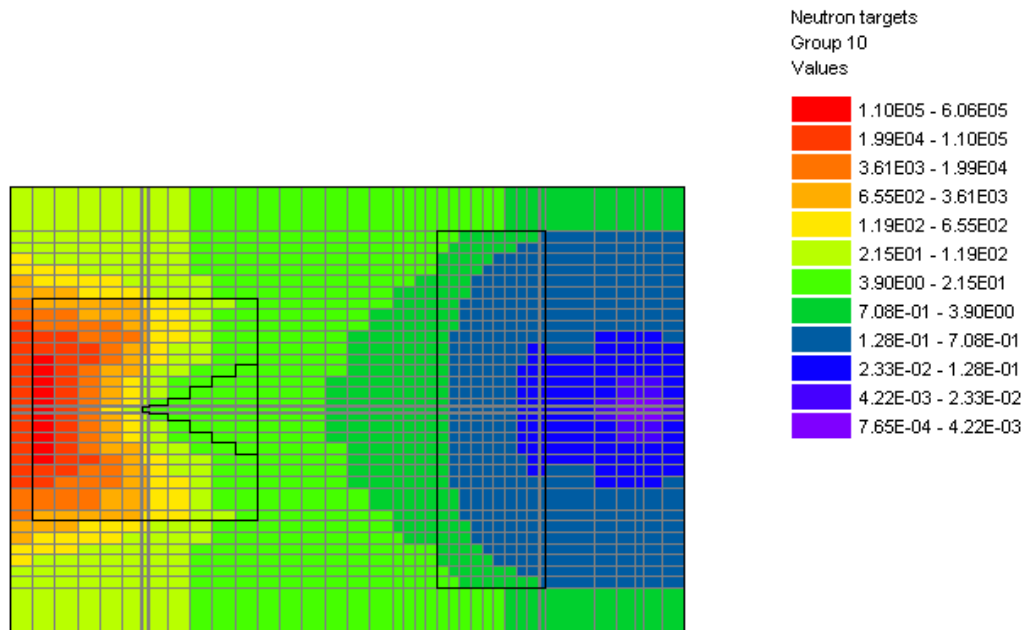
Die Nachrechnungen, bei denen CADIS („Consistent Adjoint Driven Importance Sampling“) als Vorrechnung zur eigentlichen Abschirmrechnung angewandt wurde, wurden für jeden experimentellen Fall in drei unterschiedlich detaillierten Konfigurationen durchgeführt. Mit dieser CADIS-Methode wird die sog. „Importance Map“, welche letztlich aus geeignet gewählten Weight Windows besteht, durch eine adjungierte Rechnung ermittelt. In der MAVRIC-Sequenz kommt hierzu das deterministische Transportprogramm DENOVO zum Einsatz, das die Boltzmann-Transportgleichung in drei Raumdimensionen in kartesischen Koordinaten löst. Als Ursprung der adjungierten Quelle diente hier der Punktdetektor hinter der Abschirmung. Das Quellspektrum wurde durch das Ansprechverhalten des Detektors vorgegeben, im hier vorliegenden Fall also durch die ANSI-Dosis-Konversionsfaktoren. Die Geometrie des Problems muss dazu durch eine entsprechende kartesische Darstellung approximiert werden, auf welcher DENOVO die Boltzmann-Gleichung numerisch löst. Die drei Konfigurationen pro Fall der Experiment-Serie unterscheiden sich in der Feinheit der zugehörigen numerischen Gittereinteilung. Die gewählte Nomenklatur dieser drei Konfigurationen – im Folgenden CADIS-Konfigurationen genannt – sowie deren Hauptmerkmale werden in der folgenden Aufzählung kurz zusammengefasst:

- 1D: Die Feineinteilung der Anordnung findet überwiegend in x-Richtung statt. Die Gitterbreite beträgt außerhalb der Abschirmung und somit insbesondere auch innerhalb des Paraffin-Blocks 5 cm. Im Bereich der potentiellen Graphit-Abschirmung ist die Breite des Gitters in x-Richtung auf 2,5 cm reduziert, um hier eine höhere Genauigkeit zu ermöglichen. In y- und z-Richtung werden je-

weils nur die Materialgrenzen berücksichtigt, d. h. es wurden Grenzen bei ± 50 cm, ± 40 cm sowie um die Quelle und den Detektor herum bei ± 0.5 cm eingefügt. Insgesamt besteht das Gitter hier aus 1025 Zellen.

- 3D: Die Aufteilung des Gitters erfolgt hier x-Richtung analog zur Konfiguration 1D. In y- und z-Richtung wurde die Gitterweite jedoch auf 5 cm reduziert. Insgesamt ergaben sich hier 18081 Zellen.
- EXT: Die Unterteilung in x-Richtung blieb unverändert. In y- und z-Richtung wurde die Unterteilung verfeinert, sodass der Abstand zwischen zwei Gittergrenzen 2,5 cm betrug. Dies führte zu einer Gesamtanzahl von 54612 Zellen.

Ein Beispiel für eine resultierende Importance Map ist für den Fall der 25 cm breiten Graphit-Abschirmung für die Neutronenenergiegruppe 10 der ENDF/B-VII Bibliothek mit 27 Energiegruppen für Neutronen in **Abb. 5.3** gezeigt. Abgebildet sind die Importances für die Neutronengruppe^o10 der insgesamt 27 Neutronengruppen. Der dargestellte Schnitt ist auf Höhe $z = 0$ cm, also auf der Höhe, auf der sowohl die Neutronenquelle als auch der Punktdetektor angebracht sind. In durchgezogenen Linien ist das Geometriemodell überlagert, so wie es sich in der Gitterstruktur wiederfindet.



Scale: |—————| 50.0 cm

Abb. 5.3 Berechnete Importance Map für die „ext“-Unterteilung des Gitters für DENOVO für den Fall der 25 cm starken Graphit-Abschirmung

Das Beispiel zeigt, dass Neutronen, die von der Quelle aus nach hinten, also in negativer x-Richtung, ausgestrahlt werden, sehr schnell in Zellen mit einem hohen Ziel-Gewicht gelangen (rote Farbe). Neutronen, die sich in diese Richtung bewegen, tragen vergleichsweise wenig zum Messergebnis am Detektor bei und werden daher konsequent durch das Russische Roulette und die hohen Ziel-Gewichte verworfen. Rund um die Quelle erkennt man umgekehrt die Bereiche, die sehr viel zum Messergebnis beitragen. In diesen Zellen sind die Ziel-Gewichte in den Zellen niedrig. Somit werden Neutronen, die mit hohem Gewicht in diesen Zellen landen, in mehrere Neutronen mit reduziertem Gewicht aufgeteilt, deren Historien einzeln simuliert und die Beiträge am Detektor entsprechend gewichtet berücksichtigt werden. Die isotrope Abstrahlung der adjungierten Quelle ist nahe des Detektors gut erkennen (blaue Farbe). Durch die Abschirmung wird die Verteilung etwas abgeflacht. Im Paraffin-Block ist die Streuung der Neutronen in dem die eigentliche Quelle umgebenden Material gut zu erkennen (grüne Farbe). Für die Parameter, die die CADIS-Rechnungen numerisch steuern, wurden die in SCALE vordefinierten Standardwerte verwendet. Darunter fällt neben den Parametern für die Legendre-Ordnung auch der Parameter „windowRatio“.

Um einen sinnvollen Vergleich der Rechenmethoden mit und ohne CADIS zu erhalten, wurden in allen Rechnungen insgesamt 10^8 Neutronen simuliert und von der Quelle aus gestartet. Für die internen statistischen Tests, die in der MAVRIC-Sequenz durchgeführt werden, wurden diese Neutronen in 5000 Chargen mit jeweils 20000 Neutronen aufgeteilt.

5.1.1.3 Ergebnisse

Im Folgenden werden die wesentlichen Resultate der durchgeführten Untersuchungen diskutiert. Insbesondere werden hier hauptsächlich die Resultate der Rechnungen mit der feiner Energie-aufgelösten Wirkungsquerschnittsbibliothek gezeigt. Weitere Details und zusätzliche Ergebnisse, vor allem die Resultate der Rechnungen mit der Wirkungsquerschnittsbibliothek mit nur 27 Energiegruppen, sind in /BOC 13/ zu finden.

In **Abb. 5.4** wird zunächst das Neutronenspektrum, das am Detektor gemessen wurde, für die verschiedenen Abschirmungen gezeigt. Die gezeigten Spektren entstammen den Rechnungen mit der vergleichsweise feiner aufgelösten Neutronenwirkungsquerschnittsbibliothek „v7-200n47g“ mit 200 Energiegruppen für Neutronen und der Analysemethode CADIS°EXT. Es ist zu erkennen, wie mit zunehmender Dicke der Abschirmung die Energie der detektierten Neutronen zu niedrigeren Energien hin verschoben wird. Dies wird durch die Streueffekte in der Abschirmung hervorgerufen.

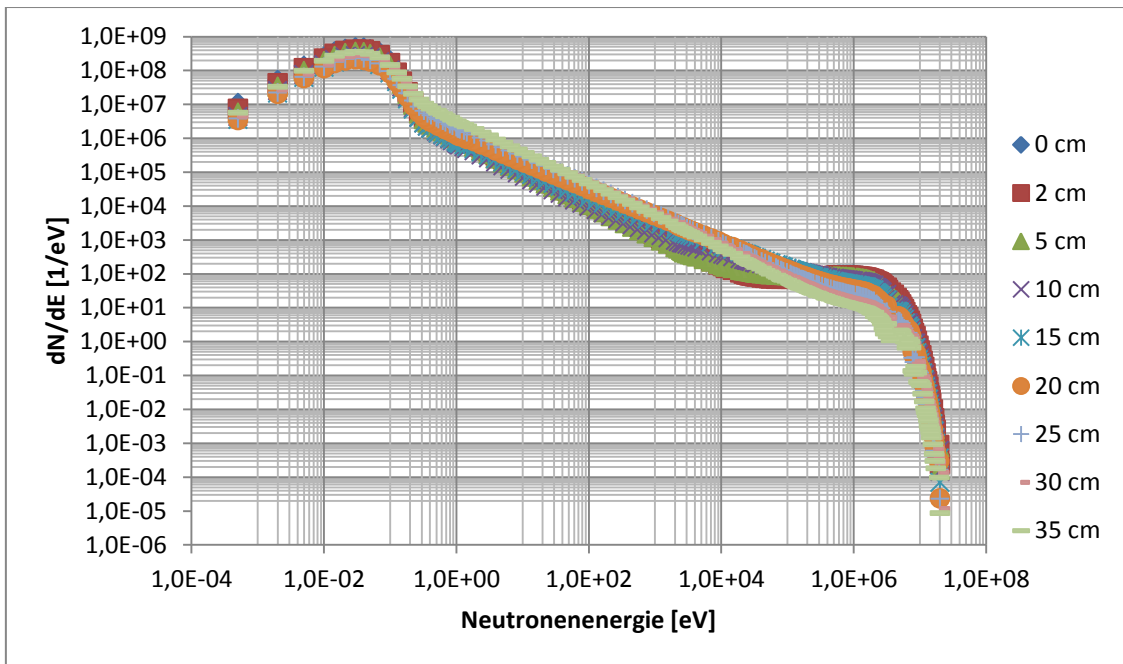


Abb. 5.4 Neutronenspektrum in 200 Energiegruppen für die neun mit der CADIS°EXT-Methode analysierten Fälle

Der Anteil der Neutronen, die von der Neutronenquelle aus direkt, d. h. ungestreut, im Detektor landen, ist in **Abb. 5.5** dargestellt. Man erkennt, dass überwiegend die Neutronen mit Energien über 10°keV die Abschirmung ungestreut passieren. Weiterhin ist zu erkennen, dass dieser Beitrag des Neutronenflusses mit zunehmender Dicke der Abschirmung abnimmt.

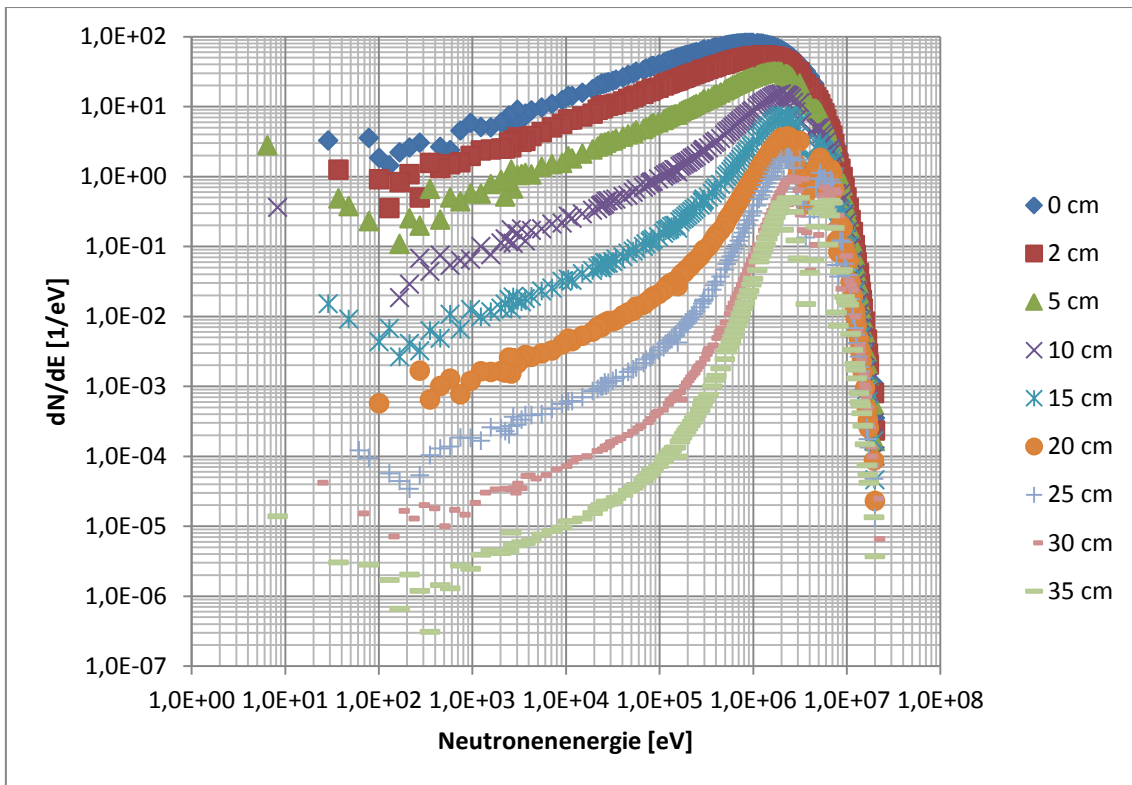


Abb. 5.5 Beitrag der nicht gestreuten Neutronen am Neutronenfluss in logarithmischer Skalierung der y-Achse

Als nächstes werden die Ergebnisse der Berechnung der Äquivalenzdosis diskutiert, die in **Abb. 5.6** dargestellt sind. Die unterschiedlich feinen Modellierungen zeigen hier kaum Unterschiede im Ergebnis, wenn die Berechnungen unter Verwendung der gleichen Wirkungsquerschnittsbibliothek durchgeführt werden. Der Vergleich zwischen den beiden Multigruppenstrukturen (200 Energiegruppen gegenüber 27 Energiegruppen) zeigt allerdings Abweichungen, die mit zunehmender Abschirmdicke anwachsen und im Falle der stärksten Abschirmung zu einem relativen Unterschied von über 19 % führen. Dabei ergeben die Rechnungen mit den 27 Energiegruppen für Neutronen in allen Fällen höhere Äquivalenzdosen, sind also im direkten Vergleich als konservativ einzustufen. Diese Ergebnisse sind nahezu unabhängig von der Art der durchgeführten Vorrechnung, ob mit Monaco alleine oder mit vorgeschalteter CADIS-Rechnung zur Bestimmung der Weight Windows /BOC 13/.

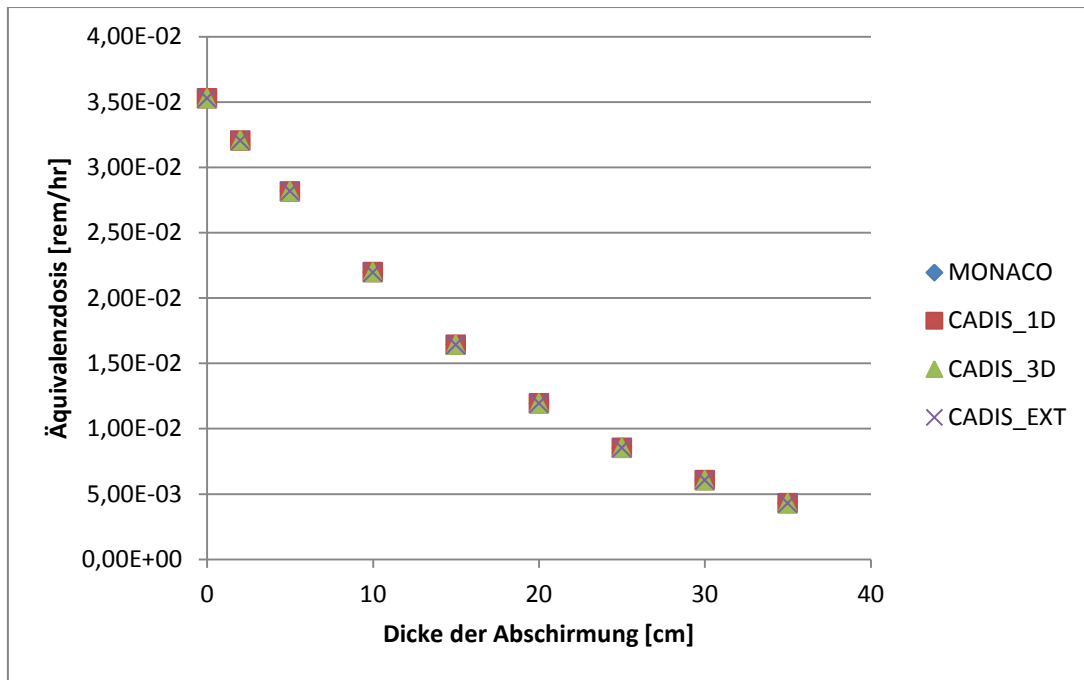


Abb. 5.6 Berechnete Äquivalenzdosis am Punktdetektor für die neun experimentellen Konfigurationen und die vier eingesetzten CADIS-Konfigurationen unter Verwendung der Wirkungsquerschnittsbibliothek mit 200 Energiegruppen für Neutronen

Bei den Mittelwerten der erzielten Resultate zeigte sich kaum ein Unterschied zwischen den zum Einsatz gekommenen CADIS-Konfigurationen. Im Folgenden wurde die erzielte Genauigkeit der Rechnungen, d. h. die Standardabweichung, analysiert, grafisch dargestellt in **Abb. 5.7**. Hier zeigt sich, dass die mit der CADIS-Methode durchgeführten Rechnungen eine geringere Standardabweichung erzielen als die reine Monaco-Rechnung ohne den Einsatz dezidierter Varianzreduktionsmethoden. Man erkennt jedoch an allen Konfigurationen, dass die Standardabweichung in den ersten Fällen bis zu einer Abschirmdicke von 10 cm anwächst und danach wieder abfällt. Dies ist ein Effekt der mittleren freien Weglänge schneller Neutronen in Graphit, die bei etwa 12,7 cm liegt. Bei geringen Abschirmungen ist der Anteil des ungestreuten Neutronenflusses am Detektor sehr hoch und dominiert den Gesamtfluss. Dadurch gelangt ein hoher Anteil der Neutronen ungestört zum Detektor, und es ergibt sich eine vergleichsweise niedrige Standardabweichung. Mit zunehmender Abschirmdicke fällt dieser Anteil sehr schnell ab, wodurch zunächst auch die Unsicherheit vergrößert wird, da Neutronen vom Detektor weggestreut werden und diesen nicht erreichen. Bei zunehmender Dicke der Abschirmung bewirkt die CADIS-Methode eine Optimierung der Weight Windows-Verteilung, durch die „Vervielfältigung“ der gestreuten Neutronen steigt die Teilchensta-

tistik am Detektor wieder an und führt zu einer Abnahme der Unsicherheit. Die Standardabweichung wird dann vom Anteil des gestreuten Neutronenflusses am Gesamtfluss bestimmt. Im Bereich zwischen 0 cm Abschirmdicke und 10 cm Abschirmdicke steigt die Unsicherheit auf Grund der konkurrierenden Einflüsse der beiden Beiträge zum Neutronenfluss zunächst an. Die unterschiedlichen Beiträge zum Neutronenfluss in Abhängigkeit der Abschirmdicke werden in **Abb. 5.8** für das Beispiel der reinen Monaco-Rechnung gezeigt.

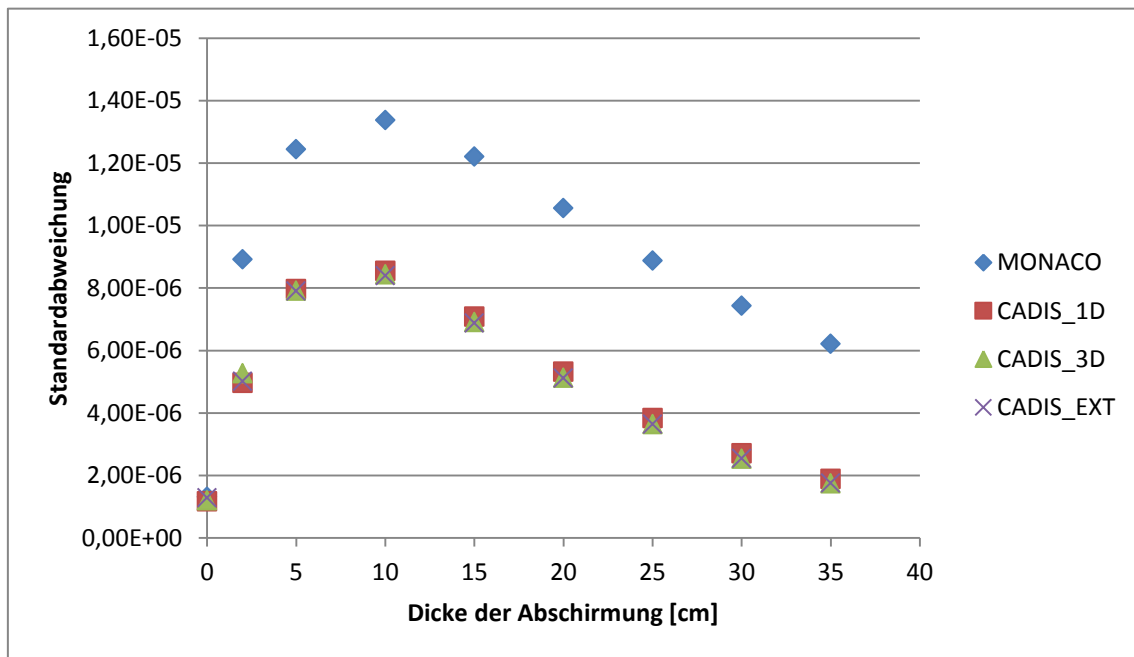


Abb. 5.7 Standardabweichung der am Punktdetektor ermittelten Äquivalenzdosis für die experimentellen Fälle und die vier MAVRIC-Konfigurationen, bei Verwendung der Wirkungsquerschnittsbibliothek mit 200 Energiegruppen für Neutronen

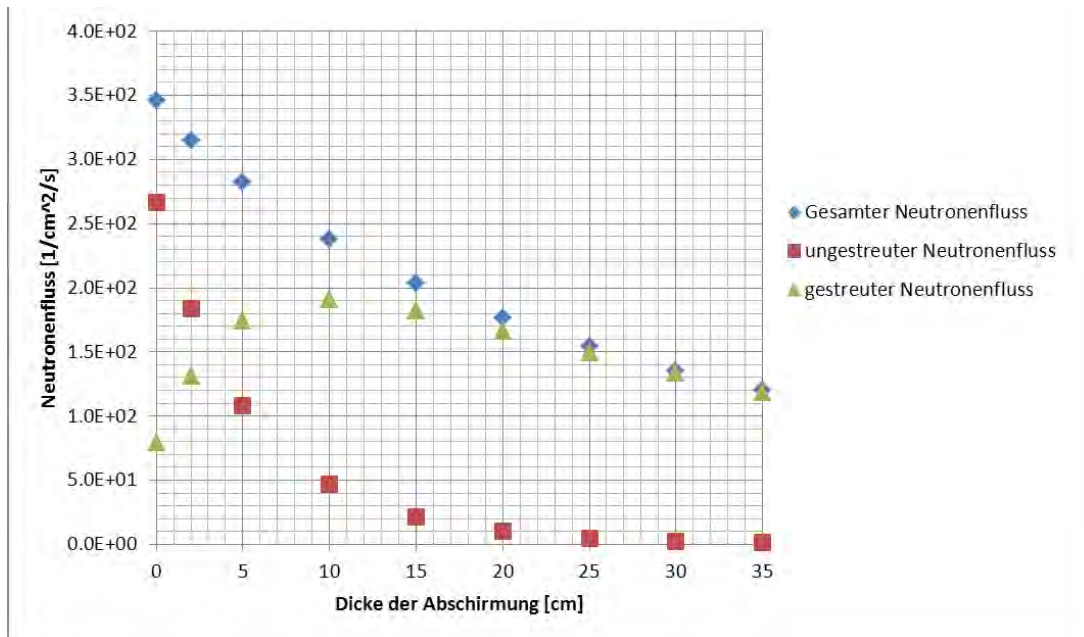


Abb. 5.8 Zusammensetzung des Neutronenflusses aus gestreuten und ungestreuten Anteilen für die verschiedenen analysierten Fälle am Beispiel der Monaco-Rechnung mit 27 Neutronenenergiegruppen

Die CADIS-Methode kann also dazu beitragen, die Unsicherheit des Ergebnisses am Punktdetektor zu verringern. Da in dieser Methode neben der eigentlichen Monte Carlo Rechnung in Monaco zusätzlich eine deterministische Rechnung mit DENOVO durchgeführt werden muss, stellt sich auch die Frage, wie sich dies in der gesamten Rechenzeit widerspiegelt. Zunächst ist festzustellen, dass die Rechenzeiten in Monaco durch das Vorschalten von CADIS zum Teil deutlich reduziert werden können, wie in **Abb. 5.9** zu erkennen ist. Die Rechenzeit für die jeweiligen Monaco-Rechnungen ohne deterministische Vorrechnung ist relativ konstant für alle Abschirmdicken, während die Rechenzeit in Monaco für die mit CADIS vorgewichteten Konfigurationen mit zunehmender Abschirmdicke ansteigt, hier aber immer noch deutlich unterhalb der Rechenzeit der reinen Monaco-Rechnung bleibt. Die hier aufgetragenen Zeiten beziehen sich auf die 10^8 Neutronen, die von der ^{252}Cf -Quelle aus gestartet werden.

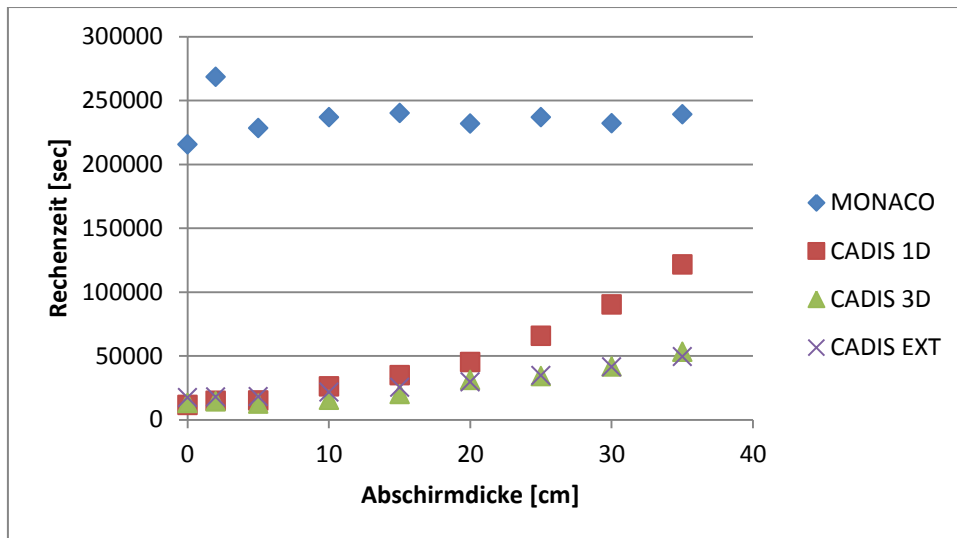


Abb. 5.9 Rechenzeit für die jeweilige MAVRIC-Konfiguration bei unterschiedlichen Schichtdicken mit 200 Neutronenenergiegruppen in der Monte Carlo Simulation mit Monaco

Im Vergleich zu den Rechenzeiten in Monaco sind in **Abb. 5.10** die Zeiten aufgetragen, die von der DENOVO-Rechnung verbraucht werden. Die Zeiten steigen mit zunehmender Dicke der Abschirmung leicht an. Die Zeiten für die Konfigurationen mit höherer Anzahl an Maschen im DENOVO-Gitter sind entsprechend höher. Jedoch ist der Zeituwachs kleiner als das Verhältnis der Anzahl der Maschen der Konfigurationen. Ferner sind die Rechenzeiten der DENOVO-Rechnungen hier sehr gering verglichen mit den Rechenzeiten der Monaco-Rechnungen und damit der gesamten Rechnungen.

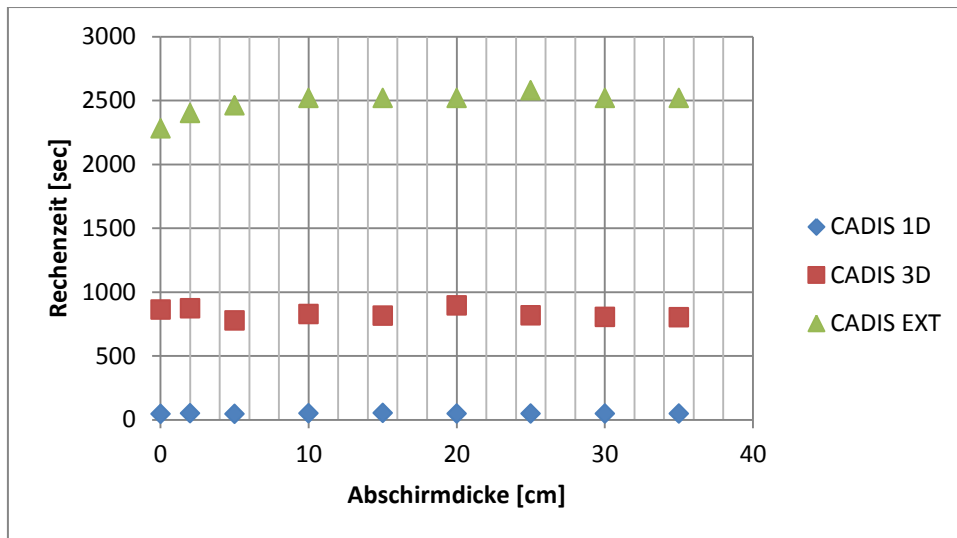


Abb. 5.10 DENOVO-Rechenzeit für die jeweilige MAVRIC-Konfiguration bei unterschiedlichen Schichtdicken mit 200 Neutronenenergiegruppen nach der deterministischen Bestimmung der Importance Map

Um den Zeitgewinn, den man durch den Einsatz der CADIS-Methode erzielen kann, zu quantifizieren, sind in **Abb. 5.11** (200 Energiegruppen) die Laufzeiten der CADIS-Konfigurationen im Verhältnis zur Monaco-Rechnung ohne CADIS aufgetragen. Ein Gewinn an Rechenzeit kann vor allen Dingen in den Fällen mit geringer Abschirmdicke erzielt werden. Hier wird ein Zeitgewinn von bis zu einem Faktor 19 erzielt. Bei dickeren Abschirmungen nimmt der Zeitgewinn nach und nach ab. Am höchsten fällt er für die CADIS-Konfigurationen „CADIS 3D“ aus. Für die „CADIS EXT“-Konfiguration wird bei einer Dicke von 35 cm noch immer ein Faktor von ca. 4,6 an Zeitgewinn gegenüber der reinen Monaco-Rechnung mit 200 Energiegruppen erzielt.

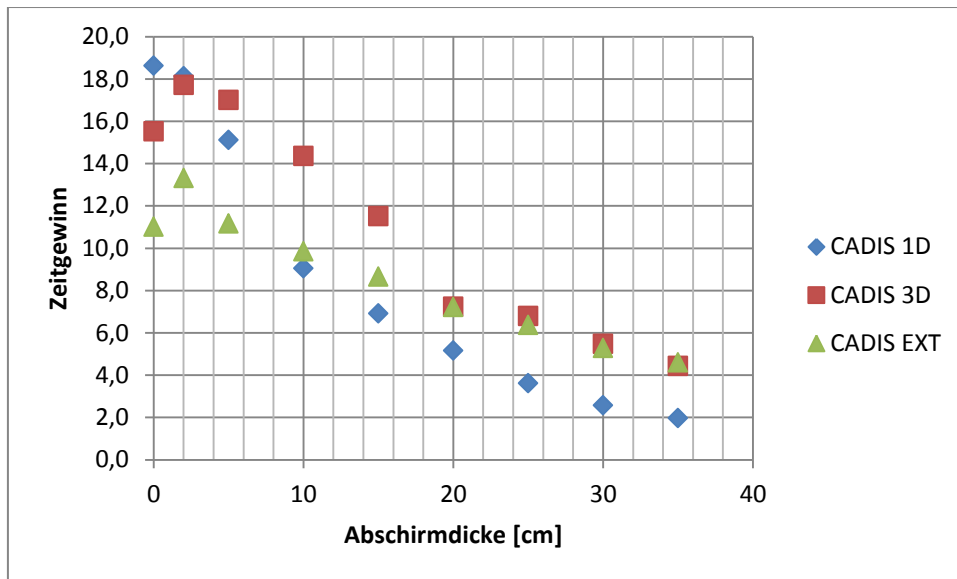


Abb. 5.11 Zeitgewinn durch die Anwendung der CADIS-Methode in den verschiedenen Konfigurationen mit 200 Neutronenenergiegruppen im Vergleich zur reinen Monaco-Rechnung

Neben den absoluten Rechenzeiten bietet es sich an, bei einem Monte Carlo basierten Ansatz wie er in der finalen Monaco-Rechnung umgesetzt ist, eine zusammengesetzte Größe aus Rechenzeit und erzielter Rechengenauigkeit zu betrachten. Diese „Figure of Merit“ (FOM) Größe berechnet sich nach:

$$FOM = \frac{1}{T\sigma^2} \quad (5.1)$$

Dabei ist T die gesamte Rechenzeit des Problems und σ^2 das Quadrat der relativen Unsicherheit der Ergebnisgröße. Diese Größe FOM bietet sich zum Vergleich von Rechenkonfigurationen an, da sie für eine gegebene Konfiguration und Methode eine Konstante sein sollte. Dies rührt daher, dass die Rechenzeit linear mit der Anzahl der simulierten Neutronen ansteigt, während die relative Unsicherheit mit dem inversen der Wurzel der Anzahl der Neutronen sinkt. Vergleicht man nun die FOM zweier Konfigurationen, kann man daraus den relativen Zeitgewinn durch ein effizienteres Verfahren, also die „Beschleunigung“ der Rechnung ableiten. In **Abb. 5.11** werden diese Beschleunigungen als „Speedup“, dem Verhältnis des FOM der CADIS-Variante und des FOM der reinen Monaco-Rechnung dargestellt. Es zeigt sich erneut, dass die Konfiguration CADIS°1D nicht optimal ist und die Konfiguration mit dem feinsten DENOVO-Rechengitter, CADIS°EXT, den höchsten Beschleunigungswert erzielt. Das Ergebnis eines Beschleunigungsfaktors von etwa 60 für die 200 Energiegruppenrechnung im Fall von 35 cm Abschirmung für die Konfiguration CADIS°EXT bedeutet anders ausge-

drückt: Eine analoge Monaco-Rechnung würde etwa 60 mal mehr Rechenzeit benötigen als diejenige mit geeigneter CADIS-Vorrechnung, um die gleiche relative Unsicherheit des Ergebnisses für den gleichen Punktdetektor zu erzielen.

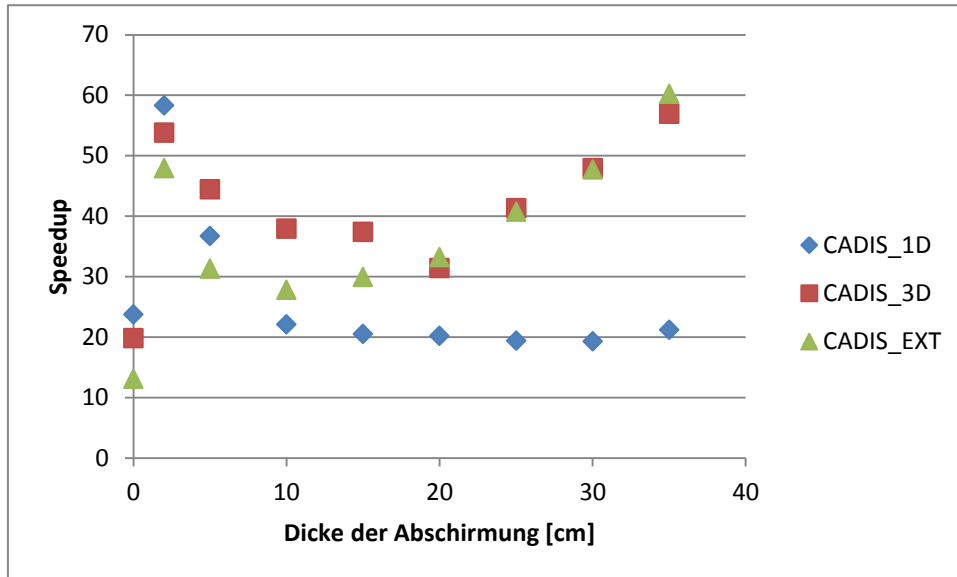


Abb. 5.12 Vergleich der FOM für die CADIS-Varianten mit Monaco für verschiedene Abschirmstärken

Vergleich von Rechenergebnissen mit experimentellen Daten

Neben der Erprobung der innovativen Möglichkeiten, die die Sequenz MAVRIC bietet, war ein weiteres Ziel der Untersuchungen, die Genauigkeit zu bestimmen, mit der im Experiment gemessene Werte reproduziert werden können. In Ueki et al. waren die Abschwächungsfaktoren der Äquivalenzdosis für die Fälle mit abschirmender Graphit-Platte im Vergleich zum Fall ohne Abschirmung gegeben. Die Ergebnisse der vier MAVRIC-Konfigurationen sind in **Abb. 5.13** und **Abb. 5.14** mit den experimentellen Werten vergleichend dargestellt. Hier zeigt sich, dass in allen Fällen die berechneten Ergebnisse die experimentellen Resultate überschätzen und die Abweichungen von den experimentellen Werten mit zunehmender Dicke der Abschirmung anwachsen. Die Abweichungen sind zu groß, als dass sie durch Ungenauigkeiten in den experimentellen Ergebnissen alleine erklärt werden könnten. Aus diesem Grund wurden einige Untersuchungen durchgeführt, in denen die MAVRIC-Optionen variiert wurden, um eventuell ungünstig gewählte Parameter oder sogar Schwachstellen in der MAVRIC-Modellierung zu identifizieren. Das Hauptaugenmerk lag hierbei auf der Definition und der Modellierung der ^{252}Cf -Neutronenquelle. Diese wurde in den bisherigen Betrachtungen

tungen stets als Punktquelle mit isotroper Abstrahlung angesehen. In **Tab. 5.1** sind einige Variationen der Neutronenquelle erläutert. Die ursprüngliche Punktquelle wurde in einigen Fällen durch diese Quelle ersetzt und die Ergebnisse mit denen der Punktquelle verglichen. Dabei wurde lediglich die geometrische Form der Quelle verändert; die Quellstärke blieb unverändert.

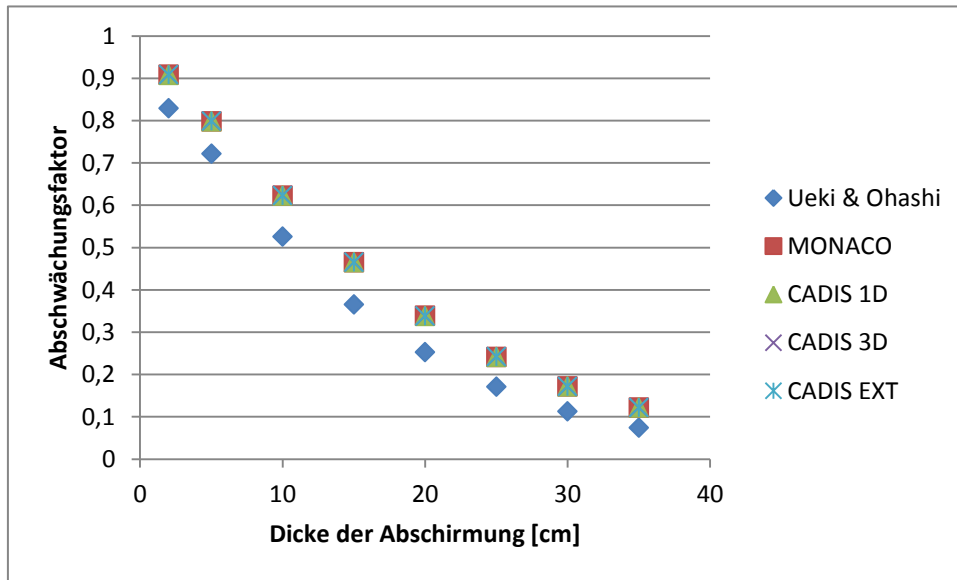


Abb. 5.13 Vergleich der Abschwächungsfaktoren der Äquivalenzdosis mit den experimentellen Werten von Ueki et al.

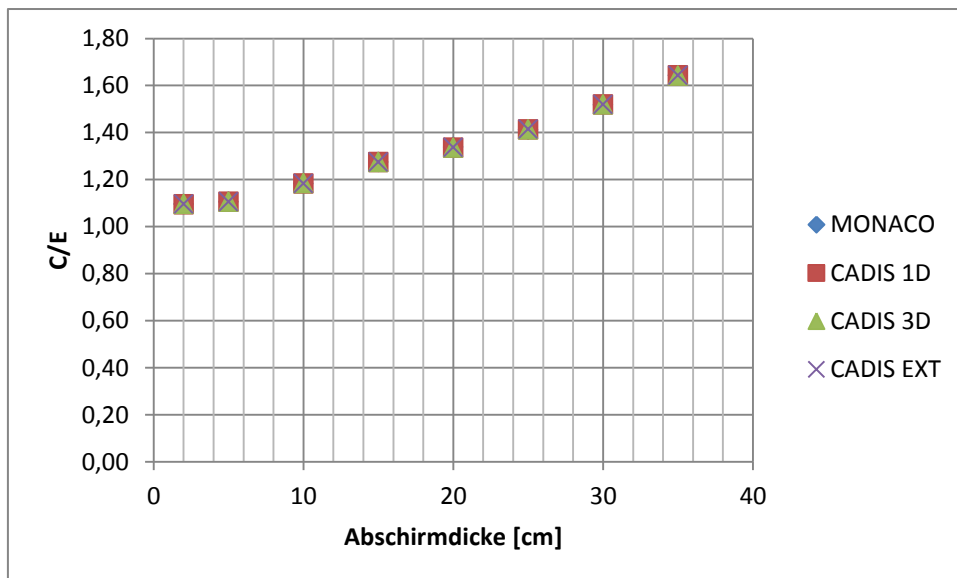


Abb. 5.14 C/E-Werte für die Analysen der Abschwächungsfaktoren der Äquivalenzdosis mit den experimentellen Werten von Ueki et al.

Tab. 5.1 Definition der Variationen der Modellierung der ^{252}Cf Neutronenquelle in den Abschirmrechnungen zum Experiment Ueki et al.

Bezeichnung	Erläuterung
default	Punktquelle am Ursprung
3dcub001	Würfel mit Kantenlänge 0.01 cm
3dcub005	Würfel mit Kantenlänge 0.05 cm
cub001	Stab mit Ausdehnung $x = \pm 0.01$ cm
cub005	Stab mit Ausdehnung $x = \pm 0.05$ cm
ps001	Punktquelle an $x = 0.01$ cm
ps0005	Punktquelle an $x = 0.005$ cm
psm001	Punktquelle an $x = -0.01$ cm
psm0005	Punktquelle an $x = -0.005$ cm
sph001	Kugel mit Radius 0.01 cm
sph005	Kugel mit Radius 0.05 cm

Zunächst wird der Einfluss der unterschiedlichen Quelldefinitionen auf den Neutronenfluss am Punktdetektor untersucht. Um die Streueffekte durch die Abschirmplatten auszublenden, wurde der Fall ohne Abschirmung zuerst analysiert. Die Resultate hierzu sind in **Abb. 5.15** wiedergegeben. Es zeigt sich, dass der Neutronenfluss am Punktdetektor für den bisher eingesetzten Punktdetektor über 40 % geringer ausfällt, als für alle anderen Quelldefinitionen. Dies gilt sowohl für die anderen eingesetzten Punktquellen, als auch für die Quellen, die eine – wenn auch geringe – räumliche Ausdehnung besitzen.

