

Literaturrecherche zu alternativen Daten und Methoden zur Validierung von Kritikalitätsrechensystemen



Gesellschaft für Anlagenund Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH

Literaturrecherche zualternativen Daten und Methoden zur Validierung von Kritikalitätsrechensystemen

Matthias Behler

Mai 2016

#### Anmerkung:

Das diesem Bericht zugrunde liegende FE-Vorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (BMUB) unter dem Kennzeichen 3614R03331 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.

GRS - 439 ISBN 978-3-946607-21-2

### Kurzfassung

Neben radiochemischen Analysen bestrahlter Kernbrennstoffe und kritischen Experimenten, welche sich als gängige Grundlange zur Validierung von Rechensystemen zur Inventarbestimmung (Abbrandcodes) bzw. Kritikalitätsanalyse (Kritikalitätscodes) etabliert haben, bieten auch Oszillationsexperimente oder die Betriebszustände von Leistungs- und Forschungsreaktoren Informationen, die zur Codevalidierung genutzt werden könnten. Anhand einer Literaturrecherche wird das Potential von Oszillationsexperimenten zur Validierung von Kritikalitätscodes abgeschätzt. Dabei zeigt sich, dass die Reaktivitätsmessungen für Aktinoide und Spaltprodukte im Rahmen des CERES-Programms an den Reaktoren DIMPLE (Winfrith, UK) und MINERVE (Cadarache, Frankreich) eine wertvolle Ergänzung zu den üblicherweise für die Validierung genutzten kritischen Experimenten ergeben können. Zwar bestehen erste Ansätze aber noch keine allgemein zufriedenstellende Lösung zur Einbindung der Reaktivitätsmessungen in eine quantitative Bias-Bestimmung für den mit gängigen Kritikalitätscodes berechneten Neutronenmultiplikationsfaktor typischer Anwendungsfälle mit bestrahlten Kernbrennstoffen außerhalb des Reaktorkerns.

### Abstract

Beside radiochemical analysis of irradiated fuel and critical experiments, which has become a well-established basis for the validation of depletion code and criticality codes respectively, also results of oscillation experiments or the operating conditions of power reactor and research reactors can provide useful information for the validation of the above mentioned codes. Based on a literature review the potential of the utilization of oscillation experiment measurements for the validation of criticality codes is estimated. It is found that the reactivity measurements for actinides and fission products within the CERES program on the reactors DIMPLE (Winfrith, UK) and MINERVE (Cadarache, France) can give a valuable addition to the commonly used critical experiments for criticality code validation. However, there are approaches but yet no generally satisfactory solution for integrating the reactivity measurements in a quantitative bias determination for the neutron multiplication factor of typical application cases including irradiated spent fuel outside reactor cores, calculated using common criticality codes.

# Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Oszillationsexperimente	4
2.1	Französische und britische Experimente 1991 – 1997 (CERES- Programm)	4
2.1.1	Experimentelle Messungen	5
2.1.2	Veröffentlichte Nachrechnungen	13
2.1.3	OECD/NEA-Benchmark zu Reaktivitätsmessungen des CERES- Programms	17
2.1.4	Aufbereitung der CERES-Messungen für IRPhE	20
2.2	Beurteilung	22
3	Zusammenfassung	25
	Literaturverzeichnis	27

### 1 Einleitung

Zur Validierung von Rechensystemen zur Kritikalitätsanalyse (Kritikalitätscodes) oder Inventarbestimmung (Abbrandcodes) für Anwendungsfälle wie Transportbehälter, Lagergestelle oder ähnliches mit frischen oder bestrahlten Kernbrennstoffen hat sich seit vielen Jahren vor allem die Nachrechnung von kritischen Experimenten bzw. radiochemischen Analysen bestrahlten Brennstoffs als gängige Methode etabliert. Der direkte Vergleich von errechneten Neutronenmultiplikationsfaktoren oder Nuklidinventaren mit den entsprechenden gemessenen Werten ist die dabei gängige und allgemein akzeptierte Vorgehensweise zur Bestimmung einer möglichen systematischen Abweichung, dem sog. Bias, der errechneten Resultate von ihren "wahren" zu erwartenden Werten. Dabei besteht die eigentliche Herausforderung dieses Ansatzes in der Übertragung der für die nachgerechneten Experimente gefundenen Abweichungen auf den letztlich zu untersuchenden Anwendungsfall, also z. B. auf den zu betrachtenden Transportbehälter. In diesem Punkt sind daher auch die wesentlichen Weiterentwicklungen dieser Validierungsmethode über die letzten Jahrzehnte zu beobachten, beginnend von einfachen Mittelwertbildungen hin zu ausführlichen statistischen Analysen und Ähnlichkeitsbetrachtungen zwischen Experimenten und Anwendungsfällen.

Ein wesentliches Merkmal dieser Validierungsmethode besteht darin, dass in der Rechnung und im Experiment dieselben physikalischen Größen betrachtet und diese miteinander verglichen werden, welche auch im Anwendungsfall relevant sind. In Kritikalitätsrechnungen und kritischen Experimenten ist dies vor allem der Neutronenmultiplikationsfaktor, welcher für Anwendungsfällen zur Beurteilung der Kritikalitätssicherheit herangezogen wird.<sup>1</sup> Dagegen wird im Fall der Abbrandcodes und radiochemischen Analysen in erster Line das Nuklidinventar mit den Konzentrationen relevanter Nuklide bestimmt, welche zumeist in weitergehende Analysen eines Anwendungsfalls (Kritikalitätssicherheit, Dosisleistung, etc.) als Eingangsgrößen eingehen. Damit ist die Ableitung eines Bias für Experimentnachrechnungen durch Vergleich der errechneten und experimentell bestimmten Größen direkt durch Differenz- oder Verhältnisbildung

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> Zwar wird der Neutronenmultiplikationsfaktor k<sub>eff</sub> bei kritischen Experimenten nicht direkt gemessen, sondern die kritische Konfiguration in der Regel mit Hilfe der sog. 1/*m*-Methode aus dem gemessenen Neutronenfluss bestimmt (vergl. z. B. International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments /OEC 14a/), für die so bestimmte kritische Konfiguration ist k<sub>eff</sub> dann aber mit guter Genauigkeit bekannt.

möglich. Besteht zudem eine hinreichende Ähnlichkeit zwischen verfügbaren Experimenten und zu betrachtenden Anwendungsfällen, so kann der Bias aus dem Experimentnachrechnungen direkt auf die Anwendungsfälle übertragen werden.

Mit den frei zugänglichen Daten kritischer Experimente und radiochemischer Analysen allein ist aber keine vollständige Validierung von Kritikalitäts- und Abbrandcodes für alle in der Praxis relevanten Anwendungsfälle möglich. So sind z. B. keine kritischen Experimente mit bestrahlen Kernbrennstoffen frei verfügbar. Zwar sind einzelne Experimente, die weitere Aktinoide (z. B. in Form von MOX-Brennstoffen) oder Spaltprodukte beinhalten, zugänglich, die nuklidweise Zusammensetzung entspricht aber nicht exakt derjenigen von bestrahltem Kernbrennstoff. Daher ist eine Übertragung des aus den Experimentnachrechnungen extrahierten Bias auf entsprechende Anwendungsfälle allenfalls nur bedingt bzw. gar nicht möglich. Eine besondere Schwierigkeit bezüglich der Validierung bilden in diesem Zusammenhang vor allem Anwendungsfälle mit gering bestrahlten Kernbrennstoffen um 10 GWd/tSM. Diese Aspekte sind bereits in früheren Arbeiten betrachtet worden /BEH 11/, /BEH 14/.

Neben kritischen Experimenten und radiochemischen Analysen existieren weitere Quellen für Messdaten, aus denen Informationen zur Validierung von Kritikalitäts- und Abbrandcodes extrahiert werden können. So bildet z. B. jeder Kernreaktor (Leistungsreaktor, wie auch Forschungsreaktor) eine kritische Anordnung, welche im stabilen stationären Betrieb einen Neutronenmultiplikationsfaktor k<sub>eff</sub> = 1,0 aufweist. Damit können auch Nachrechnungen solcher Reaktorkonfigurationen genutzt werden, um Aussagen zum möglichen Bias der hier betrachteten Codes zu treffen. Im Unterschied zu kritischen Experimenten besteht beim laufenden Reaktorbetrieb allerdings die Schwierigkeit, dass z. B. die Nuklidzusammensetzung des Brennstoffs nicht präzise bekannt sind, wie dies bei wohldefinierten kritischen Experimenten in der Regel der Fall ist. Ferner unterscheiden sich die Werte relevanter Parameter, wie Temperatur oder Moderatordichte, unter Reaktorbedingungen deutlich von den entsprechenden Werten unter typischen Transport- oder Lagerbedingungen, so dass sich die Aussagen zum Bias nicht direkt auf einen Anwendungsfall mit typischen Transport- oder Lagerbedingungen übertragen lassen.

