

**Untersuchungen zu  
Validierungsmöglichkeiten  
von Rechencodes für  
Kritikalitäts- und  
Abbrandrechnungen  
von Siedewasserreaktor-  
Brennstoff**

## Untersuchungen zu Validierungsmöglichkeiten von Rechencodes für Kritikalitäts- und Abbrandrechnungen von Siedewasserreaktor- Brennstoff

Matthais Behler  
Volker Hannstein  
Robert Kilger  
Fabian Sommer  
Maik Stuke

Juni 2017

### **Anmerkung:**

Das diesem Bericht zugrunde liegende F&E-Vorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (BMUB) unter dem Kennzeichen 3614R03341 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.

## **Deskriptoren**

Abbrandberechnung, Abbrandkredit, Kritikalitätssicherheit, Siedewasserreaktor, Unsicherheitsanalyse

## Kurzfassung

Die Anwendung des Abbrandkredit-Verfahrens auf Siedewasserreaktoren ist aufgrund der erhöhten Komplexität und Heterogenität schwieriger als bei Druckwasserreaktoren: Stark variable Anreicherungen, komplexe Brennelementgeometrien, teillange Brennstäbe und starke axiale Variationen der Moderatorichte erschweren den Nachweis abdeckender Bestrahlungsbedingungen. Im Rahmen des vorliegenden Berichts wurde untersucht, ob, inwieweit und unter welchen Randbedingungen eine Abbrandberücksichtigung in Kritikalitätssicherheitsanalysen für Anordnungen mit bestrahlten Brennstoffen aus Siedewasserreaktoren auf Basis der frei verfügbaren experimentellen Daten und unter zusätzlicher Anwendung stochastischer Methoden durchführbar ist. Zu diesem Zweck wurden die vorhandenen Methoden zu stochastischen Analyse angepasst und weiterentwickelt, um auf die spezifischen Bedingungen des Siedewassereaktors gezielt eingehen zu können. Ziel war dabei einen ersten Überblick zu erhalten, ob ein praktikables Verfahren zur Anwendung von Abbrandkredit für SWR-Brennelemente abgeleitet werden kann.

Da die verschiedenen relevanten Größen, wie z. B. Moderatorichte und axiales Leistungsprofil, stark miteinander korreliert sind, wurde diese Analyse mit dem GRS-Programm zur Unsicherheitsanalyse SUnCISTT unter Verwendung eines im Rahmen des Vorhabens entwickelten vereinfachten Modells zur konsistenten Berücksichtigung der Bestrahlungsbedingungen durchgeführt. Dies ermöglicht im Unterschied zu herkömmlichen Variationsrechnungen, bei denen jeder Parameter separat untersucht wird, eine gleichzeitige Analyse aller involvierten Effekte.

## **Abstract**

The Application of the method of Burn-up Credit on Boiling Water Reactor fuel is much more complex than in the case of Pressurized Water Reactors due to the increased heterogeneity and complexity of the fuel assemblies. Strongly varying enrichments, complex fuel assembly geometries, partial length fuel rods, and strong axial variations of the moderator density make the verification of conservative irradiation conditions difficult. In this Report, it was investigated whether it is possible to take into account the burn-up in criticality analyses for systems with irradiated Boiling Water Reactor fuel on the basis of freely available experimental data and by additionally applying stochastic methods. In order to achieve this goal, existing methods for stochastic analysis were adapted and further developed in order to being applicable to the specific conditions needed in Boiling Water Reactor analysis. The aim was to gain first insight whether a workable scheme for using burn-up credit in Boliing Water Reactor applications can be derived.

Due to the fact that the different relevant quantities, like e.g. moderator density and the axial power profile, are strongly correlated, the GRS-tool SUnCISTT for Monte-Carlo uncertainty quantification was used in the analysis. This tool was coupled to a simplified, consistent model for the irradiation conditions. In contrast to conventional methods, this approach allows to simultaneously analyze all involved effects.

## Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung und Zielsetzung .....</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Darstellung des aktuellen Standes von Wissenschaft und Technik ....</b>	<b>5</b>
2.1	Berücksichtigung des Gadolinium-bedingten Reaktivitätsmaximums .....	5
2.2	Weiterführende Arbeiten .....	9
<b>3</b>	<b>Übersicht über radiochemische Analysedaten aus bestrahlten Siedewasserreaktor-Brennstoffen.....</b>	<b>15</b>
3.1	Analyse der Datenbasis .....	20
3.1.1	Nuklidspektrum der in SFCOMPO-2.0 enthaltenen SWR-Proben .....	20
3.1.2	Informationen zur Bestrahlungsgeschichte der in SFCOMPO-2.0 enthaltenen SWR-Proben .....	30
3.1.2.1	Cooper-1 .....	30
3.1.2.2	Fukushima Daini-1 .....	31
3.1.2.3	Fukushima Daini-2.....	32
3.1.2.4	Gundremmingen A.....	32
3.1.2.5	Dodewaard .....	33
3.1.2.6	Forsmark-3 .....	33
3.1.2.7	Fukushima Daiichi-3 .....	34
3.1.2.8	Garigliano .....	34
3.1.2.9	JPDR .....	34
3.1.2.10	Monticello .....	35
3.1.2.11	Quad Cities-1.....	35
3.1.2.12	Tsuruga-1 .....	36
3.1.3	Weitere, derzeit nicht in SFCOMPO-2.0 enthaltene Proben.....	36
3.1.3.1	Limerick.....	36
3.2	Bewertung und Schlussfolgerungen .....	36
<b>4</b>	<b>Inventarcode HELIOS .....</b>	<b>39</b>

4.1	Geometrieeingabedatei für AURORA .....	40
4.2	Material- und Parameter-Eingabedatei für AURORA .....	41
4.3	Auslesedatei für ZENITH .....	42
<b>5</b>	<b>Erweiterungen in SUnCISTT .....</b>	<b>43</b>
5.1	Ausgangspunkt für die SUnCISTT-Erweiterung .....	43
5.2	Einbinden des Abbrandcodes HELIOS in SUnCISTT .....	45
5.3	Anwendung SUnCISTT-depletion .....	46
<b>6</b>	<b>Stochastische Analysen von experimentellen Nachbestrahlungsproben .....</b>	<b>51</b>
6.1	Zielsetzung .....	51
6.2	Erstellung eines Python Skriptes zur Visualisierung von Abbrandrechnungen mit HELIOS.....	51
6.3	Nachrechnung der Fukushima-Daini-2 Abbrand Proben.....	53
6.3.1	Experimentbeschreibung .....	53
6.3.2	Modellerstellung für HELIOS .....	55
6.3.2.1	Geometrisches Modell .....	55
6.3.2.2	Materialien .....	57
6.3.2.3	Abbrandhistorie .....	58
6.3.3	Abbrandrechnungen und Resultate .....	60
6.4	Nachrechnung der Forsmark 3 Abbrand Probe.....	63
6.4.1	Experimentbeschreibung .....	63
6.4.2	Erstellung des geometrischen Modells für HELIOS.....	65
6.4.3	Verwendete Materialien .....	69
6.4.4	Vereinfachte Abbrand-Historie .....	70
6.4.5	Detaillierte Abbrand Historie .....	70
6.4.6	Abbrandrechnung und Resultate .....	71
6.5	Stochastische Unsicherheitsanalyse auf Systemparameter .....	75
6.5.1	Unsicherheitsanalysen der Fukushima-Daini-2 Proben.....	77

6.5.1.1	Unsicherheitsanalyse mit Unsicherheitsdaten aus dem Forsmark-Bericht .....	78
6.5.1.2	Unsicherheitsanalyse mit OECD/NEA Unsicherheiten .....	81
6.5.2	Unsicherheitsanalysen der Forsmark-Probe .....	83
6.5.2.1	Unsicherheitsanalyse mit Forsmark-Unsicherheiten .....	83
6.5.2.2	Unsicherheitsanalyse mit OECD/NEA Unsicherheiten .....	87
6.5.2.3	Unsicherheitsanalyse mit Forsmark-Unsicherheiten und Vergleich nur mit der Dimitrovgrad-Messung .....	88
6.6	Zusammenfassung und Schlussfolgerungen .....	89
<b>7</b>	<b>Kritikalitätsanalysen für ein generisches SWR-BE in generische Lageranordnungen .....</b>	<b>93</b>
7.1	Zielsetzung .....	93
7.2	Erstellung eines konsistenten SWR Bestrahlungsmodells .....	94
7.3	Modellentwicklung des untersuchten generischen Brennelements .....	97
7.3.1	Belegungsplan des untersuchten Brennelements .....	97
7.3.2	Implementierung in der HELIOS Geometrieingabedatei für Aurora .....	99
7.3.3	Erstellung des dreidimensionalen Modells in SCALE Geometrie durch ein Python-Skript .....	101
7.3.4	Abbranddaten .....	102
7.3.5	Vergleichsrechnungen mit TRITON und Parameterstudie auf die Länge der Abbrandschritte.....	103
7.4	Studien unter Verwendung des Bestrahlungsmodells .....	103
7.4.1	Zielsetzung .....	104
7.4.2	Geometrisches Modell des generischen Nasslagergestells .....	104
7.4.3	Geometrisches Modell des generischen Transportbehälters .....	105
7.4.4	Rechenkette aus Abbrand- und Kritikalitätsrechnung.....	106
7.4.5	Verlauf des Multiplikationsfaktors.....	107
7.4.6	Variation einzelner Axialzonen .....	108
7.4.7	Variation des konsistenten Modells.....	112
7.4.8	Kombinierte Variation des konsistenten Modells mit Variationen der Systemparameter .....	114

7.4.9	Schlussfolgerungen .....	115
7.5	Studien unter Einbeziehung eines vereinfachten Steuerstabkreuzmodells .....	117
7.5.1	Erweiterung des Bestrahlungsmodells um den Einsatz von Steuerstabkreuzen.....	117
7.5.2	Ein Zyklus unter Einsatz eines Steuerstabkreuzes.....	120
7.5.3	Ein Zyklus mit 30 % höherer Leistung und Abbrand unter dem Einsatz eines Steuerstabkreuzes .....	123
7.5.4	Ein Zyklus normaler Abbrand und 1 Zyklus unter dem Einsatz eines Steuerstabkreuzes.....	125
7.5.5	2 bis 4 Zyklen normaler Abbrand und 1 Zyklus unter dem Einsatz eines Steuerstabkreuzes.....	126
7.5.6	Schlussfolgerungen .....	129
<b>8</b>	<b>Zusammenfassung .....</b>	<b>131</b>
	<b>Quellenverzeichnis .....</b>	<b>135</b>
	<b>Abbildungsverzeichnis.....</b>	<b>143</b>
	<b>Tabellenverzeichnis.....</b>	<b>149</b>
	<b>Abkürzungen/Stichwortverzeichnis .....</b>	<b>150</b>



# 1 Einleitung und Zielsetzung

Die Verwendung von Abbrandkredit ist für Druckwasserreaktoren eine gängige Methode zur Verringerung von überschüssigen Konservativitäten bei Kritikalitätsanalysen für den Transport, die Lagerung oder die endgültige Entsorgung von ausgedienten Kernbrennstoffen. Im Gegensatz zu der konservativen Annahme von frischem Brennstoff nutzt die Methode des Abbrandkredits die reduzierte Reaktivität des bestrahlten Brennstoffs aufgrund der Verringerung des spaltbaren  $^{235}\text{U}$  und des Aufbaus von Neutronenabsorbierenden Nukliden während der Bestrahlung im Reaktorkern.