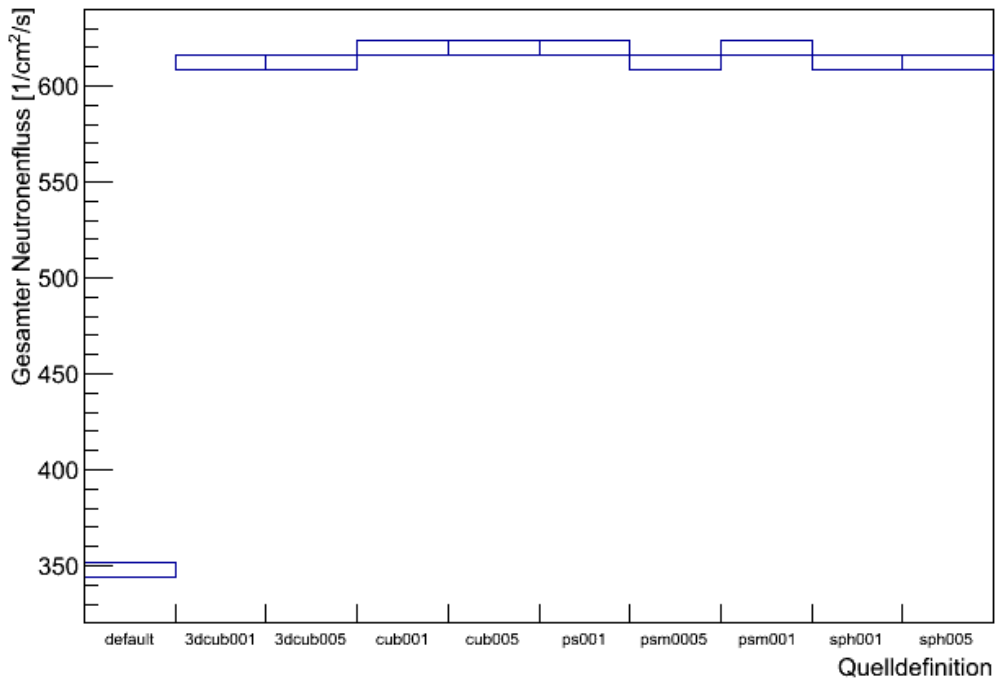


Abb. 5.15 Berechneter Neutronenflusses am Punktdetektor für die nicht abgeschirmte Quelle bei verschiedenen Quelldefinitionen

In **Abb. 5.16** und **Abb. 5.17** sind die Anteile des ungestreuten bzw. gestreuten Neutronenflusses am gesamten Neutronenfluss dargestellt. Beim ungestreuten Beitrag zum Neutronenfluss erkennt man, dass die größeren Volumenquellen im Vergleich dazu tendieren, etwas geringere Resultate zu liefern. Dies könnte dadurch erklärt werden, dass in diesem Fall die Startpunkte einiger Neutronen näher am Paraffinblock liegen als dies bei den anderen Quelldefinitionen der Fall ist, und so geringfügig mehr Neutronen in den Paraffinblock gelangen und dort streuen. Der Wert für die standardmäßig eingesetzte Punktquelle liegt dagegen auf dem gleichen Niveau wie die Stabquellen bzw. die übrigen, gegenüber dem Ursprung verschobenen Punktquellen. Dagegen ist beim Anteil des durch Streuung am Punktdetektor angelangten Neutronenflusses zu erkennen, dass die Punktquelle am Ursprung ein Resultat liefert, das etwa ein Viertel der jeweiligen Resultate der übrigen Quelldefinitionen beträgt. Da es sich bei diesen Werten um den Fall ohne Abschirmung handelt, ist der Paraffin-Block die einzige Möglichkeit zur Neutronenstreuung.

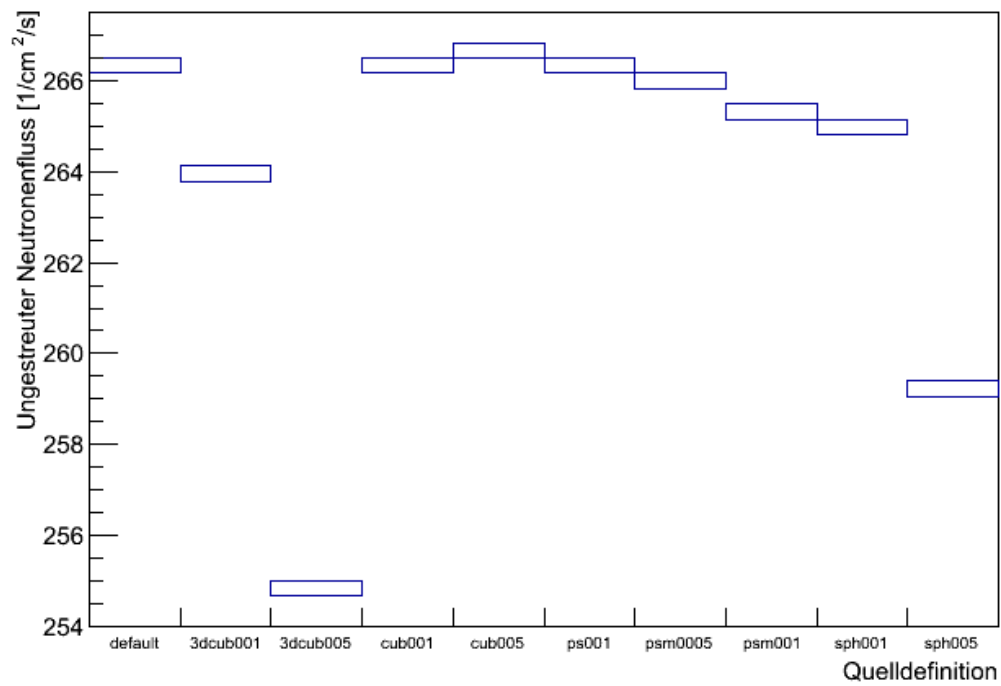


Abb. 5.16 Anteil des ungestreuten Neutronenflusses am Gesamtneutronenfluss am Punktdetektor für die nicht abgeschirmte Quelle, bei verschiedenen Quelldefinitionen

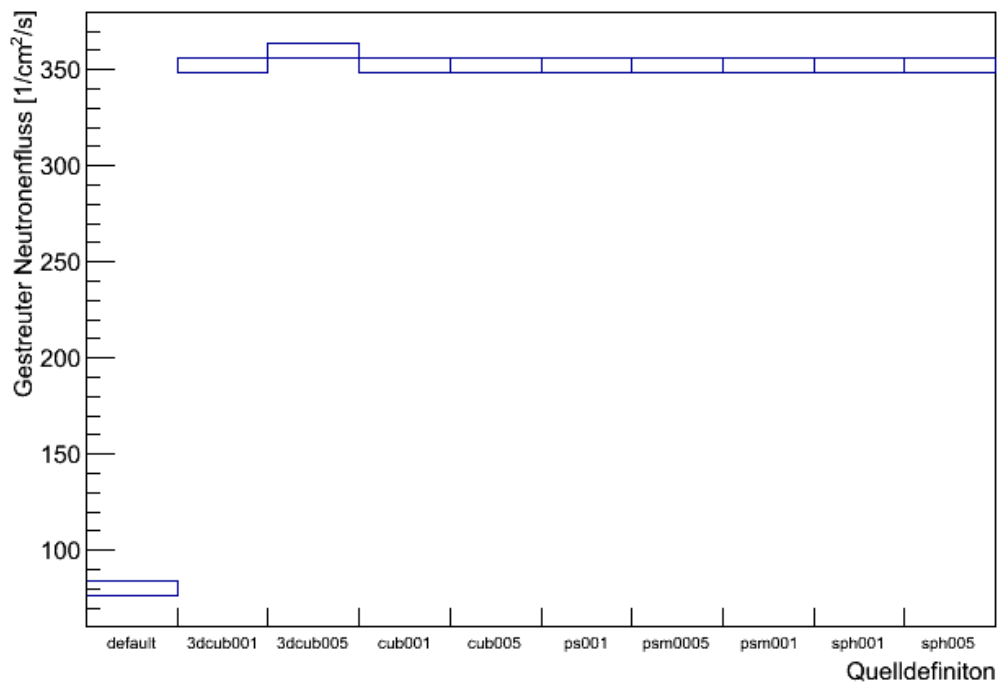


Abb. 5.17 Anteil des gestreuten Neutronenflusses am Gesamtneutronenfluss am Punktdetektor für die nicht abgeschirmte Quelle, bei verschiedenen Quelldefinitionen

Betrachtet man exemplarisch die Quelldefinition cub001 (Stabquelle von $x^{\circ} = -0,01$ cm bis $x^{\circ} = +0,01$ cm) und berechnet die verschiedenen Fälle mit und ohne Abschirmung, so ergeben sich für die MAVRIC-Konfiguration CADIS^{EXT} die in **Abb. 5.18** gezeigten Verhältnisse C/E der errechneten und experimentellen Abschwächungsfaktoren. Ein Vergleich mit **Abb. 5.14** zeigt, dass mit wachsender Schichtdicke der Abschirmung die Diskrepanz zwischen Experiment und Nachrechnung zwar weiterhin zunimmt, aber eine maximale Abweichung von 7,6 % erzielt wird; das ist eine für derartige Abschirmrechnungen akzeptable Abweichung zum Experiment.

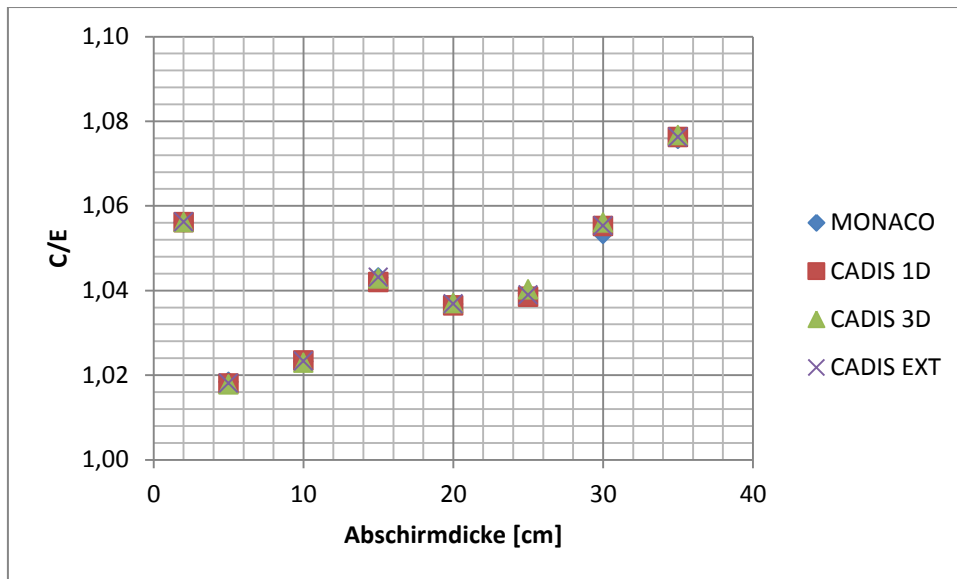


Abb. 5.18 C/E-Werte für die Analyse für eine exemplarische Quelldefinition

Der genaue Ursprung des durch die verschiedenen Quelldefinitionen hervorgerufenen Unterschiedes ist bisher noch ungeklärt. Es ist jedoch erstaunlich, dass eine anscheinend geringfügige Veränderung in der Modellierung die Ergebnisse derart beeinflussen kann.

5.1.2 Experiment ALARM-CF-FE-SHIELD-001

5.1.2.1 Experimentaufbau

Das Experiment ALARM-CF-FE-SHIELD-001 /NEA 10/ wurde in den 1980er Jahren am „Institute of Physics and Power Engineering“ (IPPE) in Obninsk (Russland) durchgeführt und bestand aus einer Serie von sieben Konfigurationen mit einer ^{252}Cf -Quelle, die jeweils von einem Eisenabsorber unterschiedlicher Dicke abgeschirmt wurde. Der schematische Aufbau ist in **Abb. 5.19** und **Abb. 5.20** wiedergegeben.

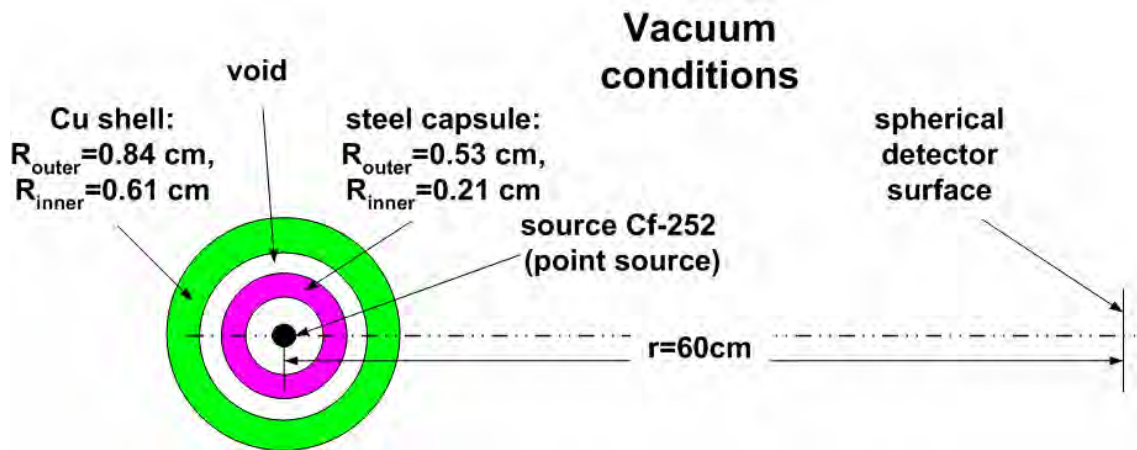


Abb. 5.19 Schematische Darstellung des Fall 1 des Experiments ALARM-CF-FE-SHIELD-001 ohne Abschirmung

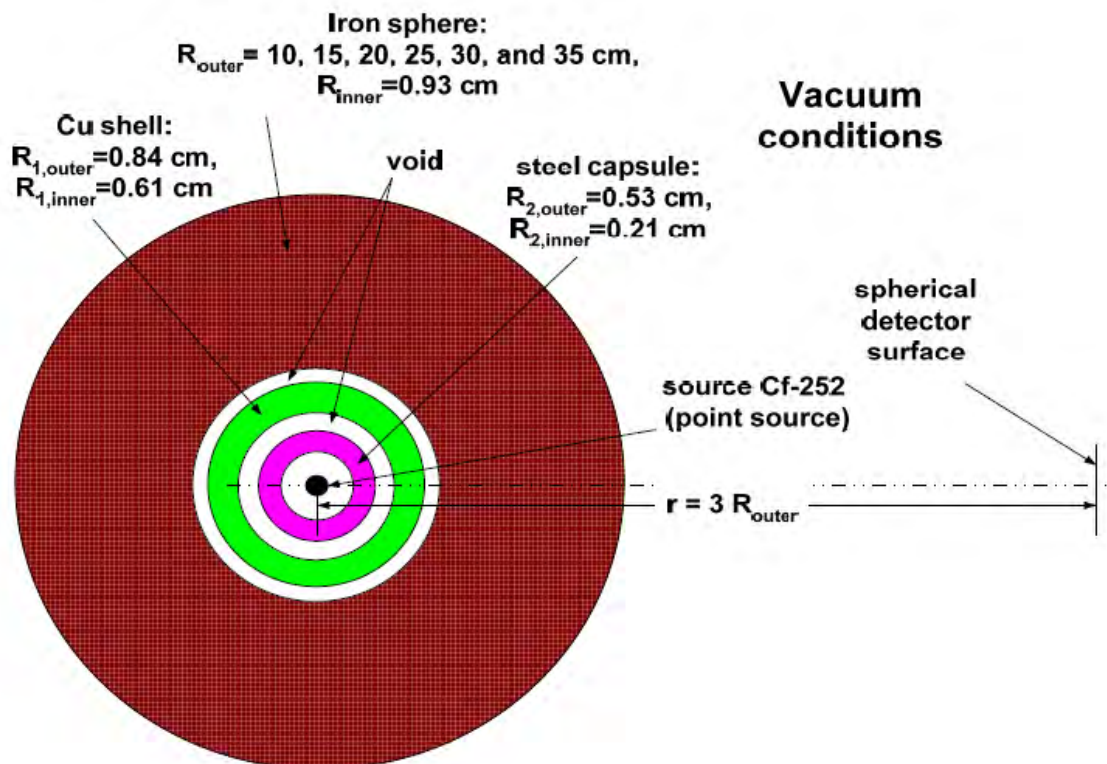


Abb. 5.20 Schematische Darstellung der Fälle 2 bis 6 des Experiments ALARM-CF-FE-SHIELD-001

Die verwendete zylindrische Quelle wurde im Benchmark-Modell zur Vereinfachung als kugelsymmetrisch angenommen, ebenso die die eigentliche ^{252}Cf -Quelle einschließen-

den Stahl- und Kupferzylinder. Mit Ausnahme des ungeschirmten Fall 1 war die ^{252}Cf -Quelle ferner von einer kugelförmigen Eisenabschirmung unterschiedlicher Wanddicke bzw. Kugelradius von 10 cm, 15 cm, 20 cm, 25 cm, 30 cm bzw. 35 cm umgeben (**Abb. 5.20**), wobei Fall 2 einen Kugelradius von 10 cm, Fall 3 einen Kugelradius von 30 cm, usw. aufwies. Die Neutronen- bzw. Gamma-Detektoren befanden sich im experimentellen Aufbau in einem Abstand vom dreifachen des Radius der Absorberkugeln. Zur Messung des Neutronenflusses wurden ein Einkristall-Szintillationspektrometer, ein Wasserstoff- ^3He -gefülltes Neutronenspektrometer mit Proportionalzähler und verschiedene sogenannte Bonner-Kugeln verwendet. Das Gammaspektrum wurde mit einem Einkristall-Szintillationsspektrometer bestimmt.

5.1.2.2 Modellierung

Alle genannten Fälle des Experiments wurden mit der MAVRIC-Sequenz aus dem SCALE-Programmpaket in Version 6.1 modelliert. Im Schnitt durch eines der Modelle erkennt man in **Abb. 5.21** die von Kupfer umgebene ^{252}Cf -Quelle (roter Kreis), sowie die Eisenabschirmung, die in diesem Fall einen Radius von 35 cm aufweist.

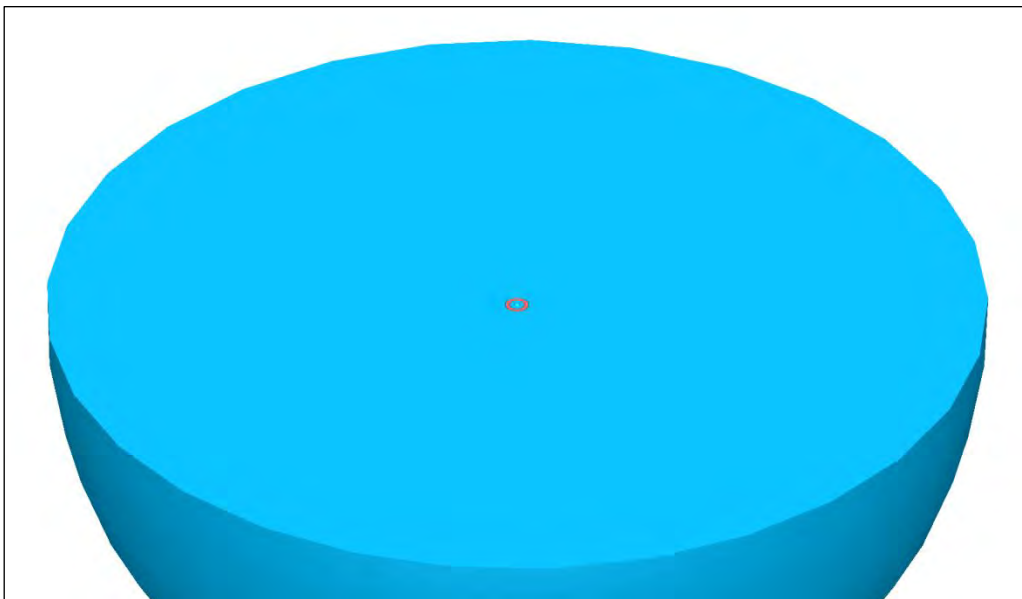


Abb. 5.21 Schnitt durch ein exemplarisches MAVRIC-Modell der abschirmenden Eisenkugel um die Quelle

Das Energiespektrum der ^{252}Cf -Quelle wurde mit einem Watt-Spektrum mit den Parametern $a^\circ=1,175$ und $b^\circ=1,04$ modelliert. Diese Werte weichen von den standardmäßig genutzten Werten $a^\circ=1,025$ und $b^\circ=2,926$ ab, werden jedoch in der Benchmark-

Beschreibung vorgeschlagen. Beim Vergleich des Quellspektrums der nicht-abgeschirmten Quelle aus MCNP5-Rechnungen mit den experimentell ermittelten Daten ergab diese Kombination von Parametern für das Watt-Spektrum die beste Übereinstimmung /NEA 10/.

Als Wirkungsquerschnittsbibliotheken kamen die beiden bereits erwähnten, im SCALE-Paket mitgelieferten, auf ENDF/B-VII-Daten basierenden Bibliotheken zum Einsatz. Im Weiteren liegt das Hauptaugenmerk auf der detaillierteren Bibliothek mit der feineren Energieauflösung.

Die Bestimmung der Ergebnisgrößen – Neutronenfluss in Teil 1 des Benchmarks, Photonfluss in Teil 2 sowie Zählraten in Teil 3 – erfolgte mit unterschiedlichen Methoden. Hintergrund ist die dem Experiment zu Grunde liegende Punktsymmetrie. Zum einen wurden die Ergebnisgrößen mit Hilfe von Punktdetektoren im jeweils vorgegebenen Detektorabstand ermittelt. Zum anderen wurde ein sogenanntes „Region Tally“ in Form einer Kugelschale eingesetzt. Die Dicke dieser Kugelschale wurde zu 0,2 cm gewählt, 0,1 cm in jeder Richtung um den nominalen Detektorabstand. Im Folgenden werden Ergebnisse, die mit dem Punktdetektor erzielt wurden, mit der Abkürzung PD gekennzeichnet und Ergebnisse, die durch das kugelschalenförmige Region Tally ermittelt wurden, mit der Abkürzung RT versehen.

Die Analysen der verschiedenen Fälle wurden mit unterschiedlichen, in der MAVRIC-Sequenz bereitgestellten Verfahren durchgeführt und die Ergebnisse miteinander verglichen. Zum einen wurden die Analysen mit dem reinen Monte Carlo Programm Monaco berechnet, und zur Varianzreduktion sogenannte „Weight Windows“ für die Energiegruppen der zu Grunde liegenden Bibliothek eingesetzt. In Fällen, in denen lediglich der Neutronenfluss von Interesse war, wurde der Photonentransport in der jeweiligen Rechnung unterdrückt. Das „Window Ratio“, mit dem das obere bzw. untere Grenzgewicht ermittelt wird, ab dem die simulierten Teilchen entweder in mehrere Teilchen aufgeteilt oder durch eine „Russisches Roulette“ genannte Methode eliminiert werden, wurde auf den Wert 10 gesetzt. Als zweite Methode kam die in der MAVRIC-Sequenz implementierte CADIS-Methode zum Einsatz. In dieser wird das deterministische Transport-Programm DENOVO benutzt um eine adjungierte Lösung des Problems auf einem in dem Modell hinterlegten Gitter bestimmen. Diese Lösung wird dann in der MAVRIC-Sequenz dazu benutzt, automatisiert Weight Windows auf dem definierten Gitter für jede Energiegruppe zu erzeugen, die dann in der folgenden Monaco-Rechnung eingesetzt werden. Die Parameter, mit denen die DENOVO-Rechnung ge-

steuert werden können, blieben gegenüber den Standardwerten unverändert. Das Gitter, auf dem die adjungierte Lösung berechnet wurde, variierte mit zunehmender Dicke der Abschirmung um die ^{252}Cf -Quelle. Innerhalb der Eisenkugel wurden jeweils Gitterabstände von 1 cm angesetzt, während in der umgebenden Luft zwischen Kugel und Detektor Gitterabstände von 5 cm modelliert wurden. Die Anzahl der in der Monaco-Simulation gestarteten Neutronen wurde in allen Rechnungen mit 5000 Chargen von jeweils 20000 Neutronen konstant gehalten. Im Rahmen der Monaco-Simulationen wurden keine weiteren Spaltungen induziert und auch – außer in Teil 2 des Benchmarks – keine sekundären Photonen erzeugt und verfolgt. Damit sollte die Rechen-dauer der Simulation optimiert werden.

Die in den Rechnungen simulierten Detektoren (Punkt-detektor und kugelschalenförmiges Region Tally) können in den reinen Monte Carlo Rechnungen mit Monaco gleichzeitig und automatisch ausgewertet werden. Beim Einsatz der CADIS-Methode ist dies in der finalen Monaco-Rechnung ebenfalls möglich. Man entscheidet jedoch zuvor für die deterministische Rechnung, welcher Detektor die adjungierte Quelle darstellt. Hier wurden beide möglichen Varianten getestet, weshalb in der Diskussion der Ergebnisse die folgenden Kennzeichnungen auftreten:

- Monaco PD: Ergebnis des Punkt-detektors in der reinen Monaco-Rechnung
- Monaco RT: Ergebnis des Region Tally in der reinen Monaco-Rechnung
- CADIS-PD PD: Ergebnis des Punkt-detektors, wobei der Punkt-detektor auch als adjungierte Quelle in der CADIS-Methode diente.
- CADIS-PD RT: Ergebnis des Region Tally, wobei der Punkt-detektor als adjungierte Quelle in der CADIS-Methode diente.
- CADIS-RT PD: Ergebnis des Punkt-detektors, wobei das Region Tally als adjungierte Quelle in der CADIS-Rechnung diente.
- CADIS-RT RT: Ergebnis des Region Tally, wobei das Region Tally selbst auch als adjungierte Quelle in der CADIS-Methode diente.

Mit diesen unterschiedlichen Varianten aus Varianzreduktions- sowie Detektionsmethoden sollte z. B. auch untersucht werden, inwiefern sich der Einfluss auf die Detektorantwort durch weniger optimierten Einsatz der Varianzreduktion ändert.

Die zu verwendenden Materialien waren in der Benchmark-Beschreibung definiert und im Vergleich zum Experiment vereinfacht angenommen. Die Einkapselung der ^{252}Cf -

Quelle wurde mit Kupfer der Dichte $8,9\text{g/cm}^3$ modelliert. Das Eisen der Abschirmung bestand aus 99,5% Eisen mit kleinen Beimengungen von Kohlenstoff (0,1 %) sowie Mangan (0,4 %). Für diese Mischung wurde eine Dichte von $7,84\text{g/cm}^3$ angegeben.

5.1.2.3 Ergebnisse

In den folgenden Unterkapiteln sind die Ergebnisse der MAVRIC-Rechnungen für die drei Teile des Benchmarks ALARM-CF-FE-SHIELD-001 dargestellt. Eine ausführlichere Diskussion ist in /BOC 13/ zu finden. Für die ersten beiden Teile ist ein Vergleich mit den experimentellen Werten nicht direkt möglich, da die experimentellen Resultate der Neutronen- bzw. Photonenflüsse in einer Energiegruppendarstellung angegeben sind, die nicht mit den in der SCALE/MAVRIC-Sequenz vordefinierten Energiegruppen übereinstimmt. Daher werden in diesen Teilen des Benchmarks lediglich qualitative Vergleiche durchgeführt, indem die experimentellen Ergebnisse mit den errechneten Ergebnissen graphisch dargestellt werden. Soweit nicht anders beschrieben, wurden die Berechnungen mittels der im SCALE Programmpaket „v7-200n47g“ genannten, auf ENDF/B-VII-Daten beruhenden Wirkungsquerschnittsbibliothek mit 200 Energiegruppen für Neutronen und 47 Energiegruppen für Photonen durchgeführt.

Teil 1: Neutronenfluss

Im ersten Teil des Benchmarks ALARM-CF-FE-SHIELD-001 wurde der Neutronenfluss am Detektor ermittelt. Die Ergebnisse der MAVRIC-Rechnungen werden hier für die Fälle ohne Eisen-Abschirmung und mit dem maximalen Durchmesser der Eisenkugel von 70 cm präsentiert. Gezeigt werden jeweils die Rechenergebnisse für den Neutronenfluss in Abhängigkeit von der Neutronenenergie. Dabei wurde für die Neutronenenergie jeweils die oberen Energiegrenzen der 200 Energiegruppen für Neutronen der im SCALE-Programmpaket mitgelieferten, auf ENDF/B-VII basierenden Multigruppenwirkungsquerschnittsbibliothek eingesetzt. Die experimentellen Werte sind ebenfalls eingezeichnet. Dabei handelt es sich bei den Neutronenenergien ebenfalls um die oberen Werte eines Energieintervalls einer abweichenden Multigruppendarstellung. Diese besitzt 115 Energiegruppen, deren Grenzen nicht mit den Energiegruppengrenzen der SCALE-Bibliotheken übereinstimmen. Zusätzlich wird auch die erzielte, relative Unsicherheit in den einzelnen Energiegruppen dargestellt.

Für die Rechnungen, in denen die CADIS-Methode zum Einsatz kam, wurde die Multi-gruppenstruktur der Wirkungsquerschnittsbibliothek für die Energieverteilung der adjungierten Quelle eingesetzt, wobei die Quellstärken in jeder Neutronengruppe auf den Wert 1 und für alle Photonengruppen auf den Wert 0 gesetzt wurden. Somit wird die Optimierung alle Energiegruppen der Neutronen gleichberechtigt behandelt, wie es für die Bestimmung des Flusses in den einzelnen Energiegruppen sinnvoll erscheint.

In **Abb. 5.22** sind die Ergebnisse für die nicht abgeschirmte ^{252}Cf -Quelle zu sehen. Die unterschiedlichen Detektionsmethoden zeigen untereinander eine gute Übereinstimmung und liegen auf dem Niveau der experimentellen Werte.

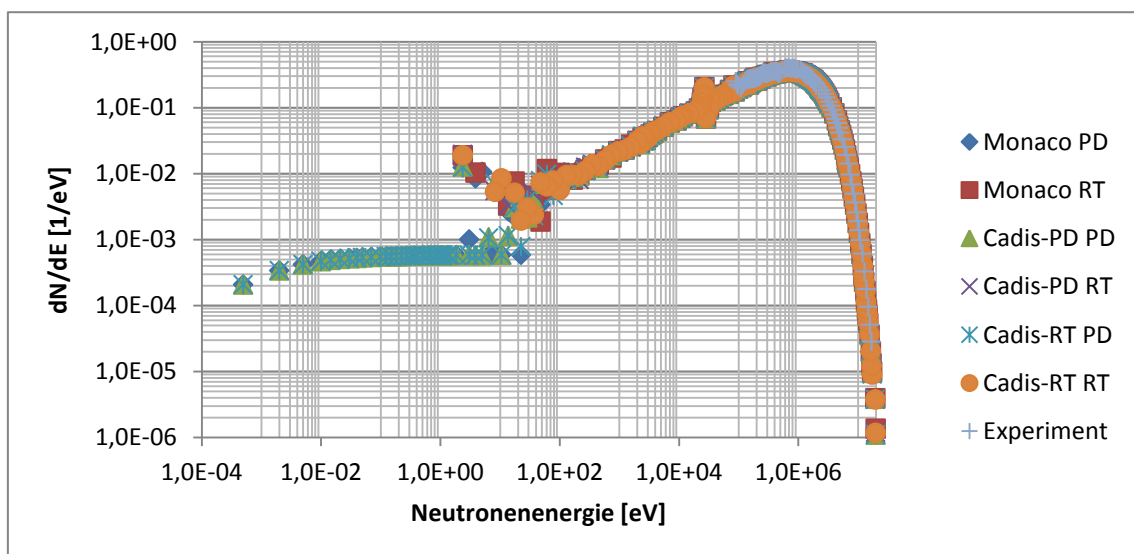


Abb. 5.22 Resultate der verschiedenen Rechenmethoden sowie Vergleich mit den experimentellen Werten ohne abschirmendes Eisen

Die mit den unterschiedlichen Detektionsmethoden erzielten, relativen Unsicherheiten für den Fall ohne Abschirmung sind für die einzelnen Energiegruppen in **Abb. 5.23** dargestellt. Wiederum geben die Energiewerte die obere Intervallgrenze des entsprechenden Energieintervalls an. Die Kurven der unterschiedlichen Analysemethoden überlagern sich im Großteil des Energiebereichs. Lediglich im Bereich der Neutronenenergien von etwa 10 eV scheint das Ergebnis des Punktdetektors der reinen Monaco-Analyse geringe Vorteile gegenüber den anderen Methoden zu offenbaren.

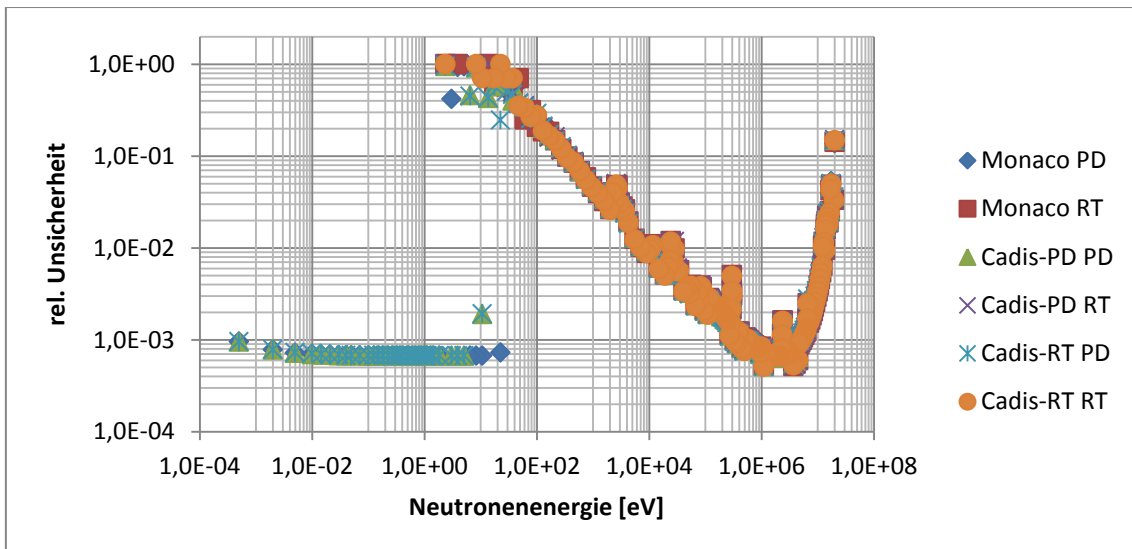


Abb. 5.23 Relative Unsicherheit für die Ergebnisse der verschiedenen eingesetzten Rechenmethoden für den Fall ohne abschirmendes Eisen

Die Ergebnisse der Simulationen für den Fall einer abschirmenden Kugel mit einem Radius von 35 cm sind in **Abb. 5.24** dargestellt. Man erkennt, dass das Energiespektrum nicht mehr glatt verläuft und sich durch Streuung hervorgerufene Strukturen ausbilden. Eine genauere Betrachtung der Variationen im Energiebereich zwischen 1 keV und 2 MeV ist in **Abb. 5.25** gezeigt. Man erkennt, dass in diesem Bereich alle Analysemethoden gleiche Resultate liefern. Außerdem werden die experimentellen Werte annähernd reproduziert, wobei zu berücksichtigen ist, dass die Detektorauflösung hier nicht simuliert wurde. Daher bilden die Rechnungen deutlich ausgeprägtere Strukturen als die experimentellen Messungen aus, was in einzelnen Energiegruppen zu größeren Abweichungen gegenüber den experimentellen Werten führt. Wie in /BOC 13/ gezeigt, können diese Abweichungen durch eine entsprechende rechnerische Berücksichtigung der Detektorauflösung deutlich reduziert werden. Unterschiede zwischen den Detektorsimulationen treten erst bei Energien unterhalb von etwa 1 eV auf. Hier liefert z. B. die Methode CADIS-PD PD deutlich höhere Werte als der Punktdetektor in der reinen Monaco-Rechnung.

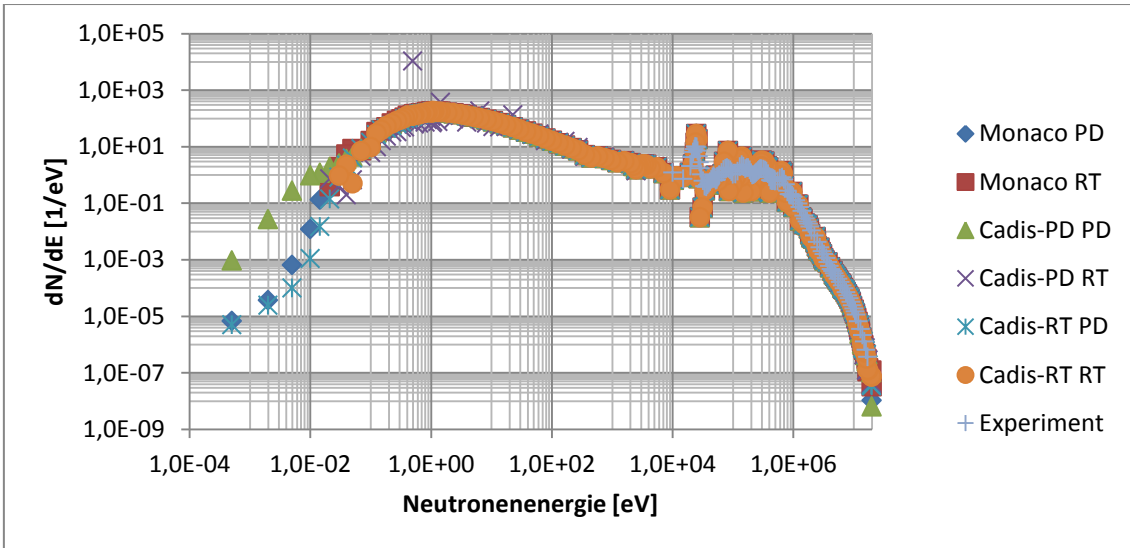


Abb. 5.24 Resultate der verschiedenen Rechenmethoden sowie Vergleich mit den experimentellen Werten für eine Eisenabschirmung mit Radius 35 cm

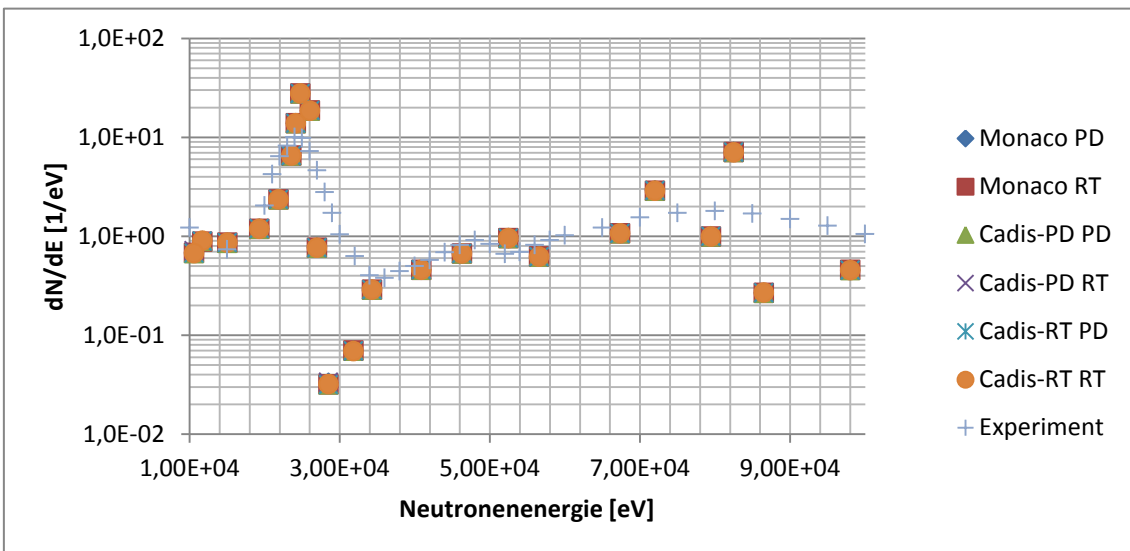


Abb. 5.25 Resultate im Energiebereich von 10 keV bis 100 keV der verschiedenen Rechenmethoden sowie Vergleich mit den experimentellen Werten für eine Eisenabschirmung mit Radius 35 cm

Die Unterschiede in **Abb. 5.24** zwischen den Methoden Monaco PD und CADIS-PD PD bei kleinen Neutronenenergien lassen sich vermutlich auf die geringe statistische Neutronenverteilung in diesen Energieintervallen für CADIS-PD PD zurückführen. Dies ist an den recht hohen relativen Unsicherheiten in diesem Energiebereich zu erkennen (**Abb. 5.26**). Im Energiebereich zwischen 1 eV und 1 MeV hingegen sind die Verhältnisse für die relative Unsicherheit gerade umgekehrt. Hier scheint die CADIS-

Methode Cadis-PD PD vorteilhafter zu sein. Auffallend in diesem Energiebereich ist die Methode CADIS-PD RT, also die Variante, in der der Punktdetektor als adjungierte Quelle eingesetzt wurde, die Detektorantwort jedoch von dem Region Tally, sprich der Kugelschale, ausgelesen wurde. Diese Methode liefert meist deutlich größere relative Unsicherheiten, was darauf hindeutet, dass es nachteilig ist, die Varianzreduktion auf einen bestimmten Punkt hin zu optimieren, wenn man danach eine komplette Kugel­fläche als Detektor einsetzt.

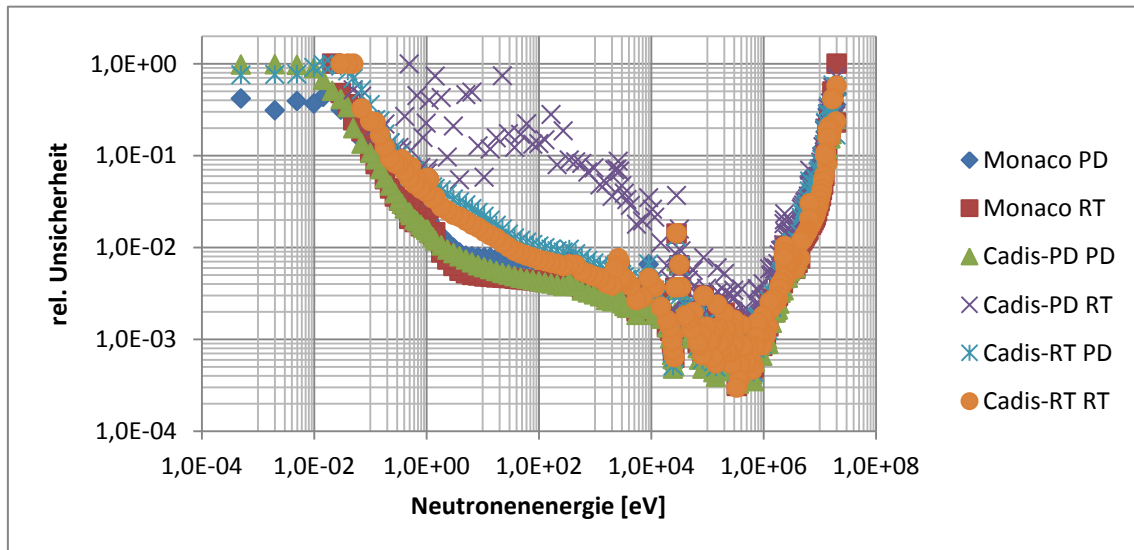


Abb. 5.26 Relative Unsicherheit in den Ergebnissen der verschiedenen eingesetzten Rechenmethoden für eine Eisenabschirmung mit Radius 35 cm

Neben der Auftragung der Ergebnisse in den einzelnen Energiegruppen wurden auch die Ergebnisse des gesamten, von den Detektoren erfassten Neutronenflusses untersucht (**Abb. 5.27**). Es zeigt sich, dass alle eingesetzten Analysemethoden den gesamten Neutronenfluss gleich bestimmen. Nur die Methode CADIS-PD RT zeigt im letzten Fall mit der maximalen Abschirmung einen etwas höheren Neutronenfluss im Vergleich zu den anderen Methoden. Die Analyse­methode CADIS-PD RT erzielt auch mit zunehmender Dicke der Abschirmung eine höhere Standardabweichung des Neutronenflusses als die anderen Analysemethoden, während sie im Fall ohne Abschirmung von den Vorteilen des Region Tally profitiert und eine sehr geringe Standardabweichung liefert (**Abb. 5.28**). Man erkennt, dass in diesem Experiment die Varianten, in denen die Analysen mit den Region Tallies durchgeführt werden, besser abschneiden – von dem eben diskutierten Fall CADIS-PD RT abgesehen.