Ein weitere mögliche Informationsquelle für die Bias-Bestimmung von Kritikalitätscodes sind Oszillationsexperimente, bei denen die Reaktivität kleiner Proben durch deren periodisches Einbringen in einen Reaktor sehr präzise gemessen wird (Kap. 2). Gegenüber kritischen Experimenten erlauben Oszillationsexperimente nicht nur eine integrale Betrachtung und Beurteilung der nachzurechnenden Anordnung, sondern auch die Betrachtung einzelner Bestandteile in Form der untersuchten Proben. Bestehen diese aus einer definierten Zusammensetzung weniger chemischer Elemente oder Nuklide, so kann durch Nachrechnung der gemessenen Reaktivität auch auf die Güte der für die Probennachrechnungen relevanten Wirkungsquerschnitte geschlossen werden. Allerdings ist auch in diesem Fall ein Übertragen des für eine Probe ermittelten Bias auf einen Anwendungsfall, wie eine typischen Transport- oder Lageranordnung von Kernbrennstoffen, nicht direkt möglich, da solche Anwendungsfälle die in den Proben untersuchten Nuklide zumeist in größeren Mengen und anderen Zusammensetzungen enthalten.

In den letzten Jahren werden zunehmend Aktivitäten unternommen, auch diese weiteren Daten zusätzlich zu den üblicherweise eingesetzten kritischen Experimenten und radiochemischen Proben im Validierungsprozess zu nutzen. Um die Eignung der bereits angesprochenen sowie weiterer Daten zur Validierung von Kritikalitäts- und Abbrandcodes näher zu untersuchen, wurden in Rahmen einer Literaturstudie frei zugängliche Veröffentlichungen zu diesem Themenfeld recherchiert und ausgewertet. In erster Linie wurde dabei der Frage nach der Verwendbarkeit der Daten im Rahmen einer Validierung bzw. noch offener Fragen, die einer Verwendung der jeweiligen Daten zur Validierung entgegenstehen, nachgegangen. Ebenso wurden bei der Auswertung durchgeführte Nachrechnungen und deren Vergleiche mit den gemessenen Resultaten sowie ggf. angewandte Methoden zur Codevalidierung zusammengestellt.

Da eine vollständige Auswertung der zu diesem Themenfeld verfügbaren Literatur in dem für diesen Arbeitspunkt letztlich verfügbaren begrenzten zeitlichen Rahmen nicht möglich war, werden in dem vorliegenden Bericht zunächst nur die Veröffentlichungen zu einigen Oszillationsexperimenten ausführlich diskutiert.

### 2 Oszillationsexperimente

Unter Oszillationsexperimenten werden Experimente verstanden, bei denen, zumeist an einem Forschungsreaktor, kleine Proben eines zu untersuchenden Materials periodisch in den Reaktor eingebracht und wieder herausgenommen werden, um die Reaktivität der zu untersuchenden Probe zu bestimmen. Die Reaktivitätsbestimmung erfolgt aus dem durch die Probe bewirkten Leistungsanstieg bzw. –abfall oder durch die Kompensation der Probenreaktivität mittels eines Kontrollstabes oder einer ähnlichen Kontrollvorrichtung des Reaktors. Auf diese Weise kann die Reaktivität eines einzelnen Materials untersucht und vor allem Rückschlüsse auf die Neutronenwirkungsquerschnitte gezogen werden. Diese Informationen lassen sich dann wiederum für Nachrechnungen der Experimente nutzen, um damit die Güte der in den Rechensystemen verwendeten Wirkungsquerschnitte zu beurteilen.

Die durchgeführte Literaturrecherche führte u.a. zu einer Reihe von Veröffentlichungen solcher Experimente, die im Folgenden näher diskutiert werden.

# 2.1 Französische und britische Experimente 1991 – 1997 (CERES-Programm)

Ende der 1980er und Anfang der 1990er Jahre wurden in Frankreich und dem Vereinigten Königreich (UK) Anstrengungen zur Berücksichtigung des Abbrands von bestrahlten Brennstoffen bei der Kritikalitätssicherheitsanalyse unternommen. Dazu gehörten auch jeweils experimentelle Programme, um Daten zur Validierung der notwendigen Rechensysteme zur Verfügung zu stellen. Aufgrund der Ähnlichkeit der von beiden Ländern geplanten Programme wurde 1991 die Kooperation verschiedener Institutionen beider Staaten beschlossen, woraus das experimentelle Programm CERES entstand, welches u. a. eine Reihe von Oszillationsexperimenten enthielt /GUL 02/. In der CERES-Kollaboration waren auf britischer Seite BNFL (British Nuclear Fuels Limited), AEA Technology (UK Atomic Energy Aency) und UK Health and Safety Executive (HSE) sowie auf französischer Seite CEA (Commissariat à l'Energie Atomique) und COGEMA (Compagnie Générale des Matières Nucléaires) beteiligt. In einer späteren Phase des CERES-Programms kamen auch die US-amerikanischen SNL (Sandia National Laboratories) hinzu. Die experimentellen Messungen sowie veröffentlichte Nachrechnungen der britischen als auch der französischen Experimente werden in den nachfolgenden Kapiteln 2.1.1 und 2.1.2 diskutiert. In einigen französischen Veröffentlichungen ist allerdings nicht immer eindeutig zu erkennen, ob die für die jeweiligen Nachrechnungen herangezogenen Messungen im Rahmen des CERES-Programms oder außerhalb von diesem entstanden sind. Da aber alle Messungen nach demselben Schema und in derselben Anlage durchgeführt wurden, sind sie hier unter der Annahme, dass es sich jeweils um das CERES-Programm handelt, in diesen Kapiteln zusammengefasst.

#### 2.1.1 Experimentelle Messungen

Die Messungen der französischen und britischen Programme im Rahmen des CERES-Programms zur Bereitstellung experimenteller Daten zur Validierung von Rechencodes für die Berücksichtigung des Brennstoffstabbrandes in Kritikalitätsanalysen (Abbrandkredit) wurden an den Forschungsreaktoren DIMPLE in Winfrith, UK, von der AEA Technology und MINERVE in Cadarache, Frankreich, von der CEA von 1991 bis 1997 in drei Phasen durchgeführt /GUL 96/, /SAN 95/, /SAN 97/. Vorgenommen wurden u. a. Reaktivitätsmessungen von Proben aus frischen und bestrahlten Brennstoffen sowie von Proben, die mit aus bestrahltem Brennstoff abgetrennten Spaltprodukten versetzt waren.

Die Proben mit frischem Brennstoff wiesen <sup>235</sup>U-Anreicherungen von 0,2%, 0,7%, 3,0%, 5,1% auf und dienten hauptsächlich zu Kalibrationszwecken. Diese Kalibrationsproben waren zum einen notwendig, da die Reaktivitätsmessungen nicht in absoluten Einheiten (pcm) erfolgten und somit eine Normierung der Messungen anhand von Kalibrationsproben für den Vergleich mit Nachrechnungen erforderlich war /GRU 11/. Zum anderen waren die zu untersuchenden Spaltprodukte in Proben aus UO<sub>2</sub> mit natürlichem Uran, welche aber ansonsten identisch zu den entsprechenden Kalibrationsproben waren, eingebracht. Die damit gemessenen Reaktivitäten beinhalteten somit die Summe der Reaktivitäten der jeweiligen Spaltprodukte sowie die des Trägermaterials (inklusive Einkapselung, Halterung, Probenstab, etc.). Um daraus die Reaktivität der Spaltprodukte selbst zu bestimmen, war jeweils die Reaktivität des Trägermaterials zu subtrahieren, dessen Wert aus den Messungen der Kaibrationsproben folgte. Neben Proben mit frischem Brennstoff wurden auch Proben mit einem Zusatz von Bor in unterschiedlichen Konzentrationen (50 ppm, 150 ppm, 333 ppm und 419 ppm /SAN 14/) zu Kalibrationszwecken vermessen.

Neben Proben aus UO<sub>2</sub> wurden auch Proben aus MOX-Brennstoff (UO<sub>2</sub> + PuO<sub>2</sub>) untersucht. Dabei kamen Proben mit verschiedenen Pu-Vektoren<sup>2</sup> (<sup>240</sup>Pu/Pu: 3 %, 13 % und 26 %; Pu/U: 0,4 % und 2 %) sowie mit verschiedene Pu/U Verhältnissen mit abgereichertem Uran (Pu/U :1,2 %, 5,7 % und 12,1%) zur Anwendung. Zusätzlich wurden Proben mit variablen <sup>235</sup>U/U- und <sup>240</sup>Pu/Pu-Verhältnissen untersucht (<sup>235</sup>U/U: 0,3 % bis 2,1 %; <sup>240</sup>Pu/Pu: 13,4 % und 24,5 %; Pu/U 0,6 % bis 1,2 %). Letztere Probenzusammensetzungen waren so gewählt, dass sie die Uran- und Plutonium-Zusammensetzungen von bestrahltem Brennstoff mit verschiedenen Abbränden näherungsweise wiedergeben (hier ca. 15 GWd/tSM, 22 GWd/tSM, 37 GWd/tSM und 54 GWd/tSM), um so die Reaktivität von abgebranntem Brennstoff (ohne Berücksichtigung der Spaltprodukte) zu simulieren.