Die Anwendung dieses Verfahrens auf Siedewasserreaktoren ist aufgrund der erhöhten Komplexität und Heterogenität schwieriger als bei Druckwasserreaktoren: stark variable Anreicherungen, komplexe Brennelementgeometrien, teillange Brennstäbe und starke axial Variationen der Moderatorichte erschweren den Nachweis abdeckender Bestrahlungsbedingungen. Zusätzlich wird in den Brennelementen von Siedewasserreaktoren in einigen Brennstäben Gadolinium als brennbarer Absorber verwendet. Dies führt zu einem Reaktivitätsmaximum im Verlauf des Abbrands, dessen Position abhängig von den genauen Spezifikationen des Brennelements, der Abbrandhistorie und der Umgebung des Brennelements ist.

Die vorliegende Arbeit dient dem Zweck, die relevanten Randbedingungen auf die Reaktivität des bestrahlten Brennstoffs in exemplarischen Konfigurationen näher zu beleuchten. Ziel ist dabei einen ersten Überblick zu erhalten ob ein praktikables Verfahren abgeleitet werden kann, mit dem eine Anwendung von Abbrandkredit auch für SWR-Brennelemente möglich ist. Da die verschiedenen relevanten Größen, wie z. B. Moderatorichte und axiales Leistungsprofil, stark miteinander korreliert sind, wird diese Analyse mit dem GRS-Programm zur Unsicherheitsanalyse SUnCISTT unter Verwendung eines im Rahmen des Vorhabens entwickelten vereinfachten Modells zur konsistenten Berücksichtigung der Bestrahlungsbedingungen durchgeführt. Dies ermöglicht im Unterschied zu herkömmlichen Variationsrechnungen, bei denen jeder Parameter separat untersucht wird, eine gleichzeitige Analyse aller involvierten Effekte.

Die Validierung der verwendeten Simulationsprogramme ist ein integraler Bestandteil jeder Kritikalitätsanalyse. Bei der Anwendung von Abbrandkredit umfasst diese neben der Validierung des Kritikalitätsrechenprogramms auch die Validierung des Programms

zur Abbrandberechnung mit Hilfe geeigneter Analyseproben bestrahlter Brennelemente. Die frei verfügbare Datenbasis für Nuklidinventarbestimmungen zu SWR-Brennelementen ist dabei deutlich geringer als die entsprechende Datenbasis für DWR-Brennelemente. Ebenso gehen im Fall der SWR-Brennelemente aufgrund der oben angesprochenen Komplexität der Bestrahlungsbedingungen potentiell mehr und ggf. größere Unsicherheiten in die Nachrechnungen von SWR-Proben und damit in den Validierungsprozess ein, wodurch die Aussagekraft der Validierung reduziert werden kann. Daher wurde im Rahmen des Vorhabens auch eine Unsicherheitsanalyse zu ausgewählten SWR Nachbestrahlungsanalyseproben durchgeführt und so der Einfluss der Eingangsgrößen der Nachrechnung auf die Ergebnisunsicherheiten quantifiziert.

Für die im Zuge dieses Projekts durchgeführten Sensitivitäts-, und Unsicherheitsanalysen von Nachbestrahlungsproben und einem generischen Brennelement wurde der deterministische 2D Inventarcode HELIOS der Firma Studsvik /CAS91/ verwendet (Kap. 4). Die Vorteile von HELIOS für dieses Projekt liegen in der im Vergleich zu anderen Inventarcodes wesentlich kürzeren Rechenzeit. Dies ermöglicht die Anwendung der Monte Carlo Sampling-Methode, bei der eine Vielzahl von Einzelrechnungen mit variierten Parametern ausgewertet wird.

Für die durchgeführten Sensitivitäts-, und Unsicherheitsanalysen wurde die Einbeziehung von HELIOS in den vorhandenen GRS-Code SUnCISTT implementiert (Kap. 5). Außerdem wurde SUnCISTT um die Möglichkeit erweitert, Nuklidinventare von mehreren 2D-Rechnungen zu verarbeiten um diese in einem folgenden Rechenschritt in einem 3D-Modell zu verwenden.

Es wurden Proben von Nachbestrahlungsanalysen nachgerechnet und der Einfluss von Herstellungstoleranzen und Unsicherheiten in Parametern der Leistungsgeschichte auf die Nuklidzusammensetzung von Siedewasserbrennelementen untersucht (Kap. 6). Die Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalysen wurden auf insgesamt sieben Proben des japanischen Reaktors Fukushima-Daini-2 und des schwedischen Reaktors Forsmark-2 angewandt, wobei für die Abbrandrechnungen, wie oben bereits erwähnt, das Programm HELIOS 1.12 Verwendung fand.

Es wurden darüber hinaus Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalysen auf Basis eines modernen SWR-BE-Designs durchgeführt (Kap. 7). Dazu wurde eine Rechenkette entwickelt, die aus einem konsistenten SWR-Bestrahlungsmodell besteht, gefolgt von Abbrandrechnungen und schließlich einer dreidimensionalen Kritikalitätsberechnung.

Das Bestrahlungsmodell verknüpft axiale Profile von Leistung, Abbrand und Moderatordichte und kann in vereinfachter Weise den Einsatz von Steuerstabkreuzen berücksichtigen. Für die Abbrandrechnungen kommt auch in diesem Teil HELIOS 1.12 und für die Kritikalitätsberechnungen in 3D-Geometrie KENO-Va aus dem SCALE 6.1.2-Paket /SCA 11/ zum Einsatz. Die Kritikalitätsberechnungen basieren dabei auf Rechenmodellen mit mehreren Brennelemente in einem generischen Transportbehälter oder Nasslagergestell. Die vorgenommenen Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalysen beziehen die gesamte Berechnungskette ein, um die Auswirkungen der Unsicherheiten des Bestrahlungsmodells auf die Unsicherheit der Reaktivität der Brennelemente im Transportbehälter oder Lagerbecken zu analysieren. Geometrische Unsicherheiten wurden ebenfalls in die Analyse mit einbezogen. Es wurde zusätzlich eine Parameterstudie über die Verwendung von Steuerstabkreuzen während der Bestrahlung durchgeführt. Ziel dieser Analysen war es, quantitative Unsicherheitsdaten zu generieren und studieren, welche für eine Ableitung von konservativen, aber dennoch möglichst realitätsnahen Bestrahlungsprofilen relevant sind, um letztlich durch solche Profile unnötigen Reaktivitätssicherheitsmargen im SWR-Abbrandkredit zu vermeiden.

Im Rahmen des Vorhabens wurde außerdem am Phase II Rechenbenchmark der „Expert Group on Used Nuclear Fuel Criticality“ (EGUNF) der WPNCS der OECD/NEA teilgenommen. Die in diesem Zusammenhang erzielten Ergebnisse sind in einem separaten Bericht zusammengefasst /SOM 17b/.



## **2 Darstellung des aktuellen Standes von Wissenschaft und Technik**

Die hohe Komplexität und Heterogenität des Designs und der Bestrahlungsbedingungen von SWR-Brennstoff erschweren die belastbare Anwendung von Abbrandkredit im Vergleich zu DWR-Brennstoff wesentlich. Während ein DWR-Brennelement im Allgemeinen weitgehend homogen aufgebaut ist und über die Einsatzzeit zumeist relativ konstanten Bestrahlungsbedingungen unterliegt, ist die Situation bei SWR-Brennelementen deutlich komplexer. Bezüglich des Aufbaus eines modernen SWR-Brennelements kommen Brennstäbe mit vielen unterschiedlichen Anfangsanreicherungen zum Einsatz. Im Allgemeinen werden zusätzlich Stäbe mit abbrennbaren Absorbieren eingesetzt. Je nach Design und Hersteller kommen Wasserkanäle unterschiedlicher Form zum Einsatz, die jeweils einen Einfluss auf das lokale Moderationsverhältnis haben. Durch die Verwendung teillanger Stäbe und eventuell axial unterschiedlicher Anreicherungen kommen axiale Heterogenitäten hinzu. Durch den axial variierenden Dampfblasengehalt, typischerweise im Bereich zwischen 0 und 80 % treten unterschiedliche Bestrahlungsbedingungen auf, die zusätzlich über die Fahrweise mit Variation des Kühlmitteldurchflusses und Bewegungen von Steuerstabkreuzen verstärkt werden.

Insgesamt haben diese Aspekte dazu geführt, dass Abbrandkredit für SWR-Brennelemente bisher weniger vollständig untersucht ist als in Bezug auf DWR-Brennelemente. Im Folgenden wird der aktuelle Stand der Entwicklung dargestellt und auf die wesentlichen, aktuelleren Veröffentlichungen zum Thema eingegangen.

### **2.1 Berücksichtigung des Gadolinium-bedingten Reaktivitätsmaximums**

Prinzipiell führt die Verwendung von abbrennbaren Absorbieren, i.A. Gadoliniumoxid  $Gd_2O_3$ , in einzelnen Brennstäben eines Brennelements zu einer Minderung der Anfangsreaktivität gegenüber dem identischen Brennelement ohne Absorber. Für die Entwicklung der Reaktivität dieses Brennelements mit dem Abbrand sind zwei gegenläufige Effekte von Bedeutung. Einerseits wird das Gadolinium verbraucht, was zu einer Erhöhung der Reaktivität führt. Gleichzeitig bedingt der Abbrand des eigentlichen Brennstoffs mit Spaltung, Aufbau von Spaltprodukten und Aufbau von höheren Aktinoiden in der Summe eine Reaktivitätsminderung. Die Kombination dieser beiden Effekte

führt im Verlauf der Bestrahlung zur Ausbildung eines Reaktivitätsmaximums, das in Abhängigkeit von der Anfangsanreicherung, dem Gadoliniumgehalt und dem vorliegenden Neutronenspektrum (BE-Anordnung) typischerweise zwischen 10 und 30 GWd/tHM liegt (sog. „Gadolinium-Peak“, auch: „Gd-Peak“). Nach diesem Maximum fällt die Reaktivität monoton ab und nähert sich mit zunehmendem Ausbrand des Gadoliniums dem Reaktivitätsverlauf eines baugleichen Brennelements ohne abbrennbarem Absorber an.

Der hinsichtlich Kritikalitätssicherheit konservative Ansatz für solche Brennelemente ist die Annahme frischen Brennstoffs unter Vernachlässigung des abbrennbaren Absorbers in den rechnerischen Analysen. Dies führt zu z. T. übermäßig hohen Sicherheitsmargen, da die dadurch angenommene Reaktivität zu keinem Abbrandzeitpunkt erreicht wird. Eine natürliche Erweiterung dieses Ansatzes besteht darin, das Reaktivitätsmaximum für ein Brennelement rechnerisch zu bestimmen und die entsprechende Nuklidzusammensetzung, im einfachsten Fall nur U, Pu und Gd, für die nachfolgende Kritikalitätsanalyse zu verwenden. Da das Reaktivitätsmaximum von einer ganzen Reihe von Parametern abhängt, ist auch hierfür ein Verfahren notwendig, um auf einfache Art und Weise zu sinnvollen, konsistenten Werten zu gelangen. Diese Fragestellungen werden unter anderem in /JUT 09/, /JUT 13/, /TAR 13/ und /MAR 15/ untersucht.