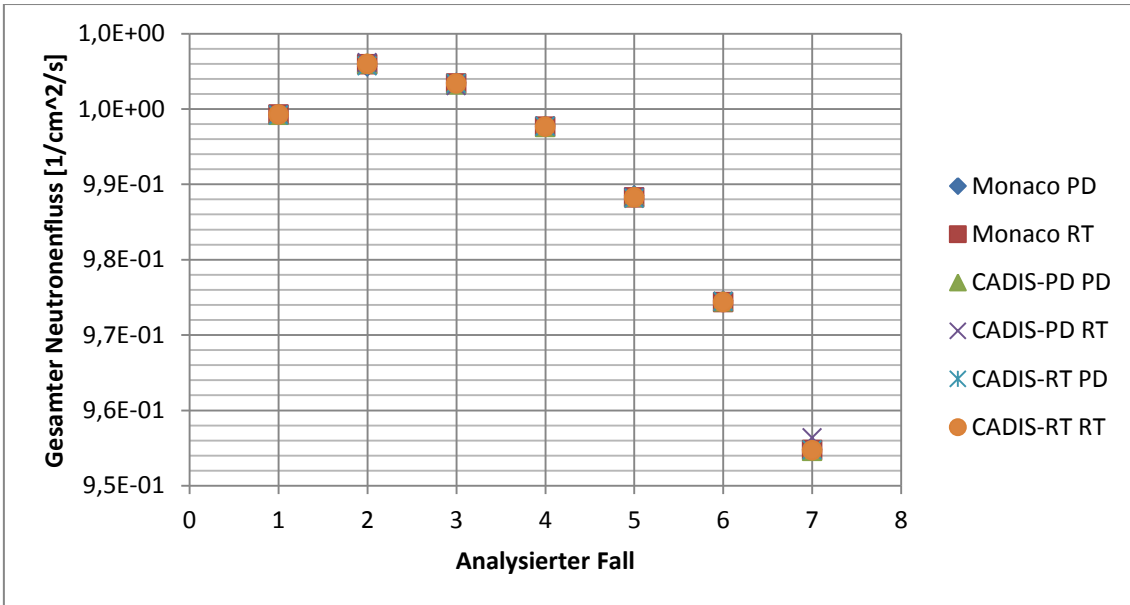


Abb. 5.27 Gesamter von den Detektoren gemessener Neutronenfluss für den ersten Teil des Benchmarks

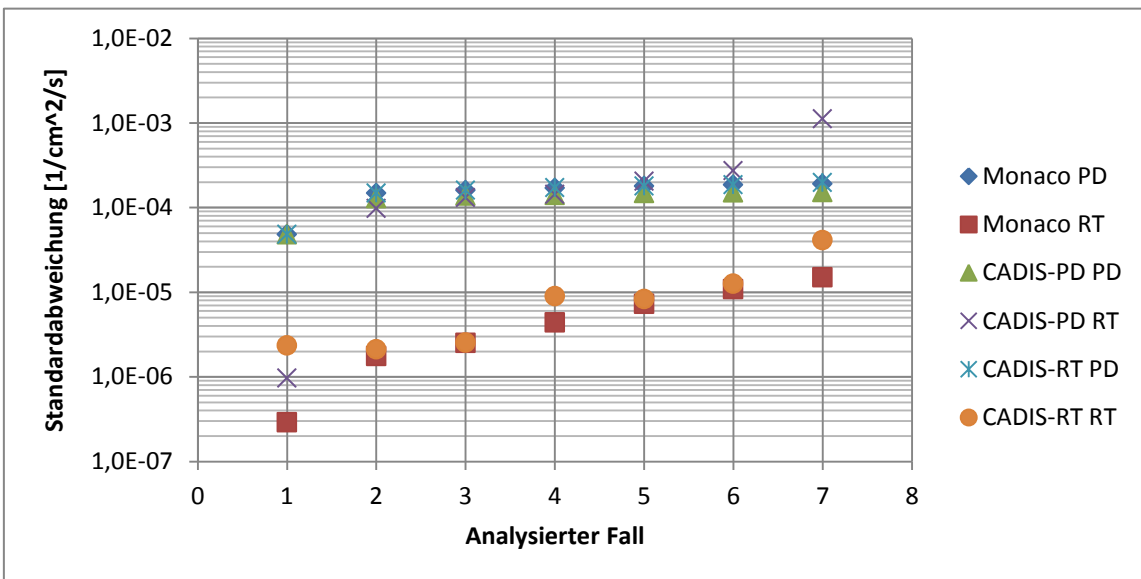


Abb. 5.28 Standardabweichung des gesamten von den Detektoren gemessenen Neutronenflusses für den ersten Teil des Benchmarks

Für Teil 1 des Benchmarks wurden die Untersuchungen zum Vergleich auch mit der im SCALE-Programmpaket „v7-27n19g“ genannten Wirkungsquerschnittsbibliothek mit 27 Energiegruppen für Neutronen und 19 Energiegruppen für Photonen basierend auf den ENDF/B-VII Wirkungsquerschnittsdaten durchgeführt. Die Verwendung dieser Bibliothek führt nur zu geringen Unterschieden in errechneten Neutronenflüssen, verringert

aber die Rechenzeit und einen Faktor 2 bis 3. Weitere Details sind in /BOC 13/ enthalten.

Rechenzeiten

Der Vergleich der Rechenzeiten, die für die Durchführung mit einer der Analysemethoden benötigt wurden, ist in **Abb. 5.29** gezeigt. Die Rechenzeiten für die reinen Monaco-Rechnungen ohne CADIS-Methode sind kürzer als die Zeiten der Analysen, die die CADIS-Methode verwenden. Dies ist zum einen durch die zusätzlichen DENOVO-Rechnungen bei Anwendung der CADIS-Methode bedingt (**Abb. 5.31**), zum anderen sind die reinen Monaco-Rechnungen schneller beendet, als die Monaco-Rechnungen, in denen die CADIS-Methode zum Einsatz kam (**Abb. 5.30**). Letzteres deutet darauf hin, dass in den der CADIS-Methode nachgelagerten Monaco-Rechnungen mehr für das Ergebnis relevante Neutronen simuliert, und diese dann auch länger verfolgt wurden. Zusätzlich zeigt **Abb. 5.31**, dass die Optimierung auf ein Region Tally in diesem Fall schneller als die Optimierung auf einen Punktdetektor ist und der zeitliche Unterschied zwischen den CADIS-Rechnungen mit 200 und 27 Energiegruppen für Neutronen zwischen einem Faktor 5 und 10 beträgt, was im Mittel das Verhältnis der Anzahl der Energiegruppen von ca. 7,4 widerspiegelt.

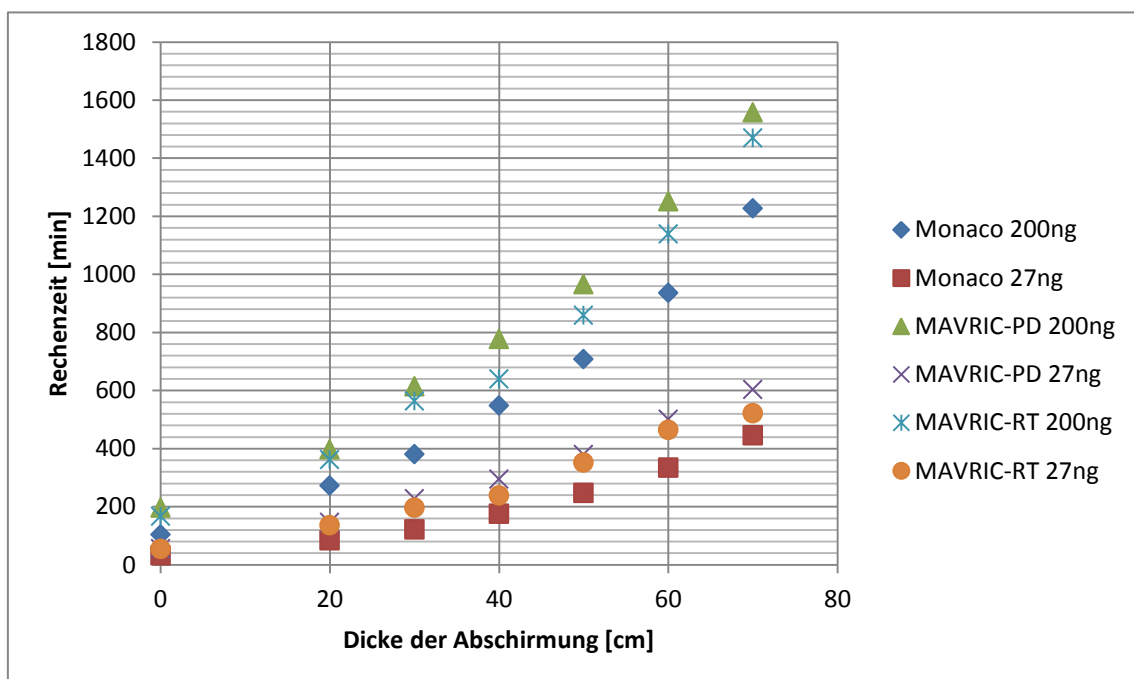


Abb. 5.29 Vergleich der gesamten Rechenzeiten für die sieben Fälle des ersten Teils des Benchmarks für verschiedene Analysemethoden und mit unterschiedlichen Wirkungsquerschnittsbibliotheken

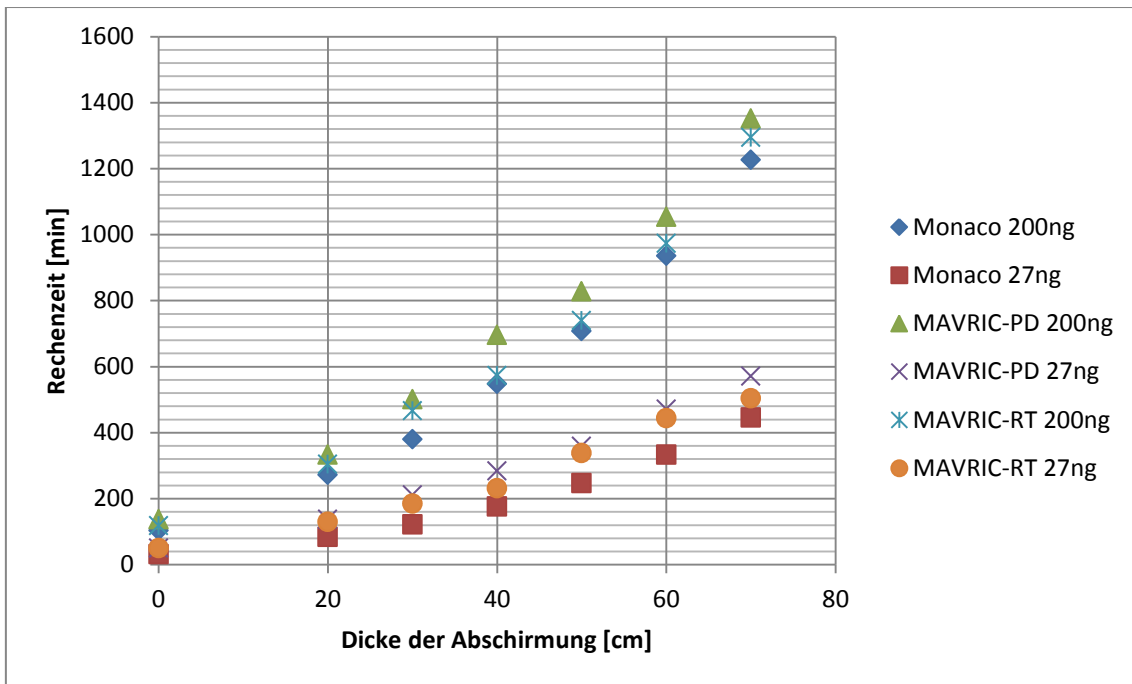


Abb. 5.30 Vergleich der Rechenzeiten in Monaco für die sieben Fälle des ersten Teils des Benchmarks für verschiedene Analysemethoden und mit unterschiedlichen Wirkungsquerschnittsbibliotheken

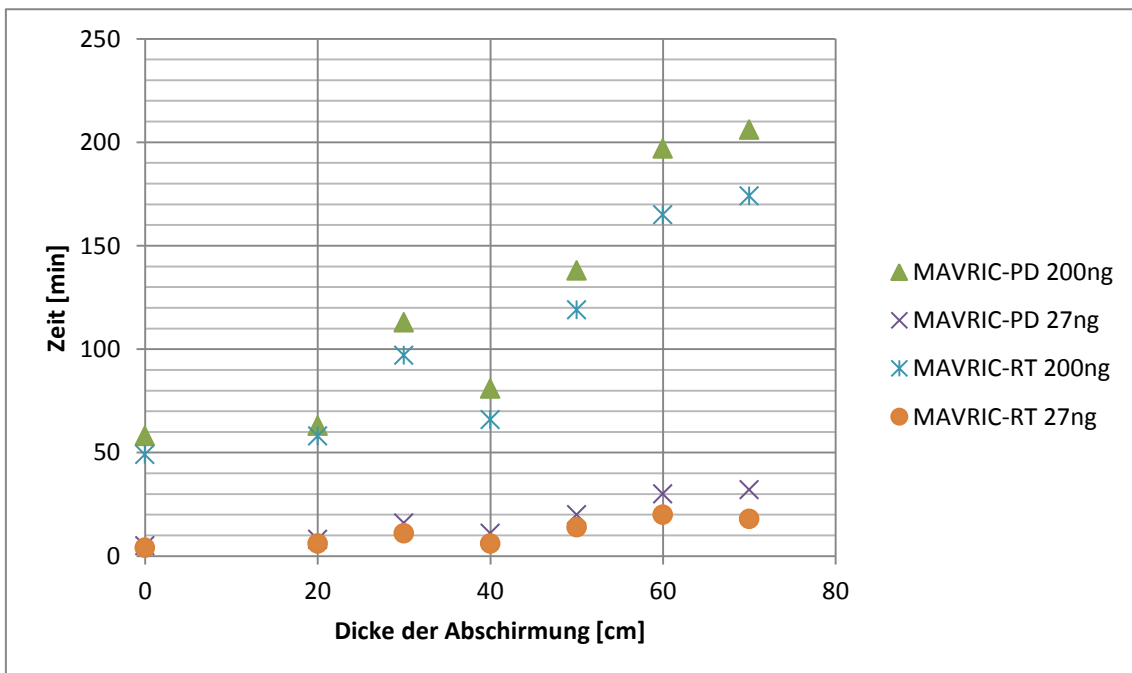


Abb. 5.31 Vergleich der Rechenzeiten der CADIS-Vorrechnung für die sieben Fälle des ersten Teils des Benchmarks für verschiedene Analysemethoden und mit unterschiedlichen Wirkungsquerschnittsbibliotheken

Teil 2: Photonenfluss

Im zweiten Teil des Benchmarks ALARM-CF-SHIELD-001 wurde der Photonenfluss außerhalb der Abschirmung bestimmt. Dieser setzt sich aus zwei Teilen zusammen: Dem primären Photonenfluss, der von der ^{252}Cf -Quelle emittiert wird, sowie dem sekundären Photonenfluss, der durch von der Neutronenstrahlung induzierte (n, γ)-Prozesse in der Abschirmung entsteht. Diese beiden Einflüsse wurden in separaten Rechnungen mit je einer Photonen- bzw. Neutronenquelle bestimmt.

Zur Bestimmung des sekundären Photonenflusses wurde die dafür zu berücksichtigende Neutronenquelle wie bisher beschrieben modelliert, aber abweichend zu den bisherigen Rechnungen die Produktion sekundärer Photonen gestattet. Darüber hinaus wurde die Detektorantwort der unterschiedlichen Detektoren auf die Analyse des Photonenflusses abgestimmt. In den Analysemethoden, in denen CADIS zum Einsatz kam, wurde die Quellstärke der adjungierten Quelle entsprechend angepasst und die Energiegruppen der Neutronen als auch der Photonen auf 1 gesetzt.

Zur Bestimmung des primären Photonenflusses wurde die Quelldefinition herangezogen, wie sie in dem Eingabedatensatz der MCNP5-Beispielrechnung vorgefunden wurde, die der Benchmark-Beschreibung beigelegt ist. Diese Beschreibung entstammt dem SOURCE-Programm aus dem russischen Programmsystem SKALA, in dem ABBN-93 Zerfallsdaten eingesetzt wurden. Ebenfalls aus dieser Quelltermberechnung ergab sich das Verhältnis von 5,287 emittierten Photonen zu emittierten Neutronen. Eine Darstellung des Quellspektrums ist in **Abb. 5.32** angegeben. In den Rechnungen, in denen die CADIS-Methode zum Einsatz kam, wurden Quellstärken der adjungierten Quelle für die 200 Neutronengruppen auf 0 und für die 47 Energiegruppen für Photonen auf 1 gesetzt.

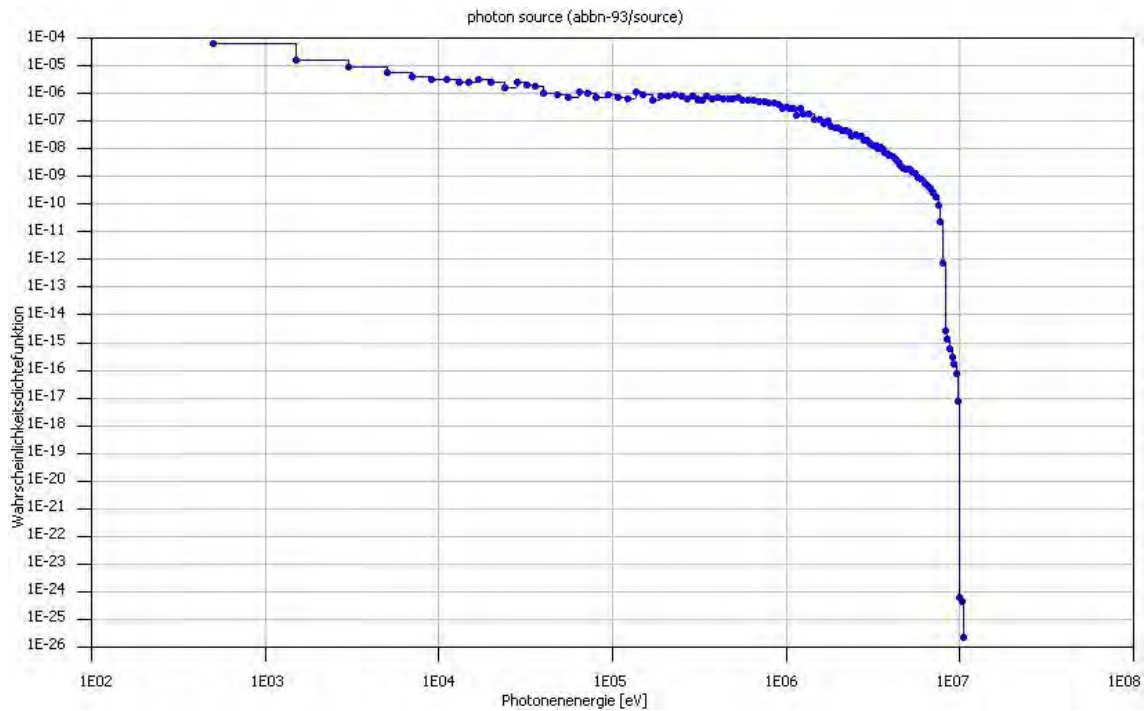


Abb. 5.32 Quellspektrum der primären Photonenquelle, wie es mit dem Programm SOURCE berechnet wurde

Wie bereits in der Betrachtung der Ergebnisse des ersten Teils des Benchmarks ALARM-CF-SHIELD-001 werden auch im Folgenden jeweils nur die Ergebnisse des Falls ohne abschirmende Eisenkugel und des Falls mit maximaler Abschirmdicke von 35 cm Radius der Eisenkugel diskutiert. Auch in diesem Teil des Benchmarks werden wie bereits oben erläutert die errechneten Resultate nur qualitativ und graphisch mit den experimentell erzielten Ergebnissen verglichen.

Die Ergebnisse für den gesamten Photonfluss des nicht abgeschirmten Falls sind in **Abb. 5.33** gezeigt. Man erkennt zudem in **Abb. 5.34**, dass der Photonfluss von den primären Photonen der Quelle dominiert wird. Die aus (n,γ)-Reaktionen herrührenden Photonen entstammen der Ummantelung der ^{252}Cf -Quelle, die aus Stahl und Kupfer besteht. Sie spielen überwiegend bei den sehr hohen und sehr niedrigen Photonenenergien eine Rolle. Insgesamt tragen sie ca. 2,2 % zum gesamten Photonfluss bei. Der Vergleich mit den experimentellen Werten zeigt qualitativ eine gute Übereinstimmung der errechneten Werte. Die verschiedenen Analysemethoden unterscheiden sich im Ergebnis kaum. Unterschiede treten überwiegend bei sehr hohen bzw. sehr niedrigen Energien auf und sind auf eine geringe statistische Verteilung in diesen Energieintervallen und eine daraus resultierende hohe relative Unsicherheit zurückzuführen.

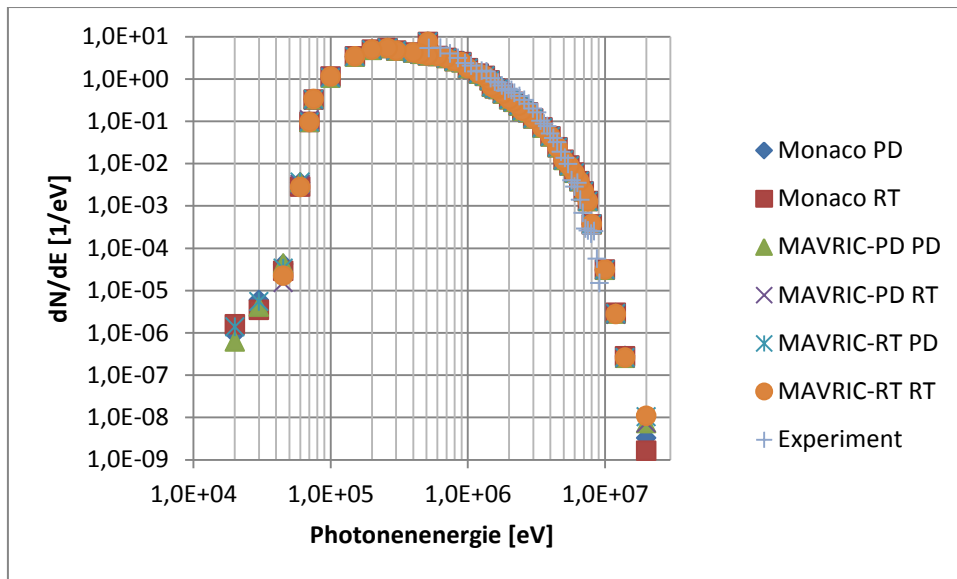


Abb. 5.33 Berechnete und experimentelle Werte des gesamten Photonenflusses am Detektor für den Fall ohne abschirmende Eisenkugel

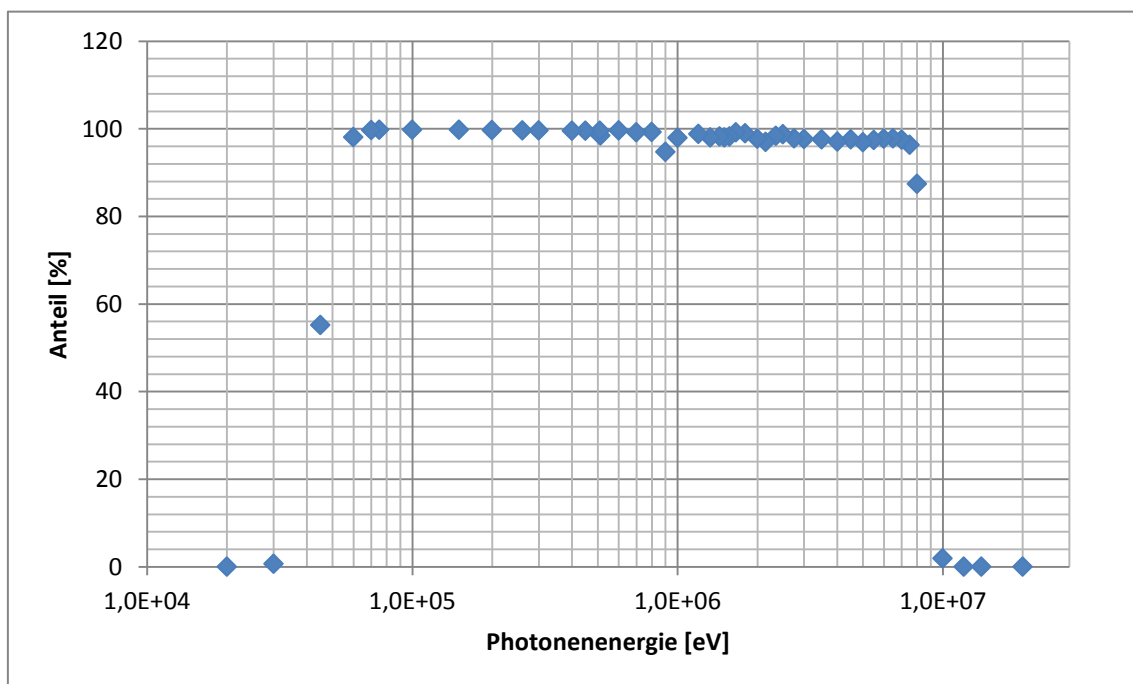


Abb. 5.34 Anteil primärer Photonen am gesamten Photonenfluss am Detektor für den Fall der nicht-abgeschirmten Quelle

Die Verhältnisse der Photonenströme verändern sich mit zunehmender Abschirmung. Die Höhe des primären Photonenströms nimmt dabei deutlich ab, wohingegen der Fluss der Photonen aus (n,γ) -Reaktionen zunächst ansteigt, dann aber wieder mit weiter zunehmender Abschirmung wieder abnimmt. Für den Fall mit der abschirmenden

Eisenkugel mit einem Radius von 35 cm, nimmt der Fluss der primären Photonen der ^{252}Cf -Quelle gegenüber dem Fall ohne Abschirmung um etwa vier Größenordnungen ab. Auch der durch (n, γ)-Reaktionen hervorgerufene Photonenfluss sinkt insgesamt im Vergleich zum nicht abgeschirmten Fall, wobei allerdings der Fluss der hochenergetischen Photonen um etwa eine Größenordnung ansteigt. Im Detail wird dies in /BOC 13/ beschrieben und diskutiert. Dies führt dazu, dass die primären Photonen nur noch einen geringen Beitrag zum gesamten Photonenfluss am Detektor leisten (**Abb. 5.35**). Er beträgt nun in allen Energieintervallen unter 6 %, bei Energien unterhalb von 1°MeV sogar unter 2 %.

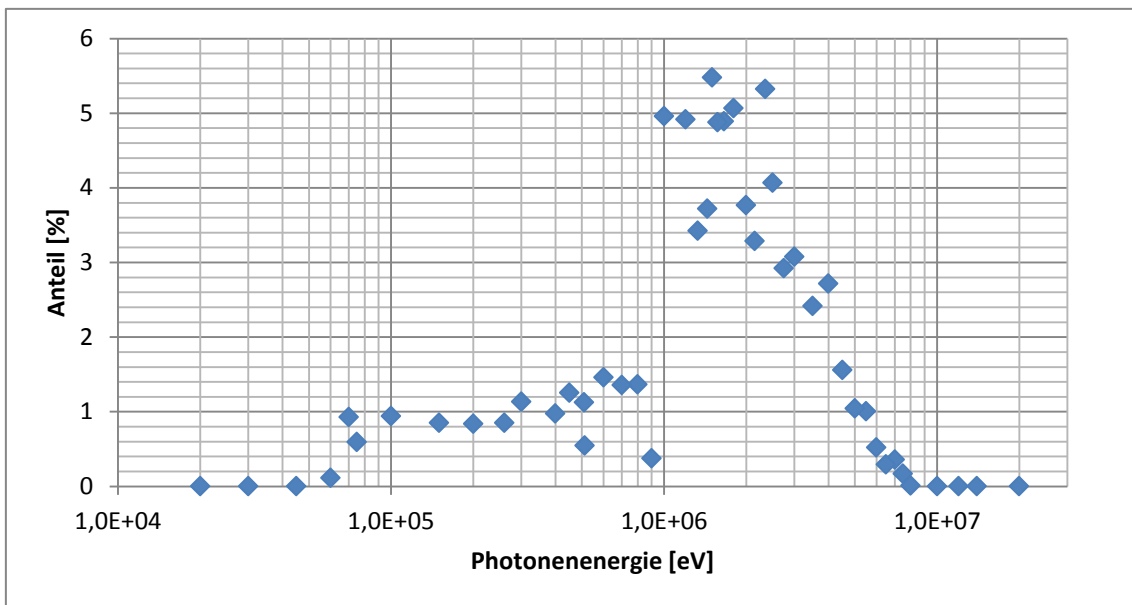


Abb. 5.35 Anteil primärer Photonen am gesamten Photonenfluss am Detektor für den Fall der mit einer Eisenkugel mit 35 cm Radius abgeschirmten Quelle

Für den gesamten Photonenfluss am Detektor ist die Übereinstimmung zwischen den verschiedenen angewandten Analysemethoden innerhalb sinnvoller Grenzen gut, wie in **Abb. 5.36** dargestellt ist. Beim qualitativen Vergleich mit den experimentellen Resultaten wird der Photonenfluss in allen Analysemethoden im Energiebereich der Photonen von 1°MeV bis 10°MeV durch die Rechnungen unterschätzt. Inwiefern es sich hierbei um Unsicherheiten handelt, die durch die Quelldefinition hervorgerufen werden oder um Unsicherheiten, die durch die Rechenmethode selbst hervorgerufen werden, kann im Rahmen dieses Vorhabens nicht entschieden werden.

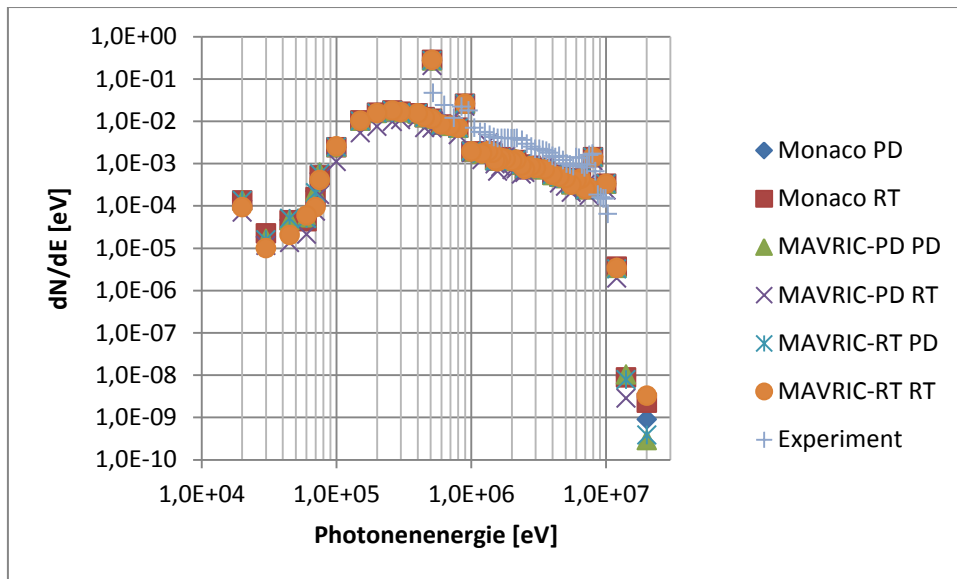


Abb. 5.36 Berechnete und experimentelle Werte des gesamten Photonenflusses am Detektor für den Fall einer Eisenkugel mit 35 cm Radius, die als Abschirmung die ^{252}Cf -Quelle ummantelt

Teil 3: Zählraten der Bonner-Kugeln

Im dritten Teil des Benchmarks wurden die Zählratenmessungen für Neutronen mittels Bonner-Kugeln nachgerechnet. Insgesamt kamen acht Bonner-Kugeln zum Einsatz, die sich in ihrem Radius unterschieden. Die Radien der Bonner-Kugeln sind in **Tab. 5.2** wiedergegeben.

Tab. 5.2 Überblick über die Radien der im Experiment ALARM-CF-FE-SHIELD-001 verwendeten Bonner-Kugeln

Bonner-Kugel	Durchmesser [cm]
1	5.27
2	6.55
3	7.62
4	9.80
5	12.70
6	18.00
7	20.30
8	30.50

Für jede dieser Bonner-Kugeln wurde in der Benchmark-Beschreibung das Ansprechverhalten, d. h. die Zählrate der jeweiligen Kugel pro auftreffendem Neutron, angegeben /NEA 10/. Deren Implementierung in das Rechenmodell erfolgte wieder in Form

eines Punktdetektors und eines Region Tallys, für die das angegebene Ansprechverhalten in der im Benchmark angegebenen Energiegruppenstruktur vorgegeben wurde. Auf die Ergebnisse der kleinsten und größten Bonner-Kugel (Kugel 1 und Kugel 8) wird hier ausführlicher eingegangen, eine detailliertere Diskussion ist wiederum in /BOC 13/ zu finden. Ein zusammenfassender Vergleich der errechneten Resultate mit den experimentellen Werten aller Bonner-Kugeln ist anschließend in **Abb. 5.41** wiedergegeben. Die Nachrechnung der Bonner-Kugeln bietet hier den Vorteil, dass mit den Zählraten integrale Werte verglichen werden und damit vorgegebene Energiegruppenstrukturen einen direkten Vergleich nicht behindert.

Die MAVRIC-Nachrechnungen wurden mit sechs verschiedenen Analysemethoden durchgeführt und ausgewertet. Diese sind:

- Monaco RT: Reine Monaco-Rechnung mit einer Kugelschale als Region Tally im vorgegebenen Detektorabstand
- Monaco PD: Reine Monaco-Rechnung mit einem Punktdetektor im vorgegebenen Detektorabstand
- MAVRIC RT: In der CADIS-Methode diente die Kugelschale im Detektorabstand als Region Tally als räumliche Komponente der adjungierten Quelle. Die Quellstärke wurde durch die Antwortfunktion der jeweils betrachteten Bonner-Kugel definiert. Das Ergebnis der finalen Monaco-Rechnung wurde aus dem Region Tally ausgelesen.
- MAVRIC PD: Analog zu MAVRIC RT, aber anstatt des Region Tally wurde ein Punktdetektor im vorgegebenen Detektorabstand zum Einsatz kommt und ausgewertet.
- MAVRIC RT 1-8: Analog zu MAVRIC RT, aber als Quellstärke der adjungierten Quelle wurde eine Überlagerung der Antwortfunktionen aller acht Bonner-Kugeln gewählt.
- MAVRIC PD 1-8: Analog zu MAVRIC PD, aber als Quellstärke der adjungierten Quelle wurde eine Überlagerung der Antwortfunktionen aller acht Bonner-Kugeln gewählt.

In **Abb. 5.37** sind die Verhältnisse der errechneten und experimentellen Zählraten (C/E) für die kleinste Bonner-Kugel gezeigt. Das experimentelle Ergebnis für die un abgeschirmte Quelle wird durch die Nachrechnung um ca. 60 % überschätzt. Die Überschätzung nimmt bis zu einem Durchmesser der Abschirmung von 40 cm kontinuierlich

ab. Für alle weiteren Abschirmungsdicken werden die Ergebnisse um bis maximal 10 % unterschätzt. Die Unterschiede zwischen den verschiedenen Analysemethoden sind minimal und in der Grafik nicht erkennbar.

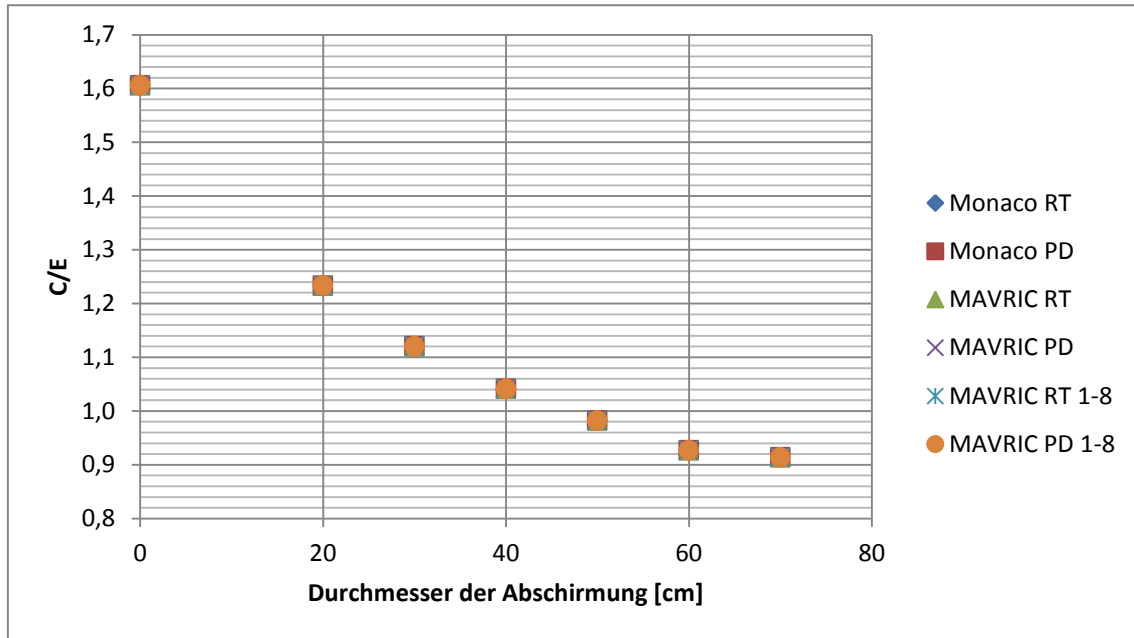


Abb. 5.37 C/E-Resultate für die Zählrate der Bonner-Kugel 1 für die unterschiedlichen Analysemethoden

Auch wenn die Verhältnisse C/E für die sechs Analysemethoden nahezu identisch sind, zeigen die erzielten relativen Unsicherheiten der berechneten Zählraten deutliche Unterschiede, wie aus **Abb. 5.38** ersichtlich ist. Man erkennt, dass die Analysen, in denen das Region Tally als Detektor zum Einsatz kommt, eine geringere relative Unsicherheit erreichen als diejenigen Analysen, in denen ein Punktdetektor modelliert wird. Weiter zeigt sich, dass die CADIS-Methode meist vorteilhaft gegenüber der reinen Monaco-Rechnung ist. Die Optimierung auf nur eine adjungierte Quelle ist dabei der gleichzeitigen Optimierung auf alle acht Antwortfunktionen der Bonner-Kugeln vorzuziehen.

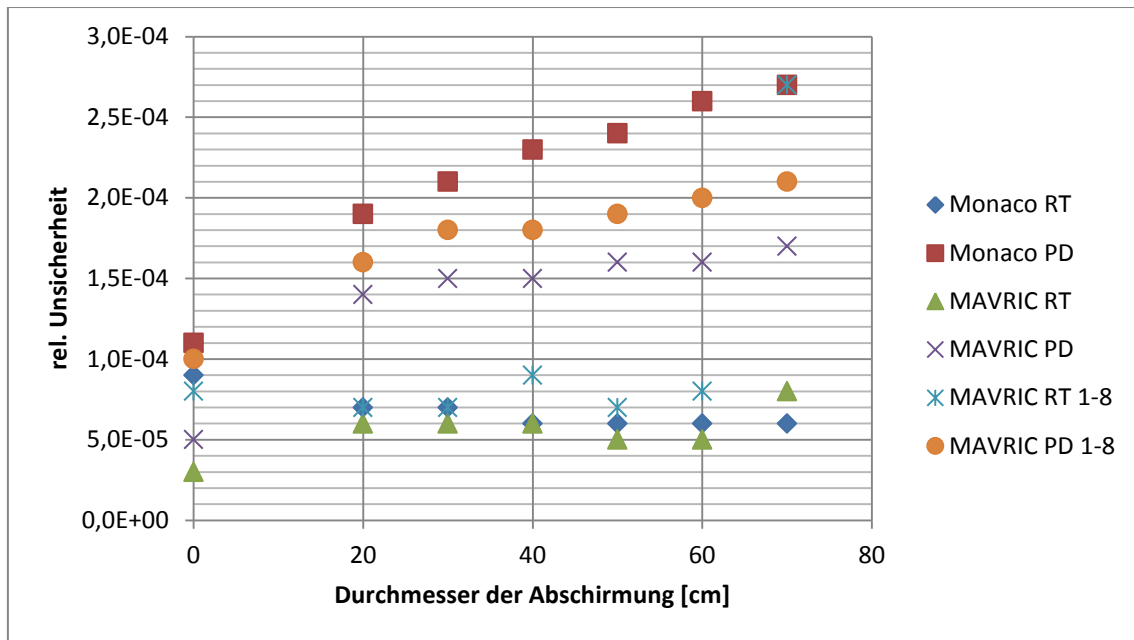


Abb. 5.38 Erzielte relative Unsicherheiten der Zählrate von Bonner-Kugel 1 für die sechs eingesetzten Analysemethoden

Für die Bonner-Kugeln mit größeren Durchmessern stimmen die errechneten Zählraten für die Fälle ohne bzw. mit geringer Abschirmung deutlich besser mit den experimentellen Werten überein. Die zu beobachtenden Abweichungen betragen dann maximal noch etwa $\pm 10\%$. Für die größte Bonner-Kugel zeigen allerdings die errechneten Zählraten für die Fälle mit großer Abschirmdicke Abweichungen gegenüber den experimentellen Werten von mehr als 10% (**Abb. 5.39**).

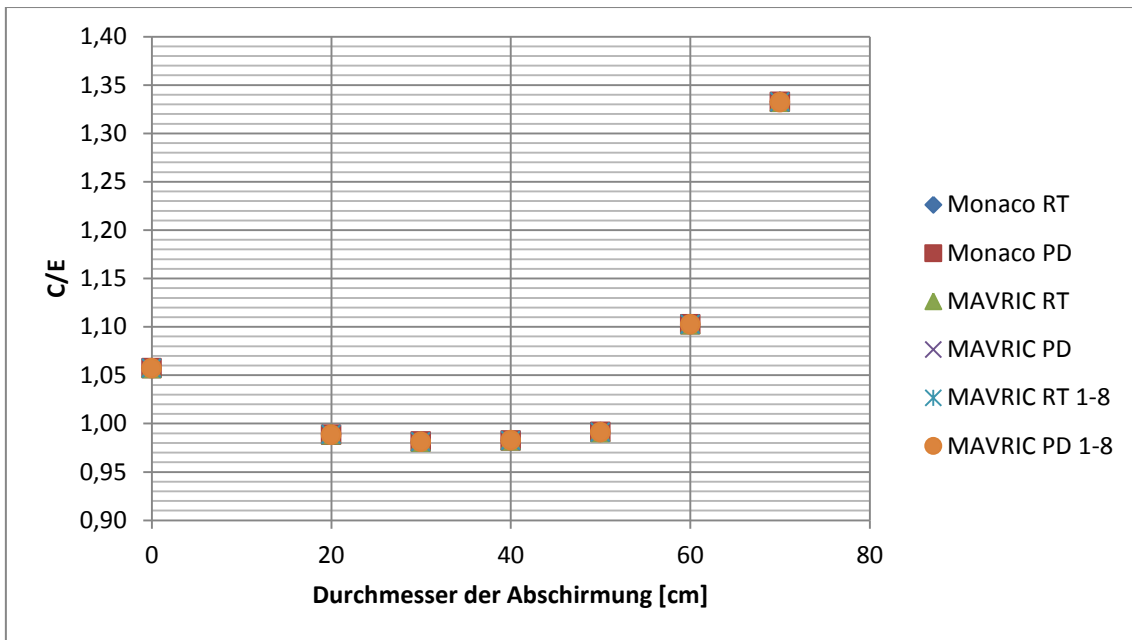


Abb. 5.39 C/E-Resultate für die Zählrate der Bonner-Kugel 8 für die unterschiedlichen Analysemethoden

Die Darstellung relativen Unsicherheiten der berechneten Zählraten in **Abb. 5.40** lässt die gleichen Rückschlüsse zu wie für die zuvor betrachteten Bonner-Kugeln. Die Analyse mit Hilfe eines Region Tally in Form einer Kugelschale um den Detektionspunkt liefert bessere Ergebnisse als die Analyse mit einem Punktdetektor. Die Verwendung der CADIS-Methode führt ebenfalls zu geringeren Unsicherheiten gegenüber den analogen Monaco-Rechnungen, wobei im Fall des Region Tally bei großen Abschirmungen die analoge Monte Carlo Rechnung jedoch vergleichbare Resultate erzielt.