Die in den Messungen untersuchten Spaltprodukte waren <sup>95</sup>Mo, <sup>99</sup>Tc, <sup>103</sup>Rh, <sup>109</sup>Ag, <sup>133</sup>Cs, <sup>143</sup>Nd, <sup>145</sup>Nd, <sup>147</sup>Sm, <sup>149</sup>Sm, <sup>152</sup>Sm, <sup>153</sup>Eu und <sup>155</sup>Gd. Diese Spaltprodukte wurden zumeist aus bestrahltem Brennstoff abgetrennt und, wie bereits erwähnt, jeweils in eine Probe aus UO<sub>2</sub> mit natürlichem Uran eingebracht. Zusätzlich wurden analoge Proben mit natürlichem Samarium und Neodym versehen, um u. a. eine Konsistenzprüfung mit den Messungen der separierten Isotope dieser Elemente vornehmen zu können. Zusätzlich zu den Proben mit UO<sub>2</sub> als Trägermaterial wurden auch identische Proben aus Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> genutzt, welche mit den Elementen Ag, Ru, Rh, Mo und Cs in natürlicher Isotopenzusammensetzung versetzt wurden. Für die Isotope <sup>103</sup>Rh, <sup>109</sup>Ag und <sup>133</sup>Cs wurden mehrere Proben mit jeweils demselben Spaltprodukt, aber in unterschiedlichen Massenanteilen erstellt und vermessen, um z. B. die Selbstabschirmung durch Resonanzabsorption studieren zu können.

Ein weiterer Satz Proben wurde aus Abschnitten von zentralen Stäben abgebrannter Brennelemente aus Druck- und Siedewasserreaktoren, u.a. aus den französischen Reaktoren Bugey 3, Fessenheim 2 und Gravelines 3, sowie aus den USamerikanischen Reaktoren Calvert Cliffs und Cooper mit Abbränden zwischen 20 GWd/tSM und 62 GWd/tSM und Anreicherungen bis 4,5 Gew.-% erstellt /GUL 96/, /SAN 95/. An diesen Proben wurden Reaktivitätsmessungen direkt mit abgebranntem Brennstoff vorgenommen. Zudem wurden weitere Brennstababschnitte aus nächster

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup> Hier ist zu vermuten, dass natürliches Uran für den MOX-Brennstoff genutzt wurde. Genauere Angaben hierzu sind in /SAN 97/ nicht enthalten.

Nähe zu denen der Reaktivitätsproben radiochemischen Analysen unterzogen. Zum einen wurden diese Analysen benötigt, um die Nuklidinventare der Reaktivitätsproben für die Nachrechnungen zu erhalten, zum anderen konnten diese Analysen zur Validierung von Inventarberechnungssystemen genutzt werden.

Die eigentliche Bestimmung der Probenreaktivitäten am DIMPLE-Reaktor (Abb. 2.1) erfolgte durch periodisches vollständiges Einbringen und vollständiges Herausnehmen der einzelnen Proben aus dem Reaktorkern unter Messung des sich dadurch ändernden Neutronenflusses /GUL 96/. Aus dem zeitlichen Anstieg bzw. Abfall des Neutronenflusses wurde dann mit Hilfe der sog. Inhour-Gleichung die Probenreaktivität ermittelt /WIE 72/. Dazu wurde die durch die Inhour-Gleichung gegebene Beziehung zwischen Reaktivität und Reaktorperiode, d. h. der Zeit, in der der Reaktor seine Leistung bzw. den Neutronenfluss um den Faktor e ändert, genutzt, um aus den gemessenen Leistungsänderungen die Probenreaktivität zu bestimmen. Sind die dazu notwendigen Reaktorparameter hinreichend genau bekannt, lassen sich auf diese Weise sehr genaue Reaktivitätsmessungen durchführen, bzw. sehr geringe Probenreaktivitäten ermitteln.



Abb. 2.1 Schematische Darstellung des DIMPLE-Reaktors /DEA 07/

Die Messungen am DIMPLE-Reaktor erfolgten mit drei verschiedenen Treibercores, die sich im Wesentlichen durch den Aufbau der inneren Zone um den Probenstab unterschieden. Auf diese Weise wurden sowohl ein Spektrum ähnlich dem eines Druckwasserreaktorkerns (Abb. 2.2, links) als auch dem gegenüber weiter thermalisierte Spektren durch Einbringen von H<sub>2</sub>O- bzw. D<sub>2</sub>O-Tanks um den Probenstab erzeugt (Abb. 2.2, rechts), in welchen dann die Reaktivitäten der verschiedenen Proben vermessen wurden. Die durch die H<sub>2</sub>O- bzw. D<sub>2</sub>O-Tanks sehr thermischen Neutronenspektren entsprachen hier etwa der Situation im Auflöser bei der Wiederaufarbeitung /SAN 95/. Die Messungen der Proben mit den separierten Spaltprodukten erfolgten in dem zuerst genannten Neutronenspektrum ähnlich dem eines Druckwasserreaktor-kerns /GUL 96/.



Abb. 2.2 Brennstabanordnung der Experimentzone des DIMPLE-Reaktors /DEA 07/

Auch am MINERVE-Reaktor erfolgte die Messung durch periodisches vollständiges Einbringen und vollständiges Herausnehmen der Proben (Abb. 2.3 bis Abb. 2.5). Hier wurde allerdings die zugefügte Reaktivität der Probe durch einen drehbaren Kontrollstab kompensiert, dessen Reaktivität in Abhängigkeit seiner Ausrichtung (d. h. des eingestellten Winkels) bekannt war. Die Ausrichtung dieses Stabes wurde mit Hilfe eines Neutronendetektors automatisch reguliert, um beim Einbringen der Probe den kritischen Zustand des Reaktors ( $k_{eff} = 1,0$ ) möglichst konstant beizubehalten. Bei vollständig eingefahrener zu messender Probe kann so aus der Ausrichtung des Kontrollstabes die Probenreaktivität ermittelt werden /GRU 11/.



Abb. 2.3 Der MINERVE-Reaktor /SAN 14/



Abb. 2.4 Anordnung für die Oszillationsprobe im MINERVE-Reaktor /SAN 14/



Abb. 2.5 Querschnitt durch den MINERVE-Reaktor /GRU 11/

Für die Messungen am MINERVE-Reaktor wurden im Rahmen des CERES-Programms zwei verschiedene Neutronenspektren genutzt, in welche die Proben eingebracht wurden. Die Spektren wurden mit Hilfe verschiedener Brennstabkonfigurationen in der inneren Experimentzone realisiert (Abb. 2.6), wodurch zum einen die Situation in einem typischen Lagergestell für Lagerung und Transport und zum anderen auch die Situation im Auflöser bei der Wiederaufarbeitung nachgebildet werden sollten /SAN 97/. Im ersteren, härteren der beiden Spektren wurden vor allem die Spaltproduktproben vermessen. Dagegen wurden die Uran- und Plutonium-Proben in dem weicheren der beiden Spektrum, welches den Auflöser der Wiederaufarbeitung simuliert, analysiert. In späteren, weiteren Messungen wurde auch ein MOX-Neutronenspektrum sowie ein SWR-ähnliches Neutronenspektrum genutzt, welche mit Hilfe einer aus MOX-Brennstäben bestehenden Brennstabanordnung um die Probe bzw. mit Hilfe eines die Probe umgebenden Aluminiumblocks erzeugt wurden /GRU 11/. Die Vermessung der Proben in unterschiedlichen Spektren diente vor allem dazu, die Reaktivitäten der Proben in Abhängigkeit verschiedener Neutronenenergien zu studieren und damit Informationen über die Energieabhängigkeiten der jeweiligen Wirkungsquerschnitte zu erhalten bzw. diese in Probennachrechnungen für die verwendeten Wirkungsquerschnittsbibliotheken überprüfen zu können.



Abb. 2.6 Anordnung der Brennstäbe in der Experimentzone im MINERVE-Reaktor

Im Fall des CERES-Programms lagen die typischen Reaktivitäten der Proben für die Messungen am DIMPLE-Reaktor zwischen 20 pcm und 50 pcm, welche dort mit experimentellen Unsicherheiten um 0,2 pcm vermessen wurden /GUL 02/. Bei den Messungen mit Proben aus abgebranntem Brennstoff war zudem ein geringer Anteil Neutronen durch Spontanspaltung und ( $\alpha$ ,n)-Reaktionen zu berücksichtigen, was mittels einer

Korrektur der gemessenen Resultate in der Größe von 0,4 pcm erfolgte. Mit Hilfe der zur Kalibrierung herangezogenen Urandioxid-Proben konnten zudem systematische Unsicherheiten abgeschätzt werden, woraus sich Gesamtunsicherheiten der einzelnen Reaktivitätsmessungen in der Größe von etwa 0,4 pcm /GUL 02/ ergaben. Insgesamt ergeben sich so relative experimentelle Unsicherheiten für die einzelnen Reaktivitätsmessungen um 1 % – 2 %.