In /JUT 09/ wird für ein General Electric 8 x 8-Brennelement der Einfluss verschiedener axialer Dampfblasen- und Abbrandprofile auf den Multiplikationsfaktor in einer vereinfachten Lagergestellanordnung untersucht. Diese Untersuchung wird in /JUT 13/ auf ein moderneres Brennelementdesign erweitert und vertieft, das in Abb. 2.1 dargestellt ist. Zusätzlich wird in beiden Arbeiten eine Parameterstudie zum Gadoliniumausbrand diskutiert. Die Abhängigkeit des Gadoliniumausbrands vom Dampfblasengehalt ist in Abb. 2.2 illustriert. Dies führt zu den in Abb. 2.3 gezeigten unterschiedlichen Reaktivitätsverläufen. Unter anderem konnte in den beiden Arbeiten gezeigt werden, dass die Annahme eines konstanten maximalen Werts für den Dampfblasengehalt nicht in allen Fällen konservativ ist. Dies ist erst dann der Fall, wenn das Gadolinium vollständig ausgebrannt ist.

In /TAR 13/ wird über eine umfangreiche Parameterstudie zum Einfluss der verschiedenen Eingangsparameter auf das Reaktivitätsverhalten eines komplexen SVEA 96 Optima 2-Brennelements berichtet. Dabei wird auch die Verwendung teillanger Stäbe berücksichtigt. Variiert werden der Dampfblasengehalt, die Anzahl und Position der

Gadoliniumstäbe, der Gehalt an Gadolinium in diesen Stäben, der Steuerstabkreuzeinsatz, die spezifische Leistung, die Brennstofftemperatur und die Abklingzeit. Die Kritikalitätsanalyse erfolgte dabei für einen AREVA TN-Transportbehälter mit 69 Brennelementen. Weiterhin wird für den untersuchten Fall gezeigt, dass die Annahme einer homogenen radialen und axialen Anreicherung konservativ ist. Letzteres bedeutet dabei den Verzicht auf teillange Stäbe. In der Untersuchung werden dabei allerdings keine weiteren Handlungsempfehlungen für den Einsatz von Gadolinium-Peak-Abbrandkredit gegeben, und es wurden keine Axialprofile für Abbrand und Dampfblasengehalt angenommen. Vielmehr liegt ein Schwerpunkt auf der Auslotung der erzielbaren möglichen Reaktivitätsmarge.

Eine umfassende Untersuchung der zu berücksichtigenden Effekte und Verfahren zur Implementierung des Gadolinium-Peak-Ansatzes bei Transport- und Lagerbehältern ist in /MAR 15/ durchgeführt worden. Darin werden zunächst die etablierten Verfahren der Gadolinium-Peak-Methode für Brennelementlagerbecken zusammengefasst und bewertet. Weiterhin wird eine umfangreiche Sensitivitätsuntersuchung wesentlicher relevanter Parameter anhand einer beispielhaften Konfiguration durchgeführt. Diese umfasst Abbrandrechnungen anhand eines GE14-Brennelements und Kritikalitätsrechnungen am GBC-68-Behältermodell /MUE 13b/. Die in der Sensitivitätsuntersuchung betrachteten Größen umfassen die Art der Materialmodellierung, den Gadoliniumgehalt und Anordnung und Anzahl der Gadoliniumstäbe, den Dampfblasengehalt, den Einsatz von Steuerstabkreuzen sowie weitere Parameter der Einsatzgeschichte wie Brennstofftemperatur und spezifische Leistung. Darüber hinaus wird in diesem Bericht die Verfügbarkeit von experimentellen Daten zur Validierung der Programme zur Inventarberechnung und zur Kritikalitätsrechnung dargestellt und eine beispielhafte Methodik zur Validierung erläutert. Dabei wird insbesondere auf die begrenzte Verfügbarkeit von frei zugänglichen Nachbestrahlungsanalyseproben für Abbrände im Bereich des Gadolinium-Peaks hingewiesen, die vor allem die Validierung bezüglich dieses Abbrandbereichs sowie der Gd-Isotope und weiterer Spaltprodukte erschwert.

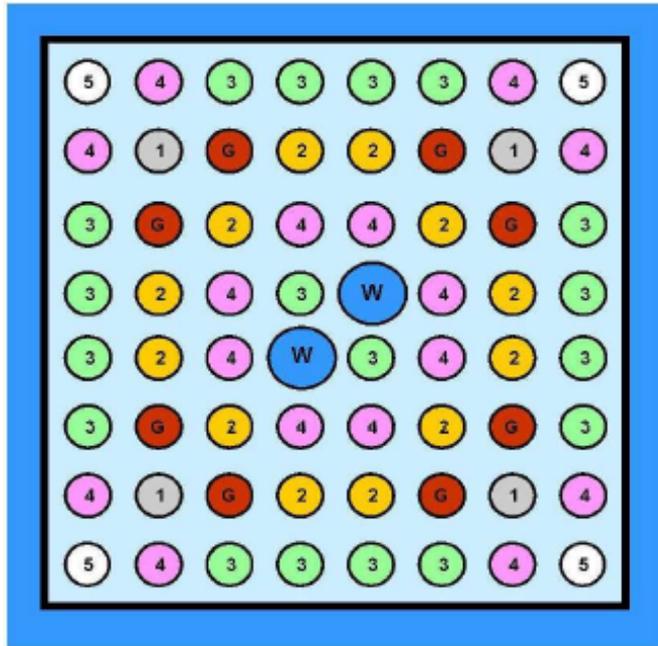


Abb. 2.1 Schematische Darstellung des untersuchten Brennelements /JUT 13/

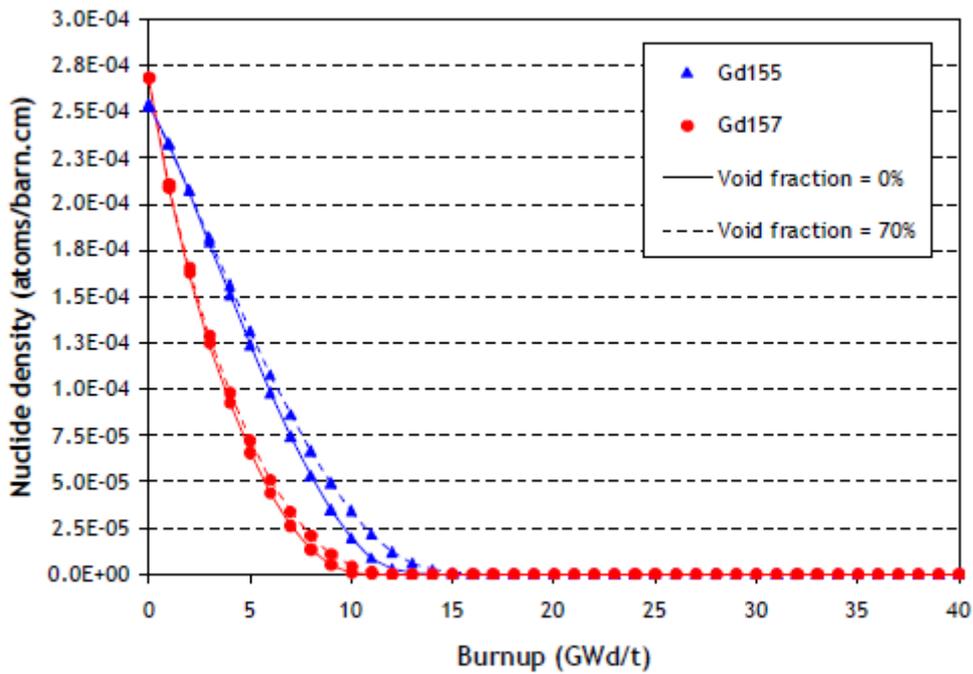
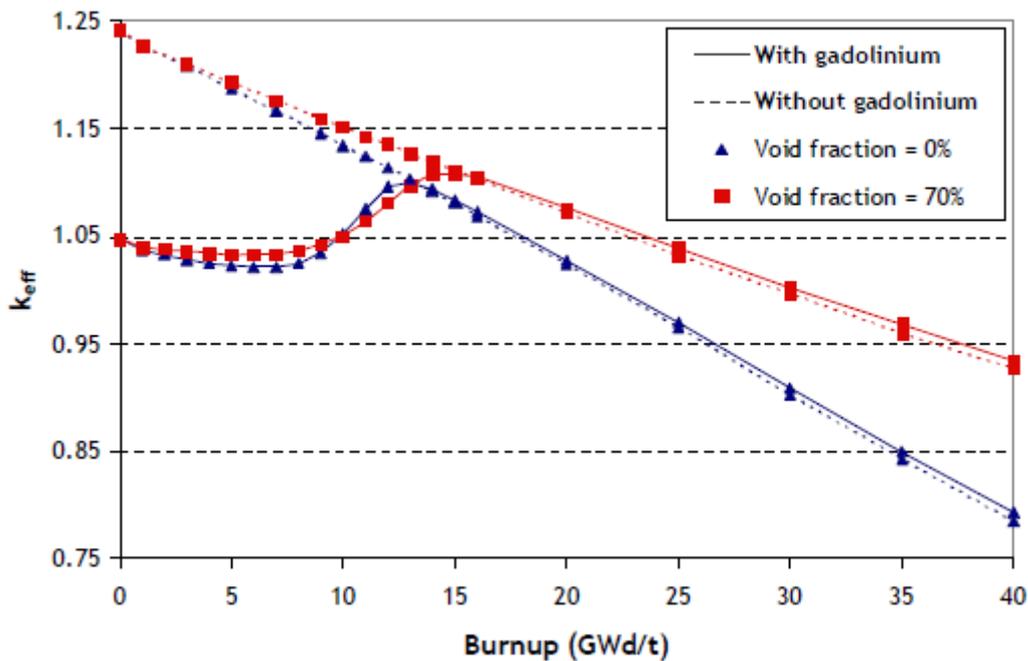


Abb. 2.2 Nuklidichte der Gd-Isotope als Funktion von Abbrand und Blasengehalt im Moderator /JUT 13/