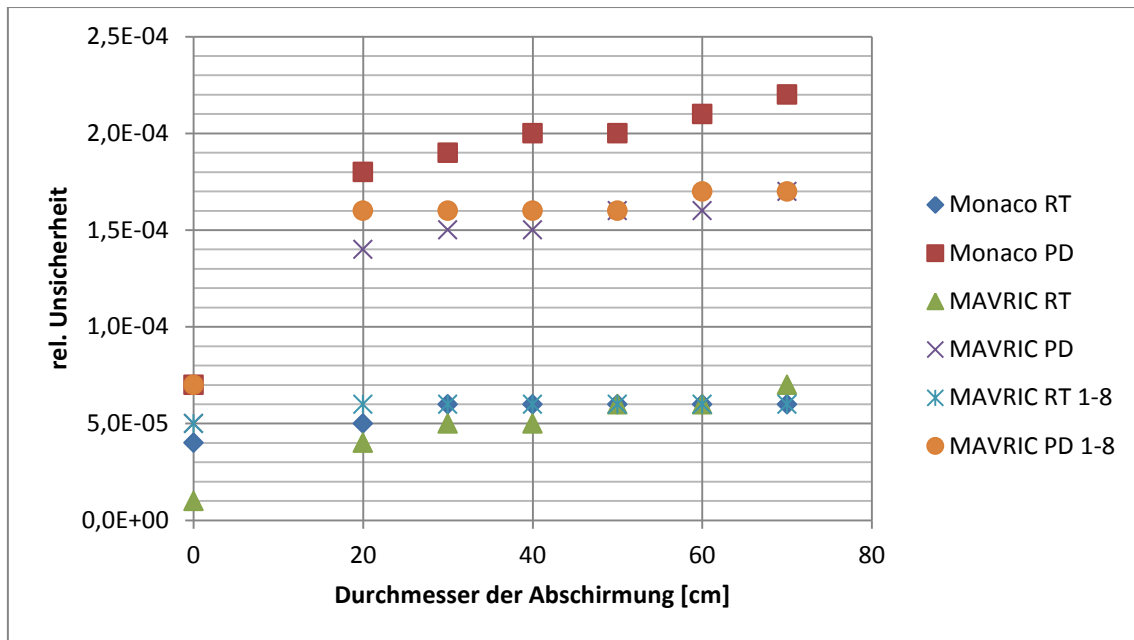


Abb. 5.40 Erzielte relative Unsicherheiten der Zählrate von Bonner-Kugel 8 für die sechs eingesetzten Analysemethoden

Das Verhalten der C/E-Verhältnisse bei zunehmendem Durchmesser der Bonner-Kugeln lässt sich mit dem Ansprechverhalten der Detektoren in der Praxis verstehen. Die Wahrscheinlichkeit, ein Neutron mit einer Bonner-Kugel zu detektieren, ist vom Durchmesser der umgebenden Polyethylen-Kugel abhängig. Je größer der Durchmesser ist, umso besser moderiert die Kugel schnelle Neutronen auf thermische Energien, auf denen letztlich die eigentliche Messung beruht. Dies führt dazu, dass die Messung der schnellen Neutronen der nicht abgeschirmten Quelle mit den kleinen Bonner-Kugeln ungenauer ist, da – aus naheliegenden, methodischen Gründen beabsichtigtermaßen – wenig Steumaterial zur Moderation zur Verfügung steht. Bei maximaler Größe der Bonner-Kugel, d. h. maximiertem Ansprechverhalten für thermalisierte Neutronen, können mehr Neutronen auf thermische Energien abgebremst werden und somit zur Messung beitragen.

Einen weiteren Beitrag zum teils unbefriedigenden C/E-Resultat im Falle der nicht-abgeschirmten Quelle leisten vermutlich auch die Unsicherheiten in den experimentellen Ergebnissen selbst. Es ist zu erwähnen, dass im Anhang der Benchmark-Beschreibung weitere Literaturquellen zitiert werden, die berechnete Resultate für dieses Experiment mit abweichenden Werten wiedergeben. Diese differieren um Faktoren zwischen 0,98 und 1,81 zu den hier berücksichtigten experimentellen Werten.

Die in der vorliegenden Arbeit errechneten Ergebnisse für die gemessenen Zählraten der Bonner-Kugeln stimmen zudem gut mit den Ergebnissen der exemplarischen Nachrechnung in der Benchmark-Beschreibung überein. Diese wurde mit MCNP5 und ENDF/B-VI Wirkungsquerschnitten durchgeführt.

Die Analysemethode MAVRIC[°]RT, in der die CADIS-Optimierung sowie die Ergebnisauswertung mit dem Region Tally erfolgte, zeigte in den vorgestellten Untersuchungen meist die geringste relative Unsicherheit der verglichenen Analysemethoden. Daher wurde diese Analyse-Konfiguration ausgewählt, um einen Überblick über die Resultate bzgl. aller Bonner-Kugeln zu geben. In **Abb. 5.41** sind die erzielten C/E-Verhältnisse dargestellt. Die Ergebnisse zeigen, wie unterschiedlich die experimentellen Werte getroffen werden. Die Ergebnisse für Kugel[°]6 mit einem Durchmesser von 18 cm zeigen die geringsten Schwankungen. Die experimentellen Werte werden jeweils leicht unterschätzt, bei einer maximalen Abweichung von 5,5 %. Die Analyse dieses Detektors liefert auch die geringste relative Unsicherheit (**Abb. 5.42**). Die Nachrechnungen für die kleineren Bonner-Kugeln 1 und 2 erzielen höhere Unsicherheiten. Die Unterschiede in der relativen Unsicherheit zwischen den verschiedenen Bonner-Kugeln bei der hier angewandten, für alle Rechnungen gleichen Analysekonfiguration MAVRIC[°]RT betragen bis zu einem Faktor von ca. 6.

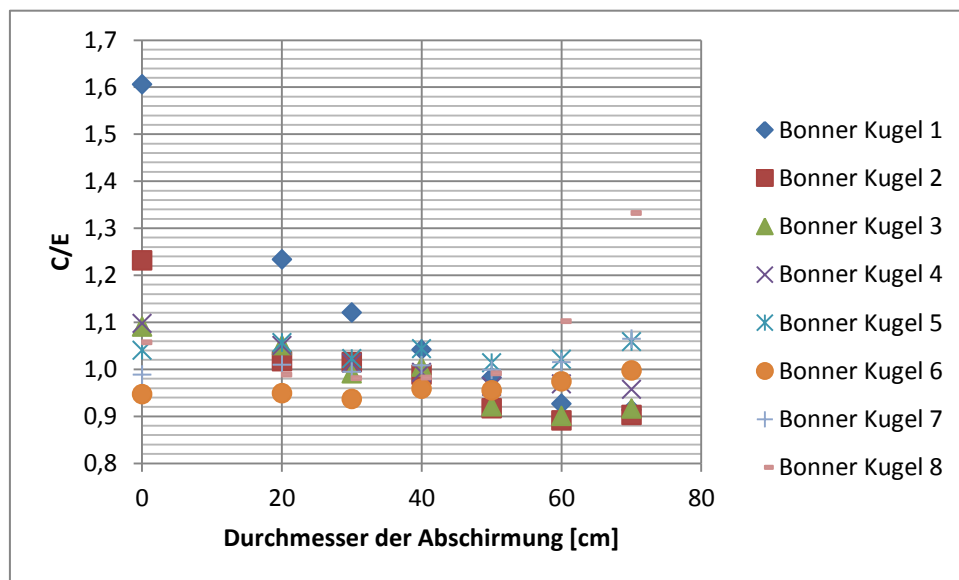


Abb. 5.41 C/E-Ergebnisse für die acht Bonner-Kugeln der sieben Benchmark-Fälle für Analysen die in der Konfiguration MAVRIC[°]RT

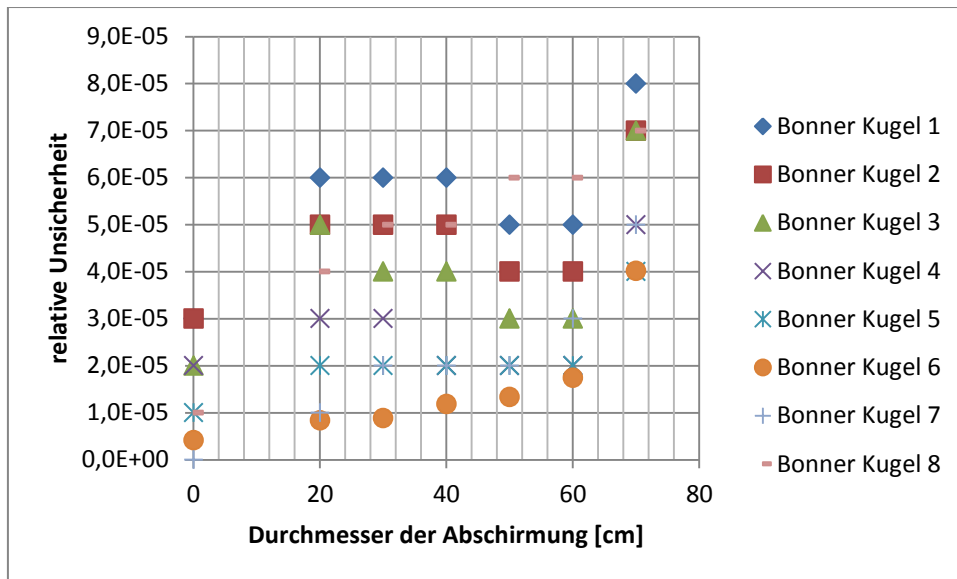


Abb. 5.42 Relative Unsicherheiten in den Zählraten der acht Bonner-Kugeln für die sieben Benchmark-Fälle für Analysen in der Konfiguration MAVRIC RT

5.2 Vergleich der Monaco/MAVRIC-Rechnungen mit MCNP5-Rechnungen

Die beiden Experimente Ueki et al. und ALARM-CF-FE-SHIELD-001 wurden parallel mit MCNP5 modelliert und nachgerechnet. Im Zuge dessen wurden auch mit MCNP5 Tests zu verschiedenen Details der Simulationen und zur verschiedenen Varianzreduktionmethoden mit sogenannten Importances und Weight Windows durchgeführt. Die Resultate dieser Untersuchungen werden in /BOC 13/ ausführlich diskutiert. An dieser Stelle werden vor allem die errechneten Spektren und Teilchenflüsse der Monaco/MAVRIC-Rechnungen mit denen der MCNP5-Rechnungen verglichen. Dies geschieht hier für beide betrachteten Experimente separat, wobei wiederum lediglich einige repräsentative experimentelle Fälle betrachtet werden, anhand derer die generelle Übereinstimmung bzw. auftretende Unterschiede der Monaco/MAVRIC- und MCNP5-Rechnungen verdeutlicht werden. Zudem werden hier, soweit nicht anders erwähnt, die Transportrechnungen ohne CADIS-Vorrechnung zum Vergleich herangezogen. Da die eingesetzten Varianzreduktionsmethoden, wie Importances oder Weight Windows, die errechneten Spektren nicht beeinflussen, sind bei einem Vergleich der mit Hilfe von Varianzreduktionsmethoden erzielten Resultate keine signifikant unterschiedlichen Ergebnisse zu erwarten.

5.2.1 Ueki-Experiment

5.2.1.1 Äquivalenzdosis und Neutronenfluss

Die Vergleiche zwischen MCNP5 und Monaco/MAVRIC sind in nachfolgenden Abbildungen wiedergegeben. Da in Kapitel 5.1.1.3 je nach Definition der Quelle unterschiedliche Resultate für die Monaco-Rechnungen erzielt wurden, wurden hier zwei der dort durchgeführten Rechnungen zum Vergleich herangezogen. Dies sind einmal die Resultate der Punktquelle („point source“) und die Resultate der Stabquelle mit einer Ausdehnung von 0,01 cm in x-Richtung („1d source“). Die Resultate beider Quellendefinitionen sind in den folgenden Abbildungen enthalten.

Die Vergleiche der Äquivalenzdosen und den daraus bestimmten Abschwächungsfaktoren von MCNP5 und Monaco weisen für die in Monaco genutzte Stabquelle sehr gute Übereinstimmung auf (**Abb. 5.43** und **Abb. 5.44**). Dagegen zeigen die Vergleiche von MCNP5 und den Monaco-Rechnungen mit Punktquelle deutliche Abweichungen. Dies weist zusätzlich darauf hin, dass die Resultate mit ausgedehnten Quellen vertrauenswürdiger sind als die mit Monaco auf Basis einer Punktquelle errechneten Werte. Ein ähnliches Bild ergibt der Vergleich der Neutronenflüsse (**Abb. 5.45** und **Abb. 5.46**). Wie für die Äquivalenzdosen und Abschwächungsfaktoren ergibt sich auch hier eine insgesamt gute Übereinstimmung zwischen den mit MCNP5 und den mit Monaco unter Verwendung der Stabquelle bestimmten Neutronenflüssen. Bei Verwendung der Punktquelle weichen im Vergleich der totalen Neutronenflüsse die von Monaco ermittelten Werte wieder deutlich von denen der MCNP5-Rechnungen ab (**Abb. 5.45**). Überraschenderweise stimmt aber der ungestreute Neutronenfluss der Monaco-Rechnungen sowohl bei Verwendung der Stab- also auch der Punktquelle sehr gut mit dem mittels MCNP5 bestimmten ungestreuten Fluss überein. Offensichtlich sind die gestreuten Neutronen für den zu beobachtenden Unterschied bei Nutzung der Punktquelle verantwortlich. Dieses Phänomen ist aus physikalischer Sicht kaum zu begründen. Eine schlüssige Erklärung für diese Diskrepanzen kann an dieser Stelle nicht gegeben werden⁴.

⁴ Nach Abschluss der Berechnungen wurde vom Entwickler in dem Codepaket SCALE 6.1.1 eine aktualisierte Programmversion veröffentlicht. Aus der Dokumentation geht u. a. hervor, dass es sich bei dem vorliegenden Befund um einen Fehler in der hier verwendeten, mittlerweile obsoleten Version des Pakets SCALE 6.1 handeln dürfte.

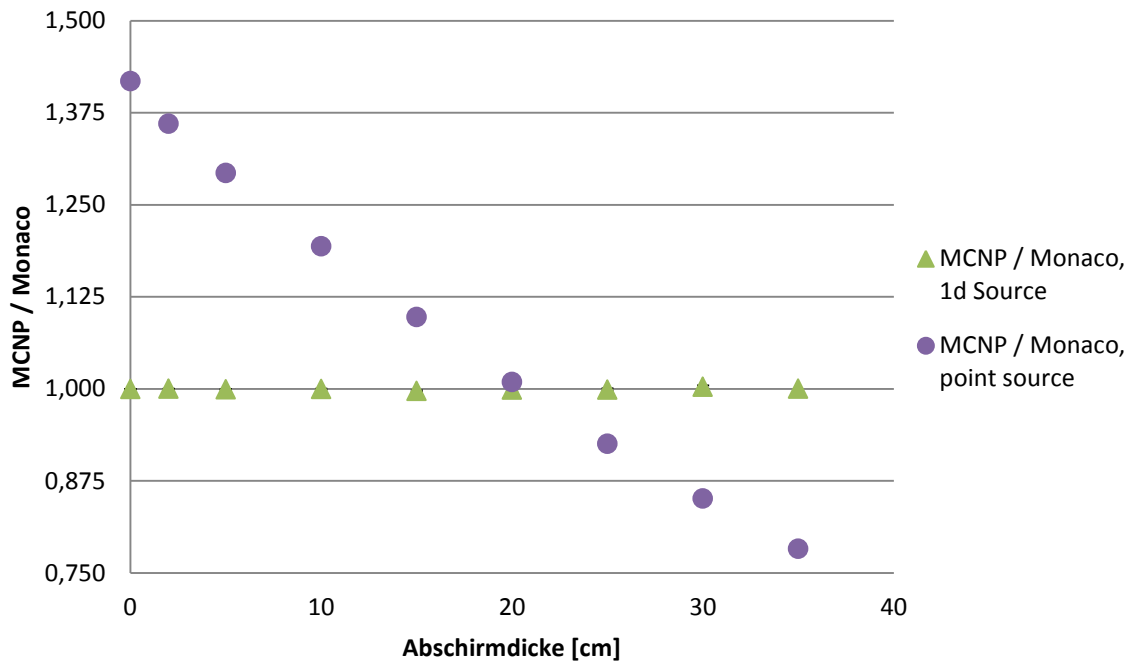


Abb. 5.43 Verhältnis der Äquivalenzdosen der MCNP5- und-Monaco-Rechnungen für das Ueki-Experiment

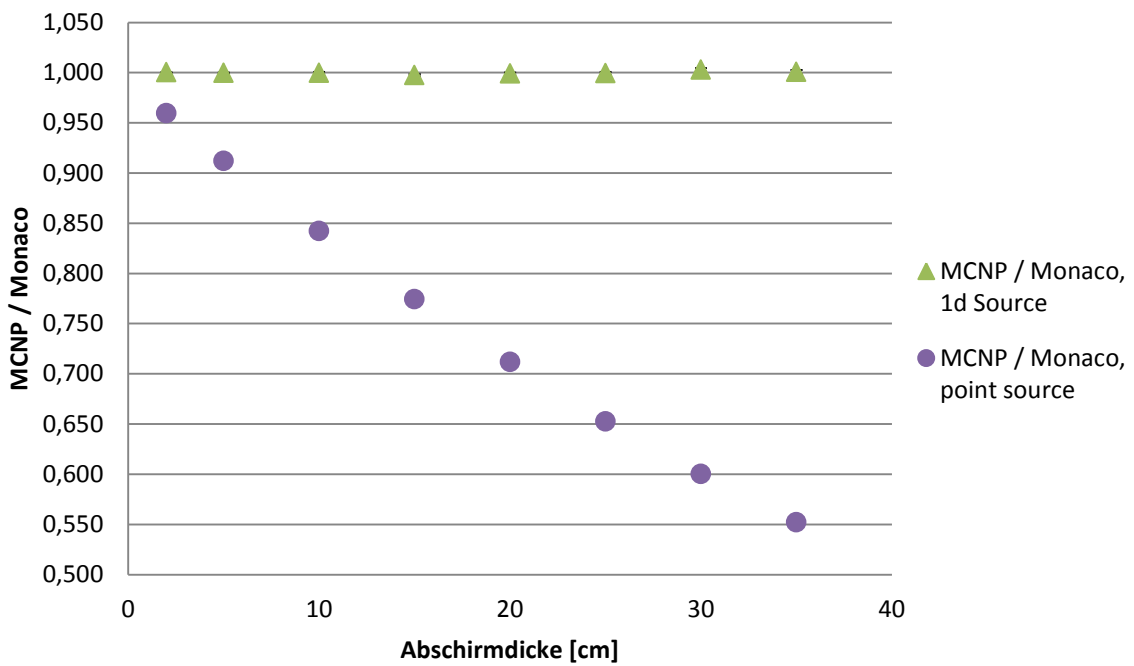


Abb. 5.44 Verhältnis der Abschwächungsfaktoren der MCNP5- und-Monaco-Rechnungen für das Ueki-Experiment

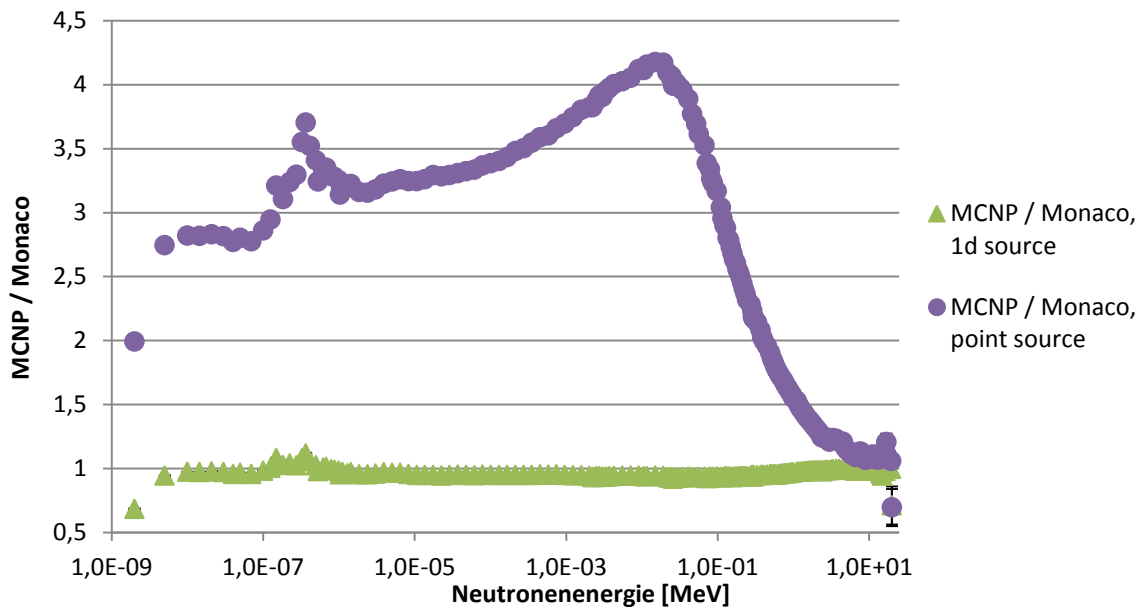


Abb. 5.45 Verhältnis der totalen Neutronenflüsse der MCNP5- und-Monaco-Rechnungen für das Ueki-Experiment ohne Graphitabschirmung

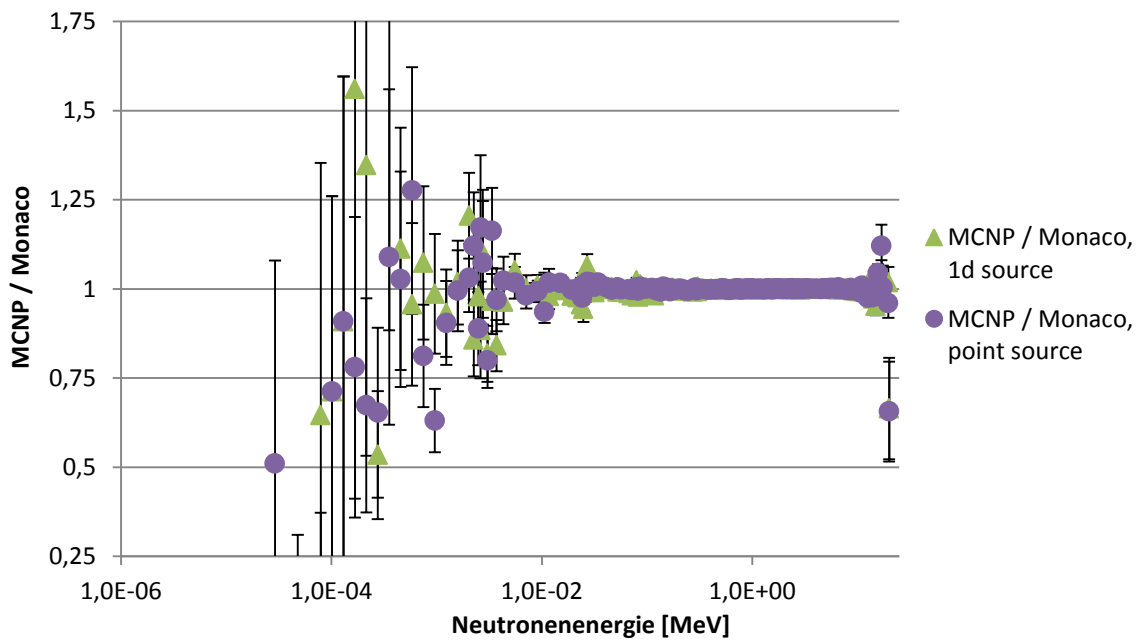


Abb. 5.46 Verhältnis der nicht gestreuten Neutronenflüsse der MCNP5- und-Monaco-Rechnungen für das Ueki-Experiment ohne Graphitabschirmung

5.2.1.2 Statistische Unsicherheit und Rechenzeiten

Zum Vergleich der Varianzreduktionsmethoden von MCNP5 und Monaco werden zusätzlich in **Abb. 5.47** bis **Abb. 5.50** die erzielten Unsicherheiten und benötigten Rechenzeiten gegenübergestellt. Hierzu werden auch die Resultate der MCNP5- und Monaco-Rechnungen mit der Weight Windows-Methode bei Verwendung des Rechengitters der CADIS-EXT Methode miteinander verglichen. Da hier dieselben Gewichtsgrenzen für beide Codes verwendet werden, lassen sich die jeweiligen Änderungen gegenüber den Standardsimulationen direkt miteinander vergleichen. Im Fall der Standardsimulation (ohne Varianzreduktion) werden ähnliche Unsicherheiten von MCNP5 und Monaco erreicht. Bei Verwendung der Weight Windows-Methode werden dagegen von Monaco bei stärkerer Abschirmung geringere Unsicherheiten gegenüber MCNP5 erzielt (**Abb. 5.47**). Die benötigten Rechenzeiten fallen mit Monaco in beiden Fällen deutlich höher aus als mit MCNP5 (**Abb. 5.48**). Ebenso ist der Zeitgewinn, also die Reduktion der Rechenzeit durch den Einsatz der Weight Windows-Methode, bei Monaco geringer als bei MCNP5. Dabei ist zu beachten, dass dieser Vergleich nur qualitativ zu werten ist, da in den Rechnungen unterschiedliche Anzahlen von Detektoren simuliert wurden, wodurch keine direkte Vergleichbarkeit der Zeiten besteht (vgl. Kapitel 5.2.2.4). Durch die geringere Unsicherheit ergibt sich für Monaco aber ein höherer „Speedup“, also eine größere Zunahme in der FOM als bei MCNP5.

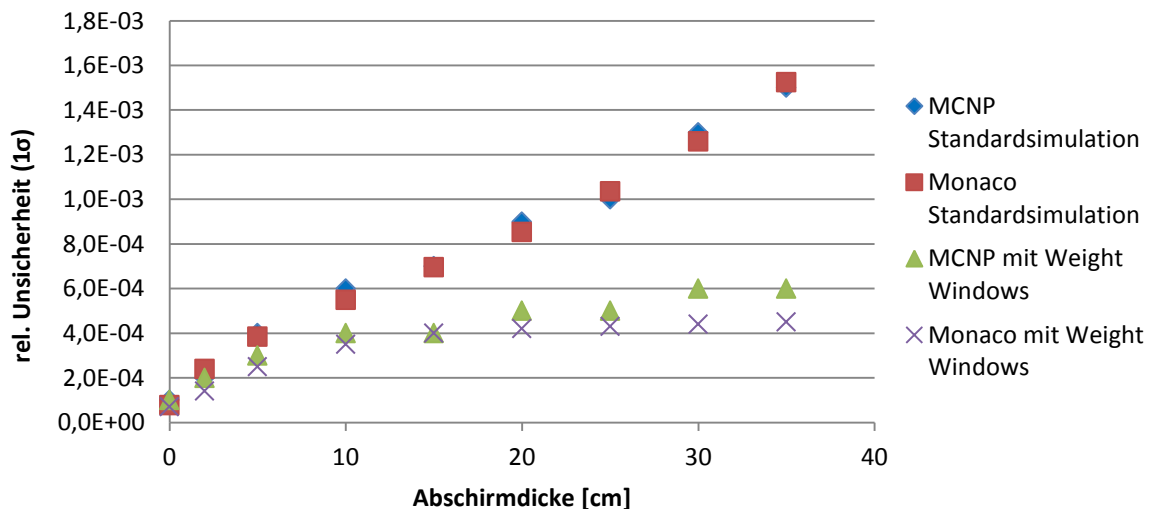


Abb. 5.47 Vergleich der Unsicherheiten der von MCNP5 und Monaco errechneten Äquivalenzdosen der Standardsimulationen und der Rechnungen mit der Weight Windows-Methode für das Ueki-Experiment

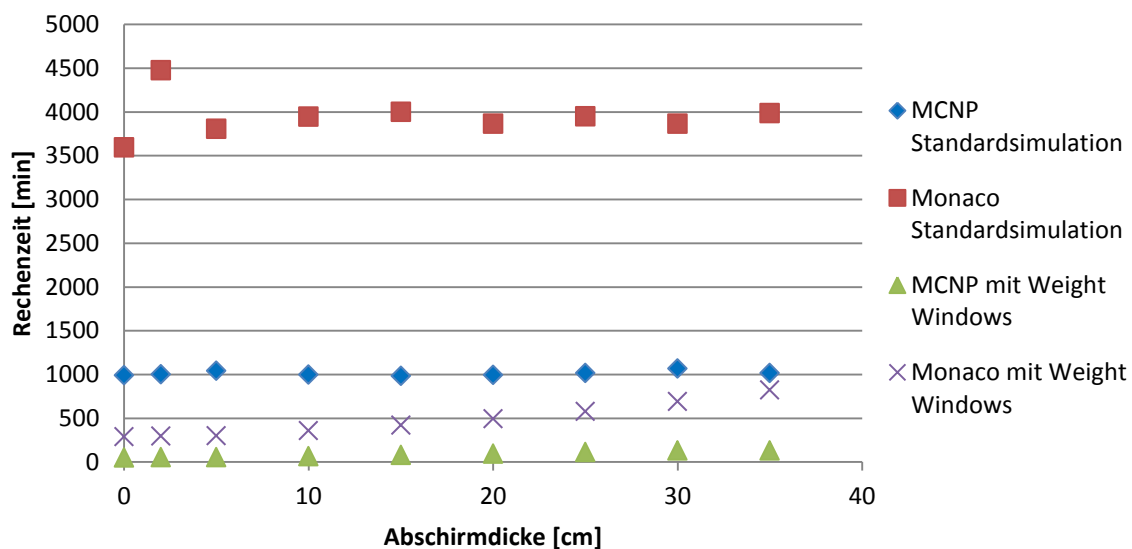


Abb. 5.48 Vergleich der Rechenzeiten der MCNP5- und Monaco-Standard-simulationen sowie der Rechnungen mit der Weight Windows-Methode für das Ueki-Experiment

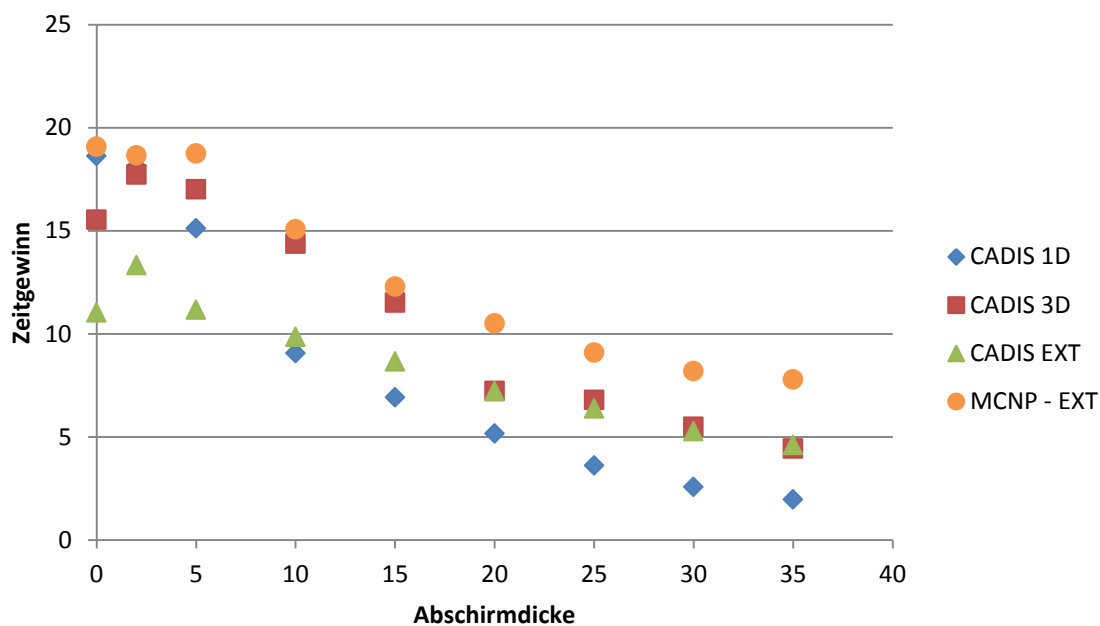


Abb. 5.49 Vergleich des Zeitgewinns durch die Verwendung der Weight Windows-Methode in den MCNP5- und Monaco-Rechnungen für das Ueki-Experiment

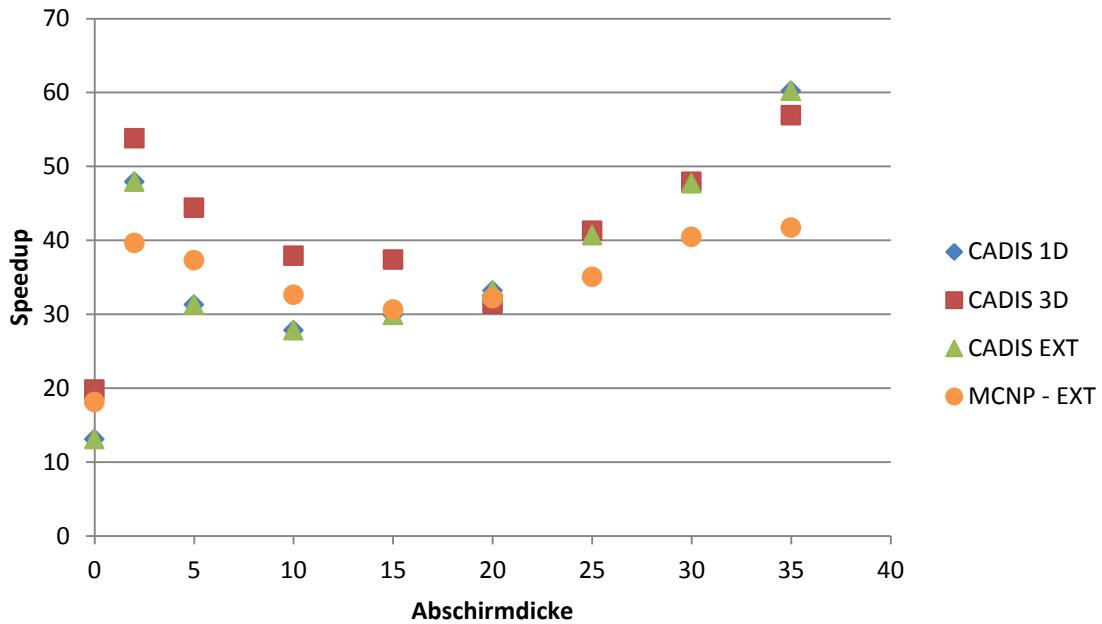


Abb. 5.50 Vergleich des Speedup durch die Verwendung der Weight Windows-Methode in den MCNP5- und Monaco-Rechnungen für das Ueki-Experiment

5.2.2 Experiment ALARM-CF-FE-SHIELD-001

Bei dem Vergleich der Rechnungen zum Experiment ALARM-CF-FE-SHIELD-001 ist zunächst zu bemerken, dass in einigen Fällen, vor allem in Energiebereichen in denen die errechneten Spektren ausgeprägte Strukturen aufweisen, merkliche Unterschiede zwischen den von Monaco/MAVRIC und MCNP5 errechneten Teilchenflüssen je Energiegruppe auftreten (vgl. z. B. **Abb. 5.52**). Diese Unterschiede sind vermutlich durch die unterschiedlichen Energiegruppenstrukturen der genutzten Wirkungsquerschnittsbibliotheken verursacht. In Monaco/MAVRIC wird eine in Energiegruppen aufgeteilte Wirkungsquerschnittsbibliothek verwendet, wohingegen in MCNP5 kontinuierliche Wirkungsquerschnitte genutzt werden. Dadurch ist in den Monaco/MAVRIC-Rechnungen nur eine begrenzte Auflösung der Teilchenenergie möglich, wodurch sich Unterschiede in der zugeordneten Energie der Teilchen am Detektor zwischen Monaco/MAVRIC und MCNP5 ergeben könnten. Dies sollte sich dann vor allem in strukturierten Bereichen der Spektren auswirken, so dass dort gewisse Unterschiede in den berechneten Teilchenflüssen je Energiegruppe zu erwarten wären. Diese Effekte wurden hier aber nicht weiter betrachtet, da die integralen Teilchenflüsse insgesamt gut übereinstimmen und

so dieser oben beschriebene Effekt auf den integralen Vergleich keine bzw. nur geringe Auswirkungen zu haben scheint.

5.2.2.1 Teil 1: Neutronenfluss

Die Vergleiche der Neutronenspektren der Monaco- und MCNP5-Rechnungen sind in **Abb. 5.51** und **Abb. 5.52** für die Fälle ohne Abschirmung sowie mit der Abschirmung von 35 cm Radius wiedergegeben. Für geringe Abschirmdicken sind gute Übereinstimmungen der errechneten Neutronenspektren zu beobachten. Mit zunehmender Abschirmung zeigen sich in dem Energiebereich von etwa 10 keV bis 1 MeV die bereits oben angesprochenen Effekte, die sich vermutlich aufgrund der begrenzten Energieauflösung der in Monaco eingesetzten Wirkungsquerschnittsbibliothek ergeben. Dadurch treten im Verhältnis der Neutronenspektren in diesem Energiebereich Fluktuationen von zumeist etwa 20 bis 30 % auf (**Abb. 5.51** und **Abb. 5.52**). Für Neutronenenergien kleiner als etwa 100 keV ist zusätzlich mit zunehmender Abschirmung ein systematisch geringerer Neutronenfluss in den MCNP5-Rechnungen gegenüber den Monaco-Rechnungen zu beobachten. Für den Fall der Abschirmung von 35 cm Radius beträgt dieser Unterschied etwa 15 %. D. h. in den MCNP5-Rechnungen scheint dementsprechend die berechnete Moderation der Neutronen in einem etwas geringen Maß ausgeprägt zu sein als in den Monaco-Rechnungen.

Im Vergleich mit den experimentellen Werten deutet sich für die MCNP5-Rechnungen ebenfalls eine Unterschätzung des Neutronenflusses für Energien kleiner als 100 keV von etwa 10 % an /BOC 13/. Aufgrund der großen Fluktuationen und der großen experimentellen Unsicherheiten ist an dieser Stelle aber nicht eindeutig zu entscheiden, welche der beiden Rechenverfahren, Monaco oder MCNP5, die experimentell bestimmten Werte besser wiedergibt.

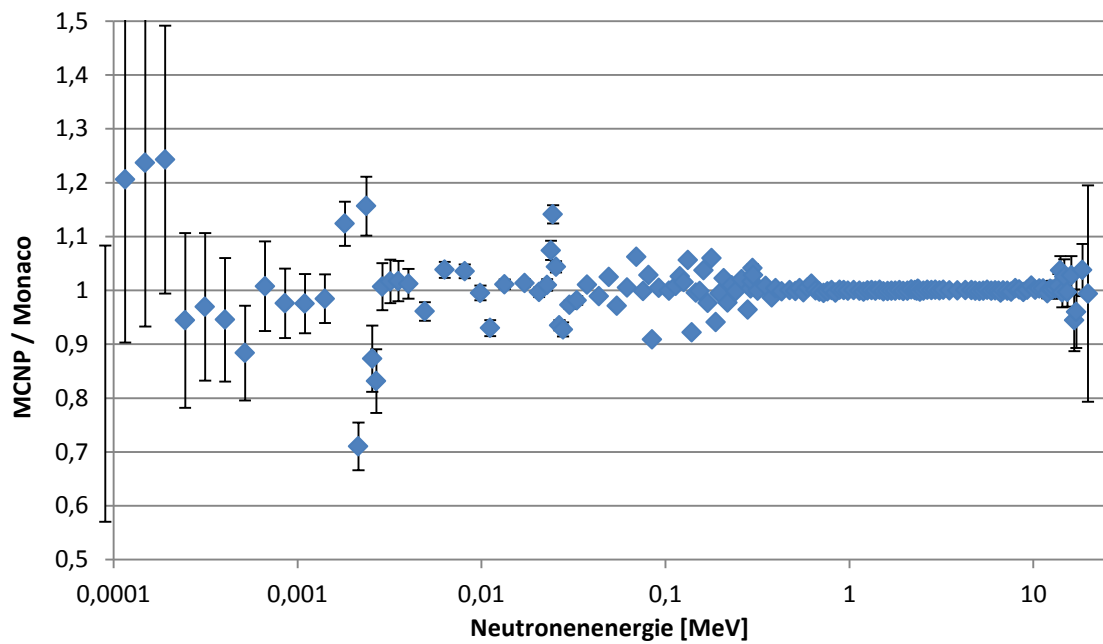


Abb. 5.51 Vergleich der Neutronenspektren des Experiments ALARM-CF-FE-SHIELD-001 ohne Abschirmung (Fall 1) aus den Monaco- und MCNP5-Rechnungen

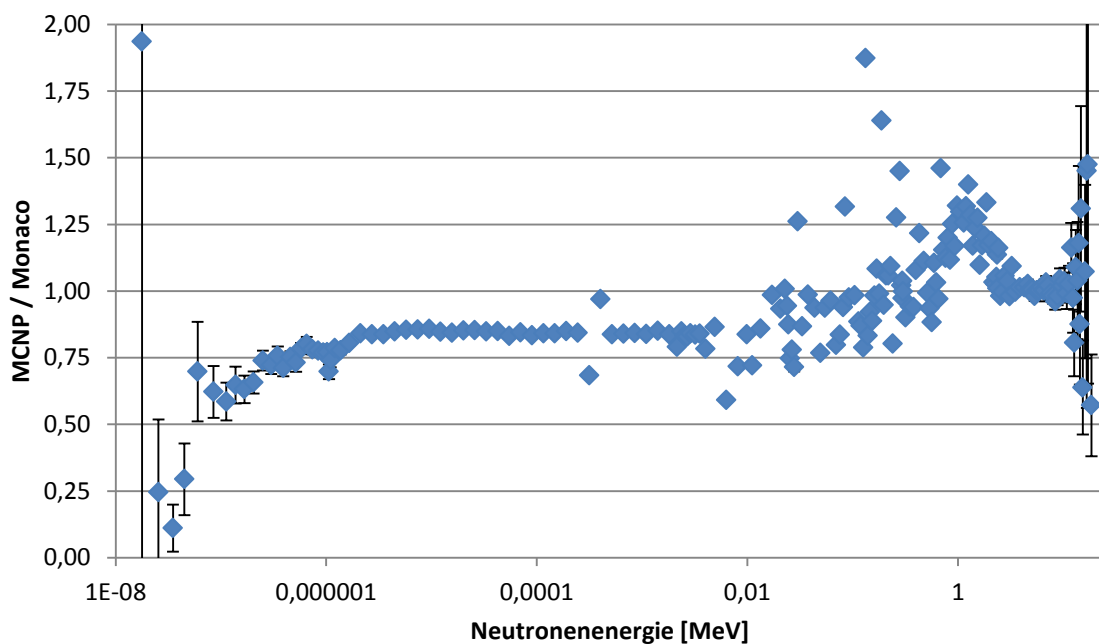


Abb. 5.52 Vergleich der Neutronenspektren des Experiments ALARM-CF-FE-SHIELD-001 mit Abschirmung von Radius 35 cm aus den Monaco- und MCNP5-Rechnungen

5.2.2.2 Teil 2: Photonenfluss

Beim Vergleich der Photonenflüsse ist wieder zwischen Photonen aus (n,γ) -Reaktionen und primären Photonen zu unterscheiden. Zunächst zu beobachten, dass in beiden Fällen für Photonenenergien unterhalb von etwa 100 keV ein deutlich höherer Photonenfluss von MCNP5 gegenüber den Monaco-Rechnungen ermittelt wird (**Abb. 5.53** und **Abb. 5.55**). Bei geringen Abschirmungen beträgt dieser Unterschied sogar bis zu zwei Größenordnungen. Eine mögliche Erklärung könnte in einer unterschiedlichen Behandlung von Bremsstrahlungsphotonen liegen. In /BOC 13/ wurden die Ergebnisse unter Verwendung der verschiedenen Varianten der Berücksichtigung von Bremsstrahlungsphotonen in MCNP5 miteinander verglichen. Dabei zeigte sich, dass das Photonspektrum unterhalb von etwa 100 keV durch Bremsstrahlungsphotonen dominiert wird bzw. letztere wesentlich zum Spektrum beitragen und ein Vernachlässigen der Bremsstrahlung zu einem Unterschätzen des Photonenflusses in diesem Energiebereich von bis zu drei Größenordnungen führen kann. Somit könnte eine unterschiedliche Berücksichtigung der Bremsstrahlung in MCNP5 und MAVRIC eine mögliche Ursache für die beobachteten Unterschiede sein. Allerdings konnte diese Vermutung im Rahmen dieses Vorhabens nicht weiter untersucht werden.

Für Photonenenergien oberhalb von 100 keV ergeben sich im Fall der Photonen aus (n,γ) -Reaktionen für geringe Abschirmungen sehr gute Übereinstimmungen in den errechneten Photonenflüssen von MCNP5 und Monaco. Bei größeren Abschirmungen zeigt sich dagegen eine Steigung im Verhältnis der Photonenflüsse (**Abb. 5.56**), die aus einer Verschiebung der Spektren gegeneinander herrührt. Ursache dieser Verschiebung der Spektren könnte hier in leicht unterschiedlichen Photonen-Wirkungsquerschnitten begründet sein. Auch dieser Vermutung konnte im Rahmen dieser Arbeit nicht weiter nachgegangen werden.

Die Spektren der primären Photonen zeigen qualitativ das gleiche Verhalten wie es zuvor für die Photonen aus (n,γ) -Reaktionen diskutiert wurde. Allerdings kommt hier hinzu, dass der in MCNP5 bestimmte primäre Photonenfluss systematisch um etwa 13 % geringer ausfällt als der in Monaco bestimmte primäre Photonenfluss (**Abb. 5.54** und **Abb. 5.56**). Dies ist selbst bei den Rechnungen ohne Abschirmungen der Fall, so dass dieser Effekt offensichtlich nicht durch Unterschiede in den Wirkungsquerschnitten bedingt ist. Auch das Überprüfen der Quelldefinition ergab keinen Hinweis auf eine mögli-

che Ursache. Insgesamt konnte hier keine befriedigende Erklärung für diesen Unterschied im Photonenfluss gefunden werden.