Für die Messungen am MINERVE-Reaktor wurden die Spaltproduktproben in ihren Konzentrationen so gewählt, dass Reaktivitäten von etwa 5 pcm bis 7 pcm erzielt wurden, welche mit (relativen) experimentellen Unsicherheiten in den gemessenen Reaktivitäten von etwa 0,4 % bis 0,7 % bzw. 0,02 pcm vermessen werden konnten /GRU 11, SAN 97, SAN 14/. Zusätzlich ergaben die zur Kalibrierung genutzten Proben eine zusätzliche relative systematische Unsicherheit in der Größe von etwa 1,0 % bis 1,5 % /GRU 11/. Somit wurden vergleichbare relative messtechnische Unsicherheiten an den beiden Reaktoren DIMPLE und MINERVE erzielt. Zudem werden in /SAN 14/ Unsicherheiten auf die Reaktivitäten der Spaltproduktproben diskutiert, die sich aufgrund von Unsicherheiten in der Masse der den Proben zugefügten Spaltproduktmengen, aufgrund von Verunreinigungen und von Herstellungstoleranzen der Proben ergaben (Kap. 2.1.4). Diese Unsicherheiten sind zusätzlich zu den rein messtechnischen Unsicherheiten sich auf die Reaktivitäten der Spaltprodukte insgesamt Unsicherheiten zwischen etwa 2 % bis etwa 3,5 % ergaben.

#### 2.1.2 Veröffentlichte Nachrechnungen

Die Messungen des CERES-Programms sind innerhalb der beteiligten Institutionen vielfach zur Code- und Wirkungsquerschnittsvalidierung nachgerechnet worden. Zum Teil wurden Nachrechnungen sukzessive mit der Weiterentwicklung der Rechensysteme und Wirkungsquerschnittsbibliotheken wiederholt und vertieft.

Erste Nachrechnungen werden z. B. in /GUL 96/ und /GUL 02/ hauptsächlich für Messungen am DIMPLE-Reaktor, sowie in /SAN 95/ und /SAN 97/ für Messungen am MI-NERVE-Reaktor diskutiert. Diese Veröffentlichungen geben allerdings wenige Details zu den durchgeführten Rechnungen wieder. Für die Nachrechnungen wurden die zu den jeweiligen Zeitpunkten aktuellen Versionen des britischen Rechensystems WIMS bzw. der französischen Systeme CESAR, CRIBLE und CRISTAL zusammen mit den damals aktuellen Wirkungsquerschnittsbibliotheken genutzt. Die Vergleiche der gemessenen und errechneten Resultate zeigten sowohl für Nuklidinventarbestimmungen der radiochemischen Analysen wie auch für die Reaktivitätsmessungen zumeist gute Übereinstimmungen, mit Abweichungen von weniger als 10 %. Für einzelne Nuklide der radiochemischen Analysen, z. B. <sup>234</sup>U, <sup>238</sup>Pu, <sup>242</sup>Pu, einige Samariumisotope und <sup>155</sup>Eu, wurden aber auch teils deutlich größere Abweichungen festgestellt, welche in der Regel auf die verwendeten Wirkungsquerschnitte zurückgeführt wurden. In Fall der Reaktivitätsmessungen wiesen vor allem die Nachrechnungen für die Nuklide <sup>95</sup>Mo, <sup>99</sup>Tc, <sup>103</sup>Rh, <sup>133</sup>Cs, <sup>143</sup>Nd, <sup>153</sup>Eu und in einzelnen Fällen Samariumisotope größere Abweichungen auf, für welche ebenfalls die verwendeten Wirkungsquerschnitte bzw. Schwächen der Codes, die Resonanzabsorptionen einzelner Nuklide im vollen Umfang zu berücksichtigen, angeführt wurden.

In /SAN 95/ und /SAN 97/ werden zusätzlich relative Unsicherheiten für den Vergleich der gemessenen (C) und der errechneten Reaktivitätswerte (E) der Spaltproduktproben am MINERVE-Reaktor zwischen 2 % und 10 % bzw. zwischen 4 % bis 8 % angegeben. Die Ableitung dieser Unsicherheiten wird allerdings nicht genauer diskutiert, die Angaben sind auch nicht in allen Fällen konsistent. Es ist aber anzunehmen, dass es sich dabei um Abschätzungen der Gesamtunsicherheiten in den für den Vergleich angegebenen Verhältnisse (C-E)/E handelt. Inwiefern die Ableitung der Unsicherheiten bereits die Qualität der Ableitung in /SAN 14/ aufweist (Kap. 2.1.1), ist fraglich. Es ist zu vermuten, dass die für /SAN 95/ und /SAN 97/ durchgeführten Abschätzungen der Unsicherheiten, der Unsicherheiten deutlich einfacher gehalten sind als die für /SAN 14/ durchgeführten Abschätzungen. Aufgrund der angegebenen reinen messtechnischen Unsicherheiten, der Unsicherheiten der Spaltproduktmassen, der Verunreinigungen und der Herstellungstoleranzen von insgesamt 2 % - 3,5 % (Kap. 2.1.1) sind folglich die Unsicherheiten der Nachrechnungen, z. B. aufgrund von Modellvereinfachungen, die zumeist dominierenden Anteile in den Gesamtunsicherheiten der Verhältnisse (C-E)/E.

In /GUL 02/ werden ferner Nachrechnungen der Reaktivitätsmessungen der MOX-Proben mit verschiedenen PuO<sub>2</sub>- und UO<sub>2</sub>-Anteilen und verschiedenen Plutoniumvektoren sowie der Proben mit bestrahlten Brennstoffen diskutiert. Die errechneten Reaktivitäten decken sich auch in diesen Fällen gut mit den jeweiligen gemessenen Werten. In einigen Fällen sind sehr guter Übereinstimmungen zu beobachten, deutlich besser als die Nachrechnungen der Reaktivitätsmessungen für die einzelnen Nuklide zunächst vermuten lassen würden. Augenscheinlich kompensieren sich die über- bzw. unterschätzten errechneten Reaktivitäten der einzelnen Nuklide in den Proben mit gemischtem PuO<sub>2</sub>- und UO<sub>2</sub>-Brennstoff bzw. mit bestrahltem Brennstoff teilweise, woraus die sehr guten Übereinstimmungen der errechneten und gemessenen Werte für diese Proben resultieren. Insbesondere gilt dies für die Nachrechnungen der Proben mit bestrahlten Brennstoffen, da in diese Nachrechnungen neben den Wirkungsquerschnitten auch die zuvor errechneten Nuklidinventare als unsichere Größen eingehen. Somit ist zu schlussfolgern, dass auch für die errechneten Inventare deutliche Kompensationseffekte vorliegen, um die teils sehr guten Übereinstimmungen in den integralen Reaktivitätswerten erklären zu können.

Eine aktualisierte Fassung der hauptsächlich in /GUL 96/ bzw. /GUL 02/ diskutierten Nachrechnungen der Reaktivitätsmessungen sind in /DEA 07/ enthalten. Dazu sind sowohl eine neuere Codeversion (WIMS10 anstelle von WIMS7) sowie neuere Wirkungsquerschnittsbibliotheken (JEFF3.1 und eine Evaluierung der OECD/NEA Working Party on Evaluation Collaboration WPEC 23, /OBL 09/) verwendet worden. Die Berechnung der Reaktivitäten der verschiedenen Proben erfolgte hier mittels exakter Störungstheorie<sup>3</sup>. Allerdings konnten nur relative Reaktivitäten berechnet werden. Deren absolute Größe wurde mittels Skalierung anhand der Kalibrationsproben ermittelt und der daraus abgeleitete Kalibrationsfaktor auf die errechneten Reaktivitäten der Spaltproduktproben angewendet (vergl. Kap. 2.1.1). Die so ermittelten Reaktivitäten der Spaltproduktproben zeigen in den meisten Fällen eine gute bzw. sehr gute Übereinstimmung mit den gemessenen Werten innerhalb von 5 %. Lediglich die errechneten Reaktivitäten der Nuklide <sup>103</sup>Rh, <sup>133</sup>Cs und <sup>153</sup>Eu zeigen wie bei den früheren Rechnungen auch hier größere Abweichungen um etwa 10 %. Im Vergleich zu den früheren Rechnungen sind hier für die meisten anderen Nuklide ähnliche oder verbesserte Übereinstimmungen zu beobachten. Lediglich die Nuklide <sup>99</sup>Tc und <sup>145</sup>Nd zeigen teils deutlich verschlechterte Übereinstimmungen, ebenfalls nun in der Größenordnung um 10 %. Die Unsicherheit der Nachrechnungen selbst sind in /DEA 07/ pauschal mit 4 % angegeben.