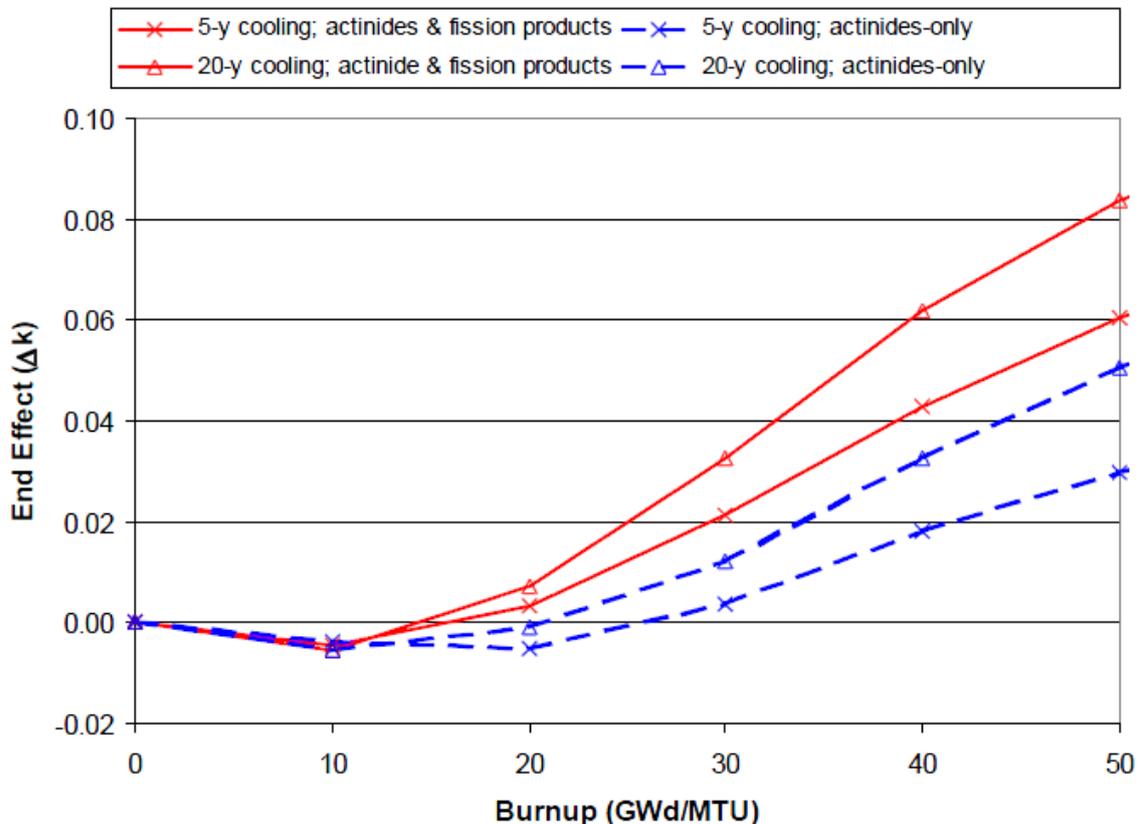


**Abb. 2.3** Multiplikationsfaktor  $k_{\text{eff}}$  als Funktion des Abbrandes mit und ohne Gadolinium und verschiedenem Blasengehalt des Moderators /JUT 13/

## 2.2 Weiterführende Arbeiten

Beruhend auf der Tatsache, dass für das Gd-Peak-Verfahren zumeist zwei-dimensionale Abbrandrechnungen als Grundlage herangezogen werden, können drei-dimensionale Effekte, insbesondere also axial variierende Abbrandprofile nicht ohne weiteres berücksichtigt werden. In /WAG 03/ und /MUE 13a/ wurde gezeigt, dass für die Anwendung von Abbrandkredit bei DWR-Brennstoffen axial variierende Abbrandverteilungen für Abbrände über etwa 10 GWd/tSM berücksichtigt werden müssen. Entsprechende Kritikalitätsanalysen, die axiale Abbrandverteilungen ignorieren, müssen als nicht konservativ angesehen werden. Abb. 2.4 zeigt einige Beispiele des Effekts von axialen Abbrandverteilungen bei Abbrandberücksichtigung in der Kritikalitätsrechnung für DWR-Brennstoffe. Aufgetragen ist die Differenz im berechneten Reaktivitätskoeffizienten bei Verwendung einer realistischen axialen Abbrandverteilung gegenüber einer flachen Abbrandverteilung. Ab einem gewissen mittleren Abbrand dominiert die Reaktivität der weniger stark abgebrannten Enden die Gesamtreaktivität des Brennelements, was zu einer Erhöhung des Kritikalitätskoeffizienten im Vergleich zum flachen Profil führt. Dies wird als End-Effekt bezeichnet. Die Berücksichtigung axialer Effekte in analogen SWR-Kritikalitätsanalysen ist durch die zusätzlich zum DWR axial

stärker variierenden Moderatorndichten, sowie axial variierende Designs (teillage Brennstäbe, variable Position der Steuerstäbe, etc.) ggf. noch wichtiger. Eine einfache Erweiterung der Technik der Gd-Peak-Methode zur Abbrandberücksichtigung für Abbrände größer als 10 GWd/tSM ist nicht möglich /MUE 13a/.

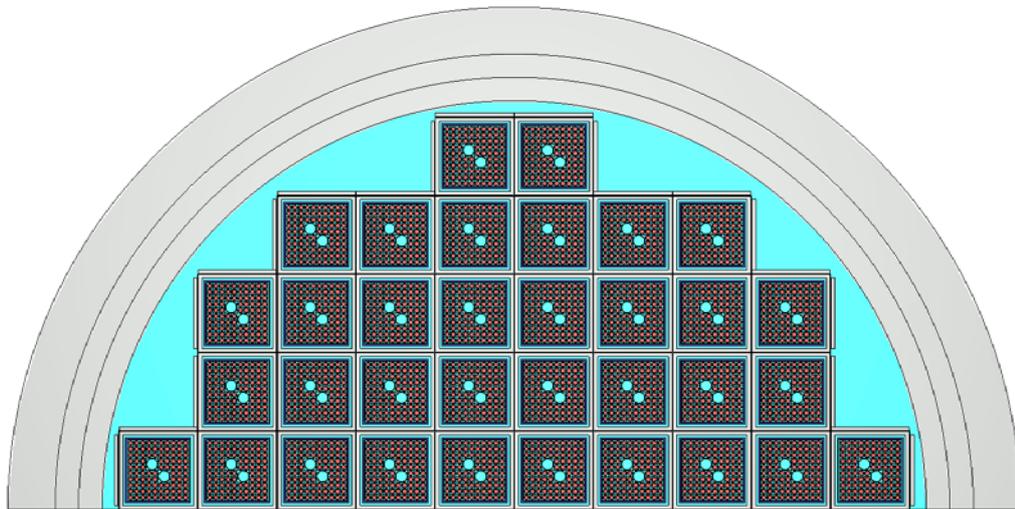


**Abb. 2.4** Beispiele des Endeffektes auf  $k_{\text{eff}}$  bei Vernachlässigung axialer Abbrandverteilungen in Abbrandrechnungen mit DWR-Brennstoffen /WAG 03/

Eine wichtige Arbeit für dieses Projekt ist der im Februar 2013 von der United States Nuclear Regulatory Commission (US NRC) veröffentlichte Bericht "Review and Prioritization of Technical Issues Related to Burnup Credit for BWR Fuel" /MUE 13a/. In dem Bericht werden die aus Sicht der Behörde wichtigen Arbeitsschritte aufgeführt, die zur Entwicklung des Abbrandkredits bei SWR-Brennstoffen über den Gd-Peak hinaus nötig sind.

Anhand eines Modells des GBC-86-Transportbehälter (Abb. 2.5, /MUE 13b/) beladen mit einem 10 x 10-SWR-Brennelement wurden verschiedene Parameter variiert und deren Einfluss auf  $k_{\text{eff}}$  untersucht. Abb. 2.5 zeigt eine schematische Darstellung des

untersuchten Behälters. Weitere Details wie geometrische Abmessungen etc. finden sich in /MUE 13a/.



**Abb. 2.5** Radialschnitt durch das in /MUE 13a/ betrachtete beladene Behältermodell GBC-86 /MUE 13a/

Es wurden zahlreiche Rechnungen zu variierten Brennstoffzusammensetzungen mit Bestimmung der  $k_{\text{eff}}$ -Werte durchgeführt, um Sensitivitätsanalysen bezüglich einiger SWR-typischer Kenngrößen anfertigen zu können. Die Berechnungen wurden mit dem Programmpaket SCALE 6.1 durchgeführt. Die bei der Berechnung berücksichtigten Nuklide lassen sich unterteilen in 9 Hauptaktinide, 3 Nebenaktinide und 16 Spaltprodukte, vgl. Tab. 2.1. Letztere sind identisch zu den in /KIL 11/ diskutierten Isotopen.

**Tab. 2.1** Verwendete Nuklide in der Abbrandkredit-Rechenkette nach /MUE 13a/

<b>9 Hauptaktinide, 3 Nebenaktinide, 16 Spaltprodukte</b>								
$^{234}\text{U}$	$^{235}\text{U}$	$^{238}\text{U}$	$^{238}\text{Pu}$	$^{239}\text{Pu}$	$^{240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}$	$^{242}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$
$^{236}\text{U}$	$^{237}\text{Np}$	$^{243}\text{Am}$						
$^{95}\text{Mo}$	$^{99}\text{Tc}$	$^{101}\text{Ru}$	$^{103}\text{Rh}$	$^{109}\text{Ag}$	$^{133}\text{Cs}$	$^{147}\text{Sm}$	$^{149}\text{Sm}$	
$^{150}\text{Sm}$	$^{151}\text{Sm}$	$^{152}\text{Sm}$	$^{143}\text{Nd}$	$^{145}\text{Nd}$	$^{151}\text{Eu}$	$^{153}\text{Eu}$	$^{155}\text{Gd}$	

Das oben beschriebene Modell wurde bezüglich folgender Größen untersucht:

- Variationen der Abbrandhistorie, z. B. Zykluslängen,
- Axiale Moderator dichteverteilung, insbesondere Dampfblasengehalt (Void),
- Benutzung von Steuerstabkreuzen,
- Brennstofftemperatur,
- Energiedichten,
- Variation des axialen Abbrandes bezogen auf das Brennelement,
- Designvariationen des Brennelementes,
- Anmerkungen zur Validierung und dazu benötigte Daten.

Die einzelnen Sensitivitätsstudien führten zu Empfehlungen, welche Parameter als wichtig und welche als weniger wichtig für eine Abbrandkreditberechnung für SWR Brennstoffe sind. Die Prioritätenliste lässt sich folgendermaßen zusammenfassen:

- Hohe Priorität:
  - Identifizierung und Handhabung von SWR typischen axialen Abbrandverteilungen
  - Handhabung von SWR typischen axialen Moderator dichteverteilungen
  - Handhabung im Umgang mit variablen Steuerstabkreuzen
  - Entwicklung von Validierungsrechnungen für bestrahlte SWR Brennstoffzusammensetzungen
  - Entwicklung von Validierungsrechnungen für  $k_{\text{eff}}$  aus der Abbrandkredit-Rechenkette
- Mittlere Priorität:
  - Handhabung von Reaktorkenngrößen in der Abbrandberechnung
  - Handhabung von unnormalen Abbrandbedingungen im Reaktor
  - Untersuchung und Handhabung von korrelierten Größen in der Abbrandberechnung
  - Handhabung von radial variierenden Abbrandverteilungen in einem SWR-Brennelement
- Niedrige Priorität:
  - Handhabung der Modellierung von Designvariationen des Brennelementes
  - Handhabung von Variationen der Abbrandhistorie im Reaktor
  - Handhabung von Brennelementänderungen während der Bestrahlung
  - Untersuchung des Ursprungs verwendeter Daten

Diese Prioritätenliste wird in einer kürzlich erschienen Arbeit des Oak Ridge National Labs (ORNL) im Auftrag des US NRC /MAR 16/ aufgegriffen. In dieser werden die ersten drei Punkte hoher Priorität dieser Liste näher untersucht, d.h. die Identifizierung von typischen axialen Abbrand- und Voidverteilungen und deren Einfluss auf die Kritikalitätsrechnung, sowie entsprechende Untersuchungen zum Steuerstabkreuzeinsatz. Als Grundlage für die Untersuchungen wurde wiederum das GE14 Brennelement-Modell mit zwei Geometrien, einem vollständig besetzten Brennstabgitter („dominant lattice“) und einem Gitter mit fehlenden teillangen Stäben („vanished lattice“), verwendet. Für die Kritikalitätsrechnung wurde das GBC-68 Behältermodell eingesetzt.