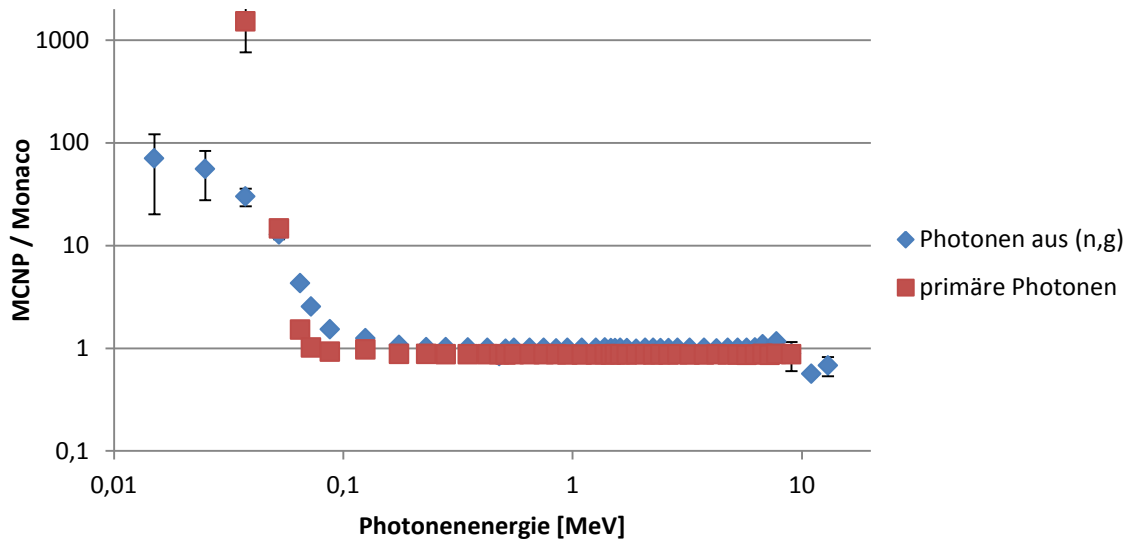


Abb. 5.53 Verhältnis der von MCNP5 und Monaco ermittelten Photonenspektren des Experiments ALARM-CF-FE-SHIELD-001 ohne Abschirmung (logarithmische Darstellung)

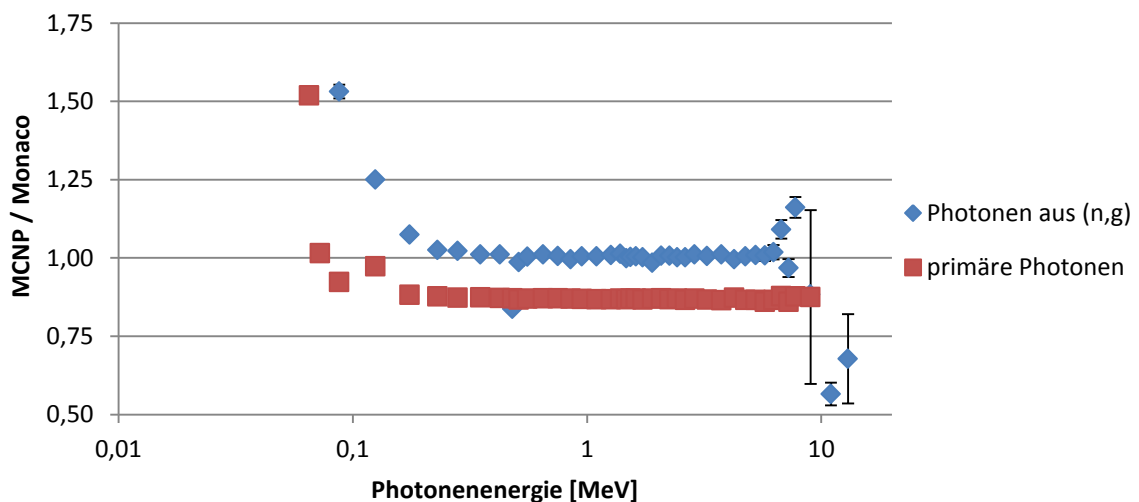


Abb. 5.54 Verhältnis der von MCNP5 und Monaco ermittelten Photonenspektren des Experiments ALARM-CF-FE-SHIELD-001 ohne Abschirmung (lineare Darstellung)

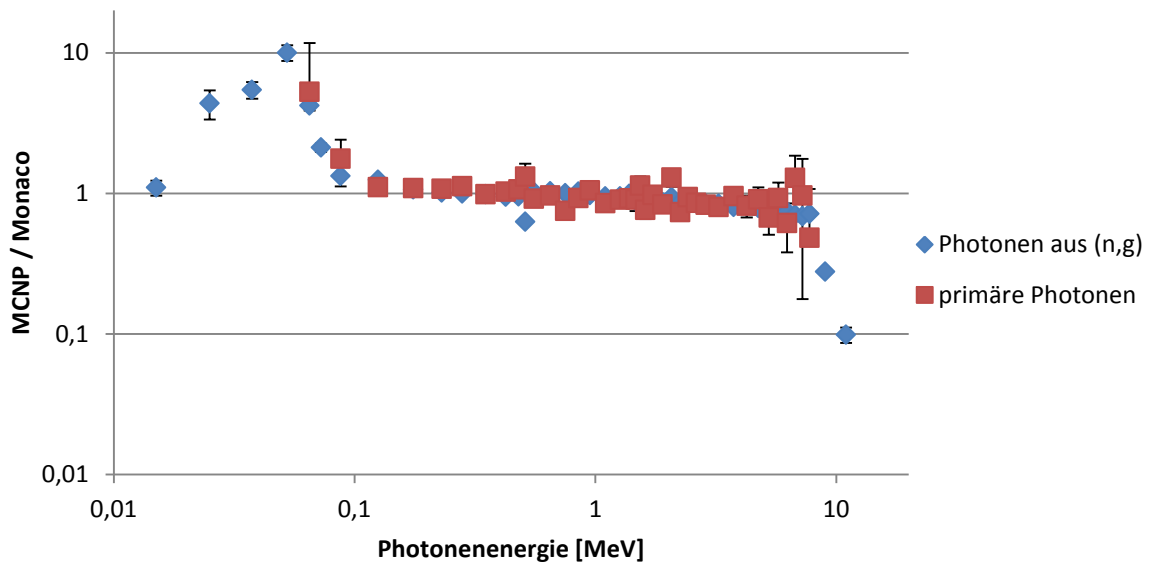


Abb. 5.55 Verhältnis der von MCNP5 und Monaco ermittelten Photonenspektren des Experiments ALARM-CF-FE-SHIELD-001 mit Abschirmung von 35 cm Radius (logarithmische Darstellung)

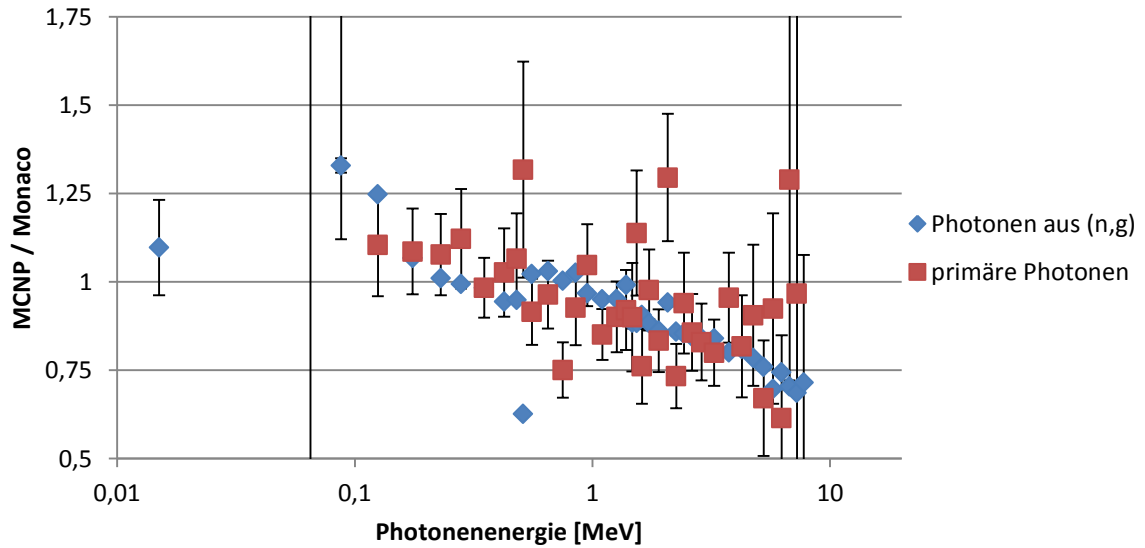


Abb. 5.56 Verhältnis der von MCNP5 und Monaco ermittelten Photonenspektren des Experiments ALARM-CF-FE-SHIELD-001 mit Abschirmung von 35 cm Radius (lineare Darstellung)

5.2.2.3 Teil 3: Zählraten der Bonner-Kugeln

Die Vergleiche der Zählraten der Bonner-Kugeln sind in **Abb. 5.57** wiedergegeben. Sie zeigen für geringe Abschirmung sehr gute Übereinstimmung. Für größere Abschirmungsdicken ergaben sich in Abhängigkeit der Durchmesser der Bonner-Kugeln Unterschiede zwischen MCNP5 und Monaco von etwa -3 % bis +5 %. Diese Unterschiede spiegeln letztlich die beobachteten Unterschiede in den Neutronenspektren aus Kapitel 5.2.2.1 wider (vgl. **Abb. 5.52**). Da die kleinen Bonner-Kugeln eine höhere Effizienz für niederenergetische Neutronen als für hochenergetische Neutronen aufweisen, führt der gegenüber MCNP5 erhöhte niederenergetische Anteil des Spektrums von Monaco auch zu etwas höheren Zählraten der kleinen Bonner-Kugeln. Bei den großen Bonner-Kugeln liegt dagegen ein gegensätzliches Ansprechverhalten vor, was hier zu etwas höheren Zählraten in den MCNP5-Rechnungen gegenüber den Monaco-Resultaten führt.

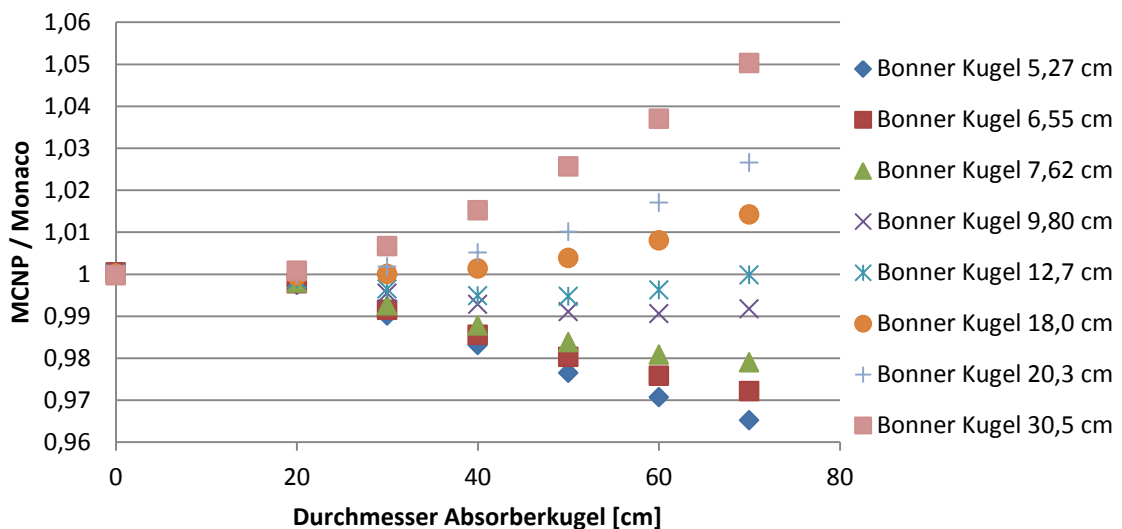


Abb. 5.57 Verhältnis der von MCNP5 und Monaco ermittelten Zählraten der Bonner-Kugeln des Experiments ALARM-CF-FE-SHIELD-001

5.2.2.4 Statistische Unsicherheiten und Rechenzeiten

Zusätzlich zu den errechneten Neutronen- und Photonenflüssen werden in **Abb. 5.58** bis **Abb. 5.61** auch die erzielten statistischen Unsicherheiten miteinander verglichen. Der Vergleich zwischen MCNP5 und Monaco beschränkt sich hier auf die Simulationen

ohne zusätzliche Varianzreduktionsmethoden. In den Rechnungen mit Varianzreduktionsmethoden wurden verschiedene Varianten mit unterschiedlichen Parametern genutzt, wodurch die erreichten Unsicherheiten in diesen Rechnungen nur bedingt miteinander vergleichbar sind, da die Unsicherheiten in der Regel von den verwendeten Methoden und Parametern abhängen.

Von MCNP5 und Monaco wurden in den vorliegenden Untersuchungen ähnliche statistische Unsicherheiten für die errechneten Neutronen- und Photonenflüsse erreicht (vgl. exemplarisch **Abb. 5.58** bis **Abb. 5.60**). Im Fall der Bonner-Kugeln sind die von Monaco erzielten Unsicherheiten geringer, liegen aber in der gleichen Größenordnung wie die in den MCNP5-Rechnungen erzielten Werte. Dabei ist zu beachten, dass die Resultate von MCNP5 nur mit einer Genauigkeit von 10^{-4} angegeben werden, was auch die Größenordnung der statistischen Unsicherheit ist. D. h. die Werte von MCNP5 könnten durch numerische Rundungsvorgänge etwas höher ausgewiesen sein als sie tatsächlich sind.

Die von MCNP5 und Monaco benötigten Rechenzeiten gibt **Abb. 5.62** wieder. Beim Vergleich der Rechenzeiten ist zu beachten, dass in den Rechnungen unterschiedliche Anzahlen und Arten von Detektoren simuliert wurden, so dass die Zeiten aufgrund des unterschiedlichen Rechenaufwands nicht direkt mit einander verglichen werden können. Der Vergleich ist daher nur qualitativ zu werten. Insgesamt zeigt sich aber, dass Monaco sowohl im Fall der Neutronenquelle als auch im Fall der Photonenquelle deutlich längere Rechenzeiten benötigt. Eine Erklärung für die teils um einen Faktor 10 längeren Rechenzeiten von Monaco kann anhand der hier durchgeführten Untersuchungen nicht gegeben werden.

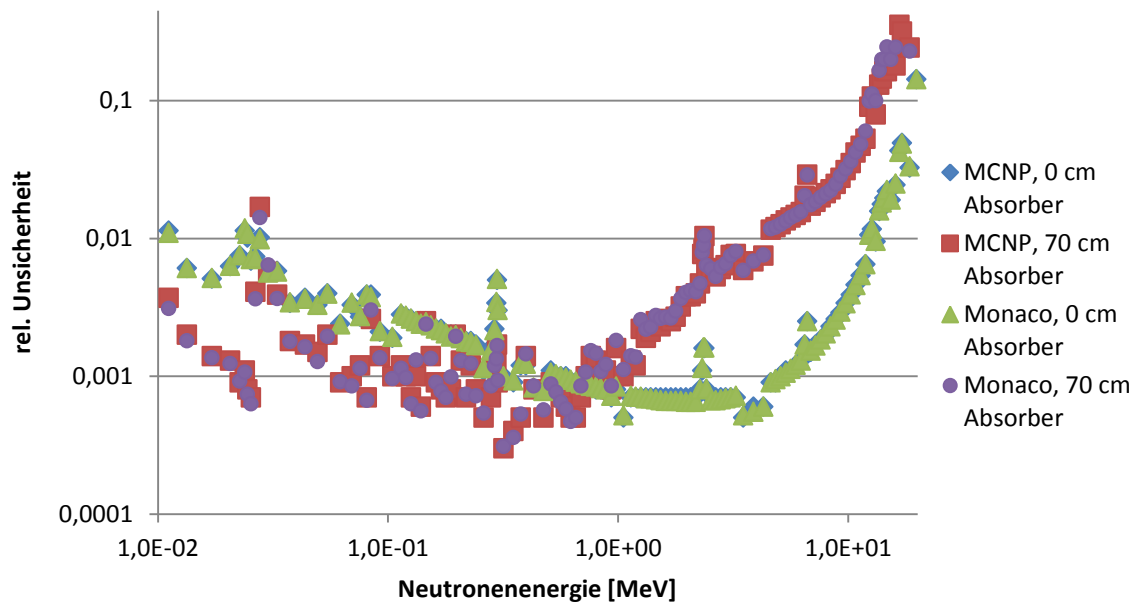


Abb. 5.58 Vergleich der Unsicherheiten der von MCNP5 und Monaco errechneten Neutronenflüsse der Standardsimulationen für das Experiment ALARM-CF-FE-SHIELD-001

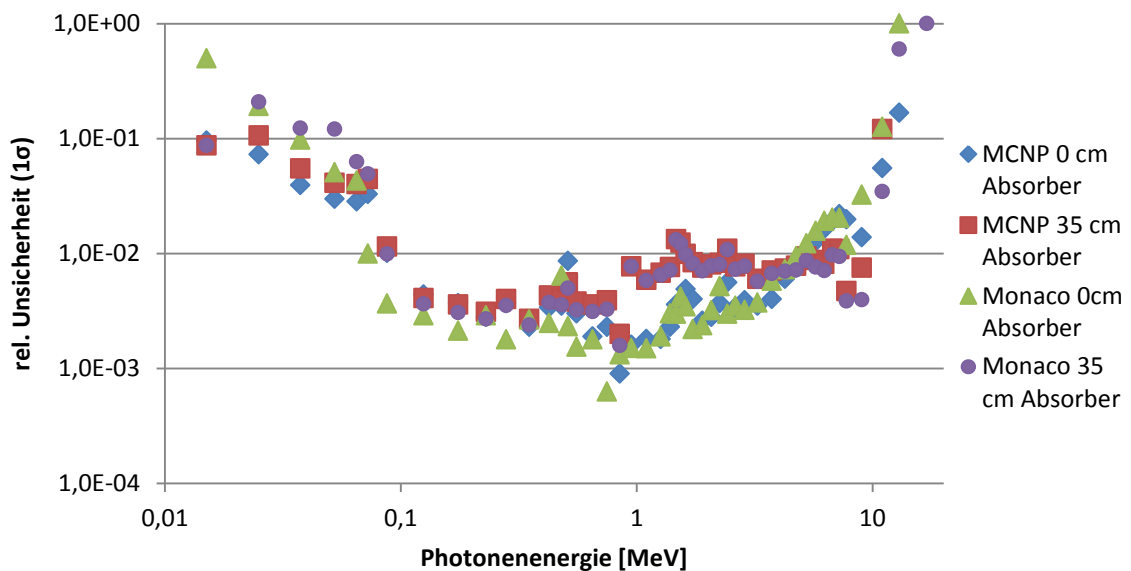


Abb. 5.59 Vergleich der Unsicherheiten der von MCNP5 und Monaco errechneten Photonenergie aus (n,γ) -Reaktionen der Standardsimulationen für das Experiment ALARM-CF-FE-SHIELD-001

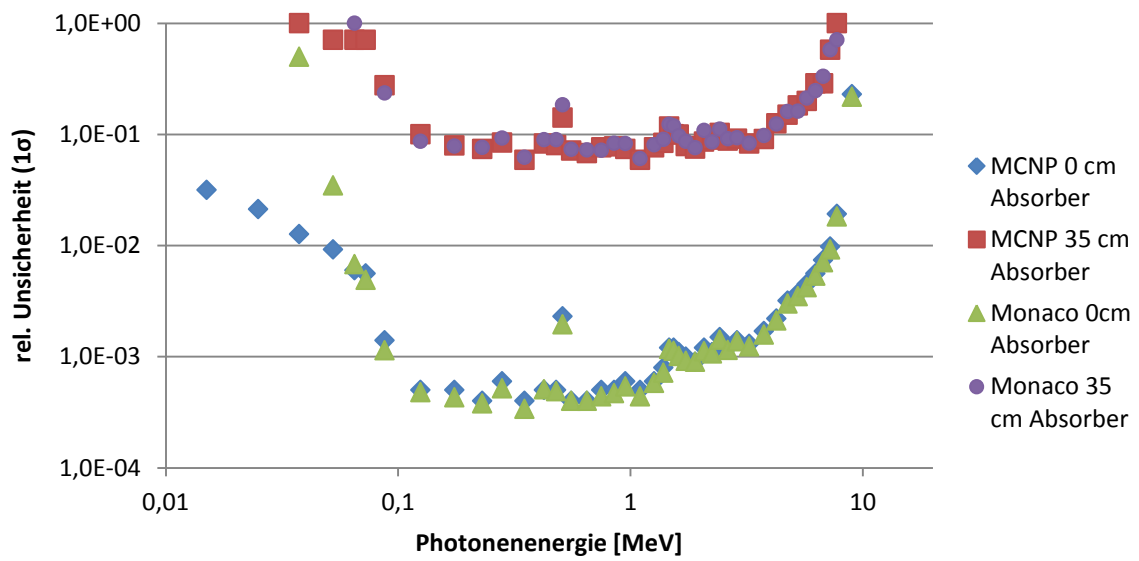


Abb. 5.60 Vergleich der Unsicherheiten der von MCNP5 und Monaco errechneten primären Photonenflüsse der Standardsimulationen für das Experiment ALARM-CF-FE-SHIELD-001

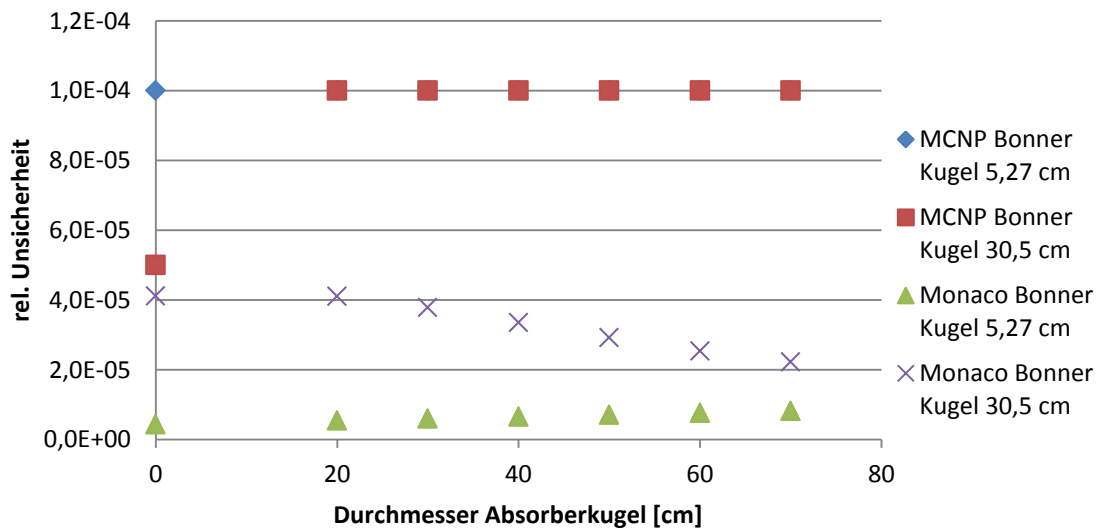


Abb. 5.61 Vergleich der Unsicherheiten der in den MCNP5- und Monaco- Standardsimulationen errechneten Zählraten der Bonner-Kugeln für das Experiment ALARM-CF-FE-SHIELD-001

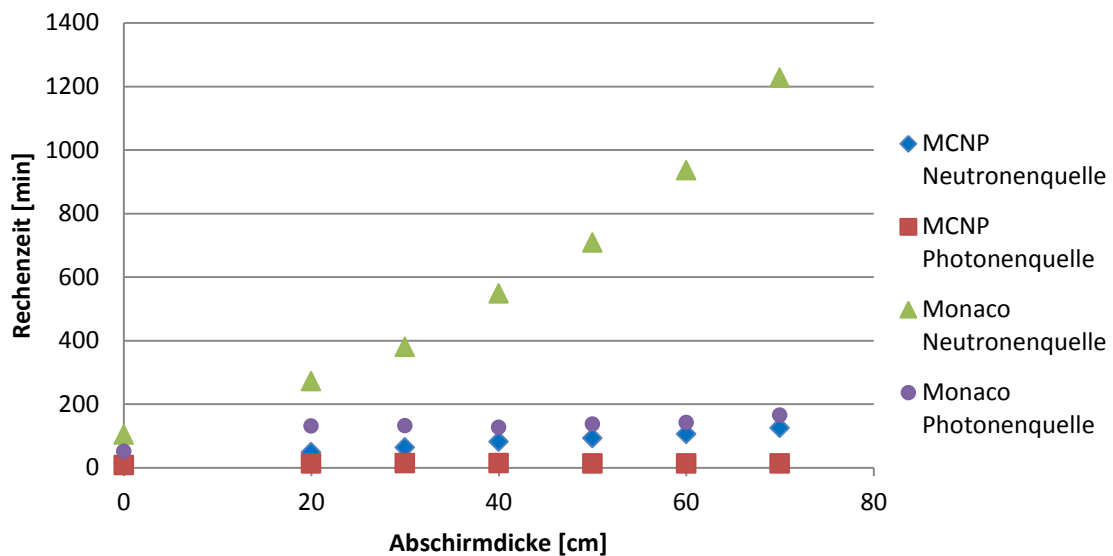


Abb. 5.62 Vergleich der benötigten Rechenzeiten der MCNP5- und Monaco- Standardsimulationen mit Neutronen- bzw. Photonenquelle für das Experiment ALARM-CF-FE-SHIELD-001

5.3 Zusammenfassung

Die Sequenz MAVRIC, die im SCALE-Programmpaket zur Durchführung von Abschirm- und Strahlungstransportrechnungen implementiert ist, wurde für die Nachrechnung zweier unterschiedlicher Experimente eingesetzt. Diese Nachrechnung ermöglichte eine Vielzahl von Tests und Vergleichen der bereitgestellten Varianzreduktionsmethoden, sowie Vergleiche zu den experimentellen Messungen.

Generell konnten die experimentellen Messungen gut bzw. in akzeptabler Weise reproduziert werden. Allerdings waren einzelne größere Abweichungen zu beobachten, die nicht vollständig erklärt werden konnten. Die Nachrechnungen des Experiments Ueki et al. zeigten bei Verwendung der standardmäßig genutzten Punktquelle größere Abweichungen gegenüber den experimentellen Werten von bis zu 60 %. Dagegen führten andere Definitionen der Quelle zu guten Übereinstimmungen mit maximalen Abweichungen in den Abschwächungsfaktoren von weniger als 8 %. Letztere Resultate wurden durch unabhängige Nachrechnungen mit MCNP5 bestätigt. Warum die Verwendung der Punktquelle die errechneten Resultate in der beobachteten Form beeinflusst, konnte in diesem Rahmen nicht abschließend geklärt werden.

Die experimentellen Messungen der Neutronenflüsse an dem Experiment ALARM-CF-FE-SHIELD-001 konnten insgesamt gut reproduziert werden. Dies gilt sowohl für die vermessenen Spektren, wie auch für die Zählraten der verwendeten Bonner-Kugeln. Beim Vergleich der Neutronenspektren ist zu beachten, dass Abweichungen der Flüsse in einzelnen Energiegruppen in der nicht simulierten Detektorauflösung begründet sind. Dies bestätigen auch die MCNP5-Rechnungen. Im generellen Verlauf entspricht das errechnete Spektrum aber gut dem gemessenen Spektrum. Lediglich die errechneten Photonenflüsse zeigten deutliche Abweichungen von den gemessenen Werten. Ähnliche Abweichungen sind aber auch in den Beispielrechnungen der Experimentbeschreibung und in den hier durchgeführten MCNP5-Rechnungen zu beobachten. Dieser Sachverhalt konnte hier nicht erklärt werden, auch gibt die Experimentbeschreibung hierzu keine weiteren Hinweise.

Die Vergleiche zwischen Ergebnissen der Rechnungen MCNP5 einerseits und Monaco/MAVRIC andererseits zeigen insgesamt eine gute Übereinstimmung in den ermittelten Teilchenspektren bzw. Teilchenflüssen, sowohl für Neutronen als auch für Photonen. Beim Experiment ALARM-CF-FE-SHIELD-001 liegen die zu beobachtenden Abweichungen in den Spektren im Bereich von nur wenigen Prozent bis etwa 10 % bis 15 % an. Dabei sind diese Unterschiede hauptsächlich im niederenergetischen Bereich der jeweiligen Spektren zu beobachten, was auf leichte Unterschiede in den Simulationen des Streuverhaltens bzw. in den dafür verantwortlichen Wirkungsquerschnitten hindeutet. Die Gesamtflüsse zeigen dementsprechend eine sehr gute Übereinstimmung, hier betragen die zu beobachtenden Abweichungen in der Regel weniger als 5 %. Die statistischen Unsicherheiten der Teilchenflüsse, die in den durchgeführten Rechnungen mit Monaco und MCNP5 erreicht wurden, weisen jeweils sehr ähnliche Werte auf. In diesem Punkt sind Monaco und MCNP5 vergleichbar. Dagegen benötigt Monaco unter vergleichbaren Bedingungen eine höhere Rechenzeit als MCNP5.

Ein ähnliches Bild ergibt sich aus den Nachrechnungen des Ueki-Experiments. Auch hier weisen die in den Monaco- und MCNP5-Rechnungen ermittelten Neutronenspektren und Äquivalenzdosen Unterschiede von nur wenigen Prozent auf. Ebenso wurden jeweils ähnliche Unsicherheiten erzielt. Auch hier benötigt Monaco deutlich längere Rechenzeiten als MCNP5. Für das Ueki-Experiment wurden zusätzlich die von Monaco mit der CADIS-Methode ermittelten Grenzwerte der Weight Windows-Methode nach MCNP5 übertragen und dort genutzt. Die Verwendung dieser Grenzen führt dabei zu sehr ähnlichen Resultaten, wobei Monaco etwas geringere statistische Unsicherheiten

erzielen konnte, wohingegen MCNP5 eine größere Reduktion der Rechenzeit erzielte. Insgesamt konnten mit MAVRIC und MCNP5 vergleichbare Gewinne in statistischer Unsicherheit bzw. Rechenzeit durch die Varianzreduktion erreicht werden.

Aus den Vergleichsrechnungen konnten ferner Erfahrungen in der Handhabung von MAVRIC gesammelt werden. Insbesondere beim Experiment von Ueki et al. wurden die Vorteile der nahezu automatisierten Varianzreduktionsmethode CADIS in Verbindung mit Monaco im Vergleich zur analogen Rechnung ohne diese Vorrechnung deutlich. Die CADIS-Methode bot hier eine einfache und effiziente Möglichkeit, geeignete Weight Windows zu generieren, die zu einer gegenüber den Monaco-Rechnungen ohne Vorrechnung wesentlichen Verringerung der Unsicherheiten und Rechenzeiten führten. Es wurde aber auch gezeigt, dass selbst bei der Anwendung der hochentwickelten, nahezu automatisierten CADIS-Methode die Qualität und Güte der Ergebnisse dennoch wesentlich von der Wahl von Einstellungen und Parametern durch den Benutzer abhängt, um sinnvolle Ergebnisse zu erzielen.

6 Innovative Kernbrennstoffkonzepte

In diesem Kapitel sind die Ergebnisse von Literaturrecherchen zu Kernbrennstoffkonzepten zusammengefasst, welche gegenwärtig international als Weiterentwicklung bestehender Konzepte für etablierte Reaktortypen, als Konzepte zur Nutzung von Thorium, sowie für künftige fortschrittliche Anlagen diskutiert und erforscht werden.

6.1 Innovative Kernbrennstoffkonzepte für bestehende Leicht- und Schwerwasser-moderierte Reaktoren

6.1.1 Historische Entwicklung von Brennstoffen für Leichtwasserreaktoren

Seit Beginn der kommerziellen Nutzung der Kernenergie zur Energieerzeugung wurde für Leichtwasserreaktoren eine stetige Erhöhung des Entladeabbrandes gekoppelt mit einer Verlängerung der Leistungszyklen verfolgt. Diese Maßnahmen führen zu einer besseren Brennstoffausnutzung, geringeren Energieerzeugungskosten und weniger radioaktivem Abfall. Um höhere Abbände zu erreichen, mussten im Zuge dessen die Anreicherungen der Brennstoffe schrittweise erhöht werden. Die obere Grenze der Anreicherung beträgt derzeit v. a. historisch bedingt üblicherweise 5,0 % ^{235}U . Entsprechend haben die involvierten Anlagen zur nuklearen Ver- und Entsorgung typischerweise Genehmigungen für den Umgang bis zu maximal dieser Anreicherung. Wenige Ausnahmen von Anlagen mit Genehmigung für geringfügig höhere Anreicherungen zur internen Handhabung liegen derzeit vor, z. B. die Anreicherungsanlage der URENCO GmbH in Gronau, die intern Anreicherungen bis 6,0 % ^{235}U handhaben kann.

Im Jahr 2000 wurden die meisten europäischen Druckwasserreaktoren mit 3,7 bis 4,2 % Anreicherung an ^{235}U und mit Zykluslängen von 12 bis 18 Monaten betrieben. Einige Anlagen nutzten länderspezifische Genehmigungsgrenzwerte von 4,5 bis 4,7 % aus. In den USA arbeiteten 40 % der Druckwasserreaktoren mit 20 bis 24 monatigen Leistungszyklen bei Anreicherungsgraden von 4,6 bis 4,95 % /WAT 01/. Der mittlere Entladeabbrand in Druckwasserreaktoren beträgt derzeit etwa 55 GWd/tSM, in

Deutschland und der Schweiz teilweise bis zu 60 GWd/tSM. Die Entwicklung bei den Siedewasserreaktoren verlief ähnlich. Seit den frühen 1980er Jahren hat sich der mittlere Entladeabbrand bis heute von unter 30 GWd/tSM sukzessive auf 50 GWd/tSM erhöht /NEA 06/.

Da die heute im Betrieb befindlichen Reaktoren ursprünglich auf der Basis geringerer Anreicherung ausgelegt worden sind, muss bei der Beladung mit höher angereicherter Brennstoff ein entsprechender Reaktivitätsüberschuss berücksichtigt werden. Zur Gewährleistung der Regelbarkeit des Abschaltverhaltens muss diese überschüssige Reaktivität bei der Beladung mit frischen Brennelementen geeignet kompensiert werden. Alleine mit borierterem Kühlmittel lässt sich dieses Ziel nur zu einem gewissen Grad erreichen, da hier die erforderliche kritische Borkonzentration die Sättigungskonzentration rasch übersteigt. Außerdem führt ein höherer Anteil von Bor im Kühlmittel zu einer ungünstigen Beeinflussung des Moderator-Temperatur-Koeffizienten.

Die verbreitetste Maßnahme stellt die Verwendung von abbrennbaren Absorbern dar, welche einen Teil der thermalisierten Neutronen einfangen. Zur Anwendung kommen hauptsächlich die Elemente Gadolinium, Erbium und Bor. Seit Mitte der 1980er Jahre wird Gadolinium als Brennstoffzusatz ($\text{UO}_2\text{-GdO}_3$) in europäischen (Siemens, Framatome – heute AREVA NP) und amerikanischen Leichtwasserreaktoren (Combustion Engineering, Westinghouse) eingesetzt. In Siedewasserreaktoren wird ausschließlich Gadolinium als abbrennbarer Absorber eingesetzt. Der Einsatz der abbrennbaren Absorber ist so ausgelegt, dass diese sich in gleichem Maße verbrauchen wie sich der Reaktor durch den Aufbau von Spaltprodukten selbst vergiftet, wodurch die Gesamtreaktivität nur sehr langsam abnimmt und der Reaktor länger im kritischen Zustand betrieben werden kann.

Zur Implementierung von abbrennbaren Absorbern wurden und werden verschiedene Konzepte angewendet. Deren historische Entwicklung mit Ausblick auf künftige, erweiterte Einsatzvarianten in bestehenden Anlagen mit Leichtwasserreaktoren werden in Kapitel 6.1.2 beschrieben und diskutiert.

Anschließend werden in Kapitel 6.1.3 bestehende und innovative Brennstoffkonzepte für Schwerwasser-moderierte Reaktoren beschrieben und diskutiert.

6.1.2 Brennstoffkonzepte für Leichtwasser-moderierte Reaktoren

Der Einsatz von abbrennbaren Absorbern in Brennelementen mit niedrig angereicherem Uran stellt die wichtigste Weiterentwicklung der Brennstoffe für Anlagen mit Leichtwasserreaktoren dar. Dies kann auf unterschiedliche Art und Weise erfolgen. So sind z. B. Stäbe mit abbrennbaren Absorbern (Burnable Poison Rods – BPR) einzelne, mit Neutronengiften versetzte Stäbe, die in ein Brennelement implementiert werden. Die Stäbe enthalten keinerlei Brennstoff und werden entweder anstelle von normalen Brennstäben oder in die Steuerstabführungsrohre der Brennelemente eingesetzt. In anderen Varianten wird der Absorber direkt in den Brennstoff eingebracht. Die wichtigsten Ausprägungen werden im Folgenden kurz umrissen.

Borosilikat-Stäbe

Die sogenannten Pyrex-Tuben waren die erste Entwicklung von Westinghouse auf dem Gebiet der abbrennbaren Absorber. Sie wurden erstmals 1969 in dem Druckwasserreaktor „R.E. Ginna“ am Standort Ontario NY, USA, eingesetzt. Als Neutronengift wurde hier Bor verwendet. Natürliches Bor besteht zu 19,9 % aus dem Isotop ^{10}B , welches einen thermischen Einfangquerschnitt von 3840 b aufweist /MAG 06/. Das Bor kam gebunden in einem Borosilikatglas ($\text{B}_2\text{O}_3\text{-SiO}_3$) zum Einsatz. Der Anteil an Boroxid im Glas betrug 12,5 %. Hohle Glasrohre wurden von einem Hüllrohr aus rostfreiem Stahl umschlossen und in die Steuerstabführungsrohre eingeführt. Dieses erste Konzept führte infolge von unverbrauchtem Bor am Zyklusende zu relativ hohen Reaktivitätseinbußen, wodurch der erreichbare Abbrand sank /WES 10/.

Burnable Poison Rod Assembly (BPRA)

BPRA steht für das von der Firma Combustion Engineering entwickelte **B**urnable **P**oison **R**od **A**ssembly (BPRA). Bei diesem Prinzip wurden einzelne Brennstäbe eines Brennelements durch Neutronengift-haltige Stäbe ersetzt. Es besteht dabei keine Möglichkeit, diese Stäbe während der Bestrahlung zu entfernen. Die Stäbe verfügen wie die Brennstäbe über ein Hüllrohr aus Zirkaloy. Im Inneren befinden sich Pellets aus Aluminiumoxid (Al_2O_3) und Borcarbid (B_4C). Der Gewichtsanteil an Borcarbid pro Stab sowie die Anzahl der neutronengifthaligen Stäbe pro Brennelement variieren je nach Einsatzbedingungen. In den USA wurde dieses Konzept erstmals 1972 in der Anlage „Maine Yankee“ genutzt. Nachteil dieses Prinzips ist die Substitution kompletter Brennstäbe, wodurch die Brennstoffmasse im Brennelement und somit die erzeugbare Ener-

gie verringert wird. Die Reaktivitätseinbußen zum Zyklusende sind gegenüber dem Pyrex-Prinzip geringer; sie werden von Westinghouse als „moderat“ bezeichnet /SAN 01, WES 10, NEA 10/.

Wet Annular Burnable Absorber (WABA)

Im Jahr 1979 wurden erstmals **Wet Annular Burnable Absorber (WABA)** eingesetzt. Die Absorberpellets bestanden wie bei den BPRA aus Aluminiumoxid und Borcarbid. Die Attribute Wet (nass) und Annular (ringförmig) ergeben sich aus dem veränderten Design. Die Stäbe waren im Zentrum mit einem Hohlraum ausgeführt, welcher mit Wasser zur zusätzlichen Moderation gefüllt war. Dies zog die Implementierung eines inneren Hüllrohres und eine ringförmige Geometrie der Pellets nach sich. Als Hüllrohrwerkstoff wurde innen wie außen Zirkaloy verwendet. Die WABA nahmen keine Brennstabpositionen ein, sondern wurden in den Steuerstab-Führungsrohren der Brennelemente positioniert. Durch den internen Moderator steht im Inneren der Pellets eine erhöhte Anzahl an thermalisierten Neutronen zur Verfügung. Der Effekt der Selbstabschirmung des Absorbers wird somit reduziert. Folglich wird dieser gleichmäßiger und besser verbraucht, und die negative Restreaktivität des Bors verringert /WES 10/.

Integral Fuel Burnable Absorber (IFBA)

Anfang der 1980er Jahre entwickelte Westinghouse mit den **Integral Fuel Burnable Absorber (IFBA)** ein weiteres Absorber-Konzept, das 1985 auf dem Markt erschien. IFBA werden bis heute in den meisten Druckwasserreaktoren von Westinghouse verwendet. Mit IFBA wird der Absorber nicht mehr in separaten Stäben sondern direkt in den Brennstab integriert. Die Brennstoffpellets erhalten bei diesem Konzept während der Fertigung eine Beschichtung mit Zirkonborid (ZrB_2). Die entsprechenden IFBA-Stäbe werden symmetrisch im Brennelement verteilt. Da sich das Bor nur in einer dünnen Schicht auf der Oberfläche befindet, treten keine Selbstabschirmungseffekte auf. Der Absorber ist üblicherweise bei Erreichen von ca. 30 % des Entladeabbrandes nahezu vollständig verbraucht. Einbußen der Reaktivität am Zyklusende sind somit nicht existent. Westinghouse hat die Funktionalität hinsichtlich der Kontrolle der Reaktivität und des Leistungsprofils bis zu einem mittleren Abbrand von 62 GWd/tSM nachgewiesen. Für höhere Abbrände ist derzeit noch zu zeigen, dass eine ausreichende Glättung des Leistungsprofils ohne den Selbstabschirmungseffekt möglich ist.

Durch die Neutronenabsorption in Bor und nachfolgender (n, α)-Reaktion entsteht Helium, welches sich innerhalb des Brennstabes ausbreitet und zu einem Anstieg des Hüllrohrinnendruckes führt. Dieser Effekt überlagert sich mit der Spaltgasfreisetzung, welche bei höheren Abbränden stark ansteigt. Die Auswirkung der zusätzlichen Heliumproduktion bei höheren Abbränden wird aktuell untersucht. /WES 10, NEA 06/.

Abbrennbarer Absorber, Integral Burnable Absorber (IBA)

Mit Integral **B**urnable **A**bsorber (IBA) werden Konzepte bezeichnet, bei denen die Neutronengifte direkt in die Brennstoffmatrix integriert sind. Dies wird durch die Vermischung der Oxidpulver auf mechanischem Wege oder nach dem Sol-Gel-Verfahren erreicht. Die resultierende Verteilung des Absorbers in der Brennstoffmatrix ist sehr homogen.

Gadolinium

Der in diesem Zusammenhang wichtigste Absorberstoff ist heutzutage Gadolinium. Natürliches Gadolinium ist ein sehr starker Absorber. Verantwortlich dafür sind die hohen thermischen Einfangquerschnitte der Isotope ^{155}Gd (14,8 %) mit 61000 b und ^{157}Gd (15,65 %) mit 254000 b /MAG 06/. Dadurch wird gegenüber anderen Absorbieren wie Bor oder Erbium (s. u.) eine vergleichsweise geringe Menge benötigt. Folglich muss weniger Brennstoff substituiert werden, was sich in Konsequenz auch weniger negativ auf die Materialeigenschaften der gesinterten Brennstoffpellets auswirkt (s. u.). Üblicherweise wird es dem Urandioxid-Pulver in der chemischen Form Gd_2O_3 beigemischt.

Die Absorptionseigenschaften von Gadolinium ermöglichen eine optimierte Auslegung des Leistungsprofils und des zeitlichen Ausbrands. Die Kompensation der überschüssigen Reaktivität am Zyklusbeginn wird über die Anzahl an Gadoliniumstäben geregelt. Der Gadoliniumgehalt der einzelnen Stäbe bestimmt durch den Selbstabschirmungseffekt und in Folge sukzessiven Ausbrand die zeitliche Abnahme des Neutronengiftes /NEA 06/.

Der Zusatz von Gadolinium verringert die Wärmeleitfähigkeit der Pellets gegenüber üblichen UO_2 -Brennstofftabletten. Zusätzlich kommt es durch die (n, γ)-Reaktionen im Gadolinium zu hohen Energiefreisetzung. Um die Grenztemperatur im Zentrum der Pellets einzuhalten, wird Gadolinium nur in Stäben mit niedriger angereichertem Uran eingebracht. Bei den heute üblichen ^{235}U Anreicherungen von 4,4 % bis 4,95 %, ge-

mittelt über das Brennelement, verfügen die implementierten Gd-haltigen Stäbe über reduzierte Anreicherungsgrade von typischerweise 2 bis 3 % ^{235}U .

Erbium

Für die Absorptionseigenschaften des Erbiums ist das Isotop ^{167}Er verantwortlich, welches mit einem Gewichtsanteil von 22,9 % in natürlichem Erbium vorliegt. ^{167}Er verfügt über einen thermischen Einfangquerschnitt von 659 b und hat als Besonderheit eine Resonanzspitze bei 0,47 eV in Höhe von ca. 8000 b. Diese spezielle Charakteristik wirkt sich u. a. positiv auf den Moderator-Temperatur-Koeffizienten im Reaktorbetrieb aus.

Die Verwendung von Erbium als abbrennbarem Absorber fand vorrangig in Druckwasserreaktoren der Firma Combustion Engineering (CE) statt. Erstmals wurde es 1993 eingesetzt. Der Einsatz erfolgt nach dem gleichen Prinzip wie bei Gadolinium, d. h. integriert in die Brennstoffmatrix in Form von Er_2O_3 . Der Einsatz von Erbium, welches in der Regel zu 1 bis 2 Gew.-% in den Absorberstäben enthalten ist, bringt ähnliche materialspezifische Probleme wie der Einsatz von Gadolinium mit sich: Es wird Brennstoff substituiert und die Wärmeleitfähigkeit herabgesetzt. Gegenüber Gadolinium ist der negative Reaktivitätseffekt am Zyklusende höher, vorrangig hervorgerufen durch ^{167}Er , welches durch Neutronenabsorption von ^{166}Er (33,5 % in natürlichem Erbium) erzeugt wird [WES 10]. Es wird davon ausgegangen, dass bei hohen Abbränden die Verwendung von Erbium gegenüber Gadolinium von Vorteil ist.