Aktuellere Nachrechnungen der Messungen am MINERVE-Reaktor sind in /GRU 11/ enthalten. Diese Nachrechnungen wurden mit APOLLO2, ebenfalls unter Verwendung von exakter Störungstheorie, durchgeführt. Dabei wurden detaillierte Parameterstudien

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup> In den früheren Arbeiten /GUL 96/, /GUL 02/, /SAN 95/ und /SAN 97/wurden keine konkreten Angaben zu den verwendeten Berechnungsmethoden gemacht.

zur Abschätzung der Unsicherheiten der Nachrechnungen, wie z. B. aufgrund von Effekten aus Modellgeometrie, Vernachlässigung der realen axialen Länge der Proben aufgrund der Verwendung des 2d-Code APOLLO, Konvergenz der Rechnungen, Massenbestimmung der verwendeten Spaltproduktmengen u. ä., vorgenommen. Zur Bestimmung von Einflüssen der verwendeten Modellgeometrie wurde ebenfalls der französische Monte Carlo-Code TRIPOLI4 herangezogen. Aus diesen Untersuchungen ergaben sich insgesamt Unsicherheiten für die Nachrechnungen von bis zu 3 % für die meisten untersuchten Spaltproduktproben und Spektren. In Einzelfällen wurden auch Unsicherheiten bis zu etwa 7 % abgeschätzt. Die experimentellen Unsicherheiten für die Spaltprodukte aufgrund Kalibrierung, der Subtraktion der Reaktivität des Trägermaterials und dessen Unsicherheit wurden für die meisten Spaltprodukte und Spektren auch bis etwa 4 % in Einzelfällen sogar bis etwa 10% abgeschätzt. Die Vergleiche zwischen den errechneten und gemessenen Reaktivitäten zeigen zumeist gute bzw. sehr gute Übereinstimmungen innerhalb der Unsicherheiten auf. Nur für die Nuklide <sup>147</sup>Sm, <sup>153</sup>Eu und <sup>103</sup>Rh, sowie für die Probe mit natürlichem Ru sind für fast alle untersuchten Spektren deutliche Abweichungen im Vergleich zu den abgeschätzten Unsicherheiten zu beobachten. Für das vergleichsweise harte Neutronenspektrum der MOX-Brennstabanordnung zeigen auch das Nuklide <sup>145</sup>Nd und die Probe mit natürlichem Ag deutliche Abweichungen zwischen den gemessenen und errechneten Reaktivitäten.

In /GRU 11/ wurde ferner für die Nuklide <sup>143</sup>Nd und <sup>149</sup>Sm ein Ansatz zur Anpassung von Wirkungsquerschnittsdaten aufgrund der durchgeführten Reaktivitätsmessungen demonstriert. Dabei wurde die Breite der dominierenden Resonanz des jeweiligen Nuklids so angepasst, dass die Reaktivitätsmessungen möglichst gut reproduziert wurden. In den beiden gezeigten Fällen sind die so angepassten Resonanzbreiten innerhalb ihrer Unsicherheiten mit vorherigen Wirkungsquerschnittsevaluierungen kompatible, womit die Anpassung zu keinem Widerspruch zu den evaluierten Wirkungsquerschnitten führt.

Eine weitere sehr detaillierte Analyse der Reaktivitätsmessungen des CERES-Programms am MINERVE-Reaktor ist in /SAN 14/ enthalten. Diese Analyse wurde zur Evaluation der Messdaten in Vorbereitung ihrer Veröffentlichung im International Reactor Physics Experiment Evaluation (IRPhE) Project /OEC 14/ vorgenommen (Kap. 2.1.4). In diesem Rahmen wurde eine Nachrechnung der Reaktivitätsmessungen anhand eines zweidimensionalen Modells mit dem Code APOLLO2.8 mittels exakter Störungstheorie und mit verschiedenen Wirkungsquerschnittsbibliotheken (JEF2.2, JEFF-3.1.1 und ENDF/B-VII.0) durchgeführt. Der Vergleich der Nachrechnungen mit

16

den experimentellen Resultaten zeigt für die meisten Nuklide und Wirkungsquerschnittsbibliotheken gute oder sogar sehr gute Übereinstimmungen im Rahmen der Unsicherheiten. Letztere wurden für das Verhältnis von errechneten zu gemessenen Reaktivitäten mit Werten zwischen etwa 2.0 % und 3,5 % abgeschätzt. Insbesondere für die Bibliothek ENDF/B-VII.0 zeigen einzelne Nuklide (vor allem <sup>145</sup>Nd und <sup>99</sup>Tc mit Abweichungen um 15 %) größere Abweichungen. Eine Verbesserung in der Übereinstimmung ist in JEFF-3.1.1 insbesondere gegenüber JEF2.2, aber auch gegenüber ENDF/B-VII.0 zu erkennen. Zwar ist auch bei Verwendung von JEFF-3.1.1 <sup>99</sup>Tc das Nuklid mit der größten Abweichung zwischen errechneter und gemessener Reaktivität, allerdings beträgt dieser Unterschied nur 8,8 % gegenüber dem Unterschied von 15,8 % bei Verwendung von ENDF/B-VII.0.

Zusammenfassend zeigen die diskutierten Nachrechnungen, dass die durchgeführten Reaktivitätsmessungen für die meisten Proben zufriedenstellend durch die Rechnungen reproduziert werden konnten. In vielen Fällen wurden gute oder sehr gute Übereinstimmungen mit Abweichungen von nur wenigen Prozent erzielt. Mit der Weiterentwicklung der Codes und Wirkungsquerschnittsbibliotheken wurden auch zunehmend bessere Übereinstimmungen erzielt. Dennoch zeigen alle Nachrechnungen für einige wenige Nuklide größere Abweichungen der errechneten zu den gemessenen Werten.

# 2.1.3 OECD/NEA-Benchmark zu Reaktivitätsmessungen des CERES-Programms

Im Rahmen der OECD/NEA Expert Group on Burn-up Credit Criticality Safety (BUC) im September 2010 wurde ein Rechenbenchmark ("BUC-Benchmark Phase VIII") basierend auf den Reaktivitätsmessungen des CERES-Programm vorgeschlagen /LEC 10/. Das Ziel des Benchmarks bestand insbesondere in der Sammlung weiterer Erfahrungen in der Nachrechnung von Reaktivitätsmessungen mittels Oszillationsexperimenten. Durch den Vergleich von Nachrechnungen mit verschiedenen Codes sollen u. a. Erkenntnisse zum Einfluss der in den Codes verwendeten Nährungen wie auch zum Einfluss von Vereinfachungen im Rechenmodell auf die errechneten Reaktivitätswerte gewonnen werden. Eine veröffentlichte abschließende Auswertung des Benchmarks liegt bislang noch nicht vor<sup>4</sup>. Die eingereichten Benchmark-Beiträge verschiedener Teilnehmer wurden aber bereits auf verschiedenen Treffen der Expert Group diskutiert und für Teile des Benchmarks liegt ein Draft des Benchmark-Berichts vor /LEC 13/.

Der Benchmark gliedert sich in vier Teile. Im ersten Teil wird ein unendlich ausgedehntes Gitter aus identischen, unendlich langen Brennstäben mit 3 Gew.-% angereichertem UO<sub>2</sub> betrachtet, welchen jeweils ein einzelnes Spaltprodukt- oder Aktinoidennuklid aus folgender Liste hinzugefügt wird: <sup>95</sup>Mo, <sup>99</sup>Tc, <sup>101</sup>Ru, <sup>103</sup>Rh, <sup>109</sup>Ag, <sup>133</sup>Cs, <sup>143</sup>Nd, <sup>145</sup>Nd, <sup>147</sup>Sm, <sup>149</sup>Sm, <sup>150</sup>Sm, <sup>151</sup>Sm, <sup>152</sup>Sm, <sup>153</sup>Eu, <sup>155</sup>Gd, <sup>235</sup>U, <sup>236</sup>U, <sup>237</sup>Np, <sup>238</sup>Pu, <sup>239</sup>Pu, <sup>240</sup>Pu, <sup>241</sup>Pu, <sup>242</sup>Pu, <sup>241</sup>Am, <sup>243</sup>Am. Die Menge des jeweils zugefügten Nuklids entspricht dabei der Menge dieses Nuklids in einem typischen Druckwasserreaktorbrennstab mit einem Abbrand von 40 GWd/tSM. Im Fall von <sup>235</sup>U wird allerdings kein zusätzliches <sup>235</sup>U hinzugefügt, sondern die vorhandene Menge an die zu erwartende Menge bei einem Abbrand von 40 GWd/tSM angepasst. Zusätzlich zur oben abgegebenen Liste wird auch der Zusatz von <sup>10</sup>B (Kalibrationsprobe im CERES-Programm, vergl. Kap. 2.1.1) und ein Fall, in welchem alle aufgelisteten Spaltprodukte und Aktinoide dem Brennstab hinzugefügt werden (Situation im abgebrannten Brennstab), betrachtet. Neben den Reaktivitätsbeiträgen der einzelnen zugefügten Nukliden sind ferner der Neutronenmultiplikationsfaktor k<sub>eff</sub> und verschiedene Reaktionsraten als Resultate zu bestimmen.

In den Teilen 2 bis 4 wird das unendlich ausgedehnte Brennstab-Gitter schrittweise an die tatsächlichen Gegebenheiten der Oszillationsexperimente am DIMPLE- bzw. MI-NERVE-Reaktor angepasst. Im Teil 2 wird anstelle eines identischen Brennstabes ein 7 x 7-Brennstabgitter mit einem zentralem Probenstab untersucht, wobei der Probenstab nun aus UO<sub>2</sub> mit natürlichem Uran besteht. Auch die Menge der jeweils zugesetzten Nuklide wurde nicht mehr an der Menge bei 40 GWd/tSM Abbrand, sondern an den im CERES-Programm verwendeten Mengen angepasst. Leckage-Effekte wurden aber weiterhin durch reflektierende Randbedingungen radial und axial vernachlässigt. Im dritten Teil wird die tatsächliche axiale Länge der Brennstäbe und der zu untersuchenden Probe hingenommen. D. h. der Probenstab wird auf 10 cm Länge gekürzt und die Probenhalterung durch Aluminium-Zylinder oberhalb und unterhalb der Probe simuliert. Ebenso werden die übrigen Brennstäbe mit endlicher Länge simuliert, um auf diese Weise die Effekte der endlichen Probengeometrie zu untersuchen. Leckage in radialer

<sup>&</sup>lt;sup>4</sup> Stand Mai 2016.