Für die Untersuchung des Effekts axial variierender Dampfblasengehalte wurde dabei auf dem ORNL vorliegende proprietäre Core-Follower-Daten eines Zyklus eines amerikanischen Siedewasserreaktors zurückgegriffen. Mit diesen Daten wurden zunächst Analysen zur notwendigen zeitlichen Auflösung von Änderungen in den Axialprofilen des Dampfblasengehalts untersucht und anschließend allgemein der Einfluss der Profile auf die Reaktivität untersucht. Dabei wurden folgende Schlussfolgerungen gezogen:

- Ein Zyklus gemittelttes Profil kann verwendet werden, wenn gleichzeitig ein kleiner Reaktivitätsaufschlag berücksichtigt wird.
- Ein hinsichtlich der Reaktivität limitierendes Profil kann konstruiert werden, in dem in jeder Axialzone die minimal vorkommende Dichte verwendet wird.
- Entscheidend für die Reaktivität sind die Moderatordichten der obersten Axialzonen
- Eine konstante Moderatordichte, die der minimalen Moderatordichte entspricht ist konservativ. Die Verwendung der mittleren Moderatordichte in allen Zonen ist nicht konservativ.

Zur Untersuchung des Einflusses des Steuerstabkreuzeinsatzes wurden verschiedene reale und hypothetische Steuerstabkreuzhistorien verwendet. Aus den mit diesen Historien durchgeführten Simulationen wurden u. a. folgende Schlüsse gezogen:

- Einfahrtiefen < 50 % haben wenig bis keinen Einfluss auf die Reaktivität im Lagerbehälter.
- Die konservativste untersuchte Historie entspricht einer Einfahrtiefe von 92 % über die ganze Bestrahlungsdauer. Diese Historie wird allerdings als unrealistisch angesehen.

- Tief eingefahrene Steuerstabkreuze im letzten Drittel der Bestrahlungszeit haben einen größeren Einfluss als solche zu früheren Zeitpunkten.
- Der Einfluss der Steuerstabkreuze kann möglicherweise über einen konstanten Aufschlag in Höhe von 0.6 – 1.2 %  $\Delta k_{\text{eff}}$  berücksichtigt werden.

Zur Untersuchung des Einflusses der Abbrandprofile wurden die in den bereits erwähnten Core-Follower Daten enthaltenen Profile in normierter Form verwendet. Die übrigen eigentlich axial variablen Größen wurden bei den Rechnungen konstant gehalten. Die Simulationen wurden mit und ohne Berücksichtigung eines oberen und unteren Blankets aus Natururan durchgeführt. Folgende Erkenntnisse wurden gewonnen.

- Die Wahl der Abbrandprofile hat einen wesentlichen Einfluss auf die Behälterreaktivität
- Es wird ein großer End-Effekt beobachtet, d. h. die meisten Abbrandprofile zeigen eine deutlich höhere Reaktivität als Brennelemente mit einem äquivalenten konstanten Profil.
- Die Modellierung der axialen Blankets hat nur einen geringen Einfluss auf die Ergebnisse.
- Die relative Reaktivität verschiedener Abbrandprofile kann aus den Abbränden der obersten Axialzonen vorhergesagt werden. Bei Berücksichtigung axialer Blankets müssen dabei mehr Zonen berücksichtigt werden.

Der in jener Arbeit gewählte Ansatz unterscheidet sich insofern deutlich von dem Ansatz der vorliegenden Arbeit, als dass die einzelnen Einflussgrößen jeweils separat betrachtet werden ohne den Effekt der Korrelationen zwischen den verschiedenen Parametern zu berücksichtigen und kann insofern in gewisser Hinsicht als komplementär zu dem hier gewählten Vorgehen gesehen werden.

### **3 Übersicht über radiochemische Analysedaten aus bestrahlten Siedewasserreaktor-Brennstoffen**

Von der OECD/NEA Expert Group on Assay Data of Spent Nuclear Fuel (EGADSNF) /NEA 14a/ der Working Party on Nuclear Criticality Safety (WPNCS) wird die Datenbank SFCOMPO („*spent fuel isotopic composition database*“) gepflegt, die Daten zu radiochemischen Analyseproben (PIE, „*post irradiation examination*“) bestrahlter Kernbrennstoffe enthält. Neben den radiochemischen Analyseergebnissen sind wichtige Daten zu den jeweiligen Reaktoren und Bestrahlungsbedingungen enthalten, welche die Modellierung in einem Inventarberechnungssystem zu Validierungszwecken erlauben. Die SFCOMPO enthält lediglich frei verfügbare und keine proprietären Daten.

Die bisherige erste Version der SFCOMPO besteht aus einem einfachen Web-Interface, welches zwar die relevanten Daten der implementierten radiochemischen Analyseproben zur Verfügung stellt, aber lediglich einfache Suchfunktionen anbietet. Die grafische und inhaltliche Aufbereitung ist ebenfalls vergleichsweise einfach gehalten. Der direkte Export wichtiger Daten wie Bestrahlungshistorie oder Messdaten ist nicht möglich. Um die Flexibilität und damit sowohl die Pflege der Daten zu vereinfachen als auch die Benutzerfreundlichkeit zu erhöhen, wurde von der OECD/NEA zusammen mit der EGADSNF 2012 mit der Entwicklung eines neuen Interface-Programms begonnen, der sogenannten SFCOMPO-2.0. Neben einem aktuellen Benutzerinterface soll in SFCOMPO-2.0 insbesondere der komplette Bestand an frei verfügbaren PIE-Daten qualitätsgesichert implementiert, und mit einer direkten Verlinkung der jeweiligen Originalreferenzen versehen werden. Vorbild ist das „International Criticality Safety Benchmark Evaluation Project“ (ICSBEP) /NEA 14b/, welches ebenfalls im Rahmen der WPNCS durchgeführt wird. Die Entwicklung der Benutzeroberfläche ist an die entsprechende Benutzeroberfläche DICE des ICSBEP angelehnt.

Die Implementierung des frei verfügbaren Datenbestands ist inzwischen weitgehend abgeschlossen. Aktuell enthält die SFCOMPO-2.0 in ihrer derzeitigen Version über 700 PIE-Proben von bestrahlten Kernbrennstoffen aus über 40 Reaktoren der Reaktortypen AGR, CANDU, DWR, MAGNOX, RBMK, SWR, VVER-440 und VVER-1000. Zudem sieht die SFCOMPO-2.0 die Möglichkeit vor, individuell eigene radiochemische Analysedaten beispielsweise aus proprietären, nicht frei zugänglichen Quellen in den Datenbestand zu integrieren. Die Datenbank enthält für jede Probe umfassende Daten zu

Brennelement, Brennstab, Probenposition, Probengröße, Bestrahlungsgeschichte u. a. Nahezu alle Daten können gegeneinander grafisch aufgetragen dargestellt werden, z. B. die  $^{235}\text{U}$ -Konzentration in Abhängigkeit des erreichten Probenabbrands oder der axialen Höhe der Probe.

Zu Beginn des Vorhabens waren in der damaligen Version der SFCOMPO-2.0 die Daten zu radiochemischen Analyseproben aus vier Siedewasserreaktoren enthalten. Diese umfassten Cooper-1, Fukushima Daini-1 und -2 sowie Gundremmingen A. In der aktuellen Version (build 0.6, Stand 30.11.2015) ist die Anzahl der verfügbaren Proben deutlich erweitert worden. Nun sind Daten zu 12 Reaktoren enthalten. Hinzugekommen sind Proben aus Doodeward-1, Forsmark-3, Fukushima-Daiichi-3, Garigliano-1, Japan Power Demonstration Reactor-1, Monticello-1, Quad Cities-1 und Tsuruga-1.

Die in die Datenbank eingetragenen Werte haben inzwischen eine vertiefte Qualitätskontrolle durchlaufen. Eine direkte Verlinkung der einzelnen Messproben mit den relevanten Quellen ist für die finale Version vorgesehen, funktioniert aber bisher noch nicht. Zu Vorhabensbeginn war noch eine Reihe von Tippfehlern vorhanden. Auch fehlten vielfach noch Einträge wichtiger für Nachrechnung benötigter Angaben, so dass hier eine Kontrolle der Werte durch Konsistenzchecks oder Abgleich mit der Originalliteratur angeraten war.

In Abb. 3.1 ist exemplarisch eine Zusammenfassung der Daten des Brennelements CZ346 aus Cooper-1 dargestellt, während Abb. 3.2 die begleitend abgespeicherte Leistungsgeschichte wiedergibt. In Abb. 3.3 sind die axialen Positionen der aus dem Brennstab ADD2966 aus CZ346 entnommenen Proben dargestellt.