Erhöhung der Anfangsanreicherung auf über 5,0 %

Im Jahr 2005 wurde in Japan das Entwicklungsprogramm „Erbia Credit Super High-Burnup Fuel“ initiiert. Das Ziel ist die Entwicklung von Hochabbrand-Brennstoff für bestehende und ggf. künftige Leichtwasserreaktoren mit Anreicherungsgraden oberhalb von 5 %. Dem Konzept liegt die Intention zugrunde, die Reaktivität des Brennstoffes bei Anreicherungen größer 5 % durch den Zusatz von Erbiumoxid auf das Niveau von Brennstoff mit maximal 5 % Anreicherung zu reduzieren. Der Versatz mit dem Erbiumoxid erfolgt unmittelbar nach der Rekonversion. Der Vorteil wäre, dass alle folgenden Fertigungs- und Prozessschritte bis hin zum Brennelement ohne technische Umbau- oder Anpassungsmaßnahmen zur Gewährleistung der Kritikalitätssicherheit zumindest im Grundsatz möglich wären.

Das Projekt wird vom japanischen Ministerium für Wirtschaft, Handel und Industrie (METI) gefördert. Zu den involvierten Organisationen gehören die Universitäten von Osaka, Nagoya und Kyoto sowie die Nuclear Fuel Industries Ltd. und die Nuclear Engineering Ltd. Die Arbeitsgebiete umfassen kritische Experimente, Unsicherheits- und Kritikalitätssicherheitsanalysen, Fertigungsversuche und Auswertungen der physikalisch-chemischen Eigenschaften der Pellets, Studien zum Kernverhalten für bestehende Anlagen, Untersuchungen zum Abbrandkredit und Effekte bezüglich der späteren Endlagerung. Einen Überblick zum aktuellen Stand des Projektes wurde u.a. 2009 beim technischen Meeting der IAEA in Villigen gegeben /YAM 10a/.

Bis dato wurden kritische Experimente im Versuchsreaktor der Kyoto Universität (Kyoto University Critical Assembly – KUCA) durchgeführt und ausgewertet. Der Reaktorkern besteht aus Uran-Aluminium-Platten (93 % ^{235}U -Anreicherung) als Brennstoff und Graphit- bzw. Polyethylenplatten als Moderator. Durch die variable Zusammensetzung der Platten können verschiedene Spaltstoffanteile und Moderationsverhältnisse eingestellt werden. Zur Untersuchung des Effekts der Erbiumkonzentration wurden zusätzlich Graphitplatten mit Erbiumoxid beschichtet und in verschiedener Anzahl im Kern homogen verteilt. Die Ergebnisse der Experimente wurden genutzt um sie mit Berechnungen der Monte-Carlo Codes KENO und MVP zu vergleichen. Mit den besagten Codes wurde anschließend eine Reihe von Kritikalitätssicherheitsanalysen (u. a. Kugelgeometrie, unendliches BE-Lagergestell) durchgeführt. Basierend auf den Berechnungen der Multiplikationsfaktoren (k_{eff}) für Brennstoff mit 5 % Anreicherung wurden die äquivalenten Erbium-Anteile zum Erreichen der gleichen k_{eff} -Werte für Brennstoffe mit Anreicherungen höher als 5 % bestimmt. Diese werden in sog. ECOS-Diagrammen (**Erbium Content for Subcriticality judgement**) anschaulich dargestellt, wie in **Abb. 6.1** exemplarisch gezeigt /YAM 10b/.

Die Ergebnisse belegen, dass für Anreicherungen bis zu 7 % der Ansatz der kleinsten kritischen Kugelmasse für den Nachweis der Unterkritikalität konservativ abdeckend ist. Bei Anreicherungen höher als 7 % ist das nicht der Fall und es muss ein Übergang zu einem heterogenen System, wie in diesem Fall das unendliche Lagergestell, stattfinden, da hier Szenarien mit wenig Moderation (Verhärtung des Spektrums) zu einem nichtlinearen Charakter der erforderlichen Erbium-Konzentration führen /YAM 12/.

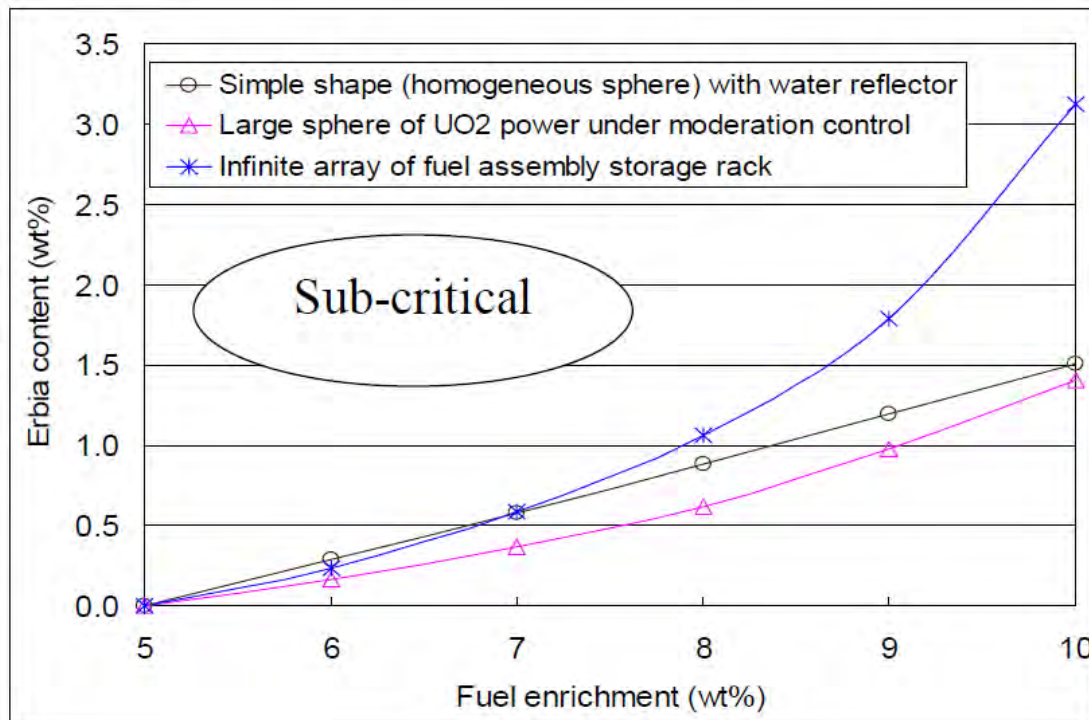


Abb. 6.1 Notwendige Erbium-Konzentration über die Brennstoffanreicherung für verschiedene Geometriemodelle / ECOS-Diagramm

6.1.3 Brennstoffkonzepte für Schwerwasser-moderierte Reaktoren

Schwerwassermoderierte Druckwasserreaktoren (PHWR, CANDU) können aufgrund ihrer hohen Neutroneneffizienz mit Natururan (0,71 % Anreicherung) betrieben werden. Weltweit sind 47 solcher Anlagen, vor allem in Kanada, Indien und Südkorea in Betrieb. Ein besonderes Merkmal der Reaktorauslegung ist der kontinuierliche Austausch der Brennelemente während des Leistungsbetriebs.

Aufgrund des geringen Brennstoffgehalts lassen sich mit Natururan Entladeabbrände nur von ca. 6 bis 7 GWd/tSM erreichen, bei hohen eingesetzten Mengen an Gesamturan. Mit dem Ziel, die Energieerzeugungskosten und Abfallmengen zu senken, arbeiten derzeit verschiedene Organisationen an Projekten, die sich dem Einsatz von Brennstoffen mit erhöhten Anreicherungen widmen.

In der gesichteten Literatur waren diesbezüglich drei Konzepte beschrieben, welche nachfolgend erläutert werden. Es handelt sich um die Verwendung von schwach ange-

reichertem Uran, von Uran aus der Wiederaufarbeitung, und die direkte Weiterverwendung von bestrahltem DWR-Brennstoff.

Die Verwendung von schwach angereichertem Uran

Die Herstellung von Brennstoff aus schwach angereichertem Uran (SEU-Slightly Enriched Uranium) erfordert den Prozessschritt der Anreicherung, wodurch sich gegenüber Natururan (NU) die Brennstoffherstellungskosten erhöhen. Durch den höheren erreichbaren Entladeabbrand und v. a. aufgrund deutlich verbesserter, sicherheitstechnisch relevanter Betriebsparameter wird dies deutlich kompensiert. Ein Reaktor, bei dem dieses Konzept bisher erfolgreich umgesetzt wurde, ist Atucha-1 in Argentinien. Wirtschaftliche Zwänge führten Anfang 1990 zu dem Beschluss zur Erhöhung des Abbrandes. Ab dem Januar 1995 wurden sukzessive Natururanbrennelemente durch SEU-Brennelemente mit 0,85 % Anreicherung ersetzt und letztendlich die Vollbeladung erreicht. Anhand **Tab. 6.1** lassen sich die damit einhergehenden Veränderungen der Betriebscharakteristik nachvollziehen. Mit der Erhöhung der Anreicherung um 20 % erhöhte sich der Entladeabbrand um 92 %. Die Brennstoffkosten wurden um 40 % reduziert. Durch die längere Einsatzzeit der Brennelemente verringerte sich die jährliche Nach- und Entlademenge auf 53 % gegenüber dem Betrieb mit Natururan /ALV 06/.

Tab. 6.1 Vergleich der Betriebseigenschaften von Atucha-1 vor und nach der Umstellung auf SEU

	Natururan	SEU (0,85 % ²³⁵ U)
Mittlerer Entladeabbrand [MWd/tU]	5900	11300
Mittlere BE-Einsatzzeit [Volllasttage]	195	362
Jährlicher BE-Verbrauch	430	230
Mittlere Nachladefrequenz [BE/Volllasttage]	1,3	0,7

Für das zweite argentinische Kernkraftwerk Embalse mit einem CANDU-6 Reaktor werden derzeit Machbarkeitsstudien zum Betrieb mit 0,9 % SEU durchgeführt /BOC 02/.

Die Verwendung von Uran aus der Wiederaufarbeitung

Ausgediente Brennstoffe aus Leichtwasserreaktoren verfügen je nach Betriebsgeschichte über einen ²³⁵U-Anteil von ca. 0,9 %. Da dieser Anteil immer noch über dem von Natururan liegt bzw. dem von SEU entspricht, stellt der „verbrauchte“ Brennstoff

aus Leichtwasserreaktoren auch eine potentielle Quelle für Brennstoff für schwerwassermoderierte Reaktoren dar. Eine häufig verwendete Bezeichnung für dieses so gewonnenen Urans lautet „Recoverd Uranium“ (RU). RU wird als wirtschaftlichere Quelle als SEU angesehen, da es bei der Wiederaufarbeitung mit 0,9 % Anreicherung abgetrennt wird und somit der Prozessschritt der Anreicherung entfällt. Durch die Weiterverwendung des Urans in PHWR stellt das Konzept im weitesten Sinne einen Recyclingpfad dar, welcher sogar ökonomische Vorteile gegenüber der Wiederaufarbeitung von Uran für den Einsatz in Leichtwasserreaktoren bietet. Der Gesamtausnutzungsgrad des Urans erhöht sich bei dieser Vorgehensweise (LWR+PHWR) um 25 %. Mit der gleichen Menge an RU kann in einem PHWR 200 % der Energie gegenüber Anreicherung und abermaligem LWR-Einsatz erzeugt werden /TOR 94/.

Im Jahr 2008 unterzeichneten die Atomic Energy of Canada Ltd.(AECL), die Third Qinshan Nuclear Power Company (TQNPC), die China North Nuclear Fuel Corporation (CNNFC) und das Nuclear Power Institute of China (NPIC) ein Kooperationsabkommen mit dem Ziel, den Einsatz von RU im Qinshan Phase III (CANDU-6 Reaktor) zu erproben. Im März 2010 wurde ein erstes sogenanntes NUE-Brennelement in den Reaktor eingesetzt. NUE steht für **Natural Uranium Equivalent** und bezeichnet Uran aus der Wiederaufarbeitung, welches mit abgereichertem Uran (Tails) auf die Anreicherung von Natururan heruntergeblendet wurde. In den folgenden 6 Monaten wurden weitere 24 Brennelemente in den Reaktor eingesetzt und erfolgreich bestrahlt. Im August 2012 verlängerten die Partner ihre Kollaboration für weitere 24 Monate. Das anvisierte Ziel ist die Vollbeladung des CANDU-Reaktors mit NUE-Brennstoff bis zum Jahr 2014 /YAH 12, WNN 12/.

Die direkte Verwendung von bestrahltem DWR-Brennstoff (DUPIC)

In Südkorea wird seit 1991 in Zusammenarbeit mit Kanada (Atomic Energy of Canada Ltd. - AECL) und den USA das Konzept DUPIC (**D**irect **U**se of Spent **P**WR Fuel In **C**ANDU) erforscht und entwickelt. Im Gegensatz zu RU wird DUPIC-Brennstoff direkt aus abgebranntem LWR-Brennstoff hergestellt. Der Herstellungsprozess ist ein mechanisch-thermisches Verfahren ohne nasschemische Trennung. Der DUPIC-Brennstoff enthält neben den ca. 0,9 % ^{235}U noch ca. 0,6 % spaltbares ^{239}Pu sowie alle Spaltprodukte und Aktinoiden. Der Prozess ist aufgrund der radioaktiven Strahlung nur mit umfangreichen Abschirmmaßnahmen und ferngesteuert möglich.

Die direkte Weiterverwendung bietet den Vorteil der hohen Proliferationsresistenz und zeichnet sich durch eine nochmals gesteigerte Wirtschaftlichkeit gegenüber SEU und RU aus. Bei einer Referenzanreicherung von 1,0 % ^{235}U und 0,45 % ^{239}Pu lassen sich 25 % des benötigten Natururans einsparen. Der Brennstoffausnutzungsgrad erhöht sich bei der gekoppelten Anwendung im DWR und PHWR um 37 %. Für einen CANDU-Reaktor lässt sich mit der Anwendung von DUPIC die zu entsorgende Menge an Brennstoff gegenüber dem Natururankreislauf auf ca. 33 % reduzieren /LEE 04/.

Um die Produktion von DUPIC-Brennstoff im Labormaßstab zu testen, hat das Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI) im Jahr 1999 eine heiße Zelle errichtet. Der bestrahlte Brennstoff (^{235}U : 1,06 %, Pu: 0,51 %) stammte aus dem Gori-1 LWR und wurde mit einem Abbrand von 27,3 GWd/tSM entladen. Im ersten Verfahrensschritt werden die UO_2 -Pellets nach dem Auslösen aus den LWR-Brennstäben für 5 Stunden bei 500 °C oxidiert und in U_3O_8 Pulver überführt, welches dann in dem sog. OREOX-Verfahren (Oxidation and Reduction of Oxide Fuel) in 3 Zyklen abwechselnd bei 450 °C oxidiert und bei 700 °C reduziert wird. Das Pulver wird anschließend gemahlen, verdichtet und bei 1750 °C zu Pellets gesintert. Die Herstellung erster Brennelemente gelang im März des Jahres 2000. Im folgenden April wurden Brennelemente mit geringeren Abmessungen fabriziert und im HANARO Forschungsreaktor bestrahlt.

Mikroskopische Untersuchungen der Brennstoffstruktur an einem Brennelement mit CANDU-typischem Abbrand zeigten geringe optische Unterschiede zu abgebrannten CANDU- oder DWR-Brennstoffen. Zur Bestimmung der thermischen und mechanischen Eigenschaften wurde von den koreanischen Wissenschaftlern ein Surrogat des DUPIC-Brennstoffes hergestellt. Dazu wurde Natururan-Oxid soweit mit verschiedenen oxydischen Additiven versetzt bis die Zusammensetzung dem bestrahlten Brennstoff aus dem Gori-1 LWR entsprach. Anschließend durchlief das Pulvergemisch den OREOX-Prozess, das Mahlen, die Verdichtung und die Sinterung zu Pellets. Im Vergleich zu Natururanbrennstoff ergaben die Untersuchungen eine geringere Wärmeleitfähigkeit des DUPIC-Surrogates von 8 bis 23 % im Temperaturbereich bis 1300 °C, einen 5 % höheren Wärmeausdehnungskoeffizienten, einen um 2 % erhöhten Elastizitäts-Modul und eine gesteigerte Härte im Bereich 400 bis 1000 °C. Bei gleichen Temperaturen betrug die Diffusionskonstante der Spaltgase im DUPIC-Surrogat ca. 33 % der Diffusionskonstante von Natururanbrennstoff.

Parallel zu den Aktivitäten in Korea wurden bei AECL drei DUPIC-Brennelemente gefertigt und in dem kanadischen Forschungsreaktor NRU (National Research University

Reactor) bestrahlt. Die Entladeabbrände aus dem NRU betragen 21,0 (BB02), 10,0 (BB03) bzw. 16,0 GWd/tSM (BB04). Nachbestrahlungsuntersuchungen an den Brennelementen BB03 und BB04 zeigten, dass die Spaltgasfreisetzung gegenüber Natururan-Brennelementen deutlich erhöht war. In BB03 und BB04 wurden Volumina von 12,6 cm³ und 16 cm³ pro Brennstab freigesetzt. Mit Natururan bewegt sich das freigesetzte Spaltgasvolumen in der Größenordnung von ca. 4,0 cm³ /CHO 05/. Die erhöhte Spaltgasfreisetzung des DUPIC-Brennstoffes wird durch eine höhere Brennstofftemperatur hervorgerufen, welche aus der verminderten Wärmeleitfähigkeit resultiert. Die geringere Wärmeleitfähigkeit ergibt sich aus der Behinderung des Wärmetransportes durch feste Spaltprodukte in der Brennstoffmatrix. Des Weiteren verursachen die festen Spaltprodukte metallurgische Effekte im Brennstoff wie die Mischkristallverfestigung und das sog. Ausscheidungshärten. Ein härterer Brennstoff führt im Falle der mechanischen Pellet-Hüllrohr-Wechselwirkung zu einer stärkeren Verformung des Hüllrohres.

Die in Korea gewonnenen Erkenntnisse zu den Materialeigenschaften wurden in das Brennstoff-Simulationsprogramm ELESTRES implementiert. Anhand von Parameterstudien konnte nachgewiesen werden, dass die Wärmeleitfähigkeit die dominierende Einflussgröße auf die sicherheitstechnisch relevanten Parameter wie Zentraltemperatur, Spaltgasfreisetzung, Innendruck und Hüllrohrdehnung ist. Weiterführende Analysen zum Brennstoffverhalten im Leistungsbetrieb lieferten einen maximalen Hüllrohrinnendruck von 15 MPa, welcher den Auslegungsdruck von 10,6 MPa deutlich überschreitet. Zur Einhaltung der Sicherheitsmargen des Innendruckes wird als designtechnische Entwicklungsmaßnahme die Vergrößerung der Korngröße zur Unterdrückung des Spaltgasaustritts aus der Brennstoffmatrix empfohlen. Alternativ kann durch die Erhöhung des freien Volumens mittels zusätzlichem Dishing, Spaltvergrößerung oder einem Plenum im Brennstab eine Druckabsenkung herbeigeführt werden /RYU 05a, b/.

Fortschrittliche Entwicklung des CANDU-Brennelementdesigns

Das bisher verwendete Standardbrennelement für die CANDU-Reaktoren ist ein Bündel aus 37 baugleichen Brennstäben, wovon ein Brennstab zentral, die restlichen in drei konzentrischen Reihen angeordnet sind. 1986 begann AECL mit der Entwicklung des sog. CANFLEX-Brennelementes. Im Jahr 1991 schloss sich KAERI den Entwicklungsarbeiten an. Das CANFLEX-Brennelement besteht aus 43 Brennstäben in konzentrischer Anordnung. Die äußeren 35 Brennstäbe besitzen einen kleineren Durch-

messer. Beide Brennelemente sind in **Abb. 6.2** /PRO 12/ dargestellt. Durch die höhere Anzahl an Brennstäben verringert sich bei gleicher Bündelleistung die mittlere Stablängenleistung. Die maximale Längenleistung wird um bis zu 20 % reduziert. Daraus resultiert eine verminderte Brennstofftemperatur, folglich verringern sich die Spaltgasfreisetzung und der Hüllrohrinnendruck. In den 35 äußeren Brennstäben führt der geringere Durchmesser (kürzerer Wärmetransportweg) zu einer weiteren Reduzierung der Brennstofftemperatur. Weiterhin sind die Stäbe des äußersten Ringes mit 1,4 mm hohen Abstandshaltern versehen. Dies erhöht die Konzentrizität des Bündels im Kanal im Hinblick auf das Kriechen der Druckröhren und verbessert somit das Strömungsverhalten an der Bündelunterseite, welches den kritischen Wärmestrom bestimmt. Sämtliche Optimierungen führen in ihrer Gesamtheit zu größeren Betriebs- und Sicherheitsmargen, welche für höhere Abbrände oder für Leistungserhöhungen ausgenutzt werden können /JUN 05, BOC 02a/.

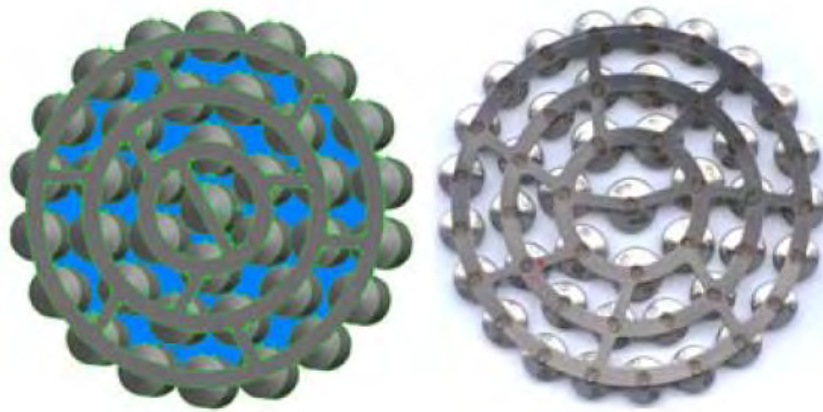


Abb. 6.2 CANDU Standard-Brennelement und CANFLEX-Design

Zunächst sollte das Design (CANFLEX Mk-IV) in der Praxis mit Natururan als Brennstoff qualifiziert werden. Dazu wurden zwei Demonstrationsbestrahlungen vorgenommen. Je 24 Brennelementbündel wurden von September 1998 bis August 2000 in dem kanadischen Point Lepreau Generating Station und von Juli 2002 bis Februar 2004 in dem koreanischen Wolsong-1 Reaktor eingesetzt. Nachbestrahlungsanalysen zeigten ein gutes Brennstoffverhalten und keine Anomalitäten der Hüllrohre. Es wurde nachgewiesen und festgehalten, dass die CANFLEX-Brennelemente alle betrieblichen Anforderungen für CANDU-6 Reaktoren erfüllen und bereit für den kommerziellen Einsatz sind /BOC 02b, JUN 05/. In der Literatur konnten bis dato keine Informationen gefunden werden, die den Übergang zum kommerziellen Einsatz der CANFLEX-Brennelemente belegen. Allen Berichten nach zu den fortschrittlichen Brennstoffkon-

zepten in Kanada und Korea kann vom CANFLEX-Konzept als zukünftiges Referenzdesign für die Verwendung von SEU-, RU- und DUPIC-Brennstoffen ausgegangen werden.

6.2 Brennstoffkonzepte zur Nutzung von Thorium

Das von der IAEA geleitete Projekt für Innovative Kernreaktoren und Brennstoffkreisläufe (INPRO) beinhaltet ein gemeinschaftliches Vorhaben zur weiteren Erforschung des Potentials von Thorium-Brennstoffkonzepten. Beteiligt sind Institutionen aus Kanada, China, Indien, Frankreich, Korea, Russland, der Slowakei und der Ukraine, sowie die Europäische Kommission. Der Abschlussbericht wurde im Jahr 2012 von der IAEA veröffentlicht /IAE 12/; er stellt den aktuellen Erkenntnisstand und folglich die Basis der vorliegenden Literaturrecherche dar. Ergänzend sind Konferenzbeiträge und Forschungsergebnisse der einzelnen Institutionen mit einbezogen worden.

Die potentielle Verwendung von Thorium als Träger- und Brutmaterial in Kernreaktoren zur Erzeugung des spaltbaren Uranisotops ^{233}U steht seit den 1950er Jahren in einigen Ländern im Fokus wissenschaftlicher Untersuchungen. Das weltweite Thoriumvorkommen wird auf die drei- bis vierfache Menge des Uranvorkommens geschätzt. Für Länder mit hohem Thoriumvorkommen stellen auf Thorium basierende Brennstoffkonzepte eine attraktive Alternative zur Nutzung von Uran dar. Natürliches Thorium besteht vollständig aus dem Isotop ^{232}Th und lässt sich nicht durch Neutronen spalten. Absorbiert ein ^{232}Th Kern ein Neutron, entsteht über zwei anschließende β^- -Zerfälle spaltbares ^{233}U . Das erzeugte ^{233}U kann anschließend extrahiert und zu einem neuen Brennstoff verarbeitet werden oder aber in situ als Spaltstoff fungieren. Auf die verschiedenen Konzepte wird in den nachfolgenden Kapiteln näher eingegangen.

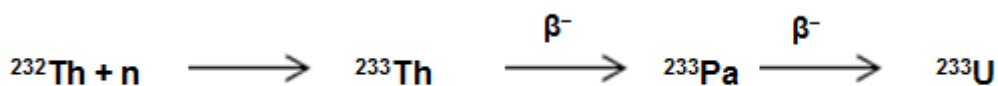


Abb. 6.3: Zerfallskette von ^{232}Th zu ^{233}U

6.2.1 Spezifische Eigenschaften der $^{232}\text{Th} / ^{233}\text{U}$ Anwendung

Der Absorptionsquerschnitt von Thorium im thermischen Energiebereich beträgt 7,6 b. Verglichen mit den 2,7 b von ^{238}U , welches in UO_2 Brennstoffen ^{239}Pu erbrütet, ermöglicht Thorium in thermischen Reaktoren eine höhere Konversionsrate zu thermisch spaltbarem Material. Neben der Erzeugung des Isotops ^{233}U verringert sich mit dem Einsatz von ^{232}Th anstelle von ^{238}U als Träger bzw. Brutmaterial die erzeugte Menge an Plutonium und höheren Aktiniden, den langlebigen radiotoxischen Abfällen. Thorium ist in oxydischer Form chemisch sehr stabil und verfügt über eine bessere Wärmeleitfähigkeit, eine höhere Schmelztemperatur, weniger Spaltgasfreisetzung und eine geringeren thermische Ausdehnung als Urandioxid, wovon man sich größere Sicherheitsmargen im Betrieb erwartet, welche Spielräume für höhere Entladeabbrände bieten. Wie in der **Abb. 6.4** dargestellt, ist die Neutronenausbeute des erbrüteten ^{233}U über ein breites Energiespektrum (thermisch und epithermisch) konstanter und zumeist höher als mit ^{235}U oder ^{239}Pu , weshalb das Konzept in verschiedenen Reaktortypen angewendet werden kann. Des Weiteren bleiben die neutronenphysikalischen Eigenschaften von ^{233}U bei hohen Temperaturen erhalten, was den Einsatz in Hochtemperaturreaktoren begünstigt /IAE 12, LUN 98/.

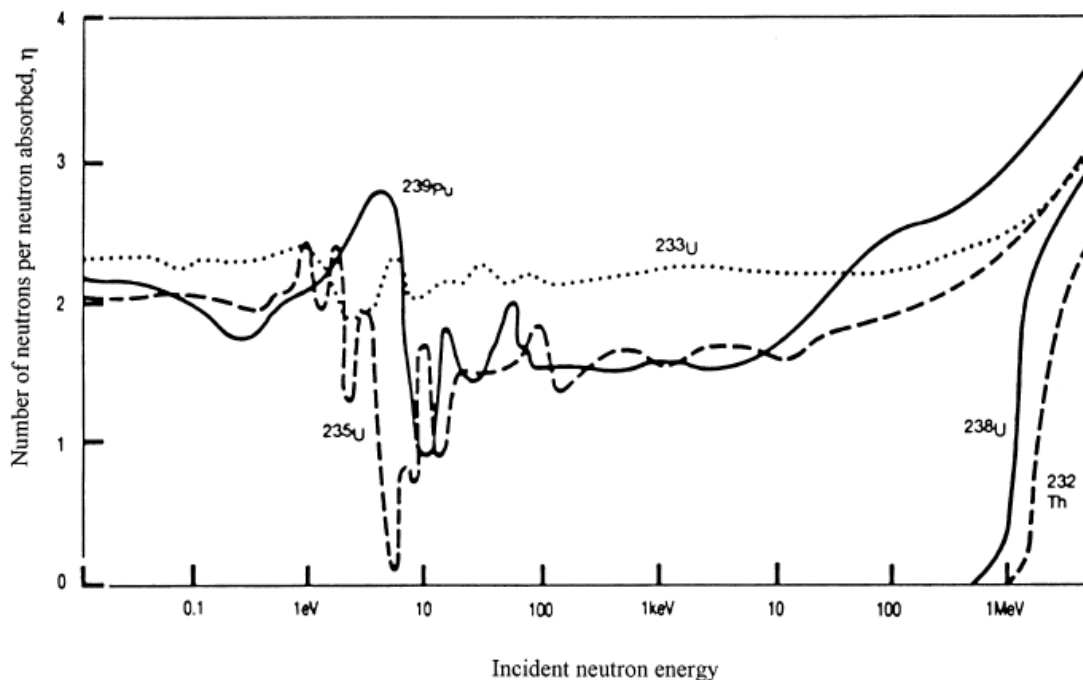


Abb. 6.4 Neutronenausbeute von ^{233}U , ^{235}U , und ^{239}Pu in Abhängigkeit von der Neutronenenergie

Zur Erzeugung von ^{233}U aus ^{232}Th müssen im Reaktor freie Neutronen zur Verfügung stehen. Um diese zu generieren, ist in erster Instanz spaltungsfähiges Material, ein sogenannter Treiber-Brennstoff, in entsprechenden Mengen nötig. Nach dem Neutroneneinfang des ^{232}Th zerfällt das entstandene ^{233}Th mit einer Halbwertszeit (HWZ) von 22 Minuten zu ^{233}Pa , welches anschließend mit einer HWZ von 27 Tagen zu ^{233}U zerfällt. Durch die lange HWZ des ^{233}Pa wird in einem Reaktor auch lange nach der Abschaltung noch spaltbares Material generiert und somit dem System Reaktivität zugeführt. Dem muss bei der Auslegung der Reaktoren Rechnung getragen werden. Durch n,2n-Reaktionen von ^{233}Pa oder ^{233}U entsteht im Reaktorbetrieb ^{232}U . ^{232}U ist ein Alphastrahler mit einer HWZ von 72 Jahren, in dessen Zerfallskette harte Gammastrahler wie ^{208}Tl und ^{212}Bi mit Energien bis zu 2,6 MeV auftreten. Für den Umgang mit $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ Brennstoffen sind deshalb erhebliche Abschirmmaßnahmen nötig. Der Anteil an verzögerten Neutronen ist bei ^{233}U mit 0,27 % deutlich geringer als bei ^{235}U mit 0,64 %, wodurch ein mit $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ betriebener Reaktor schneller auf Reaktivitätsänderungen reagiert. Dadurch wird Regelbarkeit des Reaktors vermindert, was schnellere Reaktionszeiten des Reaktorkontrollsystems erfordert.

6.2.2 Einsatz von Thorium in Reaktoren bis 1990

Hochtemperaturreaktoren

In Deutschland wurden mit dem AVR⁵ (15 MW_e, 1967 – 1989) und dem THTR⁶ (300 MW_e, 1985 – 1989) zwei heliumgekühlte Hochtemperaturreaktoren (HTR) mit einem Mischoxidbrennstoff aus hoch angereichertem Uran (HEU) und Thorium im Verhältnis 1:10 betrieben. Der Brennstoff war in sog. Coated particles von 1 mm Größe eingeschlossen. Die Umschließung bestand aus mehreren Lagen aus Pyrokohlenstoff und Siliziumcarbid. Die Coated particles waren in eine kugelförmige Graphitmatrix eingebettet. Die Graphitkugeln (Brennelemente) befanden sich in loser Schüttung im Reaktorkern, auch Kugelhaufenprinzip genannt, und wurden im Betrieb kontinuierlich entnommen und zugeführt. Der maximal erreichte Abbrand wird für den AVR mit 100 GWd/tSM /LUN 98/, für den THTR mit 150 GWd/tSM angegeben /GRE 07/.

⁵ Arbeitsgemeinschaft-Versuchs-Reaktor - Versuchsreaktor zur Erprobung der Technologie.

⁶ Thorium-Hochtemperatur-Reaktor - industrieller Prototyp aufbauend auf Erfahrungen mit dem AVR.

In den USA wurden mit Peach Bottom (40 MW_e, 1967 – 1974) und Fort St. Vrain (330 MW_e, 1976 – 1989) ebenfalls zwei heliumgekühlte HTR ähnlicher Größenordnungen mit (HEU,Th)O₂ betrieben. Auch hier übernahmen Coated particles den Brennstoffeinschluss und die Rückhaltung der Spaltgase. Im Unterschied zum deutschen Konzept waren die umschließenden Graphitblöcke zylindrischer bzw. prismatischer Form. Der maximale Abbrand des Fort St. Vrain HTR belief sich auf 170 GWd/tSM /WNA 12/.

Im Großbritannien wurde der Experimentalreaktor DRAGON (20 MW_{th}, 1967 –1973) vom Typ HTR im Rahmen einer internationalen OECD - EURATOM Zusammenarbeit zur Erprobung verschiedenster Brennelemente genutzt. Unter anderem kamen auch dort Th/HEU-Brennstoffe mit dem Verhältnis 10:1 zum Einsatz, welche Abbrände bis zu 100 GWd/tSM erreichten /LUN 98/.

Leichtwasserreaktoren

Mit dem Kernkraftwerk Shippingport in Shippingport, Pennsylvania wurde 1957 Amerikas erster kommerzieller Druckwasserreaktor mit einer Leistung von 236 MW_{th}/60 MW_e in Betrieb genommen. Nach Beendigung des Leistungsbetriebs initiierte die damalige Atomic Energy Commission, heute das Departement of Energy, 1965 ein Forschungs- und Entwicklungsprogramm zur Konstruktion eines Brüterkerns für den bestehenden Reaktor. Mit dem sogenannten Light Water Breeder Reactor (LBWR) Programm sollte die Technologie zur Verwendung von Uran-Thorium-Brennstoffen in kommerziellen Reaktoren entwickelt werden, um somit die nationalen nuklearen Brennstoffressourcen effektiver zu nutzen. Der neue Kern wurde im Jahr 1976 fertiggestellt und nach der Installation nahm die Anlage im Herbst 1977 den Betrieb auf. Mit der Abschaltung im Oktober 1982 war der Kern insgesamt 5 Jahre ohne Brennstoffwechsel im Einsatz und erreichte 29.047 effektive Vollaststunden. Um in dem leichtwassermoderierten System Konversionsraten größer als 1 zu erreichen, wurde ein sehr komplexer Kernaufbau entwickelt, welcher die Neutronenverluste weitgehend minimierte und die Absorption im Thorium begünstigte.

Die charakteristische, damals unter mehreren Aspekten innovative Kernauflegung umfasste unter anderem /DOE 86/:

- Eine radiale Brennstoffunterteilung in Treiber-, Brutmantel- und Reflektormodule mit zusätzlicher axialer Zonierung.

- Einfahrbare Treiberbrennelemente ermöglichten die Kontrolle der Reaktivität ohne den Einsatz von Neutronenabsorbern im Kühlmittel bzw. in Steuerstäben.
- Ein enges Brennstabgitter zur Minderung der Neutronenabsorption im Wasser und der thermischen Absorption durch die Spaltprodukte.

Die radiale Brennstoffunterteilung wurde mit verschiedenen Brennelementen realisiert. In der äußeren Zone bildeten 15 Brennelemente, deren Brennstäbe reines ThO_2 beinhalten, einen Reflektor. In der inneren Zone befanden sich 12 Module, bestehend aus prismatischen Treiberbrennelementen und Mantelbrennelementen mit entsprechenden inneren Aussparungen (**Abb. 6.5**). Die Treiberbrennelemente waren zu 5 bis 6 % mit UO_2 (Rest: ThO_2) beladen. Das Uran der Treiberzone bestand zu mehr als 98 % aus ^{233}U . Die zugehörigen Mantelelemente beinhaltenen $(\text{U,Th})\text{O}_2$ mit einem geringeren Spaltstoffgehalt von 1,5 bis 3 %.

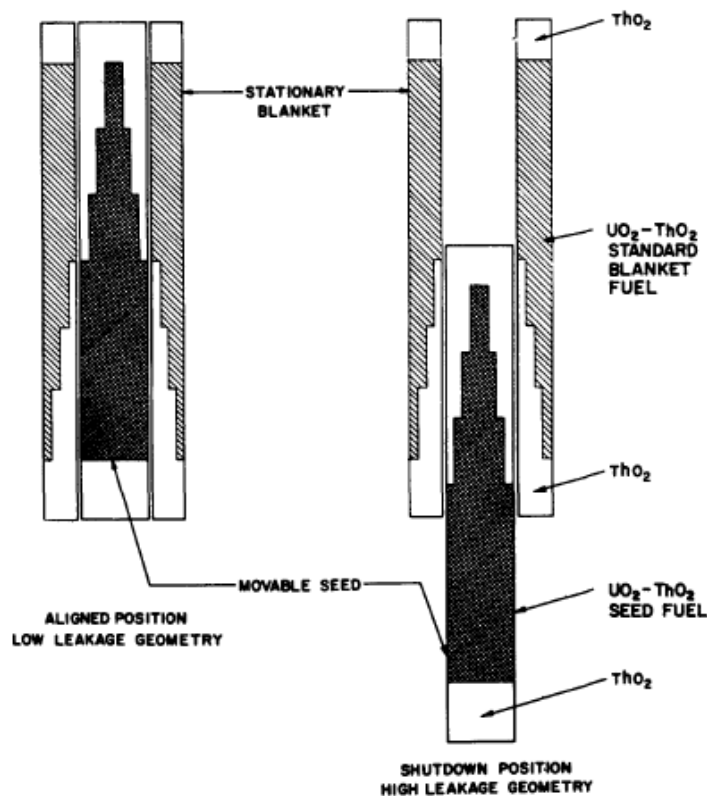


Abb. 6.5 Schematische Darstellung der einfahrbaren Treiber-Brennelemente im ehemaligen Kernkraftwerk Shippingport

Nach der Abschaltung des Reaktors wurden die bestrahlten Brennstäbe zur Untersuchung in die Fabrik für ausgediente marine Reaktorkerne (Naval Reactors Expended

Core Facility) verbraucht. Der mittlere Abbrand des Kerns betrug 14,5 GWd/tSM mit Spitzenwerten von 54 GWd/tSM im Treiberbrennstoff und 25 GWd/tSM in den Mantelelementen. Die Untersuchungen ergaben weiterhin, dass ca. 1,39 % mehr ^{233}U im Kern vorhanden war als vorher beladen wurde und somit eine Nettozunahme (Brutprozess) an ^{233}U stattgefunden hat /WNA 12/.

6.2.3 Aktuelle Forschungsarbeiten zu Thorium-Brennstoff-Konzepten

Aus Proliferationsgründen kommt der Einsatz von hoch angereichertem Uran heutzutage nicht mehr infrage und die in Kap. 6.2.2 vorgestellten Konzepte werden in der Zukunft derart nicht umgesetzt werden. Aus diesem Grund beschäftigen sich die aktuellen Forschungsarbeiten mit dem Einsatz von schwach angereichertem Uran (LEU, < 20 % Anreicherung), Plutonium aus der Wiederaufarbeitung oder Kernwaffen, sowie MOX-Brennstoffen als Treiberbrennstoff für Thorium basierte Konzepte. Sämtliche nachfolgend vorgestellten Ergebnisse beruhen auf Simulationen mit Kernberechnungsprogrammen und zeigen Optionen zur Nutzung von Thorium in Leicht- und Schwerwasserreaktoren auf.

Mit dem bei der Nutzung von Thorium erzeugtem ^{233}U kann auf zwei Wegen verfahren werden:

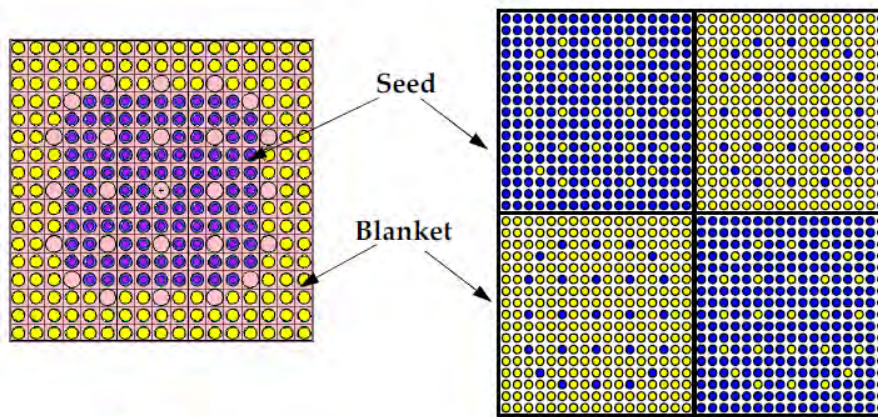
- A) Die direkte Nutzung im Reaktor mit anschließender Entsorgung des verbrauchten Brennstoffs - dem offenen Thorium-Kreislauf.
- B) Rückgewinnung über die Wiederaufarbeitung und Herstellung auf ^{233}U basierender Brennstoffe - dem geschlossenen Thorium-Kreislauf.

6.2.3.1 Optionen des offenen Thorium-Kreislaufes

Die Nutzung von Thorium in einem offenen Kreislauf umgeht die Handhabung mit den hochradioaktiven Stoffen während der Wiederaufarbeitung und kann je nach Treiberbrennstoff auch weitere Funktionen erfüllen. Mit der direkten Entsorgungsoption verbleibt eine erhebliche Menge an unverbrauchtem ^{233}U in den Brennstäben. Die verbrauchten Brennstäbe werden aufgrund der hohen ausgehenden Strahlung der Tochternuklide des ^{232}U als proliferationsresistent betrachtet.

(Th,U)O₂ in LWR und WWER

Ein viel diskutiertes Design ist das nach Prof. Radkowsky benannte Seed-Blanket-Konzept (SBU) für LWR- und WWER-Brennelemente, bei dem die inneren Brennstäbe den Spaltstoff (Seed) und die äußeren (Blanket) hauptsächlich ThO₂ enthalten. Im WASB-Design (Whole Assembly Seed and Blanket) werden ganze Brennelemente als Spalt- bzw. Brutzonen ausgeführt und entsprechend angeordnet. Beide Konzepte (**Abb. 6.6**) verfolgen die Modifikation der Brennelemente bestehender Leichtwasserreaktoren /FRI 09/. Der Reaktorkern muss keinen Änderungen unterzogen werden. Mit einem optimalem Brennstoff-Moderator-Verhältnis und entsprechenden Standzeiten der Treiberbrennstoffstäbe (900 effektive Volllasttage) und der Brutstoffstäbe (2620 effektive Volllasttage) kann mit solchen Systemen bis zu 40 % der insgesamt erzeugten Energie aus der Spaltung von ²³³U gewonnen werden. Da bei (U,Th)O₂ Konzepten ein großer Teil des ²³⁵U/²³⁸U Gemisches durch Thorium mit einem höheren Einfangquerschnitt ersetzt wird, ist zum Erreichen der Anfangskritikalität eine höhere Anreicherung des restlichen UO₂ nötig. Enthält ein Reaktorkern z. B. 75 % Thorium und 25 % Uran, so beträgt der benötigte ²³⁵U Anteil des Urans 20 %, damit im Anfangskern ein Spaltstoffgehalt von 5 % vorliegt. Berechnungen zufolge lassen sich für eine solche Beladung in einem DWR mit einer Leistung von 900 MW_e bzw. 1100 MW_e Abbrände von ca. 38 bzw. 45 GWd/tSM erreichen /IAE 12/. Die Untersuchungen ergaben, dass sich durch den steten Bedarf an Uran als Treiberbrennstoff keine signifikanten Einsparmöglichkeiten hinsichtlich der natürlichen Uranvorkommen ergeben. Des Weiteren ist ein Mehraufwand für die Herstellung von Uranbrennstoffen bis zu mit 20 % Anreicherung zu erwarten.



SBU

Radkowsky Seed-Blanket Concept

WASB

Whole Assembly Seed-Blanket Concept

Abb. 6.6 Brennelement-Konzepte zur Nutzung von Thorium in LWR und WWER

(Th,Pu)O₂ in LWR und WWER

Eine auf den gleichen Brennelementkonzepten (**Abb. 6.6**) basierende Alternative ist die Verwendung von (Pu,Th)O₂ mit spaltbarem ²³⁹Pu/²⁴¹Pu (Pu_{fiss}) als Treiberbrennstoff. Hierzu eignet sich Plutonium aus der Wiederaufarbeitung oder aus Kernwaffenbeständen, welches der zivilen Nutzung zugeführt werden soll. Dem Konzept wird hinsichtlich der Option der effektiven Reduzierung der Plutoniumbestände besondere Beachtung geschenkt. Da kein ²³⁸U in der Brennstoffmatrix vorhanden ist, wird so gut wie kein weiteres Plutonium im Betrieb erzeugt, während das vorhandene Pu_{fiss} durch Spaltungen verbraucht wird. Verglichen mit den heutzutage verwendeten MOX-Brennstoffen lässt sich der Plutoniumverbrauch um 100 % auf bis zu 1 Mg/GWa steigern. Verschiedene Berechnungen zu erreichbaren Abbränden in Druckwasserreaktoren mit 5 % Spaltstoffgehalt (Pu_{fiss}) schwanken zwischen 22 und 36 GWd/tSM /IAE 12/. Bei der Verwendung von (Pu,Th)O₂ ist zu beachten, dass sowohl ²³⁹Pu als auch das erbrütete ²³³U bei der Spaltung einen deutlich geringeren Anteil an verzögerten Neutronen aufweisen als ²³⁵U (0,0027 vgl. mit 0,0064 für ²³⁵U).