Richtung wird weiterhin durch reflektierende Randbedingungen vernachlässigt. Im letzten Teil des Benchmarks wird dann auch die radiale Ausdehnung des Rechenmodells realistisch modelliert, indem das 7 x 7-Brennstab-Gitter durch ein Gitter mit 49 x 49 Brennstäben ohne reflektierende Randbedingungen ersetzt wird. So ergibt letztlich der Teil 4 des Benchmarks ein an den realen Reaktor angenähertes Rechenmodell wieder, welches alle relevanten realen Effekte berücksichtigt.

Anhand der in den Expert Group-Treffen diskutierten Benchmark-Beträgen und dem vorliegenden Draft des Berichts können bereits vorab einige hier relevante Schussfolgerungen gezogen werden. Zunächst zeigt sich, dass für die ersten beiden Teile des Benchmarks deutlich mehr Beiträge eingereicht wurden als für die Teile 3 und 4. Dies liegt im Wesentlichen an den zunehmenden Anforderungen an die eingesetzten Codes, für welche zunehmend höhere Konvergenzkriterien bzw. Anzahlen an zu simulierenden Neutronenhistorien veranschlagt werden müssen, um die geforderten Größen mit hinreichender Genauigkeit zu berechnen. Dies gilt vor allem für die Berechnung geringer Reaktivitätsbeiträge nach der sog. Eigene-Wert-Differenz-Methode, bei welcher die Reaktivität des zugesetzten Nuklids aus der Differenz der Neutronenmultiplikationsfaktoren k<sub>eff</sub> des Referenzfalls (ohne zugesetztem Nuklid) und des Falls mit zugesetztem Nuklid ermittelt wird. In einzelnen Fällen stießen aber auch die eingesetzten Codes schlicht an ihre Grenzen, wie z. B. zweidimensionale deterministische Codes, die in einzelnen Beiträgen für die Teile 1 und 2 genutzt wurden.

Bemerkenswert ist zudem, dass bereits bei den zu errechnenden Neutronenmultiplikationsfaktoren der verschiedenen eingereichten Beiträge für die ersten beiden Aufgabenstellungen des Benchmarks teils deutliche Unterschiede zu beobachten sind. Diese Unterschiede treten dabei für praktisch alle zu betrachtenden Fälle, d. h. für alle zugegebenen Spaltprodukte auf. Augenscheinlich ist dies auf die verwendeten Wirkungsquerschnittsbibliotheken zurückzuführen. Bibliotheken mit kontinuierlichen Wirkungsquerschnitten ergeben im Rahmen von etwa 100 pcm bis 200 pcm konsistente Multiplikationsfaktoren. Ebenso gilt dies im Wesentlichen auch für Bibliotheken mit mehr als 200 Energiegruppen sowie für Bibliotheken mit deutlich weniger als 200 Energiegruppen jeweils untereinander. Vergleich man aber die verschiedenen Bibliothekstypen miteinander, so zeigt sich, dass Berechnungen mit kontinuierlichen Wirkungsquerschnitten zumeist einen um etwa 600 pcm höheren Neutronenmultiplikationsfaktor ergeben als Berechnungen mit Bibliotheken mit mehr als 200 Energiegruppen und einen um etwa 1200 pcm höheren Neutronenmultiplikationsfaktor als Berechnungen mit Bibliotheken mit weniger als 200 Energiegruppen. Wesentliche systematische Auswirkungen aufgrund der verwendeten Codes (Monte Carlo oder deterministisch) sind dagegen nicht zu erkennen. Mögliche Erklärungen für diese deutlichen Unterschiede aufgrund der gewählten Bibliothekstypen könnten in der Kondensierung der Bibliotheken in Energiegruppen bzw. in der dabei vorzunehmenden Resonanzbehandlung zu finden sein. Zwar findet man auch bei anderen Vergleichsrechnungen zwischen kontinuierlichen Wirkungsquerschnittsbibliotheken und Bibliotheken in Energiegruppen systematische Unterschiede in den errechneten k<sub>eff</sub>-Werten (z. B. /MAR 11/), diese Unterschiede sind aber typischerweise weit weniger ausgeprägt als dies bei diesem Benchmark zu beobachten sind. Daher steht letztlich eine abschließende Erklärung für die gefundenen Resultate noch aus.

Für die weiteren im Benchmark angeforderten Resultate sind dagegen so deutliche und systematische Diskrepanzen nur vereinzelt zu beobachten. Sowohl bei den Reaktionsraten als auch den Reaktivitäten für die verschiedenen zu betrachtenden Nuklide zeigt sich zumeist ein deutlich homogeneres Bild beim Vergleich der verschiedenen eingereichten Beiträge. Ausnahmen bilden hier lediglich die Rechnungen mit den Wirkungsquerschnittsbibliotheken mit wenigen Energiegruppen, welche vermehrt größere systematische Abweichungen erkennen lassen, und die Resultate der Reaktivitätsbestimmungen mittels Störungstheorie erster Ordnung, welche ebenfalls für einzelne Nuklide deutlich von den Resultaten, die mit exakter Störungstheorie ermittelt wurden, abweichen. Erstere Abweichungen deuten ebenfalls auf Unzulänglichkeiten aufgrund der groben Energiegruppenstruktur bzw. aufgrund der Wirkungsquerschnittskondensierung hindeutet, wohingegen letztere zeigen, dass Störungstheorie erster Ordnung im Allgemeinen nicht ausreicht, um eine hinreichend genaue Reaktivitätsbestimmung zu erhalten. Ansonsten sind nur vereinzelt größere Abweichungen einzelner Beiträge bzw. mehrerer Beiträge für einzelne Resultate bestimmter Nuklide zu beobachten, was auf Unterschiede in einzelnen Wirkungsquerschnitten der verschiedenen Bibliotheken hindeutet.

#### 2.1.4 Aufbereitung der CERES-Messungen für IRPhE

Es ist vorgesehen, eine Reihe der Messungen des CERES-Programm im International Reactor Physics Experiment Evaluation (IRPhE) Project /OEC 14/ zu veröffentlichen /SAN 14/. Die dazu nötigen Evaluation der Messdaten wurde bereits erstellt und ist in /SAN 14/ zusammengefasst. Eine derartige Evaluation umfasst eine Aufbereitung aller notwendigen Eingabedaten, Vorschläge für Benchmark-Modelle, um die Nachrechnungen durchzuführen, und eine umfassende Betrachtung der Unsicherheiten sowie eventuell notwendiger Korrekturen für die Messdaten zur Anpassungen an die vorgeschlagenen Rechenmodelle. Damit enthält bereits /SAN 14/ alle wesentlichen Informationen zur Nachrechnung der dort zusammengefassten Reaktivitätsproben<sup>5</sup>.

Zusammengestellt wurden für das IRPhE die bereits oben diskutierten Proben mit zugesetzten Spaltprodukten (Kap. 2.1.1) und die für die Kalibration benötigten UO<sub>2</sub>-Proben mit verschiedenen <sup>235</sup>U- Anreicherungen sowie mit verschiedenen Bor-Gehalte. Letztere Proben mit Bor-Zusatz wurden ebenfalls zur Kalibration genutzt, um z. B. die Reaktivitätsmessungen der Spaltproduktproben auf die Bor-Reaktivität beziehen bzw. und die Reaktivität der Spaltproduktproben in einem Bor-Äquivalenz angeben zu können. In den übrigen oben diskutierten Veröffentlichungen (Kap. 2.1.2) wurde auf diese Proben aber nicht weiter eingegangen.

Die tatsächliche Experimentgeometrie wurde in ein vereinfachtes zweidimensionales Benchmark-Modell übersetzt, welches mit entsprechenden Korrekturen aufgrund der Vernachlässigung der endlichen axialen Länge der Probe sowie der Strukturen unterhalb und oberhalb der Probe versehen wurde. In einer umfangreichen Analyse der Unsicherheiten wurden neben den bereits angesprochen Vereinfachungen des Rechenmodells die eigentlichen Messunsicherheiten, die Reproduzierbarkeit der Messungen, die Unsicherheiten in den Massen der zugesetzten Spaltproduktmengen und deren Verunreinigungen, die Herstellungstoleranzen der Proben und die Kalibration anhand der Kalibrationsproben untersucht. Abschließend wurden Probennachrechnungen mit dem französischem Code APOLLO2.8 und einer auf JEFF-3.1.1 basierenden Wirkungsquerschnittsbibliothek durchgeführt (Kap. 2.1.2).

Die Veröffentlichung dieser Daten ist dann in einer der nächsten Ausgabe des IRPhE-Handbook<sup>6</sup> zu erwarten. Dann stehen die vollständigen, detaillierten Daten zur Nachrechnung und Verwendung zur Validierung zur Verfügung.

<sup>&</sup>lt;sup>5</sup> Tatsächlich fehlen für eine detaillierte Nachrechnung einzelne Angaben, wie z. B. genaue Materialzusammensetzungen. Die in /SAN 14/ enthalten Informationen sollten aber für eine Nachrechnung mit Verwendung typischer Materialzusammensetzungen u. ä. ausreichend sein.