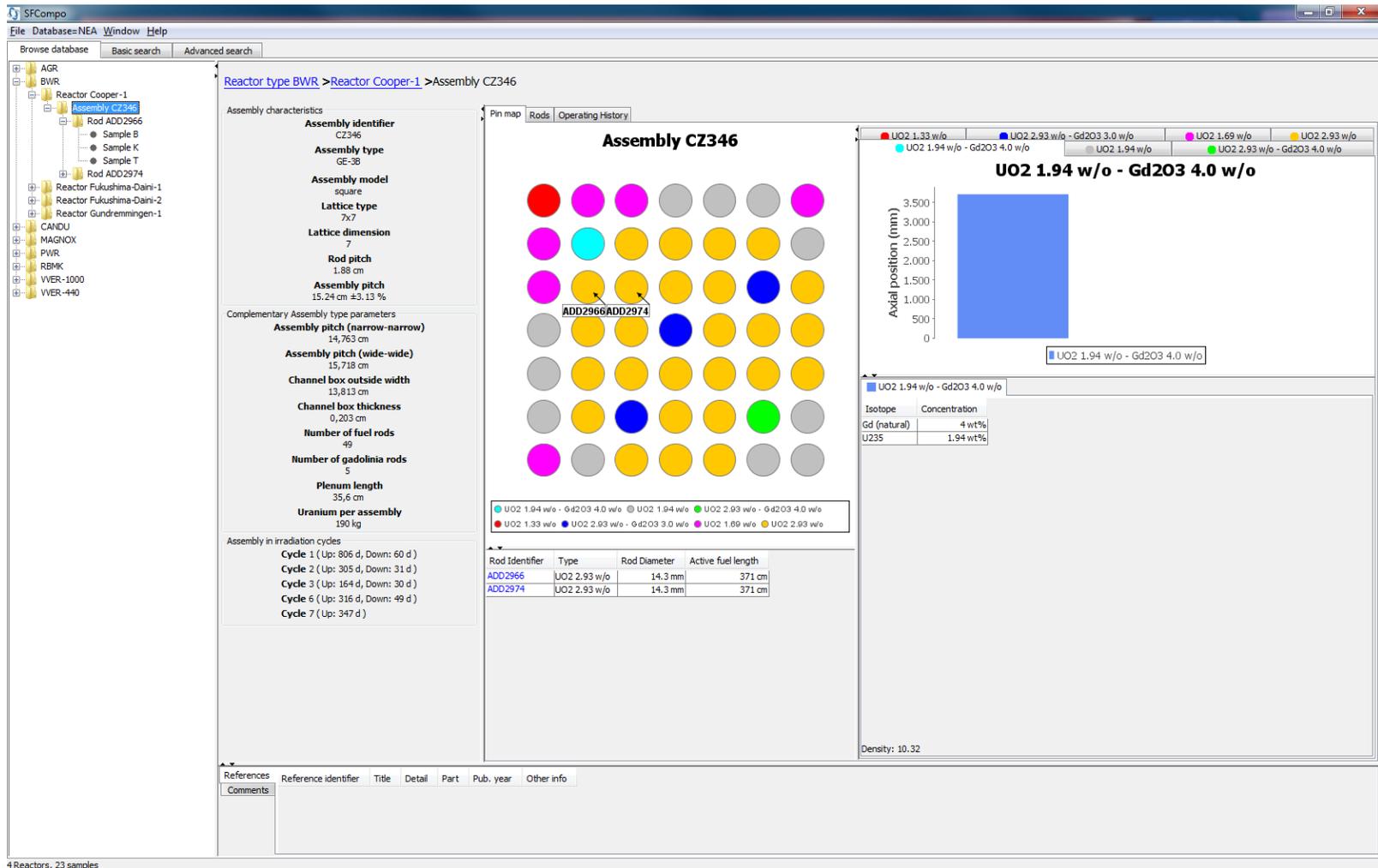
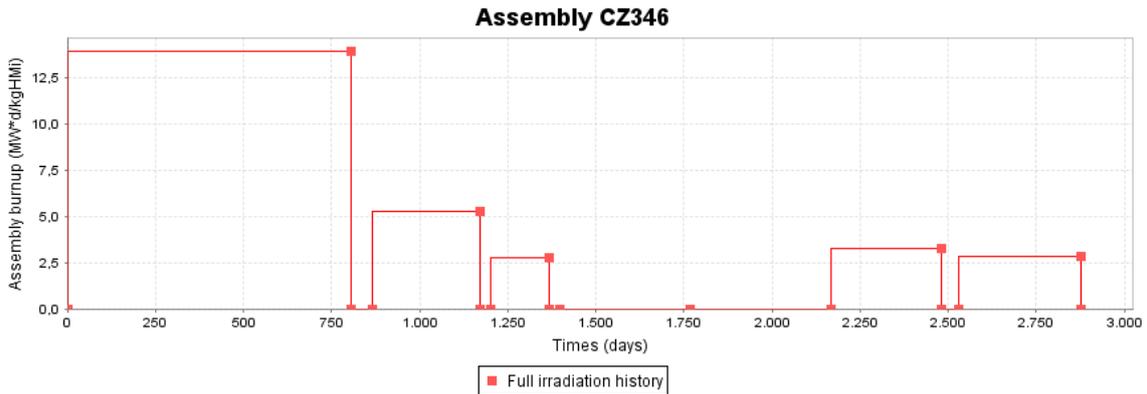
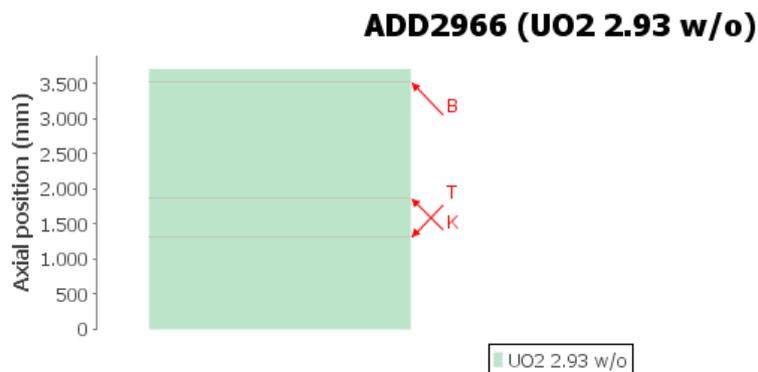


Abb. 3.1 Benutzeroberfläche der SFCOMPO-2.0 am Beispiel des Brennelements CZ346 aus dem Kernkraftwerk Cooper-1



**Abb. 3.2** Abbrandgeschichte des Brennelements CZ346 aus dem Kernkraftwerk Cooper-1 in Darstellung der SFCOMPO-2.0



**Abb. 3.3** Axiale Positionen der Proben des Brennstabs ADD2966 aus dem Brennelement CZ346 des Kernkraftwerks Cooper-1 in Darstellung der SFCOMPO-2.0

In allen Proben sind integral Messungen zu 51 verschiedenen Nukliden enthalten, wobei einige von diesen Nukliden nur in einzelnen Proben (z. B.  $^{83}\text{Kr}$ ) bzw. in Proben aus einem einzigen Brennstab (z. B.  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{149}\text{Sm}$ ) gemessen wurden, so dass die Datenbasis für eine Codevalidierung nicht für alle diese Nuklide ausreicht. In einigen Experimenten wurden für manche Nuklide nicht Massen bzw. Konzentrationen sondern Aktivitäten gemessen. In diesen Fällen wurden die gemessenen Aktivitäten in die SFCOMPO-2.0 übernommen und mit der Originalquelle referenziert.

Die Messdaten der einzelnen Proben sind grafisch und tabellarisch verfügbar, und können als ASCII-Datei exportiert und in anderen Programmen weiterverarbeitet werden. Abb. 3.4 zeigt exemplarisch die tabellarische Zusammenfassung der Daten der Messprobe K aus dem genannten Brennstab ADD1966 (CZ346, Cooper-1).

Measurement data		Operating History														
SFCompo sample ref	Type	Item	Z	A	I	Value	Unit	Value*	Unit*	Uncertainty	Sigma	Method	Laboratory	Date meas.	Date ref	
COO-1 CZ346 ADD2966 K	Isotopic Concentration	U234	92	234	0	0.000153	g/gHMi	0.153	mg/gUi	1.6 %	1	mass-spec	PNNL-MCC		12/01/20	
COO-1 CZ346 ADD2966 K	Isotopic Concentration	U235	92	235	0	0.00606	g/gHMi	6.06	mg/gUi	1.6 %	1	mass-spec	PNNL-MCC		12/01/20	
COO-1 CZ346 ADD2966 K	Isotopic Concentration	U236	92	236	0	0.004	g/gHMi	4	mg/gUi	1.6 %	1	mass-spec	PNNL-MCC		12/01/20	
COO-1 CZ346 ADD2966 K	Isotopic Concentration	U238	92	238	0	0.947	g/gHMi	947	mg/gUi	1.6 %	1	mass-spec	PNNL-MCC		12/01/20	
COO-1 CZ346 ADD2966 K	Isotopic Concentration	Pu238	94	238	0	0.000198	g/gHMi	0.198	mg/gUi	1.6 %	1	mass-spec	PNNL-MCC		12/01/20	
COO-1 CZ346 ADD2966 K	Isotopic Concentration	Pu239	94	239	0	0.00406	g/gHMi	4.06	mg/gUi	1.6 %	1	mass-spec	PNNL-MCC		12/01/20	
COO-1 CZ346 ADD2966 K	Isotopic Concentration	Pu240	94	240	0	0.00251	g/gHMi	2.51	mg/gUi	1.6 %	1	mass-spec	PNNL-MCC		12/01/20	
COO-1 CZ346 ADD2966 K	Isotopic Concentration	Pu241	94	241	0	0.000725	g/gHMi	0.725	mg/gUi	1.6 %	1	mass-spec	PNNL-MCC		12/01/20	
COO-1 CZ346 ADD2966 K	Isotopic Concentration	Pu242	94	242	0	0.0005	g/gHMi	0.5	mg/gUi	1.6 %	1	mass-spec	PNNL-MCC		12/01/20	
COO-1 CZ346 ADD2966 K	Activity	Np237	93	237	0	2.88E-7	Ci/gHMi	0.4094	mg/gUi	1.9 %	1	$\alpha$ - and $\gamma$ -counting	PNNL-MCC		12/01/20	
COO-1 CZ346 ADD2966 K	Activity	Am241	95	241	0	0.000996	Ci/gHMi	0.2905	mg/gUi	4.9 %	1	$\alpha$ -spec	PNNL-MCC		12/01/20	
COO-1 CZ346 ADD2966 K	Other	Ci(cm243+cm244)/gHMi				0.00164				4.1 %	1	$\alpha$ -spec	PNNL-MCC		12/01/20	
COO-1 CZ346 ADD2966 K	Activity	Se79	34	79	0	5.21E-8	Ci/gHMi	0.003853	mg/gUi	4.9 %	1	liquid-scintillation	PNNL-MCC		12/01/20	
COO-1 CZ346 ADD2966 K	Activity	Sr90	38	90	0	0.0551	Ci/gHMi	0.3989	mg/gUi	5.7 %	1	beta-counting	PNNL-MCC		12/01/20	
COO-1 CZ346 ADD2966 K	Activity	Tc99	43	99	0	0.0000117	Ci/gHMi	0.6833	mg/gUi	3.5 %	1	beta-counting	PNNL-MCC		12/01/20	
COO-1 CZ346 ADD2966 K	Activity	Sn126	50	126	0	1.72E-7	Ci/gHMi	0.01393	mg/gUi	10.2 %	1	$\gamma$ -spec	PNNL-MCC		12/01/20	
COO-1 CZ346 ADD2966 K	Activity	Cs135	55	135	0	5.06E-7	Ci/gHMi	0.4391	mg/gUi	14 %	1	mass-spec	PNNL-MCC		12/01/20	
COO-1 CZ346 ADD2966 K	Activity	Cs137	55	137	0	0.0848	Ci/gHMi	0.9768	mg/gUi	3.5 %	1	$\gamma$ -spec	PNNL-MCC		12/01/20	

**Abb. 3.4** Tabellarische Zusammenfassung der Messdaten der Probe K aus dem Brennstab ADD2966 des Brennelements CZ346 aus dem Kernkraftwerk Cooper-1 in Darstellung der SFCOMPO-2.0

### 3.1 Analyse der Datenbasis

#### 3.1.1 Nuklidspektrum der in SFCOMPO-2.0 enthaltenen SWR-Proben

Das Messprogramm der Proben aus Cooper-1 umfasst neben den Konzentrationen der Uran- und Plutoniumisotope gemessene Aktivitäten von  $^{79}\text{Se}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{126}\text{Sn}$ ,  $^{135}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{237}\text{Np}$  und  $^{241}\text{Am}$ .