(Th,U)O₂ und (Th,Pu)O₂ in PHWR

Schwerwassermoderierte Druckwasserreaktoren mit ihren spezifischen Eigenschaften stellen ebenfalls eine Option für die Nutzung von Thorium dar. Durch die geringen Neutronenverluste bei der Schwerwassermoderation und der Möglichkeit der kontinuierlichen Be- und Entladung der Brennelementkanäle sind die Randbedingungen vor-

teilhafter als in Leichtwasserreaktoren. Das erste entwickelte Konzept zur Nutzung von Thorium verfolgte den Ansatz von separat beladenen Kanälen (Mixed Channel Approach), bei dem Brennelementbündel einzelner Kanäle ThO_2 oder den Treiberbrennstoff, typischerweise SEU (Slightly Enriched Uranium), enthalten. Gleichmaßen zum LWR würden die ThO_2 Brennelemente deutlich längere Standzeiten im Kern aufweisen. Studien zeigen, dass das Mixed-Channel Konzept mit einer optimierten Auslegung unter ökonomischen Gesichtspunkten möglich ist. Die wesentlichen Auslegungsaspekte umfassen die genaue Abstimmung von Beladung, Abbrand und Anreicherung um die Leistungs- und Reaktivitätsunterschiede zwischen den mit Brennstoff und Thorium beladenen Kanälen zu minimieren /IAE 06/. Aufgrund der komplizierten Umsetzung wurde ein zweiter Ansatz entwickelt und untersucht. Bei dem sog. Mixed-Bundle Prinzip befinden sich ThO_2 und Brennstoff in einem Brennelementbündel. Das Konzept existiert in zwei Varianten - einer homogenen Verteilung über das ganze Bündel und einer heterogenen Verteilung, bei der die zwei äußeren Stabreihen Treiberbrennstoff und die inneren Stäbe ThO_2 enthalten. Als Treiberbrennstoff kann sowohl UO_2 als auch PuO_2 verwendet werden. Die in /GUP 08/ publizierten Berechnungen und Vergleiche für PHWR mit Natururanbrennstoff, SEU und den verschiedenen Thorium basierten Konzepten kamen zu folgenden Ergebnissen:

- Mit Natururan (ohne Th) als Brennstoff beträgt der erreichbare Abbrand ca. 7,2 GWd/tSM.
- SEU-Brennstoff (ohne Th) mit 1,2 / 1,5 und 3,0 % ^{235}U erreicht 23,3 / 31,5 und 66 GWd/tSM Abbrand und spart bei allen drei Varianten ca. 40 % natürliches Uran ein.
- Homogen verteiltes $(\text{Th,U})\text{O}_2$ mit 2 / 3 und 4 % ^{235}U erzielt Abbrände von 20,1 / 60,0 und 89,1 GWd/tSM und spart 0 / 28 und 36 % Natururan ein.
- Heterogen verteiltes ThO_2 mit UO_2 (1,5 % ^{235}U) erzielt 22,5 GWd/tSM und spart 34 % Natururan ein.
- Homogen verteiltes $(\text{Th,Pu})\text{O}_2$ mit 2 / 3 und 4 % Pu (75 % Pu_{fiss}) erzielt 6,1 / 23,5 und 42,35 GWd/tSM.
- Heterogen verteiltes ThO_2 und $(\text{Th,Pu})\text{O}_2$ mit 2,75 % Pu erzielt 16,1 GWd/tSM.

Die Untersuchungen ergaben, dass im PHWR die Nutzung von Thorium in Verbindung mit ^{235}U oder Pu nur bei Spaltstoffanteilen größer 3 bzw. 4 % Vorteile gegenüber der Nutzung von SEU bietet.

6.2.3.2 Optionen des geschlossenen Thorium-Kreislauf

Für einen geschlossenen Thorium-Kreislauf ist es unumgänglich, verbrauchte Brennelemente wieder aufzuarbeiten. Dabei geht es zum einen um die Rückgewinnung von unverbrauchtem Thorium und zum anderen um die Extraktion des ^{233}U zur weiteren Verwendung als Brennstoff. Der sogenannte THOREX-Prozess zur Trennung von Uran und Thorium gleicht im Prinzip dem PUREX-Prozess. Die bisher gemachten Betriebserfahrungen sind jedoch gering, da das Verfahren bis heute nicht im industriellen Maßstab umgesetzt wurde. Eine derartige Anlage sowie eine Fabrik zur Brennelementfertigung erfordern erhebliche Maßnahmen zur Abschirmung gegen die starke Gammastrahlung. Entsprechend sind fernhantierte Prozesse notwendig. Es wird davon ausgegangen, dass die Kosten für die Brennelementfertigung nach diesem Prinzip höher sind als für die Fertigung von MOX-Brennelementen, welche wiederum in etwa doppelt so hoch anzusetzen sind wie für die UO_2 -Brennelementfertigung /LUN 98/. Dem gegenüber entfallen die Kosten für die Urananreicherung, wenn im Gesamtsystem der Gleichgewichtszustand für ^{233}U erreicht wird, d.h. wenn so viel ^{233}U erbrütet wie verbraucht wird.

In der frei zugänglichen Literatur sind zwei Konzepte für den $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ Brennstoffkreislauf beschrieben, bei denen ein Gleichgewicht der ^{233}U Bilanz erreicht wird.

Indien

Indien verfügt über hohe Vorkommen an Thorium und gehört zu den Ländern, die am ehrgeizigsten an der Nutzung dieser Ressource zur nuklearen Energieerzeugung arbeiten. Es wurde ein dreistufiges Konzept entwickelt, mit dem der Übergang zu einem selbsterhaltendem $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ Zyklus gelingen soll. In der ersten Stufe werden ThO_2 -Brennelemente zur Glättung des Neutronenflussprofils in frisch beladenen PHWR-220 eingesetzt. Dies wurde in der Vergangenheit in den bestehenden Anlagen KAPS 1&2, KGS 1&2, RAPS 3&4 erfolgreich durchgeführt. Im zweiten Schritt werden im Brutmantel des FBTR (Fast Breeder Test Reactor - 15 MW_e) ebenfalls ThO_2 -Brennelemente eingesetzt. Nach seiner Fertigstellung kommt dafür der derzeit im Bau befindliche schnelle Brutreaktor PFBR (Prototype Fast Breeder Reactor, 470 MW_e) zum Einsatz. In beiden Reaktortypen, PHWR und FBR, wird ^{233}U erbrütet und anschließend durch Wiederaufarbeitung der Brennelemente zurückgewonnen. Aus dem gewonnenen Brennstoff werden dann $(\text{Th}, ^{233}\text{U})\text{O}_2$ -Brennelemente für den neu entwickelten AHWR (Advanced Heavy Water Reactor) hergestellt. Der AHWR soll mit einer Leistung von

300 MW_e der erste Reaktor zur Nutzung von Thorium im größeren Maßstab sein. Neben (Th, ²³³U)O₂ ist im AHWR zusätzlich Plutonium als Treiberbrennstoff vorgesehen. Dies bedeutet, dass sich das Gleichgewicht des AHWR nur auf die ²³³U-Bilanz bezieht. Das im AHWR erzeugte ²³³U ist nach der Rückgewinnung in seiner Menge als Spaltstoff für den Reaktorbetrieb nicht ausreichend. Es werden jährlich 173 kg zusätzliches Plutonium benötigt. Der mittlere Entladeabbrand der Brennelemente beläuft sich auf 35,5 GWd/tSM /IAE 05, IAE 12/.

Kanada

Von der AECL wurden Analysen zum Einsatz von Thorium im CANDU-6 und im ACR-1000 (Advanced Candu Reactor-1000) durchgeführt. Für beide Reaktoren besteht das Konzept generell aus einer Vorlaufphase, in der mit der Verwendung von homogen verteiltem (Th,Pu)O₂ Brennstoff das nötige ²³³U erbrütet wird. Nach der Rückgewinnung erfolgt anschließend der Übergang zum selbstversorgenden ²³³U Betrieb mit einer heterogenen (Th, ²³³U)O₂ / (Th,Pu)O₂ Bündelkonfiguration. Für einzelne Brennelementbündel beider Reaktortypen wurde rechnerisch nachgewiesen, dass die erzeugte Menge an ²³³U geringfügig größer ist als die verbrauchte Menge.

In einen CANDU-6 mit CANFLEX-Brennelementen, in dem eine reine (Th,Pu)O₂ Beladung mit 3,5 % Pu (66 % Pu_{fiss}) bis zu einem Abbrand von 20 GWd/tSM gefahren wird, stünde nach 2,8 Jahren genügend ²³³U zur Verfügung um einen Gleichgewichtskern (1,4 % ²³³U + X % Pu) zu beladen. Der höchste Anteil von Thorium an der erzeugten Energie ergibt sich bei 0,8 % Pu und ca. 20 GWd/tSM Abbrand. Höhere Abbrände gehen dann mit einem erhöhten Anteil an Plutonium einher.

Für den ACR-1000 ist das Konzept ähnlich ausgelegt. Die vorerst homogene (Th,Pu)O₂ Beladung der CANFLEX-Brennelemente enthält 5 % Plutonium mit 67 % Pu_{fiss}. Pro Jahr werden bei einem Entladeabbrand von 20 GWd/tSM circa 3 Mg Plutonium benötigt und 0,4 Mg ²³³U erbrütet. Nach ca. fünf Jahren würde insgesamt genügend ²³³U für einen geschlossenen Kreislauf zur Verfügung stehen. Die Brennelementbündel für den Kern des geschlossenen Kreislaufes bestünden dann im mittleren Ring aus (Th,U)O₂ mit 5 % ²³³U, die inneren und äußeren Stabringe enthielten (Th,Pu)O₂ mit einem Pu-Anteil von 3,7 %. Der erzielbare Abbrand beträgt bei dieser Konfiguration 21 GWd/tSM. Der Anteil an Spaltungen durch ²³³U erreicht am Zyklusende ca. 65 %. Folglich halbiert sich die benötigte Menge an Plutonium. Je Volllasttag sind im Mittel 10,5 Brennelementbündel auszuwechseln /IAE 05, IAE 12/.

6.3 Kernbrennstoffkonzepte für Transmutationsanlagen

6.3.1 Allgemeines

Unter dem Schlagwort Partitioning und Transmutation (P&T) versteht man das Konzept der chemischen Abtrennung bestimmter langlebiger oder stark toxischer Radionuklide aus abgebrannten Kernbrennstoffen und deren anschließender Umwandlung in kurzlebige oder weniger toxische Nuklide durch Neutronenbestrahlung. Aufgrund des sich daraus ergebenden potentiell positiven Effekts auf die Anforderungen an ein zu errichtendes Endlager für hochradioaktive (stark wärmeentwickelnde) Abfälle hat dieses Thema in den letzten Jahren verstärkt öffentliche Aufmerksamkeit erfahren.

Notwendig für die Umsetzung von P&T-Konzepten ist die Entwicklung neuartiger Brennstoffe, mithilfe derer die Transmutation der abgetrennten Radionuklide durchgeführt werden kann. Aktuell werden verschiedene Strategien diskutiert, wie ein P&T Prozess aussehen könnte. Dabei ergeben sich aufgrund der drei dafür notwendigen Schlüsselprozesse a) der chemischen Abtrennung, b) der Brennstoffherstellung und c) des Betriebs einer Transmutationsanlage, jeweils unterschiedliche Anforderungen an diese Brennstoffe. Deshalb werden zunächst die wesentlichen P&T-Konzepte vorgestellt, bevor konkret auf Entwicklungen im Bereich der Brennstoffe eingegangen wird. Da für eine effiziente Transmutation der relevanten Radionuklide Anlagen mit schnellem Neutronenspektrum vorteilhaft sind, wird der Fokus hier auf entsprechend ausgelegte Brennstoffe gerichtet.

6.3.2 Strategien zu Partitionierung und Transmutation

Aktuell werden drei wesentliche Konzepte für einen Brennstoffkreislauf mit P&T verfolgt. Diese werden im Allgemeinen mit den Begriffen „Homogene Rezyklierung“, „Heterogene Rezyklierung“ und „Zweischicht-Kreislauf“ (englisch: „double strata“) bezeichnet. Allen Konzepten ist gemeinsam, dass die im abgebrannten Kernbrennstoff enthaltenen Spaltprodukte abgetrennt und entsprechend konditioniert zur Endlagerung gebracht werden. Zur eigentlichen Transmutation rückgeführt werden nur die minderen Aktinoiden (MA). Eine Transmutation von langlebigen Spaltprodukten, von Interesse wären hier insbesondere ^{99}Tc und ^{129}I , ist zwar vom neutronenphysikalischen Standpunkt grundsätzlich möglich, aufgrund der langen Transmutationszeitskalen und dem großen

technologischen Aufwand wird diese derzeit aber nur in Form von Grundlagenforschung verfolgt /OEC 05/ und im Folgenden nicht weiter betrachtet.

1. Homogene Route:

Uran, Plutonium und höhere Aktinoide werden gemeinsam abgetrennt und zu neuem Kernbrennstoff verarbeitet. Dieser wird dann in Leistungsreaktoren abgebrannt. Hierzu werden im Sinne von P&T Reaktoren mit schnellem Neutronspektrum benötigt.

2. Heterogenen Route:

Uran und Plutonium einerseits sowie höhere Aktinoide andererseits werden in getrennten Stoffströmen abgespalten. Uran und Plutonium werden zu MOX-Brennstoff verarbeitet, während die höheren Aktinoide in Transmutationstargets mit relativ hohem Gehalt an Aktinoiden verarbeitet werden. Beide Brennstoffsorten werden in schnellen Reaktoren mit einem heterogenen Kern verbrannt. Der mit MOX-Brennstoff beladene Kern wird von Brennelementen mit Transmutationstargets umgeben.

3. Double Strata:

Wie in der heterogenen Route werden Uran, Plutonium und höhere Aktinide getrennt rezykliert. Im Unterschied zu dieser wird nur der MOX-Brennstoff erneut in den Leistungsreaktoren eingesetzt. Die höheren Aktiniden werden in speziellen Transmutationsanlagen verbrannt. Bei diesen handelt es sich nach derzeitigen Überlegungen um sogenannte beschleunigergetriebene, unterkritische Anordnungen (englisch: ADS, Accelerator Driven System). Bei diesen Anlagen gibt es keine sich selbst erhaltene Kettenreaktion. Der Neutronenfluss wird über Neutronen, die durch Protonenbeschuss an einem Spallationstarget erzeugt werden, aufrechterhalten.

Je nach Strategie sind unterschiedliche Brennstoffkonzepte zu bevorzugen. Für die homogene Route wird Brennstoff benötigt, der homogen über den Reaktor verteilt Anteile von Uran, Plutonium und höheren Aktiniden enthält. Aktuell wird hierfür oxidischer Brennstoff mit einem Anteil von 1 bis 2 % an höheren Aktiniden favorisiert. Für die heterogene Route müssen spezielle Transmutationstargets mit höherem Anteil an höheren Aktiniden verwendet werden (10 bis 20 %). Diese können entweder in eine Urandioxid-Matrix eingebettet sein, oder es werden sogenannte Inerte-Matrix-

Brennstoffe gewählt, bei denen die Aktinoide in eine keramische (CerCer) oder eine metallische Matrix (CerMet) eingebettet werden. Beim Double Strata Konzept wird für die Transuranverbrennung auf den Einsatz einer Urandioxidmatrix verzichtet, da ein erneuter Aufbau von Aktinoiden durch Brutprozesse vermieden werden soll. Hier werden die genannten Inerten-Matrix-Brennstoffe deutlich favorisiert. Alternativ ist auch eine Verwendung von Nitridbrennstoffen angedacht.

6.3.3 Brennstoffkonzepte zu Partitionierung und Transmutation

Im Folgenden wird der Kenntnisstand zu den verschiedenen relevanten Brennstoffkonzepten kurz dargestellt.

6.3.3.1 Oxidische Brennstoffe mit Anteil an minoren Aktinoiden

Für oxidische Brennstoffe existiert im Vergleich zu allen anderen Brennstoffkonzepten die bei weitem größte Betriebserfahrung sowohl für Leichtwasserreaktoren als auch für Reaktoren mit schnellem Neutronenspektrum. Urandioxid-Brennstoff und Mischoxid-(MOX)-Brennstoff aus Uran- und Uran-/Plutoniumdioxid wird routinemäßig im Leistungsbetrieb von Leichtwasserreaktoren eingesetzt. Die Vorteile oxidischen Brennstoffs liegen in der hohen Schmelztemperatur und der Resistenz gegenüber Neutronenstrahlung in einem breiten Temperatur- und Abbrandbereich. Demgegenüber stehen als Nachteile die vergleichsweise schlechte thermische Leitfähigkeit und für den Einsatz in schnellen, natriumgekühlten Reaktoren die chemische Reaktivität mit Natrium /DEL 12/. Vor diesem Hintergrund erscheint es natürlich, dass Oxid-Brennstoffe mit MA-Anteil auch als erste Wahl für mögliche Transmutationsbrennstoffe gehandelt werden. Während allerdings Uran und Plutonium in ihren chemischen und physikalischen Eigenschaften recht ähnlich sind, unterscheidet sich z. B. Americium diesbezüglich stärker von diesen beiden Elementen. Nach /OEC 06a/ sind vor allem drei Eigenschaften von Americium wichtig:

1. Im Vergleich geringere Verdampfungsenthalpie
2. Relative Stabilität von Am^{2+} gegenüber Am^{3+} , und Am^{3+} gegenüber Am^{4+}
3. Sprung im Metallradius von Pu zu Am

Punkt 1 führt zu Verlusten von Americium durch Verdampfen beim Herstellungsprozess. Punkt 2 bedingt eine Instabilität des kubischen Americiumdioxid AmO_2 gegen-

über den hexagonalen Modifikationen Am_2O_3 oder $\text{AmO}_{1.61}$. Bei der Herstellung von americiumhaltigen Mischoxiden ist dabei auf genau kontrollierte Prozessparameter, insbesondere die atmosphärischen Bedingungen beim Sintern, zu achten /DEL 13/. Damit können nichtstöchiometrische Mischoxide in der Form $\text{U}_{1-y}\text{Am}_y\text{O}_{2-x}$ hergestellt werden, wobei das Sauerstoff-zu-Metall-Verhältnis typischerweise im Bereich $\text{O}/\text{M} \approx 1,9$ - $1,98$ liegt /VES 12/, /DAG 12/.

Die Anwesenheit von minoren Aktinoiden im Brennstoff hat Einfluss auf eine Reihe von wichtigen Brennstoffeigenschaften. Dies betrifft die Wärmeleitfähigkeit, das Verhalten hinsichtlich Spaltgasfreisetzung und die Umverteilung von Sauerstoff, Plutonium und Americium innerhalb des Brennstoffs während der Bestrahlung. Weitere Herausforderungen betreffen die Brennstoffherstellung ohne Volatilität beim Americiumoxid und den Einfluss auf die sog. „Fuel Cladding Chemical Interaction“ (FCCI) /DEL 12/. Diese Themen sind in einer Reihe von experimentellen Programmen untersucht worden, bei denen MA-haltige Oxidbrennstoffe hergestellt und in verschiedenen Forschungsreaktoren bestrahlt wurden. Im Rahmen z. B. des SUPERFACT Programms wurden in den 1980er Jahren verschiedene Brennstoffe mit den Zusammensetzungen $(\text{U}_{0.74}\text{Pu}_{0.24}\text{Np}_{0.02})\text{O}_2$, $(\text{U}_{0.74}\text{Am}_{0.02}\text{Np}_{0.02})\text{O}_2$, $(\text{U}_{0.55}\text{Np}_{0.45})\text{O}_2$ und $(\text{U}_{0.74}\text{Pu}_{0.24}\text{Am}_{0.02})\text{O}_2$ hergestellt und im PHÉNIX-Reaktor in Frankreich mit einem schnellen Neutronenspektrum bestrahlt. Dabei wurden Abbrände von 4,1 bis 6,5 % FIMA erzielt /WAL 95/. Aktuell wurden im Rahmen des EURATOM FP7 Programms im MARIOS-Experiment Uran-Americium-Mischoxid Brennstoffe hergestellt, die zur Bestrahlung im HFR in Petten sowie im OSIRIS-Reaktor in Saclay vorgesehen sind. Diese im ATALANTE-Labor in Marcoule hergestellten Brennstoffe haben einen Americium-Anteil von 15 % und sollen in erster Linie der Erforschung der Heliumfreisetzung und Pelletschwellen dienen /DAG 12/, /DEL 13/. Auch in Japan gibt es Forschungsprogramme in diesem Bereich. Im AM-1 Programm wurden beispielsweise Brennstoffe in den Zusammensetzungen $(\text{Am}_{0.02}, \text{Pu}_{0.29}, \text{Np}_{0.02}, \text{U}_{0.67})\text{O}_{2-x}$ und $x = 0,02$ beziehungsweise $x = 0,05$ für kurze Zeit im Versuchsreaktor JOYO bestrahlt und anschließend analysiert.

Die Herstellung von MA-haltigem Brennstoff muss aufgrund der radioaktiven Eigenschaften des Materials fernhantiert in einer heißen Zelle erfolgen. Für die Skalierung auf eine Produktion im industriellen Maßstab ist daher eine möglichst weitgehende Prozessvereinfachung bzw. –automatisierung erstrebenswert. Die konventionellen Herstellungsverfahren für Oxidbrennstoffe, die grundsätzlich auch für MA-haltige Brennstoffe geeignet sind, sind mit einer gewissen Staubentwicklung während der Her-

stellungprozesses verbunden. Um diese zu vermeiden, werden derzeit alternative Verfahren untersucht. Am vielversprechendsten sind dabei aktuell sogenannte Sol-Gel-Verfahren (von Solution-Gelation). Hierbei beginnt man mit einer Nitrat-Lösung der zu verarbeitenden Aktiniden, aus der über einen Gelationsprozess kleine Kügelchen erzeugt werden. Es folgt ein Kalzinierungsschritt, danach die Kompaktierung der Kügelchen zu Pellets und anschließend das Sintern /FER 09/. Der Prozess ist allerdings nur aufwändig in einer heißen Zelle umzusetzen und führt zu signifikanten Mengen an Flüssigabfällen. Daher wurde z. B. am ITU in Karlsruhe ein vereinfachter Prozess entwickelt, bei dem zunächst poröse Kügelchen aus einer Urannitratlösung hergestellt werden. Durch Abwesenheit von höheren Aktinoiden kann dieser Prozessschritt ohne aufwändige Abschirmung erfolgen. Anschließend werden diese Kügelchen mit MA-Nitratlösung infiltriert und der vorher beschriebene Prozessablauf ab der Kalzinierung durchgeführt /VES 12/. Ein weiterer Vorteil von MA-haltigem Oxidbrennstoff ist, dass einer Wiederaufarbeitung durch gängige nasschemische Verfahren keine größeren technologischen Hürden im Weg stehen. Es sind lediglich gewisse Prozessanpassungen aufgrund des möglicherweise höheren Plutonium-Anteils (Kritikalitätssicherheit) sowie höherer Wärmeleistung notwendig.

6.3.3.2 Inerte-Matrix-Brennstoff

Als Inerte-Matrix-Brennstoffe werden solche Brennstoffe bezeichnet, bei denen die zu verbrauchenden Transurane in eine Uran-freie Matrix eingebunden sind. Etwas allgemeiner sollte das Matrix-Trägermaterial weder spaltbares Material noch Brutmaterial enthalten und möglichst transparent für Neutronen sein. Ziel des Einsatzes solcher Inerte-Matrix-Brennstoffe ist, dass bei der Transmutation keine neuen Aktiniden durch Neutroneneinfang aufgebaut werden. Grundsätzlich kommen als mögliche Matrix eine ganze Reihe von Materialklassen in Frage: Elementare Materialien, intermetallische Verbindungen, metallische Legierungen, Carbide, Nitride, Oxide, binäre Oxidverbindungen oder auch oxidische Mischkristalle /IAEA 09/. Eine Übersicht über in der Vergangenheit erfolgte Forschungsarbeit und untersuchte Materialien bieten die IAEA-Berichte /IAEA 06/ und /IAEA 09/. Im Rahmen der Untersuchungen für Bestrahlungstargets für ADS-Anlagen werden aktuell die beiden Materialklassen der CerMet-Brennstoffe (keramischer Brennstoff in Metallmatrix) und der CerCer-Brennstoffe (keramischer Brennstoff in keramischer Matrix) favorisiert. Im Rahmen des HELIOS Experiments zur Untersuchung des Schwellverhaltens und der Spaltgasfreisetzung von Uran-freien ADS-Brennstoffen wurden fünf Brennstäbe mit Pellets verschiedener Mate-

rialzusammensetzung untersucht /OET 12/. Diese sind $MgO + Am_2Zr_2O_7$ (CerCer), $(Am, Zr, Y)O_2 + Mo$ (CerMet), $(Pu,Am)O_2 + Mo$ (CerMet), $(Am,Zr,Y)O_2$ (Mischkristall) und $(Pu,Am,Tr,Y)O_2$ (Mischkristall). Im Designentwurf für die „European Facility for Industrial Transmutation“ (EFIT) sind für den zu verwendenden Brennstoff ein CerCer-Brennstoff mit Magnesiumoxid-Matrix und ein CerMet-Brennstoff mit Molybdän-Matrix aussichtsreichste Kandidaten /SOB 11/.

CerCer-Brennstoffe haben den Vorteil, über ähnliche Eigenschaften wie konventionelle keramische Brennstoffe zu verfügen. So kann man beispielsweise zumindest teilweise auf bestehendes Wissen über die sog. „Pellet-Cladding-Interaction“ (PCI) zurückgreifen. Die Brennstoffeigenschaften werden wesentlich durch die mikrostrukturellen Eigenschaften des Brennstoffs bestimmt. Bei sogenannten Makrodispersionen wird versucht, relativ große Spaltmaterialpartikel in das Matrixmaterial einzubringen. Durch die stärkere Lokalisierung des Brennstoffs bleibt die thermische Leitfähigkeit des Matrixmaterials selbst weitgehend erhalten. Weiterhin treten Strahlungsschäden nur lokalisiert an den Positionen der Spaltmaterialpartikel auf, so dass auch die strukturelle Integrität der Matrix unter Bestrahlung besser erhalten bleibt und die Spaltgasfreisetzung verringert wird. Mikrodispersionen werden vor allem durch ein dem gegenüber vereinfachtes Herstellungsverfahren produziert, bei dem die MA-Lösung in eine poröse Keramikmatrix infiltriert und anschließend getrocknet, kalziniert und eventuell gesintert wird. Im Vergleich zur Makrodispersion treten bei der Mikrodispersion Bestrahlungsschäden über ein größeres Volumen des Pellets auf.

Weitere Vorteile der CerCer-Brennstoffe sind die hohe thermische Stabilität und der geringe Neutronen-Absorptionsquerschnitt des Trägermaterials. Demgegenüber steht durch die relativ geringe thermische Leitfähigkeit eine schon im Normalbetrieb hohe Brennstofftemperatur. Da Keramiken relativ spröde sind, sind die Pellets außerdem anfällig gegenüber Zerschlagen unter mechanischer oder thermischer Belastung. Hinsichtlich der Wiederaufarbeitung ist CerCer-Brennstoff mit MgO -Matrix grundsätzlich kompatibel mit dem gängigen Purex-Verfahren. Das Belassen des MgO in der Spaltproduktlösung ist zwar grundsätzlich möglich, da MgO verträglich mit der Matrix für die Verglasung ist. Aufgrund der großen Menge anfallenden MgO würde man allerdings auch sehr große Mengen verglasten Abfalls bekommen. Ein Verfahren zur Abtrennung von MgO ist noch zu entwickeln.

CerMet-Brennstoffe haben große sicherheitstechnische Vorteile aufgrund ihrer hohen thermischen Leitfähigkeit, der hohen Schmelztemperatur und einer geringen thermi-

schen Ausdehnung. Die Forschungen zu solchen Brennstoffen gehen zurück bis in die späten 1950er und frühen 1960er Jahre, als sie als Alternative zu Oxid-Brennstoffen für Leichtwasserreaktor- und schnelle Reaktor-Anwendungen untersucht wurden. Ähnlich wie bei CerCer-Brennstoffen umfasst die Forschung zu CerMet-Brennstoffen ein breites Spektrum von Materialien und möglichen Anwendungen. Wie oben bereits erwähnt wird in aktuellen Designstudien zu einer europäischen ADS-Anlage als „Aktinidenbrenner“ ein Brennstoff mit einer Molybdän-Matrix favorisiert. Im Folgenden beschränkt sich die Darstellung daher auf diese Matrix.

Bei der Verwendung einer Molybdän-Matrix ist zu beachten, dass natürliches Molybdän, insbesondere die Isotope ^{95}Mo und ^{97}Mo , einen signifikanten Neutronenabsorptionsquerschnitt aufweist. Dies führt zum einen zu nachteiligen neutronenphysikalischen Eigenschaften und zum anderen zum Aufbau des langlebigen Nuklids ^{99}Tc . Dieses ist eines der wesentlichen dosisrelevanten Nuklide bei Langzeitsicherheitsanalysen für die Endlagerung radioaktiver Abfälle. Somit ist dessen Erzeugung in der ADS-Anlage zu vermeiden. Es wird daher diskutiert, angereichertes Molybdän mit 93 % ^{92}Mo zu verwenden /HAA 05/. Eine solche Anreicherung ist technisch machbar und würde analog zur Urananreicherung mit gasförmigem MoF_6 in Ultrazentrifugen erfolgen /BAK 02/. Die Herstellung der Pellets erfolgt nach den folgenden Schritten. Zunächst werden mit dem bereits oben beschriebenen Verfahren aus Gelierung und Infiltration Transuranoxid-Kügelchen hergestellt. Diese werden unter Zusatz von Zinkstearat mit dem Molybdän im gewünschten Verhältnis gemischt, zu Pellets gepresst und anschließend gesintert. Der Volumenanteil der Aktinidenoxid-Partikel liegt dabei typischerweise bei 20 bis 40 %. Je höher der Aktinidenanteil im Brennstoff, desto geringer ist dessen thermische Leitfähigkeit. Die Ergebnisse des HELIOS-Experiments zu den Eigenschaften von Inerte-Matrix-Brennstoffen unter Bestrahlung stehen noch aus /DAG 11/.

Das sog. BODEX-Experiment, bei dem die Helium-Freisetzung und Pellet-Schwellen von Bor-dotierten Mo- und MgO-Matrizen unter Bestrahlung untersucht wurden, zeigt für die Molybdän-Matrix eine vierfach geringere Heliumfreisetzung im Vergleich zur MgO-Matrix. Das Schwellverhalten war für beide Materialien zufriedenstellend /DEL 11/. Hinsichtlich der Wiederaufarbeitung von Molybdän-basiertem Brennstoff gilt ähnliches wie bei der MgO-Matrix: Das Material ist grundsätzlich kompatibel mit dem PUREX-Verfahren, obgleich es unter Umständen zu Molybdän-haltigen Ausfällungen kommen kann. Ein Prozess zur Abtrennung des Molybdän existiert grundsätzlich, es besteht aber noch Entwicklungsbedarf hinsichtlich der Reinheit der Produkte.

6.3.4 Nitrid-Brennstoff

Nitrid-Brennstoffe sind vor allem aufgrund der mit Oxidbrennstoffen vergleichbaren hohen Schmelztemperatur bei gleichzeitig hoher thermischer Leitfähigkeit attraktiv. Hinzu kommt, dass sie eine hohe Aktinoidendichte im Brennstoff ermöglichen /IAEA 09/. Nitride von Transuranen weisen ähnliche Gitterparameter auf und erlauben daher Mischkristalle, die eine große Bandbreite an Aktinoidenzusammensetzungen ermöglichen. Insbesondere AmN und CmN sind allerdings hydroskopisch und reagieren zudem mit Luftsauerstoff. Sie müssen daher unter einer inerten Atmosphäre gehalten werden. Ein weiteres wesentliches Problem ist die Bildung von ^{14}C aus ^{14}N unter Bestrahlung. Nitrid-Brennstoff sollte daher aus hochangereichertem ^{15}N hergestellt werden. Für einen ökonomisch sinnvollen Einsatz müsste das ^{15}N bei der anschließenden Partitionierung möglichst vollständig zurückgewonnen werden.

Die Herstellung von Nitrid-Brennstoff erfolgt im Allgemeinen durch die carbothermische Reduktion von Oxiden unter hohen Temperaturen. Für Transuranhaltige Brennstoffe wäre ein Herstellungsverfahren bei niedrigeren Temperaturen vorteilhaft, um Americiumverluste (s.o.) zu vermeiden. Die Entwicklung von Nitrid-Brennstoff wird in Europa nicht als primäre Option verfolgt. Entsprechende Untersuchungen an (Pu,Zr)N gab es z. B. am Paul Scherrer Institut in der Schweiz /STR 03/. Ein deutlich höherer Forschungsaufwand an Nitrid-Brennstoffen wird dagegen in Japan betrieben /MIN 03/.

6.3.5 Carbid-Brennstoff

Carbid-Brennstoffe weisen ähnliche Eigenschaften wie Nitrid-Brennstoffe auf. Sie haben die gleiche Kristallstruktur und vergleichbare physikalische, chemische und mechanische Eigenschaften. Die thermische Stabilität ist besser als bei Nitrid-Brennstoff /DEL 12/. Allerdings sind Carbidverbindungen noch empfindlicher gegenüber Oxidation und Hydrolyse als Nitride. Während für plutoniumhaltige Nitrid-Brennstoffe eine signifikante Datenbasis zum Bestrahlungsverhalten vorhanden ist gibt es zu MA-haltigen Nitrid-Brennstoffen keinerlei Bestrahlungsversuche. Es wird aber erwartet, dass MA-Carbide eine begrenzte thermische Stabilität besitzen und deutliches Schwellen durch die Helium-Produktion aufweisen.

6.3.6 Metallische Brennstoffe

Metallische Brennstoffe wurden in der Frühphase der Kernreaktorentwicklung vor allem in den USA eingesetzt, beispielsweise in den schnellen Reaktoren EBR-I, EBR-II und FERMI-I und auch im „Dounreay Fast Reactor“ in Großbritannien. Aus dieser Zeit existiert eine recht umfangreiche Betriebserfahrung vor allem für Uran-Zirconium- und Uran-Plutonium-Zirconium-Legierungen /CAR 09/. Beim EBR-II wurde außerdem bereits Versuche mit einer Uran-Legierung mit einem 5 wt% Anteil simulierter Spaltprodukte durchgeführt, die unter Einsatz von für fernhantierte Fertigung vorgesehenen Anlagen hergestellt wurden. Metallische Brennstoffe weisen eine hohe thermische Leitfähigkeit und eine große Spaltmaterialdichte auf. Bei der Herstellung kann auf die vorhandene Erfahrung mit metallurgischen Fertigungsverfahren zurückgegriffen werden. Für metallische Brennstoffe wurden Abbrände bis 20 at% erreicht. Voraussetzung dafür sind geeignete Edelstahl-Hüllrohre. Ein wesentliches Problem metallischer Brennstoffe ist das starke Brennstoffschwellen bei hohen Abbränden, das einen großen Zwischenraum zwischen Hüllrohr und Pellet erforderlich macht. Die Brennstoffe entwickeln dann auch eine große Porosität was ein entweichen eines Großteils der Spaltgase bedingt. Daher ist in den Brennstäben ein großes Plenum zur Aufnahme der Spaltgase erforderlich. Im Zusammenhang mit dem starken Pelletschwellen treten auch verstärkt FCCI-Probleme auf.

Für die Einbindung höherer Aktinoide in die Brennstofflegierung sind einige zusätzliche Punkte zu untersuchen. Es muss beispielsweise ein Prozess gefunden werden, um die in oxidischer Form vorliegenden Aktinoide für die Verwendung in der Metalllegierung zu reduzieren. Wie bei der Oxidbrennstoffherstellung muss die Volatilität von Am beherrscht werden und der Herstellungsprozess entsprechend angepasst werden. Weiterhin ist der Einfluss der höheren Aktinoide auf Materialeigenschaften und die FCCI-Problematik betrachtet werden. Testprogramme zur Herstellung und Bestrahlung von MA-haltigen metallischen Brennstoffen umfassen das X501 Experiment am EBR-II, die Experimentserien ATW, AFC-1 und AFC-2 am ATR am Idaho National Laboratory und die Experimentserien METAPHIX und FUTURIX-FTA zur Bestrahlung am PHENIX-Reaktor in Marcoule. Die verwendeten Brennstoffe waren dabei Pu-Zr- und U-Pu-Zr-Legierungen mit Anteilen von bis zu 12 wt% Am und/oder Np.

Für die Wiederaufarbeitung metallischer Brennstoffe sind pyrometallurgische Verfahren vorgesehen. Die Umsetzbarkeit dieser Verfahren ist im Gegensatz zu nasschemischen Verfahren noch nicht auf industrieller Ebene gezeigt. Auch im Labormaßstab gibt es

noch offene Fragen. Allerdings sind insbesondere in Japan und Korea umfangreiche Forschungsarbeiten in diesem Bereich im Gange.

7 Quellenverzeichnis

- /ALV 06/ L. Alvarez et al.: Fuel Burn Up Extension to improve the Competitiveness of Argentine Nuclear Power Plants. IAEA Technical Meeting on High Burnup Fuel Experience and Economics, 2006.
- /BAK 02/ K. Bakker et al.: Using molybdenum depleted in ^{95}Mo in UMo fuel, 2002 International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Bariloche, Argentina, November 2002
- /BOC 02a/ P. G. Boczar et al.: CANDU Advanced Fuels and Fuel Cycles. PNBC 2002 Shenzen.
- /BOC 02b/ P. G. Boczar: ACR Technology Base: Fuel. Präsentation für die US NRC, 09/2006.
- /BOC 13/ M. Bock, M. Behler, „Validierung und Vergleich von Abschirmrechnungen mit Monaco/MAVRIC und MCNP“, Technischer Bericht, GRS, März 2013
- /BRO 04/ B. L. Broadhead, B. T. Rearden, C. M. Hopper, J. J. Wagschal, and C. V. Parks, "[Sensitivity- and Uncertainty-Based Criticality Safety Validation Techniques](#)," *Nucl. Sci. Eng.* **146**, 340-366 (2004).
- /BRU 96/ R. Brun, F. Rademakers, ROOT - An Object Oriented Data Analysis Framework, Proceedings AIHENP'96 Workshop, Lausanne, Sep. 1996, *Nucl. Inst. & Meth. in Phys. Res. A* 389 (1997) 81-86. See also <http://root.cern.ch/>.
- /CAR 09/ W. J. Carmack et al.: Metallic fuels for advanced reactors, *J. Nucl. Mat.* 392, S.139-150, 2009

- /CAR 83/ R. D. Carter, G.R. Kiel, K.R. Ridgway, „Criticality Handbook“, ARH-600, 1968 with updates up to 1983. Available on the internet at:
<http://ncsp.llnl.gov/ARH-600/index.htm> .
- /CEA 67/ “Guide de Criticité”, Rapport CEA-R 3114, CEA, 1967.
- /CHO 05/ H. Choi et al.: The Status and Prospect of DUPIC Fuel Technology. Nuclear Engineering and Technology Vol. 38 Nr.4, 06/2006.
- /DAG 11/ E. D’Agata et al.: The results of the irradiation experiment HELIOS, Progress in Nuclear Energy, 53 (6), S.748–755, 2011
- /DAG 12/ E. D’Agata et al.: MARIOS: Irradiation of UO₂ containing 15% americium at well defined temperature, J. Nucl. Mat. 242, S.413-419, 2012
- /DEL 11/ F. Delage et al.: Achievements on Oxide and Nitride ADS Fuels within the European Project: EUROTRANS, Proceedings of GLOBAL 2011, Mankuhari, Japan, Dec. 2011
- /DEL 12/ F. Delage et al.: of advanced fuel candidates for Sodium Fast Reactor within the Generation IV International Forum, Journal of Nuclear Materials, 2012, <http://dx.doi.org/10.1016/j.jnucmat.2012.09.036>
- /DEL 13/ T. Delahaye et al.: Application of the UMACS process to highly dense U_{1-x}Am_xO_{2±δ} MABB fuel fabrication for the DIAMINO irradiation, J. Nucl. Mat. 432, 305-312, 2013
- /DIE 84/ L. V. Diev, B. G. Ryazanov, A.P. Murashov et al., “Critical Parameters of Fissile Materials and Criticality Safety, Handbook,” Moscow, Energoatomizdat, 1984. 4 scanned pages from the original report were sent by IPPE to EMS for verification.
- /DIN 94/ DIN 25478:1994-07 „Einsatz von Berechnungssystemen beim Nachweis der Kritikalitätssicherheit“, Deutsches Institut für Normung (DIN) e.V., Berlin, Juli 1994.

- /DIN 95/ DIN 25403-4:1995-10 „Kritikalitätssicherheit bei der Verarbeitung und Handhabung von Kernbrennstoffen“ Teil 4: „Kritikalitätsdaten für Urandi-oxid-Leichtwasser-Mischungen“, Deutsches Institut für Normung (DIN) e.V., Berlin, Oktober 1995.
- /DIN 07/ DIN 25712:2007-07 „Kritikalitätssicherheit unter Anrechnung des Brennstoffabbrands bei Transport und Lagerung bestrahlter Leichtwasserreaktor-Brennelemente in Behältern“, Deutsches Institut für Normung e.V., Berlin, Juli 2007.
- /DIN 11/ DIN 25478:2011–11 „Einsatz von Berechnungssystemen beim Nachweis der Kritikalitätssicherheit — Beiblatt 1: Erläuterungen“, Deutsches Institut für Normung e.V., Berlin, November 2011.
- /DOE 86/ Department of Energy: Shippingport Operations with the Light Water Breeder Reactor Core, DOE Research and Development Report, WAPD-TM-1542, 1986.
- /DOX 11/ Doxygen Documentation System, Dimitri van Heesch,
<http://www.doxygen.org>
- /DUB 66/ B. G. Dubovskiy et. al., “Critical Parameters of Fissionable Materials Systems and Nuclear Safety (A Handbook”, TT: 67-32951, Moscow, Atomic Publishing House, 23, 1966. Translation by U.S. Department of Commerce, JPRS: 42,322, 23 August 1967. Available in /PAX 87/.
- /EME 82/ D. Emendörfer, K. H. Höcker: *Theorie der Kernreaktoren, Band 1: Der stationäre Reaktor*. Bibliographisches Institut AG, Zürich 1982, [ISBN 3-411-01599-3](https://www.bibliographisches.com/9783411015993)
- /FER 09/ A. Fernandez et al.: Overview of past and current activities on fuels for fast reactors at the Institute for Transuranium Elements, Journal of Nuclear Materials, 392, S.133-138, 2009
- /FRI 09/ E. Fridman: Use of Th in Reactors. Präsentation auf dem Thorium Workshop des FZK, 2009.

- /FOX 05/ P. B. Fox, L.M. Petrie Jr., C.M. Hopper, "Minimum Critical Values Study", ORNL/TM 2003/211, June 2005.
- /GÄN 13/ G. Gänßmantel, G. Mayer, M. Wehrfritz, „Probabilistische Sicherheitsanalysen für Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung: Exemplarische Analyse eines repräsentativen Teilprozesses der Brennelementfertigung“, interner technischer Bericht, Mai 2013.
- /GRE 07/ D. Greneche et al.: Rethinking the Thorium Fuel Cycle: An Industrial Point of View. Proceedings of ICAPP, Paper 7367, 2007.
- /GUP 08/ H.P. Gupta et al.: Advanced Fuel Cycles for Use in PHWRs. Journal of Nuclear Materials No. 383, 2008.
- /HAA 05/ D. Haas et al.: Properties Of Cermet Fuels For Minor Actinides Transmutation In ADS, 12th International Conference on Emerging Nuclear Energy Systems (ICENES'2005), Mol, Belgium, 2005
- /HEI 98/ Heinicke, Krug, Thomas, Weber, Gmal, Moser, "Handbuch zur Kritikalität", Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, Dezember 1998, Revidierte Ausgabe 2009, vgl. /KIL 09/.
- /HOF 93/ E. Hofer, „Probabilistische Unsicherheitsanalyse von Ergebnissen umfangreicher Rechenmodelle“, GRS-A-2002, Januar 1993
- /IAE 05/ International Atomic Energy Agency: Thorium Fuel Cycle-Potential Benefits and Challenges. IAEA -TECDOC-1450, 2005.
- /IAE 06/ International Atomic Energy Agency: Viability Of Inert Matrix Fuel In Reducing Plutonium Amounts In Reactors, IAEA-TECDOC-1516, 2006
- /IAE 09/ International Atomic Energy Agency: Status Of Minor Actinide Fuel Development, IAEA Nuclear Energy Series No. NF-T-4.6, 2009
- /IAE 12/ International Atomic Energy Agency: Role of Thorium to Supplement Fuel Cycles of Future Nuclear Systems. IAEA Nuclear Energy Series No. NF-T-2.4, 2012.