<sup>&</sup>lt;sup>6</sup> Stand Mai 2016

#### 2.2 Beurteilung

Aufgrund der wenigen frei verfügbaren kritischen Experimente mit Spaltprodukten bilden die Daten des CERES-Programms durch die enthaltenen Analysen der Spaltproduktproben grundsätzlich eine wertvolle Ergänzung zu den kritischen Experimenten für die Validierung von Kritikalitätscodes. Um diese Daten entsprechend nutzen zu können, ist die Frage zu beantworten, wie die Messdaten und Nachrechnungen in das gängige Validierungsschema und insbesondere in die Bias-Bestimmung eingebunden werden können. Gelingt dies, so ist dadurch eine wesentliche Erweiterung der verfügbaren Datenbasis möglich.

Schon die in Kap. 2.1.2 diskutierten veröffentlichen Nachrechnungen der Reaktivitätsmessungen zeigen den hohen Wert der Daten für die Validierung von Aktinoiden- und Spaltproduktwirkungsquerschnitten. Insbesondere das Einbringen der zu untersuchenden Nuklide in UO<sub>2</sub>-Proben aus natürlichem Uran ermöglicht es, eventuelle Wechselwirkungen der ggf. vorhandenen Resonanzen der eingebrachten Nuklide mit der Resonanzabsorption des <sup>238</sup>U zu untersuchen. Somit werden zudem die untersuchten Nuklide innerhalb der Messungen und ihrer Nachrechnungen in einem ähnlichen Umfeld betrachtet, in welchem sie dann auch in typischen Anwendungsfällen von Kritikalitäts- und Strahlungstransportanalysen auftreten. Das Verhalten der für die Nachrechnung eingesetzten Codes auf solche ggf. auftretenden Wechselwirkungen der Resonanzen kann so ähnlich wie in den typischen Anwendungsfällen von Kritikalitäts- und Strahlungstransportanalysen analysiert werden.

Insbesondere die Reaktivitätsmessungen am MINERVE-Reaktor sind mit Messwerten von nur etwa 7 pcm sehr klein und entsprechend anspruchsvoll nachzurechnen. Allerdings gelingt dies mit Hilfe exakter Störungstheorie mit hinreichender Genauigkeit, d. h. mit einer Unsicherheit von nur einigen Prozent. Aber auch mit der sog. Eigenwert-Differenz-Methode ist die Nachrechnung der Messwerte möglich; dies erfordert allerdings einen sehr hohen Rechenressourceneinsatz (vergl. Kap. 2.1.3). Damit stehen verschiedene Möglichkeiten zur Nachrechnung der Messwerte mit gängigen Neutronentransportcodes zur Verfügung. Entsprechend ist eine Untersuchung bzw. die Validierung der verwendeten Wirkungsquerschnitte für die vermessenen Nuklide möglich.

Im Hinblick auf die Verwendung der Oszillationsexperimente zur direkten Validierung von Kritikalitätscodes durch Nachrechnung des Neutronenmultiplikationsfaktors k<sub>eff</sub> der einzelnen Anordnungen anstelle der jeweiligen Probenreaktivität ergeben sich aller-

22

dings einige Einschränkungen. Zunächst stellen sowohl der DIMPLE- als auch der MI-NERVE-Reaktor kritische Anordnungen dar, die grundsätzlich zur Validierung genutzt werden können. Mit den typischen Unsicherheiten in keff aufgrund der zumeist vereinfachten Modellierung solcher kritischen Anordnungen in der Größenordnung von 100 pcm sind die Einflüsse der jeweils eingebrachten Aktinoide bzw. Spaltprodukte mit den Probenreaktivitäten um 7 pcm allerdings zu klein, um einen merklichen Einfluss in den Nachrechnungen aufzuweisen (vergl. z. B. /BEH 14/). Entsprechend repräsentieren solche direkten keff-Nachrechnungen de facto nur die Einflüsse der jeweiligen Treiberbrennstäbe der Reaktorkerne. Zudem beinhalten die Reaktivitätsproben nur Bruchteile der Mengen an Spaltprodukten, welche in typischen Anwendungsfällen mit bestrahlten Brennstoffen, z. B. mit Brennelementen in Lagergestellen oder in Transportund Lagerbehältern, auftreten. Somit spiegeln die Spaltproduktproben nicht den Einfluss der Spaltprodukte in den angesprochenen typischen Anwendungsfällen wieder, weshalb die Reaktoranordnungen des CERES-Programms nicht direkt mit diesen Anwendungsfällen vergleichbar sind. Daher kann allein durch die Interpretation der Reaktoranordnungen als kritische Experimente und deren entsprechende Einbindung in das gängige Validierungsschema der Effekt der Spaltprodukte nicht hinreichend in der Validierung für typische Anwendungsfälle berücksichtigt werden. Im Wesentlichen liefern die direkten Nachrechnungen der Neutronenmultiplikationsfaktoren für diese Anordnungen nur verwertbare Informationen für die in den Treiberbrennstäben verwendeten UO<sub>2</sub>- bzw. MOX-Brennstoffe.

Um dennoch Informationen der Oszillationsmessungen für die Validierung von Kritikalitätscodes zu nutzen, kann auf die Tatsache zurückgegriffen werden, dass die in den Kritikalitätscodes verwendeten Wirkungsquerschnitte eine Quelle für den möglichen Bias in den errechneten Resultaten sind. Entsprechend besteht hierbei die grundlegende Idee darin, die Abweichungen der Reaktivitätsnachrechnungen von ihren gemessenen Werten durch geeignete Skalierung auf den jeweils zu untersuchenden Anwendungsfall zu übertragen und damit den Anteil am Bias aus der Berücksichtigung der einzelnen Aktinoiden bzw. Spaltprodukte abzuschätzen. Die Skalierung soll dabei die Unterschiede in der Nuklidmengen und -zusammensetzung, Neutronenspektrum, u. ä. zwischen Oszillationsexperiment und Anwendungsfall berücksichtigen. Neben der Abschätzung des gesamten Bias könnte auf diese Weise auch der Einfluss einzelner Nuklide auf den Bias näher untersucht werden.

Ein Beispiel eines solchen Ansatzes gibt z. B. die TSUNAMI/TSURFER-Methodik des SCALE-Softwarepakets /SCA 11/ wieder. Dabei wird die ermittelte Abweichung zwi-

schen gemessenem und errechnetem Neutronenmultiplikationsfaktor und dessen Sensitivität auf die Wirkungsquerschnitte in eine Korrektur der Wirkungsquerschnitte übersetzt, mit welcher anschließend der Neutronenmultiplikationsfaktor des Anwendungsfalls korrigiert wird. Die oben angesprochene Skalierung erfolgt damit über den Umweg der Wirkungsquerschnittsanpassung. Ansonsten entspricht dieser Ansatz der oben skizzierten Idee. Zusätzlich zu den Neutronenmultiplikationsfaktor und ihren Sensitivitäten können auch die hier betrachteten Reaktivitätsmessungen in die TSUNA-MI/TSURFER-Methodik eingebracht werden, indem die zugehörigen Sensitivitäten zuvor mittels des Moduls TSAR ermittelt werden. Damit ist die TSUNAMI/TSURFER-Methodik ein Weg die Oszillationsmessungen in die Validierung von Kritikalitätscodes einzubinden und die Beiträge der Unsicherheiten der verschiedenen Wirkungsquerschnitte zum Bias zu studieren. Allerdings ist diese Methodik in ihrer derzeitigen Ausprägung aufgrund der eingehenden Annahme, dass der Bias in den errechneten Resultaten ausschließlich oder zumindest hauptsächlich durch die Unsicherheiten in den Wirkungsquerschnitten erzeugt wird, für eine vollständige Bias-Bestimmung nicht unumstritten /BEH 14/. Entsprechend der genannten Annahme werden mögliche weitere Effekte, die zum Bias beitragen können, diesem Ansatz nicht betrachtet. Daher besteht ein Kritikpunkt an dieser Methodik in der Frage, ob die Vernachlässigung weiterer Effekte nicht zu einer Unvollständigen Bias-Bestimmung bzw. einer möglichen Unterschätzung des Bias führt. Sie basiert zudem in ihrer aktuellen Implementierung auf Störungstheorie erster Ordnung, welche in den Nachrechnungen zum OECD/NEA-Benchmark für die Reaktivitäten einzelner Nuklide zu größeren Abweichungen gegenüber Methoden mit exakter Störungstheorie geführt hat, so dass auch für die Bestimmung der Sensitivitäten mit entsprechenden Abweichungen für einzelnen Nuklide zu rechnen ist.

Dementsprechend ist diese Methodik im Rahmen ihrer Annahmen eine Möglichkeit, die Oszillationsmessungen in eine Validierung bzw. Bias-Bestimmung für einen Kritikalitätscode einzubinden. Insbesondere eignet sie sich, um die Einflüsse der Wirkungsquerschnitte auf den Bias zu studieren. Gleichzeitig ist sie aber aufgrund ihrer Annahmen noch nicht als abschließende Lösung der Frage, wie die Oszillationsmessungen in eine Validierung bzw. Bias-Bestimmung für einen Kritikalitätscode einzubinden sind, zu bewerten. Entsprechend ist eine Weiterentwicklung dieser Methode, die auf die Annahmen verzichten oder zumindest nur in abgeschwächter Form beinhaltet, anzustreben.