Das Messprogramm der Proben aus Fukushima Daini-1 umfasst neben den Konzentrationen der Uran- und Plutoniumisotope Werte für die Neodymisotope 142 bis 150 (außer 149). Einzelne Proben umfassen zusätzlich die Nuklide  $^{133}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{151}\text{Eu}$ ,  $^{153}\text{Eu}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ ,  $^{155}\text{Eu}$ ,  $^{147}\text{Pm}$ ,  $^{147}\text{Sm}$ ,  $^{148}\text{Sm}$ ,  $^{149}\text{Sm}$ ,  $^{150}\text{Sm}$ ,  $^{151}\text{Sm}$ ,  $^{152}\text{Sm}$ ,  $^{154}\text{Sm}$ ,  $^{152}\text{Gd}$ ,  $^{154}\text{Gd}$ ,  $^{155}\text{Gd}$ ,  $^{156}\text{Gd}$ ,  $^{157}\text{Gd}$ ,  $^{158}\text{Gd}$ ,  $^{160}\text{Gd}$ ,  $^{95}\text{Mo}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{101}\text{Ru}$ ,  $^{103}\text{Rh}$ ,  $^{109}\text{Ag}$ . Das Messprogramm der Proben aus Fukushima Daini-2 umfasst neben den Konzentrationen der Uran- und Plutoniumisotope Werte für  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{242\text{m}}\text{Am}$ ,  $^{243}\text{Am}$ , Curium von 242 bis 246, Neodym von 143 bis 150 (außer 149),  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{144}\text{Ce}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ ,  $^{106}\text{Ru}$  und Samarium von 147 bis 154 (außer 153).

Das Messprogramm der Proben aus Gundremmingen A umfasst neben den Konzentrationen der Uran- und Plutoniumisotope Werte für  $^{148}\text{Nd}$ ,  $^{242}\text{Cm}$  und  $^{244}\text{Cm}$ , sowie gemessene Aktivitäten bzw. Aktivitätsverhältnisse von  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{154}\text{Eu}$ .

Für die Proben von Dodewaard-1 wurden zu den Konzentrationen der Uran- und Plutoniumisotopen auch Werte für die Cäsiumisotope 133 bis 135 und 137, die Curiumisotope 242 bis 246, die Americiumisotope 241, 242m und 243, die Neodymisotope 142 bis 148 und 150, die Samariumisotope 147 bis 152 und 154, die Europiumisotope 151 und 153 bis 155, die Gadoliniumisotope 154 bis 156, 158 und 160 sowie für die Isotope  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{95}\text{Mo}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{101}\text{Ru}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{103}\text{Rh}$ ,  $^{109}\text{Ag}$ ,  $^{125}\text{Sb}$ ,  $^{129}\text{I}$ ,  $^{144}\text{Ce}$ ,  $^{147}\text{Pm}$  und  $^{155}\text{Gd}$ .

Die Messungen der Proben des Reaktors Forsmark-3 enthalten neben den Konzentrationen der Uran- und Plutoniumisotope auch die Werte für die Neodymisotope 142 bis 148 und 150, sowie für die Isotope  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{243}\text{Am}$ ,  $^{244}\text{Cm}$ ,  $^{140}\text{Ce}$ ,  $^{142}\text{Ce}$  und  $^{144}\text{Ce}$ .

Das Messprogramm für Garigliano-1 beinhaltet zu den Konzentrationen der Uran- und Plutoniumisotopen auch Werte für die Americiumisotope 241 bis 243 sowie für die Isotope  $^{242}\text{Cm}$ ,  $^{244}\text{Cm}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{144}\text{Ce}$  und  $^{148}\text{Nd}$ . Zudem wurden einige Messun-

gen von Isotopenverhältnissen von Kr- und Xe-Isotopen untereinander sowie von  $^{148}\text{Nd}$  zu  $^{150}\text{Nd}$  vorgenommen.

Für die Proben aus dem Japan Power Demonstration Reactor-1 sind neben den Konzentrationen für die Uran- und Plutoniumisotope auch Konzentrationsmessungen für die Neodymisotope 143 bis 146, 148 und 150 sowie für die Isotope  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{242\text{m}}\text{Am}$ ,  $^{242}\text{Cm}$ ,  $^{244}\text{Cm}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{144}\text{Ce}$ ,  $^{154}\text{Eu}$  und  $^{155}\text{Eu}$  verfügbar.

Die Messungen der Proben des Reaktors Quad Cities-1 enthalten neben den Konzentrationen der Uran- und Plutoniumisotope auch die Werte für die Neodymisotope 143, 145, 146, 148 und 150, die Samariumisotope 147 und 149 bis 152, die Americiumisotope 241, 242m und 243, die Curiumisotope 243 bis 245 sowie für die Isotope  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{95}\text{Mo}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{101}\text{Ru}$ ,  $^{103}\text{Rh}$ ,  $^{109}\text{Ag}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{151}\text{Eu}$ ,  $^{153}\text{Eu}$ ,  $^{155}\text{Eu}$  und  $^{155}\text{Gd}$ .

Entgegen den Messungen von Proben der übrigen Reaktoren enthalten die Proben aus Fukushima-Daiichi-3, Tsuruga-1 und Monticello-1 im Wesentlichen nur Konzentrationen für Uran- und Plutoniumisotope. Im Fall von Fukushima-Daiichi-3 sind selbst letztere nicht in allen Proben verfügbar. Lediglich in einigen Proben aus Monticello-1 sind zusätzlich noch Konzentration für die Isotope  $^{242}\text{Cm}$  und  $^{244}\text{Cm}$  enthalten.

Für jedes Nuklid in jeder Messreihe ist die Messmethode spezifiziert, sowie eine Abschätzung der Messgenauigkeit. Letztere wird typischerweise zwischen 0,1 % und 2,0 % angegeben, mit bis 10 % bei einigen Curium-Isotopen in einzelnen Fällen auch deutlich darüber. Auch ein Referenzdatum ist angegeben, wobei dies sich zumeist auf den Entladezeitpunkt bezieht, auf den die Messdaten zurückgerechnet wurden.

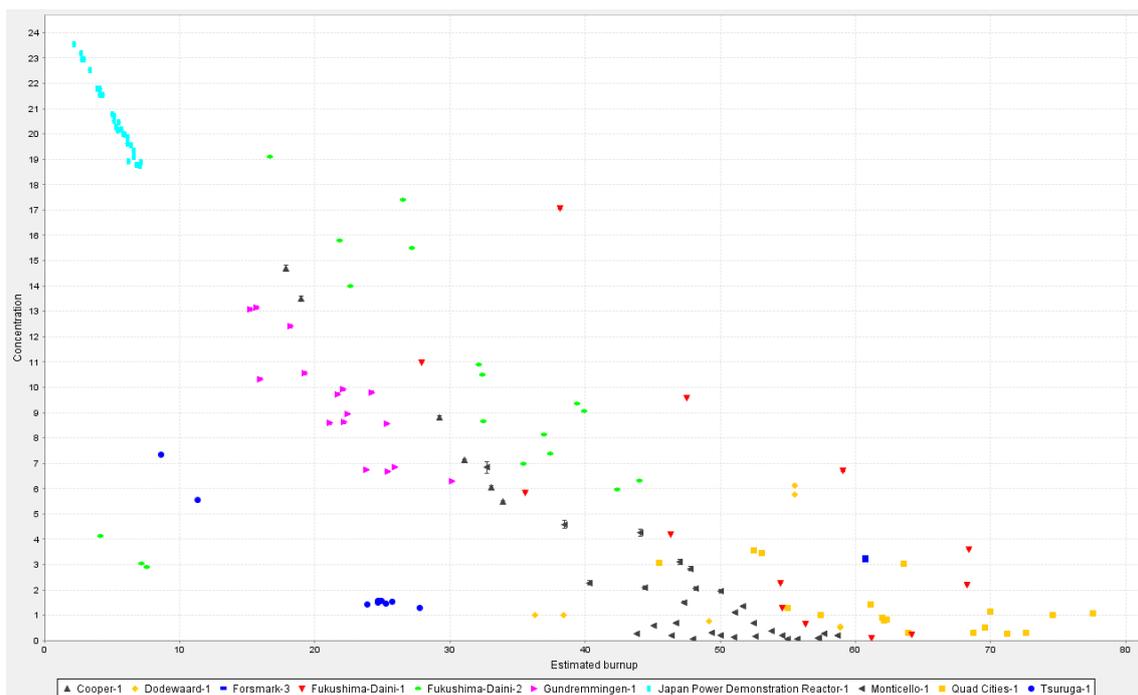
Die gemessenen Konzentrationen der Nuklide sind in  $\text{mg/gU}_i$ , also Milligramm Isotop pro Gramm Uran des frischen Brennstoffs, angegeben. Dabei handelt es sich häufig um Werte die aus den Daten der Originalquellen, welche andere Einheiten verwenden (z. B.  $\text{mol/molU}_{\text{final}}$ ), errechnet wurden. Die Tabellen der SFCOMPO-2.0 enthalten aber jeweils beide Werte, Originalzitat und abgeleitete Konzentration in  $\text{mg/gU}_i$ .

Der Abbrandbereich des gesamten Probensatzes erstreckt sich von etwa 4 GWd/tHMI hin bis zu etwa 68 GWd/tHMI, bei Anfangsanreicherungen von 0,71 %  $^{235}\text{U}$  (Natururan-Blanket als axialer Reflektor) bis zu 4,9 %  $^{235}\text{U}$ . Eine Reihe von Proben mit Gadolinium als integralem abbrennbarem Absorber ist ebenfalls enthalten.

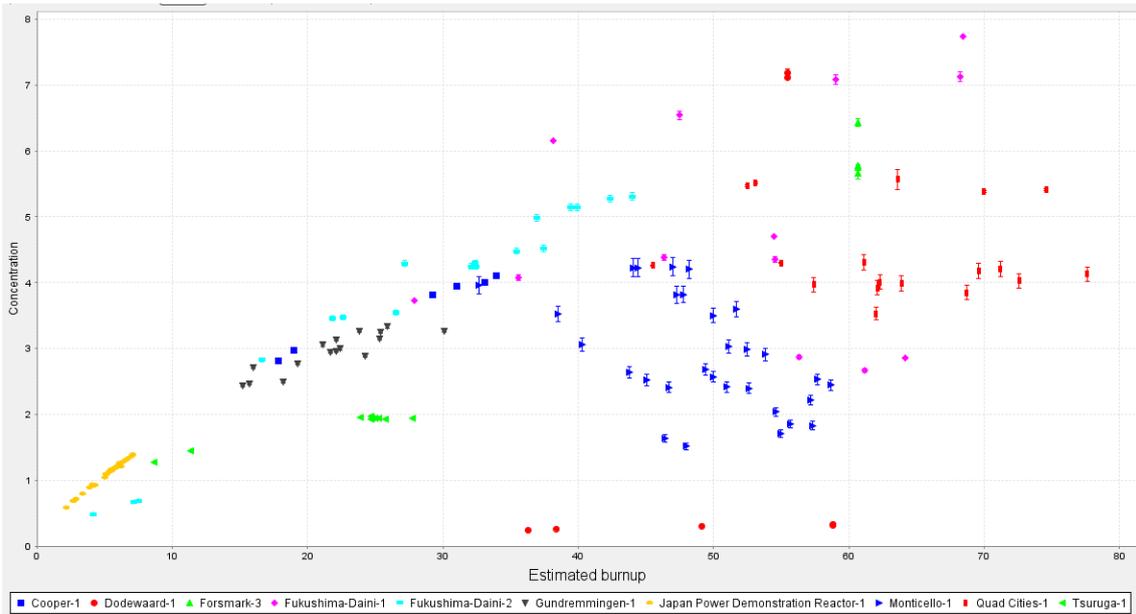
In den folgenden Abbildungen sind die gemessenen Konzentrationen der wichtigen Uran- und Plutoniumisotope aus allen Proben in Abhängigkeit von dem erreichten Probenabbrand grafisch dargestellt. Der (geschätzte) Abbrand ist in der Einheit GWd/tHM<sub>i</sub> aufgetragen, während die Konzentrationen der Isotope in der Einheit mg/gU<sub>i</sub> bezeichnet sind.