- /JAE 95/ "Nuclear Criticality Safety Handbook (English Translation)", JAERI-Review 95-013, September 1995. The Nuclear Safety Bureau/Science and Technology Agency compiled the Japanese original, 1988.
- /JAE 99/ "Nuclear Criticality Safety Handbook, Version 2", JAERI-1340. In Japanese. 1999.
- /JAE 01/ "Nuclear Criticality Safety Handbook, Version 2", JAERI-Review 2001-028. English translation. August 2001.
- /JSO 11/ JavaScript Object Notation, JSON-Dateiformat, <http://www.json.org/>
- /JUN 05/ J. S. Jun: Thermalhydraulic Evaluations for a Canflex Bundle with Natural or Recycled Uranium Fuel in the uncrept and crept Channels of a CANDU 6 Reactor. Nuclear Engineering and Technology Vol. 37, 10/2005
- /KIL 09/ R. Kilger, E.F. Moser, M. Behler, „Neuberechnung von kritischen Parametern und deren Validierung für das GRS ‚Handbuch zur Kritikalität‘, Ausgabe 2009“, GRS-A-3532, Oktober 2009.
- /KIL 11/ R. Kilger, M. Behler, E.–F. Moser, "Validating the minimum critical sphere mass of a reflected, homogeneous mixture of 5 % enriched uranium dioxide and water," Proc. International Conference on Nuclear Criticality" (ICNC), Edinburgh UK, 19. – 22. September 2011.
- /KLO 09/ M. Kloos, SUSA Version 3.6, User's Guide and Tutorial, Oct. 2008
- /LEE 05/ T. J. Lee: Technological Change of Nuclear Fuel Cycle in Korea: The case of DUPIC. Progress in Nuclear Energy, Vol. 45, 2004.
- /LUN 98/ M. Lung, O. Gremm: Perspectives of the Thorium Fuel Cycle. Nuclear Engineering and Design, Vol. 180, 1998.
- /MAG 06/ J. Magill et al.: Karlsruher Nuklidkarte. 7. Auflage 2006.
- /MAG 09/ J. Magill, G. Pfennig, J. Galy, „Karlsruher Nuklidkarte“, 7. Auflage, revised printing 2009, Karlsruhe, ISBN 92-79-02173-3.

- /MAU 78/ L. Maubert, "Standard de criticité – Valeurs minimales critiques", CEA-N-2051, 1978.
- /MCN 06/ RSICC CODE PACKAGE CCC-730: MCNP/MCNPX: Monte Carlo N-Particle Transport Code System Including MCNP5 1.40 and MCNPX 2.5.0 and Data Libraries, January 2006
- /MCT 08/ X-5 Monte Carlo Team, "MCNP5 — A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5", Volume I + II, LA-UR-03-1987 und LA-CP-03-0245, Los Alamos National Laboratory, April 2003, überarbeitet Februar 2008
- /MIN 03/ K. Minato et al.: Fabrication of nitride fuels for transmutation of minor actinides J. Nucl. Mat. 320, S.18-24, 2003
- /NEU 10/ J. C. Neuber, Proposal for an UACSA benchmark study on the reactivity impacts of manufacturing tolerances of parameters characterizing a fuel assembly configuration, AREVA NP GmbH
- /NEA 10/ OECD/NEA Data-Bank, "International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments", NEA/NSC/DOC(95)03, September 2010, ISBN 978-92-64-99140-8
- /NEA 06/ Nuclear Energy Agency: Very High Burnups in Light Water Reactors. NEA No. 6224, 2006.
- /OEC 05/ Fuels and Materials for Transmutation, A Status Report, OECD/NEA-5419, 2005
- /OEC 06/ OECD/NEA Nuclear Science „Reference Values for Nuclear Criticality Safety“, NEA No. 5433, ISBN 92-64-02333-X, OECD 2006
<http://www.oecd-nea.org/science/pubs/2006/nea5433-refvalues.pdf> .
- /OEC 06a/ Advanced Nuclear Fuel Cycles and Radioactive Waste Management, OECD/NEA-5990, 2006

- /OEC 09/ OECD/NEA Data Bank, 12 boulevard des Îles, F-92130 Issy-les-Moulineaux, France; “International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments”, NEA/NSC/DOC(95)03, September 2009.
- /OEC 10a/ OECD/NEA Working Party on Nuclear Criticality Safety (WPNCS) Expert Group on Uncertainty Assessment in Criticality Safety Analysis
<http://www.nea.fr/science/wpncs/UACSA/index.html>
- /OEC 10b/ OECD/NEA Data-Bank “International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments”, NEA/NSC/DOC(95)03, September 2010, ISBN 978-92-64-99140-8
- /OEC 12/ Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, Eleventh Information Exchange Meeting, OECD/NEA-6996, 2012
- /OET 12/ M. Oettingen et al.: Comparison of MCB and FISPACT burn-up performances using the HELIOS experiment technical specifications, Nuclear Engineering and Design 242, S.399– 412, 2012
- /PAX 87/ H. C. Paxton, N. L. Pruvost, “Critical Dimensions of Systems Containing 235U, 239Pu and 233U, 1986 Revision”, LA-10860-MS, Issued July 1987. A CD-ROM package, with REFSET including the report and most of the references, is available from LANL <http://library.lanl.gov/cgi-bin/getfile?00209019.pdf> .
- /PUT 11/ D. Putley, S. Hay, “Development and Testing of ICASPA – A Goal Seeking Algorithm for Critical Size Determination”, “, Proc. International Conference on Nuclear Criticality“ (ICNC), Edinburgh UK, 19. – 22. September 2011.
- /PYT 11/ Documentation for Python 3, see <http://docs.python.org/py3k/>
- /PRO 12/ I. Prodea, I. Prisecaru: Core Neutronic effects at the Use of Burnable Absorbers in CANDU Fuel Bundles. U.P.B. Sci. Bull., Series D, Vol. 74, Iss. 1, 2012.

- /REA 11/ B. T. Rearden, M. L. Williams, M. A. Jessee, D. E. Mueller, D. A. Wiarda, "Sensitivity and Uncertainty Analysis Capabilities and Data in SCALE," Nucl. Technol. 174(2), 236-288, May 2011.
- /RIS 11/ J. M. Risner, D. Wiarda, M. E. Dunn, T. M. Miller, D. E. Peplow, B. W. Patton, „Production and Testing of the VITAMIN-B7 Fine-Group and BUGLE-B7 Broad-Group Coupled Neutron/Gamma Cross-Section Libraries Derived from ENDF/B-VII.0 Nuclear Data“, NUREG/CR-7045, ORNL/TM-2011/12, Oak Ridge National Laboratory, Januar 2011
- /RYU 05a/ H. J. Ryu et al.: Materials Properties and Fuel Performance of the DUPIC Fuel. Workshop on Advanced Reactors with Innovative Fuels, Oak Ridge Tennessee, 02/2005.
<http://www.oecd-nea.org/science/meetings/ARWIF2004/1.04.pdf>
- /RYU 05b/ H. J. Ryu et al.: Materials Properties and Fuel Performance of the DUPIC Fuel. Proceedings of the 3rd Workshop on Advanced Reactors with Innovative Fuels, NEA/NSC/DOC(2009)1, 2009.
- /SAN 01/ C. E. Sanders, J. C. Wagner: Impact of Integral Burnable Absorbers on PWR Burnup Credit Criticality Safety Analyses. NCSN Conference Paper #1, 2001.
- /SCA 09/ SCALE: A Modular Code System for Performing Standardized Computer Analyses for Licensing Evaluations, ORNL/TM-2005/39, Version 6, Vols. I–III, January 2009. Available from Radiation Safety Information Computational Center at Oak Ridge National Laboratory as CCC-750
- /SHU 11/ J. K. Shultis, R. E. Faw, “An MCNP5 Primer”, Dept. of Mechanical and Nuclear Engineering, Kansas State University, Dezember 2011
- /STA 07/ W. M. Stacey, “Nuclear Reactor Physics, 2nd Ed., Completely Revised and Enlarged”, Wiley–VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim, 2007, ISBN 978–3–527–40679–1.
- /STR 03/ M. Streit et al.: Zirconium nitride as inert matrix for fast systems, . Nucl. Mat. 319, S.51-58, 2003

- /SUB 11/ Versionskontrollsystem Subversion, <http://subversion.apache.org/>
- /SOB 11/ V. Sobolev et al.: Prognosis and comparison of performances of composite CERCER and CERMET fuels dedicated to transmutation of TRU in an EFIT ADS, J. Nucl. Mat. 414, S.157-264, 2011
- /TOR 94/ D. F. Torgerson et al.: CANDU Fuel Cycle Flexibility. 1994.
http://www.ccnr.org/advanced_fuel_cycles.html
- /THI 03/ C. Thiriet, R. J. M. Konings: Chemical thermodynamic representation of AmO₂-x, Journal of Nuclear Materials, 320, S.292-298, 2003
- /UEK 83/ K. Ueki, M. Inoue, Y. Maki, „Validity of the Monte Carlo method for shielding analysis of a spent-fuel shipping cask: comparison with experiment“, Nuclear Science and Engineering 84, 3 (1983)
- /UEK 86/ K. Ueki, Y. Namito, T. Fuse, „Measurement of dose rates and Monte Carlo analysis of neutrons in a spent-fuel shipping vessel“, Nuclear Technology 74, 2 (1986)
- /UEK 87/ K. Ueki and Y. Namito, “Optimum arrangement for the neutron dose rates of an iron-polyethylene shielding system”, Nuclear Science and Engineering 96, 1 (1987)
- /UEK 92/ K. Ueki, A. Ohashi, Y. Anayama, „Neutron shielding ability of KRAFTON N2 – Mannan – KRAFTON N2 sandwich-type material and others“, ANS Radiation Protection and Shielding Division (RPSD) Tpoical Meeting, Pasco, WA (1992)
- /UEK 96/ K. Ueki, A. Ohashi, N. Nariyama, et al., „Systematic evaluation of neutron shielding effects for materials“, Nuclear Science and Engineering 124 (1996)
- /UEK 83/ K. Ueki, M. Inoue, Y. Maki, „Validity of the Monte Carlo method for shielding analysis of a spent-fuel shipping cask: comparison with experiment“, Nuclear Science and Engineering 84, 3 (1983);

K. Ueki and Y. Namito, "Optimum arrangement for the neutron dose rates of an iron-polyethylene shielding system", Nuclear Science and Engineering 96, 1 (1987);

K. Ueki, Y. Namito, T. Fuse, „Measurement of dose rates and Monte Carlo analysis of neutrons in a spent-fuel shipping vessel“, Nuclear Technology 74, 2 (1986);

K. Ueki, A. Ohashi, Y. Anayama, „Neutron shielding ability of KRAFTON N2 – Mannan – KRAFTON N2 sandwich-type material and others“, ANS Radiation Protection and Shielding Division (RPSD) Topical Meeting, Pasco, WA (1992);

K. Ueki, A. Ohashi, N. Nariyama, et al., „Systematic evaluation of neutron shielding effects for materials“, Nuclear Science and Engineering 124 (1996)

/VES 12/ M. Vespa et al.: Fabrication and characterization of (U, Am)O_{2-x} transmutation targets, J. Nucl. Mat. 421, S.80-88, 2012

/WAL 95/ C. T. Walker, G. Nicolaou: Transmutation of neptunium and americium in a fast neutron flux: EPMA results and KORIGEN predictions for the superact fuels, J. Nucl. Mat. 218, S.129-138, 1995

/WAT 01/ M. Watteau et al.: Framatome ANP extended Burn Up Experience and Views on LWR Fuel. World Nuclear Annual Symposium, London, 2001.

/WES 10/ J. R. Secker: Westinghouse Burnable Absorber Evolution and Usage. Winter ANS Conference, 2010.

/WIK 12/ Wikipedia–Eintrag zu Gadoliniumoxid
<http://de.wikipedia.org/wiki/Gadolinium%28III%29-oxid> zuletzt besucht am 05.09.2012.

/WIL 41/ S. S. Wilks, „Determination of sample sizes for setting tolerance limits“, Ann. Math. Stat., 12 (1941), Seiten 91-96

/WNA 12/ World Nuclear Association Homepage:
<http://www.world-nuclear.org/info/inf62.html>, aktualisiert August 2012.

- /WNN 12/ http://www.world-nuclear-news.org/ENF-Chinese_reactor_trials_Candu_fuel_reuse-2403101.html
- /YAH 12/ <http://ca.finance.yahoo.com/news/candu-signs-expanded-agreement-china-165700603.html>
- /YAM 10a/ M. Yamasaki et al.: Current Status of the Development Project on Erbia Credit Super High Burnup Fuel. IAEA-TECDOC-1654, 2010.
- /YAM 10b/ M. Yamasaki et al.: The Study on Erbia Credit Super-High-Burnup Fuel with Isotopically Modified Erbia. ANS Winter Meeting, 2010.
- /YAM 12/ M. Yamasaki et al.: Development of Erbia Credit Super-High-Burnup Fuel: Evaluation of Minimum Erbia Content for Criticality Safety Analyses. Nuclear Technology Vol. 180, 10/2010.

8 **Abbildungsverzeichnis**

Abb. 3.1	Zusammenhang zwischen Urankonzentration und Atomzahl-Moderationsverhältnis im Modell der Restwasserauffüllung	9
Abb. 3.2	Kritische Kugelmassen für homogene Urandioxid-Wasser-Systeme mit 30 cm Wasserreflektor	12
Abb. 3.3	Kritische Kugelvolumina für homogene Urandioxid-Wasser-Systeme mit 30 cm Wasserreflektor	13
Abb. 3.4	Kritische Zylinderdurchmesser für homogene Urandioxid-Wasser-Systeme mit 30 cm Wasserreflektor	14
Abb. 3.5	Kritische Schichtdicken für homogene Urandioxid-Wasser-Systeme mit 30 cm Wasserreflektor	15
Abb. 3.6	Infiniter Multiplikationsfaktor k_{inf} von homogenen Urandioxid-Wasser-Systeme verschiedener Anreicherung	17
Abb. 3.7	Maximaler infiniten Multiplikationsfaktor k_{inf} von homogenen Urandioxid-Wasser-Systemen verschiedener Anreicherung	18
Abb. 3.8	Kleinste kritische Urankonzentration von homogenen Urandioxid-Wasser-Systemen verschiedener Anreicherung	19
Abb. 3.9	Infiniter Neutronenmultiplikationsfaktor k_{inf} für homogene Urandioxid-Wasser-Systeme mit unterschiedlichen Gadolinium-Beimischungen	21
Abb. 3.10	Einheitszellen der betrachteten heterogenen Urandioxid-Wasser-Systeme mit Gadolinium.....	23
Abb. 3.11	Mit SCALE6/NEWT berechnete exemplarische thermische Neutronenflussdichteverteilung der infiniten 4×4-2/2 Brennstabanordnung	

	mit zwei gadoliniumhaltigen Brennstäben und zwei Steuerstabführungsrohren	26
Abb. 3.12	Kritische Kugelmassen von homogenen Urandioxid-Grafit-Mischungen mit 100 cm Grafitreflektor	28
Abb. 3.13	Kritische Kugelvolumina von homogenen Urandioxid-Grafit-Mischungen mit 100 cm Grafitreflektor.....	28
Abb. 3.14	Kritische Kugelmassen von homogenen Urandioxid-Grafit-Mischungen mit 30 cm Wasserreflektor	29
Abb. 3.15	Kritische Kugelvolumina von homogenen Urandioxid-Grafit-Mischungen mit 30 cm Wasserreflektor	30
Abb. 3.16	Kleinste kritische Kugelmassen für homogene Urandioxid–Grafit–Systeme mit 100 cm Grafit- und mit 30 cm Wasserreflektor	32
Abb. 3.17	Bei gegebenem k_{eff} -Wert berechnete Uran-Kugelmassen unter optimaler Moderation und Reflexion für 3,0 bis 6,0 Gew.-% Anreicherung ^{235}U	35
Abb. 3.18	Bei gegebenem k_{eff} -Wert berechnete Uran-Kugelmassen unter optimaler Moderation und Reflexion für 3,0 bis 6,0 Gew.-% Anreicherung ^{235}U (Ausschnitt).....	35
Abb. 3.19	Bei gegebenem k_{eff} -Wert berechnete Uran-Kugelmassen unter optimaler Moderation und Reflexion für 3,0 Gew.-% Anreicherung ^{235}U (1).....	37
Abb. 3.20	Bei gegebenem k_{eff} -Wert berechnete Uran-Kugelmassen unter optimaler Moderation und Reflexion für 3,0 Gew.-% Anreicherung ^{235}U (2).....	37
Abb. 3.21	Bei gegebenem k_{eff} -Wert berechnete Uran-Kugelmassen unter optimaler Moderation und Reflexion für 4,0 Gew.-% Anreicherung ^{235}U (1).....	38
Abb. 3.22	Bei gegebenem k_{eff} -Wert berechnete Uran-Kugelmassen unter optimaler Moderation und Reflexion für 4,0 Gew.-% Anreicherung ^{235}U (2).....	38

Abb. 3.23	Bei gegebenem k_{eff} -Wert berechnete Uran-Kugelmassen unter optimaler Moderation und Reflexion für 5,0 Gew.-% Anreicherung ^{235}U (1).....	39
Abb. 3.24	Bei gegebenem k_{eff} -Wert berechnete Uran-Kugelmassen unter optimaler Moderation und Reflexion für 5,0 Gew.-% Anreicherung ^{235}U (2).....	39
Abb. 3.25	Bei gegebenem k_{eff} -Wert berechnete Uran-Kugelmassen unter optimaler Moderation und Reflexion für 6,0 Gew.-% Anreicherung ^{235}U (1).....	40
Abb. 3.26	Bei gegebenem k_{eff} -Wert berechnete Uran-Kugelmassen unter optimaler Moderation und Reflexion für 6,0 Gew.-% Anreicherung ^{235}U (2).....	40
Abb. 3.27	Durch MCNP5 und KENO-V.a mit ENDF/B-VII.0 Wirkungsquerschnitten berechnete Multiplikationsfaktoren für die Systeme kleinster kritischer Uran-Kugelmassen für Anreicherungen von 3,0 bis 6,0 Gew.-% ^{235}U	43
Abb. 3.28	Neuberechnete kleinste kritische Uran-Kugelmassen im Vergleich zum bisherigen GRS Handbuch zur Kritikalität und zu Werten der OECD/NEA EGMCV	45
Abb. 3.29	Trendanalyse der für die Benchmark-Experimente errechneten k_{eff} -Werte über der Anreicherung	47
Abb. 3.30	Trendanalyse der für die Benchmark-Experimente errechneten k_{eff} -Werte über dem Moderationsverhältnis $H^{/\text{tot}}\text{U}$	48
Abb. 3.31	Trendanalyse der für die Benchmark-Experimente errechneten k_{eff} -Werte über dem Moderationsverhältnis $H^{/^{235}\text{U}}$	48
Abb. 3.32	Trendanalyse der für die Benchmark-Experimente errechneten k_{eff} -Werte über der zur mittleren spaltungsinduzierenden Neutronenlethargie korrespondierenden Energie EALF	49
Abb. 3.33	Mit TSUNAMI-1D berechnete nuklidweise Sensitivitätsprofile für das System der wassermoderierten kleinsten kritischen Uran-Kugelmasse bei 5,0 Gew.-% Anreicherung ^{235}U in der Spaltstoffzone.....	52

Abb. 3.34	Mit TSUNAMI-1D berechnete nuklidweise Sensitivitätsprofile für das System der grafitmoderierten kleinsten kritischen Uran-Kugelmasse bei 20 Gew.-% Anreicherung ^{235}U in der Spaltstoffzone.....	53
Abb. 3.35	Trendanalyse der für die Benchmarkexperimente errechneten k_{eff} -Werte über den TSUNAMI-IP Parameter c_k in Bezug auf das System der kleinsten kritischen Uran-Kugelmasse bei 5,0 Gew.-% Anreicherung ^{235}U	56
Abb. 4.1	Ablaufschema einer Unsicherheitsanalyse mit SUSA und SUnCISTT.	70
Abb. 4.2	Schematische Darstellung der Abläufe im SUnCISTT-Modus „prepareSamples“	71
Abb. 4.3	Grafische Darstellung des Ablaufs des SUnCISTT-Modus „collectResults“	74
Abb. 4.4	Schematische Darstellung des Ablaufs der statistischen Analyse der SUnCISTT-Resultate mit SUSA.....	76
Abb. 4.5	KENO3D-Aufsicht auf einen Schnitt der untersuchten Anordnung	79
Abb. 4.6	KENO3D-Aufsicht auf das modellierte, generische 17x17-25 DWR-Brennelement in der untersuchten Anordnung.....	79
Abb. 4.7	Darstellung des im Benchmark zu untersuchenden Systems.....	86
Abb. 4.8	Konfiguration des Brennelements im Lagergestell.....	87
Abb. 4.9	Bild des KENO-V.a-Modells der im Benchmark zu analysierenden Lagergestellanordnung unter Verwendung der Nominalwerte.....	88
Abb. 4.10	Grafische Darstellung des Zusammenhangs zwischen dem Bor-Anteil im Stahl und der Dichte	92
Abb. 4.11	Grafische Darstellung der Sensitivitäten, d. h. den zur Unsicherheit in k_{eff} maßgeblich beitragenden Parametervariationen.....	101

Abb. 4.12	Zusammenhang zwischen Neutronenmultiplikationsfaktor und der Breite des Wasserspaltes zwischen dem Kasten aus Borstahl und dem Lagergestellkasten.....	103
Abb. 5.1	Schematischer Skizze des experimentellen Aufbaus der Experimente von Ueki et al.	108
Abb. 5.2	Schnitt durch das erstellte MAVRIC-Modell für den Fall der Abschirmdicke von 35 cm.....	110
Abb. 5.3	Berechnete Importance Map für die „ext“-Unterteilung des Gitters für DENOVO für den Fall der 25 cm starken Graphit-Abschirmung.....	113
Abb. 5.4	Neutronenspektrum in 200 Energiegruppen für die neun mit der CADIS°EXT-Methode analysierten Fälle.....	115
Abb. 5.5	Beitrag der nicht gestreuten Neutronen am Neutronenfluss in logarithmischer Skalierung der y-Achse.....	116
Abb. 5.6	Berechnete Äquivalenzdosis am Punktdetektor für die neun experimentellen Konfigurationen und die vier eingesetzten CADIS-Konfigurationen unter Verwendung der Wirkungsquerschnittsbibliothek mit 200 Energiegruppen für Neutronen.....	117
Abb. 5.7	Standardabweichung der am Punktdetektor ermittelten Äquivalenzdosis für die experimentellen Fälle und die vier MAVRIC-Konfigurationen, bei Verwendung der Wirkungsquerschnittsbibliothek mit 200 Energiegruppen für Neutronen.....	118
Abb. 5.8	Zusammensetzung des Neutronenflusses aus gestreuten und ungestreuten Anteilen für die verschiedenen analysierten Fälle am Beispiel der Monaco-Rechnung mit 27 Neutronenenergiegruppen.....	119
Abb. 5.9	Rechenzeit für die jeweilige MAVRIC-Konfiguration bei unterschiedlichen Schichtdicken mit 200 Neutronenenergiegruppen in der Monte Carlo Simulation mit Monaco.....	120

Abb. 5.10	DENOVO-Rechenzeit für die jeweilige MAVRIC-Konfiguration bei unterschiedlichen Schichtdicken mit 200 Neutronenenergiegruppen nach der deterministischen Bestimmung der Importance Map.....	121
Abb. 5.11	Zeitgewinn durch die Anwendung der CADIS-Methode in den verschiedenen Konfigurationen mit 200 Neutronenenergiegruppen im Vergleich zur reinen Monaco-Rechnung	122
Abb. 5.12	Vergleich der FOM für die CADIS-Varianten mit Monaco für verschiedene Abschirmdicken	123
Abb. 5.13	Vergleich der Abschwächungsfaktoren der Äquivalenzdosis mit den experimentellen Werten von Ueki et al.....	124
Abb. 5.14	C/E-Werte für die Analysen der Abschwächungsfaktoren der Äquivalenzdosis mit den experimentellen Werten von Ueki et al.....	124
Abb. 5.15	Berechneter Neutronenflusses am Punktdetektor für die nicht abgeschirmte Quelle bei verschiedenen Quelldefinitionen	126
Abb. 5.16	Anteil des ungestreuten Neutronenflusses am Gesamtneutronenfluss am Punktdetektor für die nicht abgeschirmte Quelle, bei verschiedenen Quelldefinitionen	127
Abb. 5.17	Anteil des gestreuten Neutronenflusses am Gesamtneutronenfluss am Punktdetektor für die nicht abgeschirmte Quelle, bei verschiedenen Quelldefinitionen	128
Abb. 5.18	C/E-Werte für die Analyse für eine exemplarische Quelldefinition.....	129
Abb. 5.19	Schematische Darstellung des Fall 1 des Experiments ALARM-CF-FE-SHIELD-001 ohne Abschirmung	130
Abb. 5.20	Schematische Darstellung der Fälle 2 bis 6 des Experiments ALARM-CF-FE-SHIELD-001	130

Abb. 5.21	Schnitt durch ein exemplarisches MAVRIC-Modell der abschirmenden Eisenkugel um die Quelle	131
Abb. 5.22	Resultate der verschiedenen Rechenmethoden sowie Vergleich mit den experimentellen Werten ohne abschirmendes Eisen	135
Abb. 5.23	Relative Unsicherheit für die Ergebnisse der verschiedenen eingesetzten Rechenmethoden für den Fall ohne abschirmendes Eisen	136
Abb. 5.24	Resultate der verschiedenen Rechenmethoden sowie Vergleich mit den experimentellen Werten für eine Eisenabschirmung mit Radius 35 cm ..	137
Abb. 5.25	Resultate im Energiebereich von 10 keV bis 100 keV der verschiedenen Rechenmethoden sowie Vergleich mit den experimentellen Werten für eine Eisenabschirmung mit Radius 35 cm	137
Abb. 5.26	Relative Unsicherheit in den Ergebnissen der verschiedenen eingesetzten Rechenmethoden für eine Eisenabschirmung mit Radius 35 cm	138
Abb. 5.27	Gesamter von den Detektoren gemessener Neutronenfluss für den ersten Teil des Benchmarks	139
Abb. 5.28	Standardabweichung des gesamten von den Detektoren gemessenen Neutronenflusses für den ersten Teil des Benchmarks	139
Abb. 5.29	Vergleich der gesamten Rechenzeiten für die sieben Fälle des ersten Teils des Benchmarks für verschiedene Analysemethoden und mit unterschiedlichen Wirkungsquerschnittsbibliotheken	140
Abb. 5.30	Vergleich der Rechenzeiten in Monaco für die sieben Fälle des ersten Teils des Benchmarks für verschiedene Analysemethoden und mit unterschiedlichen Wirkungsquerschnittsbibliotheken	141
Abb. 5.31	Vergleich der Rechenzeiten der CADIS-Vorrechnung für die sieben Fälle des ersten Teils des Benchmarks für verschiedene Analysemethoden und mit unterschiedlichen Wirkungsquerschnittsbibliotheken.....	141

Abb. 5.32	Quellspektrum der primären Photonenquelle, wie es mit dem Programm SOURCE berechnet wurde.....	143
Abb. 5.33	Berechnete und experimentelle Werte des gesamten Photonenflusses am Detektor für den Fall ohne abschirmende Eisenkugel	144
Abb. 5.34	Anteil primärer Photonen am gesamten Photonenfluss am Detektor für den Fall der nicht-abgeschirmten Quelle.....	144
Abb. 5.35	Anteil primärer Photonen am gesamten Photonenfluss am Detektor für den Fall der mit einer Eisenkugel mit 35 cm Radius abgeschirmten Quelle ..	145
Abb. 5.36	Berechnete und experimentelle Werte des gesamten Photonenflusses am Detektor für den Fall einer Eisenkugel mit 35 cm Radius, die als Abschirmung die ²⁵² Cf-Quelle ummantelt.....	146
Abb. 5.37	C/E-Resultate für die Zählrate der Bonner-Kugel 1 für die unterschiedlichen Analysemethoden.....	148
Abb. 5.38	Erzielte relative Unsicherheiten der Zählrate von Bonner-Kugel 1 für die sechs eingesetzten Analysemethoden.....	149
Abb. 5.39	C/E-Resultate für die Zählrate der Bonner-Kugel 8 für die unterschiedlichen Analysemethoden.....	150
Abb. 5.40	Erzielte relative Unsicherheiten der Zählrate von Bonner-Kugel 8 für die sechs eingesetzten Analysemethoden.....	151
Abb. 5.41	C/E-Ergebnisse für die acht Bonner-Kugeln der sieben Benchmark-Fälle für Analysen die in der Konfiguration MAVRIC ^o RT.....	152
Abb. 5.42	Relative Unsicherheiten in den Zählraten der acht Bonner-Kugeln für die sieben Benchmark-Fälle für Analysen in der Konfiguration MAVRIC RT	153
Abb. 5.43	Verhältnis der Äquivalenzdosen der MCNP5- und-Monaco-Rechnungen für das Ueki-Experiment	155

Abb. 5.44	Verhältnis der Abschwächungsfaktoren der MCNP5- und-Monaco-Rechnungen für das Ueki-Experiment	155
Abb. 5.45	Verhältnis der totalen Neutronenflüsse der MCNP5- und-Monaco-Rechnungen für das Ueki-Experiment ohne Graphitabschirmung.....	156
Abb. 5.46	Verhältnis der nicht gestreuten Neutronenflüsse der MCNP5- und-Monaco-Rechnungen für das Ueki-Experiment ohne Graphitabschirmung.....	156
Abb. 5.47	Vergleich der Unsicherheiten der von MCNP5 und Monaco errechneten Äquivalenzdosen der Standardsimulationen und der Rechnungen mit der Weight Windows-Methode für das Ueki-Experiment	157
Abb. 5.48	Vergleich der Rechenzeiten der MCNP5- und Monaco-Standardsimulationen sowie der Rechnungen mit der Weight Windows-Methode für das Ueki-Experiment.....	158
Abb. 5.49	Vergleich des Zeitgewinns durch die Verwendung der Weight Windows-Methode in den MCNP5- und Monaco-Rechnungen für das Ueki-Experiment	158
Abb. 5.50	Vergleich des Speedup durch die Verwendung der Weight Windows-Methode in den MCNP5- und Monaco-Rechnungen für das Ueki-Experiment	159
Abb. 5.51	Vergleich der Neutronenspektren des Experiments ALARM-CF-FE-SHIELD-001 ohne Abschirmung (Fall 1) aus den Monaco- und MCNP5-Rechnungen	161
Abb. 5.52	Vergleich der Neutronenspektren des Experiments ALARM-CF-FE-SHIELD-001 mit Abschirmung von Radius 35 cm aus den Monaco- und MCNP5-Rechnungen.....	161
Abb. 5.53	Verhältnis der von MCNP5 und Monaco ermittelten Photonenspektren des Experiments ALARM-CF-FE-SHIELD-001 ohne Abschirmung (logarithmische Darstellung)	163

Abb. 5.54	Verhältnis der von MCNP5 und Monaco ermittelten Photonenspektren des Experiments ALARM-CF-FE-SHIELD-001 ohne Abschirmung (lineare Darstellung)	163
Abb. 5.55	Verhältnis der von MCNP5 und Monaco ermittelten Photonenspektren des Experiments ALARM-CF-FE-SHIELD-001 mit Abschirmung von 35 cm Radius (logarithmische Darstellung)	164
Abb. 5.56	Verhältnis der von MCNP5 und Monaco ermittelten Photonenspektren des Experiments ALARM-CF-FE-SHIELD-001 mit Abschirmung von 35 cm Radius (lineare Darstellung)	164
Abb. 5.57	Verhältnis der von MCNP5 und Monaco ermittelten Zählraten der Bonner-Kugeln des Experiments ALARM-CF-FE-SHIELD-001	165
Abb. 5.58	Vergleich der Unsicherheiten der von MCNP5 und Monaco errechneten Neutronenflüsse der Standardsimulationen für das Experiment ALARM-CF-FE-SHIELD-001	167
Abb. 5.59	Vergleich der Unsicherheiten der von MCNP5 und Monaco errechneten Photonenströme aus (n,γ)-Reaktionen der Standardsimulationen für das Experiment ALARM-CF-FE-SHIELD-001	167
Abb. 5.60	Vergleich der Unsicherheiten der von MCNP5 und Monaco errechneten primären Photonenströme der Standardsimulationen für das Experiment ALARM-CF-FE-SHIELD-001	168
Abb. 5.61	Vergleich der Unsicherheiten der in den MCNP5- und Monaco-Standsimulationen errechneten Zählraten der Bonner-Kugeln für das Experiment ALARM-CF-FE-SHIELD-001	168
Abb. 5.62	Vergleich der benötigten Rechenzeiten der MCNP5- und Monaco-Standsimulationen mit Neutronen- bzw. Photonquelle für das Experiment ALARM-CF-FE-SHIELD-001	169
Abb. 6.1	Notwendige Erbium-Konzentration über die Brennstoffanreicherung für verschiedene Geometriemodelle / ECOS-Diagramm	180

Abb. 6.2	CANDU Standard-Brennelement und CANFLEX-Design	185
Abb. 6.3:	Zerfallskette von ^{232}Th zu ^{233}U	186
Abb. 6.4	Neutronenausbeute von ^{233}U , ^{235}U , und ^{239}Pu in Abhängigkeit von der Neutronenenergie	187
Abb. 6.5	Schematische Darstellung der einfahrbaren Treiber-Brennelemente im ehemaligen Kernkraftwerk Shippingport	190
Abb. 6.6	Brennelement-Konzepte zur Nutzung von Thorium in LWR und WWER	193

9 Tabellenverzeichnis

Tab. 3.1	Neuberechnete kleinste kritische Parameterwerte für niedrig angereicherte homogene Urandioxid–Wasser–Systeme mit 30 cm Wasserreflektor	16
Tab. 3.2	Kleinste kritische Urankonzentration von homogenen Urandioxid-Wasser-Systemen verschiedener Anreicherung	20
Tab. 3.3	Brennstabkenngrößen der heterogenen Urandioxid-Wasser-Systeme mit Gadolinium	22
Tab. 3.4	Berechnete Multiplikationsfaktoren k_{eff} für heterogene Urandioxid-Wasser-Systeme mit Gadolinium	24
Tab. 3.5	Berechnete Multiplikationsfaktoren k_{eff} für die Benchmark-Experimente LEU-COMP-THERM-043 und LEU-COMP-THERM-091 mit Gadolinium .	25
Tab. 3.6	Kleinste kritische Kugelmassen für homogene Urandioxid–Grafit–Systeme mit 100 cm Grafite- und mit 30 cm Wasserreflektor	31
Tab. 3.7	Fitparameter aus den Kurvenfits der Variation der Zielwert-Multiplikationsfaktoren für niedrig angereicherte Urandioxid-Wasser-Systeme bei der Urankonzentration der jeweiligen kleinsten kritischen Uran-Kugelmasse	41
Tab. 3.8	Mit verschiedenen Rechenverfahren ermittelte Werte von k_{eff} für das mit CSAS1 bestimmte System der kleinsten kritischen Uran-Kugelmasse bei 5,0 Gew.-% Anreicherung ^{235}U	42
Tab. 3.9	Kleinste kritische Uran–Kugelmassen für 5,0 Gew.-% Anreicherung an ^{235}U aus verschiedenen internationalen Referenzquellen	44
Tab. 3.10	Zusammenstellung der aus den Trendanalysen resultierenden Trendparameter	49
Tab. 3.11	Mit TSUNAMI-1D berechnete integrale Sensitivitäten von k_{eff} auf die Wirkungsquerschnitte der in dem System der wassermoderierten kleinsten	

	kritischen Uran-Kugelmasse bei 5,0 Gew.-% Anreicherung ²³⁵ U enthaltenen Nuklide	52
Tab. 3.12	Mit TSUNAMI-1D berechnete integrale Sensitivitäten von k_{eff} auf die Wirkungsquerschnitte der in dem System der grafitmoderierten kleinsten kritischen Uran-Kugelmasse bei 20 Gew.-% Anreicherung ²³⁵ U enthaltenen Nuklide	53
Tab. 3.13	Vergleich der neu berechneten kleinsten kritischen Parameter für homogene Urandioxid-Wasser-Systeme mit den bisherigen Daten im GRS „Handbuch zur Kritikalität“	59
Tab. 4.1	Details zu den Definitionen der unsicheren Parameter für die Unsicherheitsanalyse des DWR-Brennelements.....	80
Tab. 4.2	Ergebnisse der Einzelrechnungen mit nominalen sowie konservativ angenommenen Werten der unsicheren Parameter.....	81
Tab. 4.3	Wahl der Werte der unsicheren Parameter für die Untersuchung des konservativen Falles	81
Tab. 4.4	Konfigurationen und Ergebnisse zu drei Analysen, in denen der Startwert des Pseudo-Zufallszahlen-Generators für die Monte Carlo basierte KENO– V.a-Transportrechnung variiert wurde.....	82
Tab. 4.5	Konfigurationen und Ergebnisse der durchgeführten Unsicherheitsanalysen.....	84
Tab. 4.6	Vergleich des Ergebnisses der Analyse mit konservativen Annahmen mit dem Ergebnis der Unsicherheitsanalyse 1 und darauf resultierender Gewinn an Konservativität.	85
Tab. 4.7	Zusammenfassung der im UACSA Phase II Benchmark zu variierenden Parameter.....	89
Tab. 4.8	Zusammenfassung der Nominalwerte und der für die konservative Annahme gewählten Werte der einzelnen zu variierenden Parameter	90

Tab. 4.9	Zusätzlich zu definierende Parameter und deren Abhängigkeiten von unsicheren Parametern.....	91
Tab. 4.10	Im Benchmark vorgegebene Zusammenhänge zwischen dem Bor-Anteil im borierten Stahl und dessen Dichte	92
Tab. 4.11	Wahl der Konfigurationsparameter, anhand derer die Berechnung der CSAS5-Sequenz gesteuert wird.	96
Tab. 4.12	Vergleich der Ergebnisse für den Nominalfall und die Betrachtung unter konservativen Annahmen für die Berechnungen des Lagergestellsystems mit den ENDF/B-VII Wirkungsquerschnitten in Form von Punktwirkungsdaten bzw. aufgeteilt in 238 Energiegruppen.	97
Tab. 4.13	Zusammenfassung der Ergebnisse des Benchmarks für die durchgeführten Analysen.....	98
Tab. 4.14	Durch den Einsatz der Unsicherheitsanalyse erzielte Reduktion der Konservativität.....	100
Tab. 4.15	Tabellarische Darstellung der Ergebnisse der Sensitivitätsanalyse.....	102
Tab. 5.1	Definition der Variationen der Modellierung der ²⁵² Cf Neutronenquelle in den Abschirmrechnungen zum Experiment Ueki et al.....	125
Tab. 5.2	Überblick über die Radien der im Experiment ALARM-CF-FE-SHIELD-001 verwendeten Bonner-Kugeln	146
Tab. 6.1	Vergleich der Betriebseigenschaften von Atucha-1 vor und nach der Umstellung auf SEU	181

10 Abkürzungsverzeichnis

ACR	Advanced CANDU Reactor Fortschrittlicher CANDU-Reaktor
ADS	Accelerator Driven System Unterkritische Anordnung, bei der der Neutronenfluss wird durch Neutronen, die durch Protonenbeschuss an einem Spallationstarget erzeugt werden, aufrechterhal- ten wird
AECL	Atomic Energy of Canada Ltd.
ATR	Advanced Test Reactor Forschungsreaktor am Idaho National Laboratory
AVR	Arbeitsgemeinschaft Versuchsreaktor
BE	Brennelement
BPR	Burnable Poison Rod Brennstab mit abbrennbarem Neutronengift
CANDU	Canadian Deuterium Uranium
CSAS	Criticality Safety Analysis Sequence Steuersequenz aus dem SCALE Codepaket zur Durch- führung von Berechnungen zur Kritikalität
DUPIC	Direct Use of Spent PWR Fuel in CANDU Direkte Verwendung von bestrahltem DWR-Brennstoff
DWR	Druckwasserreaktor
EGMCV	Expert Group on Minimum Critical Values

EBR-I/ II	Experimental Breeder Reactor-I/-II Versuchsreaktoren am Idaho National Laboratory, die der Erforschung der Brütertechnologie dienen.
ECOS	Erbia Content for Subcriticality Judgement Erbiumgehalt für Unterkritikalitätsbetrachtungen
FCCI	Fuel Cladding Chemical Interaction Korrosive Veränderungen des Hüllrohrmaterials aufgrund chemischer Wechselwirkung zwischen Hüllrohr und Pellet während des Abbrands
FCI	Fuel Cladding Interaction Oberbegriff für abbrandbedingte Wechselwirkungen zwischen Pellet und Hüllrohr.
FCMI	Fuel Cladding Mechanical Interaction Veränderungen des Hüllrohrmaterials aufgrund mechanischer Wechselwirkung zwischen Hüllrohr und Pellets während des Abbrands
FIMA	Fissions per Initial Metal Atom Maß für den Abbrand von Kernbrennstoffen, das vor allem bei schnellen Reaktorsystemen verwendet wird
HEU	Highly Enriched Uranium, Hochangereichertes Uran
HTR	Hochtemperaturreaktor
HWZ	Halbwertszeit
IAEA	International Atomic Energy Agency Internationale Atomenergie Behörde
IBA	Integral Burnable Absorber Integrierter abbrennbarer Absorber

IFBA	Integral Fuel Burnable Absorber Im Brennstoff integrierter abbrennbarer Absorber
KAERI	Korea Atomic Energy Research Institute
kkM	Kleinste kritische Masse
kkSD	Kleinste kritische Schichtdicke
kkV	Kleinstes kritisches Volumen
kkZD	Kleinstes kritischer Zylinderdurchmesser
LEU	Low Enriched Uranium, Gering angereichertes Uran
LWBR	Light Water Breeding Reactor Leichtwasserreaktor zum Brüten
LWR	Leichtwasserreaktor
MA	Minor Actinides Minore Aktinoide, auch höhere Aktioide; Elemente aus der Aktinoidreihe außer Uran und Plutonium
MOX	Mischoxid
NU	Natururan
NUE	Natural Uranium Equivalent Natururan-Äquivalent
OECD/NEA	Organisation for Economic Co-operation and Development / Nuclear Energy Agency
OREOX	Oxidation and Reduction of Oxide Fuel Oxidation und Reduktion oxydischer Brennstoffe

PHWR	Pressurized Heavy Water Reactor, Schwerwasser-moderierter Druckwasserreaktor
PUREX	Plutonium-Uranium Recovery by Extraction Nasschemisches Verfahren in der Wiederaufarbeitung, dass aktuell weltweit in allen großindustriellen Wiederaufarbeitungsanlagen eingesetzt wird.
RU	Recovered Uranium Uran aus der Wiederaufarbeitung
SEU	Slightly Enriched Uranium Schwach angereichertes Uran
SM	Schwermetall
sM	Sichere Masse
sSD	Sichere Schichtdicke
sV	Sicheres Volumen
sZD	Sicherer Zylinderdurchmesser
THTR	Thorium-Hochtemperaturreaktor
UACSA	(Expert Group on) Uncertainty Analysis for Criticality Safety Assessment
WABA	Wet Annular Burnable Absorber Ringförmiger Absorber mit Wasserfüllung
WPNCSS	Working Party on Nuclear Criticality Safety
WWER	Wasser-Wasser-Energie-Reaktor

11 Anhang

Exemplarische Eingabedatei für den "critical dimension search" mit CSAS1 aus SCALE6:

```
=csas1
Kugel, uo2, 5% u235, rwa, 30cm wr, urandichte 1.01438 g/ccm
v7-238
read composition
  uo2          1 0.105 300
                    92235 5
                    92238 95  end
  h2o          1 0.895 300  end
  h2o          2 1 300  end
end composition
read celldata
  multiregion spherical left_bdy=reflected right_bdy=vacuum end
    1          25.5
    2          55.5
  end zone
  more data isn=16 iim=5000 icm=5000 zmd(1)=1E-5 end more
end celldata
end
```


Verteiler

Druckexemplare:

Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU)

Referat RS III 3 1 x

Bundesamt für Strahlenschutz (BfS)

Fachgebiet SK 4 (Dr. K. Niedzwiedz) 4 x
Abteilung Z 1 x

Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH

Bibliothek (HOG) 1 x
Autoren (KIG) 1 x

Gesamt 8 x

PDF-Version:

Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU)

Referat RS III 3

Bundesamt für Strahlenschutz (BfS)

Herr Dr. Udo Volland AG-F
Dr. K. Niedzwiedz (SK 4), KNiedzwiedz@bfs.de

Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH

Geschäftsführer (WFP, STJ)
Bereichsleiter (SAN, STC, VER, MOE, PRG, UHL, ZIR)
Autoren (KIG, KIH, RFL, HAN, BEH, MOF)
Projektcontrolling (KUF)
TECDO (NIT)

**Gesellschaft für Anlagen-
und Reaktorsicherheit
(GRS) mbH**

Schwertnergasse 1
50667 Köln
Telefon +49 221 2068-0
Telefax +49 221 2068-888

Forschungszentrum
85748 Garching b. München
Telefon +49 89 32004-0
Telefax +49 89 32004-300

Kurfürstendamm 200
10719 Berlin
Telefon +49 30 88589-0
Telefax +49 30 88589-111

Theodor-Heuss-Straße 4
38122 Braunschweig
Telefon +49 531 8012-0
Telefax +49 531 8012-200

www.grs.de