### 3 Zusammenfassung

Zusammenfassend ist festzuhalten, dass Oszillationsmessungen eine sehr gute Datenquelle zur Wirkungsquerschnittsvalidierung bilden und auch zu diesem Zweck verwendet werden. Vor allem durch die Vermessung der Reaktivitäten verschiedener Spaltprodukte bilden die Oszillationsmessungen des CERES-Programms, welche nun frei zugänglich sind, eine wertvolle Ergänzung zu den integralen Messungen typischer kritischer Experimente. Zum einen sind nur wenige kritische Experimente mit Spaltprodukten frei verfügbar, so dass die Daten des CERES-Programms die Möglichkeit bieten, insbesondere die frei verfügbare Datenbasis bezüglich der Spaltprodukte deutlich zu vergrößern. Zum anderen erlauben sie eine separate Betrachtung der einzelnen vermessenen Nuklide und eröffnen damit grundsätzlich die Möglichkeit die individuellen Beiträge dieser Nuklide zum Bias näher zu untersuchen.

Eine Möglichkeit der konkreten Einbindung der Oszillationsmessungen in die Validierung eines Kritikalitätscodes bietet z. B. die TSUNAMI/TSURFER-Methodik des SCA-LE-Softwarepakets. Insbesondere bietet die TSUNAMI/TSURFER-Methodik die Möglichkeit den Einfluss der Unsicherheiten der Wirkungsquerschnitte auf den Bias zu studieren, so dass die Erweiterung der Datenbasis durch die Oszillationsmessungen des CERES-Programms vor allem für diesen Aspekt sehr hilfreich ist. Aufgrund der in diese Methodik eingehenden Annahmen, ist sie allerdings als Methode zur vollständigen Bias-Bestimmung nicht unumstritten und kann entsprechend noch nicht als abschließende Lösung der Frage bewertet werden, wie die Reaktivitätsmessungen in eine Bias-Bestimmung für den Neutronenmultiplikationsfaktoren typischer Anwendungsfälle eingebunden werden können. Dennoch gibt sie bereits einen möglichen Weg vor. Eine Weiterentwicklung, die auf die Annahmen verzichten oder zumindest nur in abgeschwächter Form beinhaltet, ist dennoch anzustreben.

### Literaturverzeichnis

- /BEH 11/ M. Behler, V. Hannstein, R. Kilger, M. Kirsch, E.F. Moser, M. Wagner, "Erstellung und Validierung von Beladekurven für einen generischen Transport- und Lagerbehälter für abgebrannte LWR-Brennelemente mit Abbrandkredit unter Berücksichtigung von Spaltprodukten", Abschlussbericht zu den Arbeitspaketen 3 und 4 des Vorhabens 3608R03310, GRS-A-3608, GRS, Garching, Juli 2011.
- /BEH 14/ M. Behler, V. Hannstein, R. Kilger, F.-E. Moser, A. Pfeiffer, M. Stuke, "Quantifizierung der Rechengenauigkeit von Codesystemen zum Abbrandkredit durch Experimentnachrechnungen", GRS-336, ISBN 978-3-944161-16-7, GRS, 2014.
- /DEA 07/ C.J. Dean, P.J. Smith, R.J. Perry, "Validation of important fission product evaluations through CERES integral benchmarks", in Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, 22.
   27. April, 2007, Nizza, Frankreich, Editoren O. Bersillon, F. Gunsing, E. Bauge, R. Jacqmin, S. Leray, EDP Sciences, 2008.
- /GRU 11/ A. Gruel, P. Leconte, D. Bernard, P. Archier, G. Noguere, "Interpretation of Fission Product Oscillations in the MINERVE Reactor, from Thermal to Epithermal Spectra", Nuclear Science and Engineering, 169, S. 229 – 244, 2011.
- /GUL 96/ N.T. Gulliford, D. Hanlon, "Measurement of Reactivity Loss with Burnup in PWR, BWR and MOX Fuel in the CERES Collaborative Programme", International Conference on the Physics of Reactors, PHYSOR 96, Mito, Ibaraki, Japan, 16. – 20. September, 1996.
- /GUL 02/ N.T. Gulliford, "BUC validation in the UK: Degin of experiments and lessons lernt", Proceedings of an Technical Committee meeting "Practices and developments in spent fuel burnup credit applications", Madrid, Spanien, 22.-26. April, 2002, veröffentlicht innerhalb IAEA-TECDOC-1378, Oktober 2002.

- /LEC 10/ P. Leconte, A. Santamarina, "Calculational Benchmark for the Analysis of Small-Sample Reactivity Experiments", OECD/NEA Expert Group on Burnup Credit Criticality Safety (BUC), September 2010, aktualisiert Februar 2012.
   <u>https://www.oecd-nea.org/science/wpncs/buc/specifications/phase-</u> <u>VIII/BenchmarkSmallSampleReactivityExperiments\_update%20feb2012.pd</u> f
- /LEC 13/ P. Leconte, A. Santamarina, "OECD/NEA Burn-up Credit Benchmark Phase VIII – Numerical benchmark for the analysis of small-sample reactivity experiments", Draft report, OECD/NEA Expert Group on Burn-up Credit Criticality Safety (BUC), Oktober 2013. <u>https://www.oecd-nea.org/science/wpncs/buc/workingarea/</u>
- /LEC 13a/ P. Leconte, C. Vaglio-Gaudard, R. Eschbach, M. Antony, J. Di-Salvo, A.Pepino, "Reactivity Loss Validation of High-Burnup PWR Fuels with Pile-Oscillation Experiments in MINERVE", Nuclear Science and Engineering, 175, S. 308 – 317, 2013.
- /MAR 11/ W. J. Marshall, B. T. Rearden, "Criticality Safety Validation of Scale 6.1", ORNL/TM-2011/450, Oak Ridge National Laboratory (ORNL), November 2011.
- /OBL 09/ P. Oblozinsky et al., "Evaluated Data Library for the Bulk of the Fission Products", NEA/WPEC 23, NEA No. 6283, ISBN 978-92-64-99092-0, OECD 2009, International Reactor Dosimetry File 2002 (IRDF-2002), IAEA Technical Reports Series No. 452, 2006.
- /OEC 14/ OECD/NEA, International Reactor Physics Benchmark Experiments (IR-PhE) Project, https://www.oecd-nea.org/science/wprs/irphe/IRPhE-restrictions.html;
  OECD/NEA, International Handbook of Evaluated Reactor Physics Benchmark Experiments, NEA No. 7173, März 2014.

- /OEC 14a/ OECD/NEA, International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments, NEA/NSC/DOC(95)03, NEA no. 7231, NEA Nuclear Science Committee, September 2014.
- /SAN 14/ A. Santamarina, P. Leconte, D. Bernard, G. Truchet, "Reactivity Worth Measurement of Major Fission Products in MINERVE LWR Lattice Experiment", Nuclear Science and Engineering, 178, S. 562 – 581, 2014.
- /SAN 95/ A. Santamarina, P. Albarede, P. Andrieu, J.P. Chauvin, F. Garcia, B. Gastaldi, J. Gulliford, B. Roque, "Experimental Validation of Burnup Credit Calculations by Reactivity Worth Measurements in the MINERVE Reactor", Proccedings of the fifth International Conference on Nuclear Criticality Safety (ICNC 95), Albuquerque, New Mexico, USA, 17.-21. September 1995.
- /SAN 97/ A. Santamarina, N. Thiollay, C. Heulin, J.P.Chauvin, "The French Experimental Programme on Burnup Credit", Proceedings of "Criticality Safety Challenges in the Next Decade", Topical Meeting of the Nuclear Criticality Safety Division, American Nuclear Society, Chelan, WA, 7.-11. September 1997.
- /SCA 11/ "Scale: A Comprehensive Modeling and Simulation Suite for Nuclear Safety Analysis and Design", ORNL/TM-2005/39, Version 6.1, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee, June 2011. Available from Radiation Safety Information Computational Center at Oak Ridge National Laboratory as CCC-785.
- /WIE 72/ A.M. Weinberg, E.P. Wigner, "The Physical Theory of Neutron Chain Reactors", The University of Chicago Press, ISBN 0-226-88517-8, veröffentlicht 1958, 3. Auflage 1972.

# Abbildungsverzeichnis

Abb. 2.1	Schematische Darstellung des DIMPLE-Reaktors /DEA 07/	8
Abb. 2.2	Brennstabanordnung der Experimentzone des DIMPLE-Reaktors /DEA 07/	9
Abb. 2.3	Der MINERVE-Reaktor /SAN 14/	10
Abb. 2.4	Anordnung für die Oszillationsprobe im MINERVE-Reaktor /SAN 14/	10
Abb. 2.5	Querschnitt durch den MINERVE-Reaktor /GRU 11/	11
Abb. 2.6	Anordnung der Brennstäbe in der Experimentzone im MINERVE- Reaktor	12

Gesellschaft für Anlagenund Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH

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

Forschungszentrum Boltzmannstraße 14 **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