Streuungen der Messpunkte können sowohl durch das Messverfahren und die damit involvierten Unsicherheiten begründet liegen, als auch durch die spektrale Sensitivität der jeweiligen Transmutation während der Bestrahlung aufgrund der Reaktorfahrweise. Letztere kann bei Siedewasserreaktoren bekanntermaßen stark schwanken. Deshalb kann aufgrund einer hohen Streubreite nicht automatisch auf die Qualität der Messpunkte geschlossen werden.

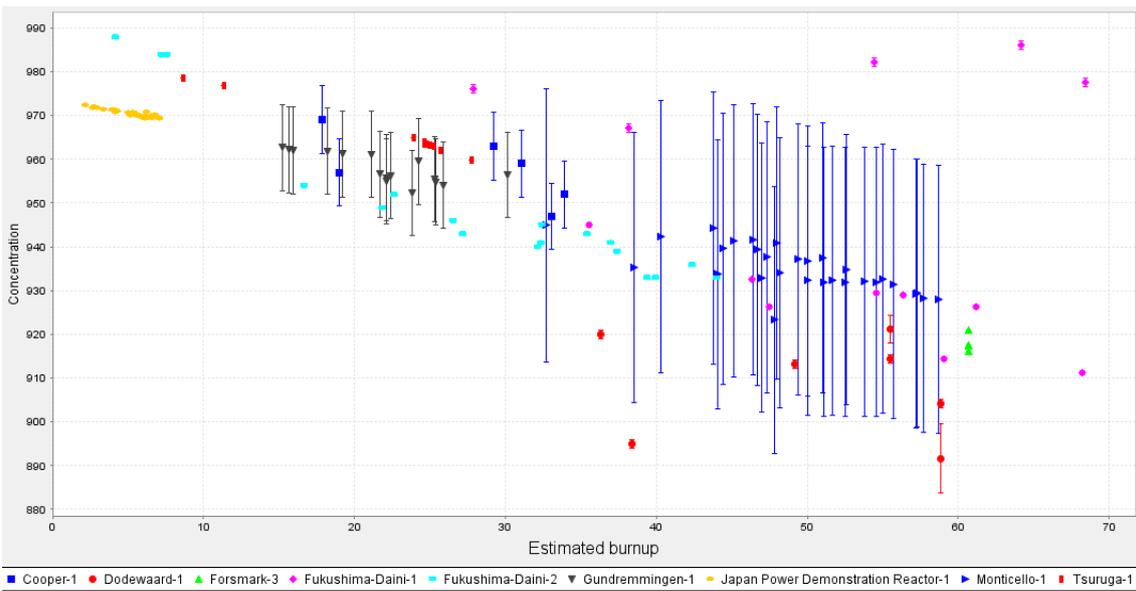
Die Farbkodierung weist auf den jeweiligen Reaktor hin aus dem die Proben entnommen wurden.



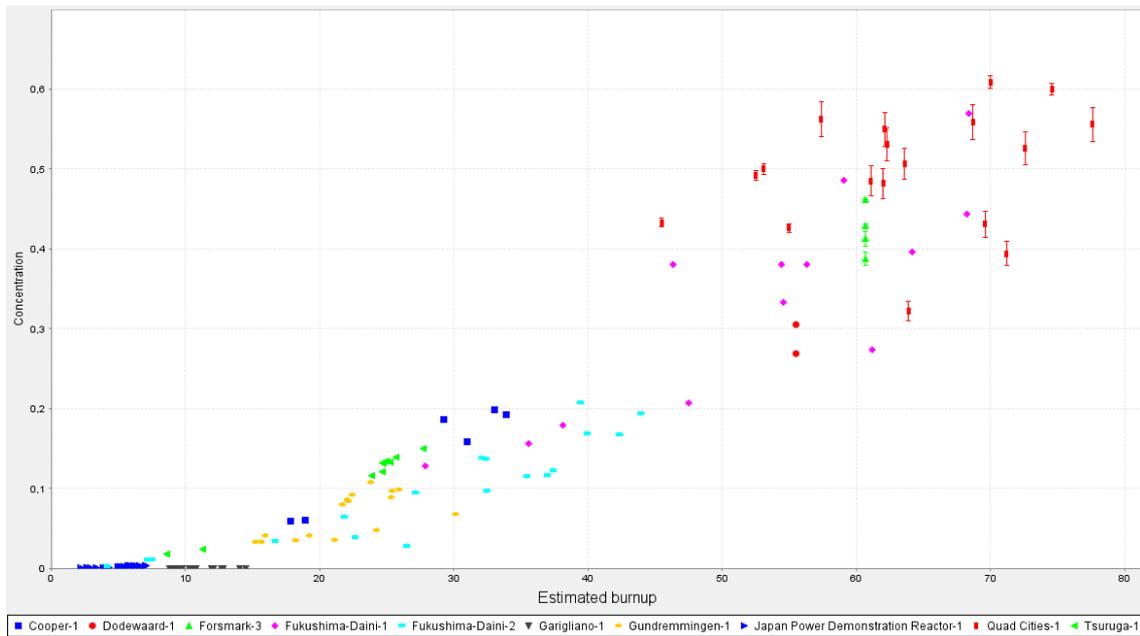
**Abb. 3.5** Übersicht über die gemessenen Konzentrationen an  $^{235}\text{U}$  in Abhängigkeit vom Probenabbrand für alle radiochemischen SWR-Analyseproben



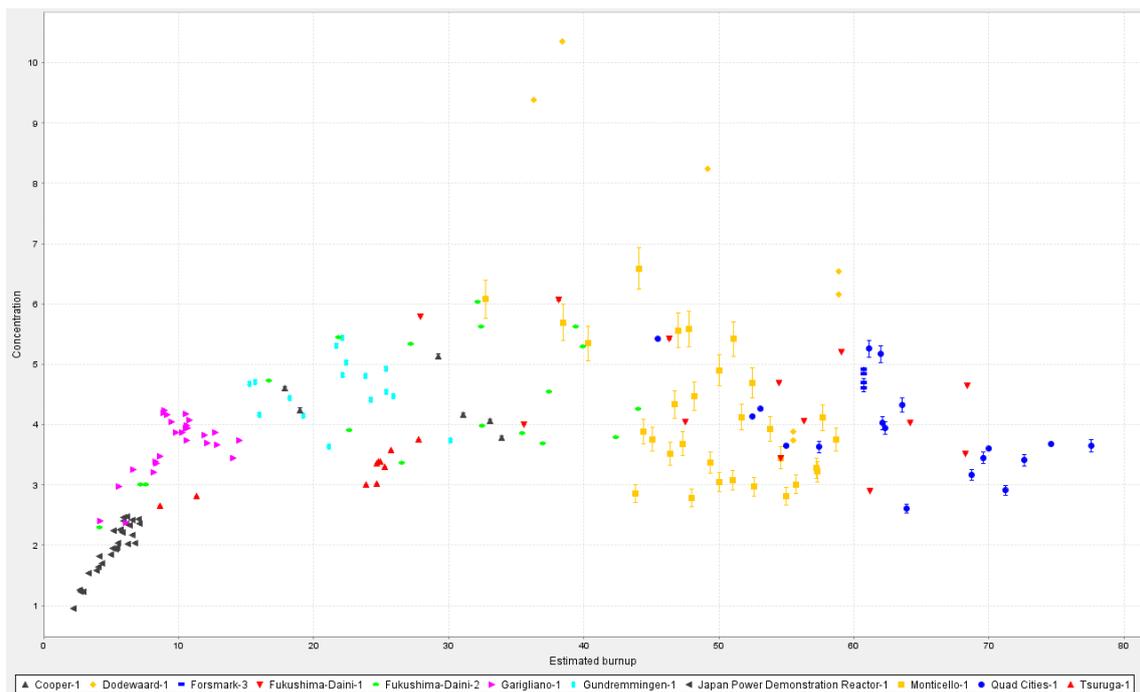
**Abb. 3.6** Übersicht über die gemessenen Konzentrationen an  $^{236}\text{U}$  in Abhängigkeit vom Probenabbrand für alle radiochemischen SWR-Analyseproben



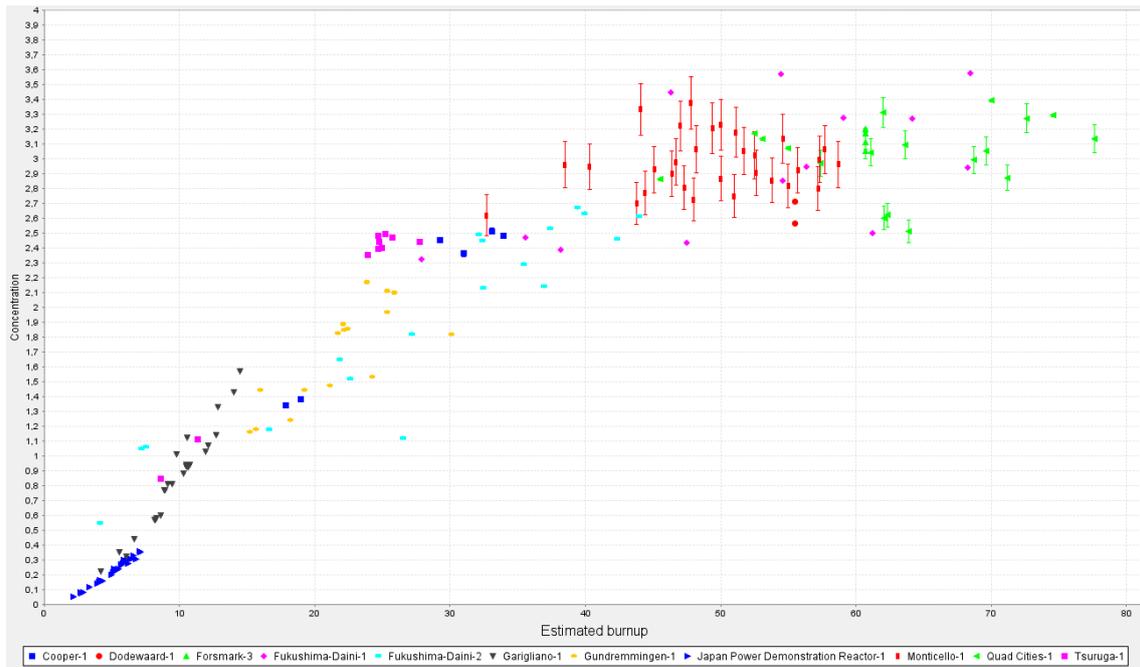
**Abb. 3.7** Übersicht über die gemessenen Konzentrationen an  $^{238}\text{U}$  in Abhängigkeit vom Probenabbrand für alle radiochemischen SWR-Analyseproben



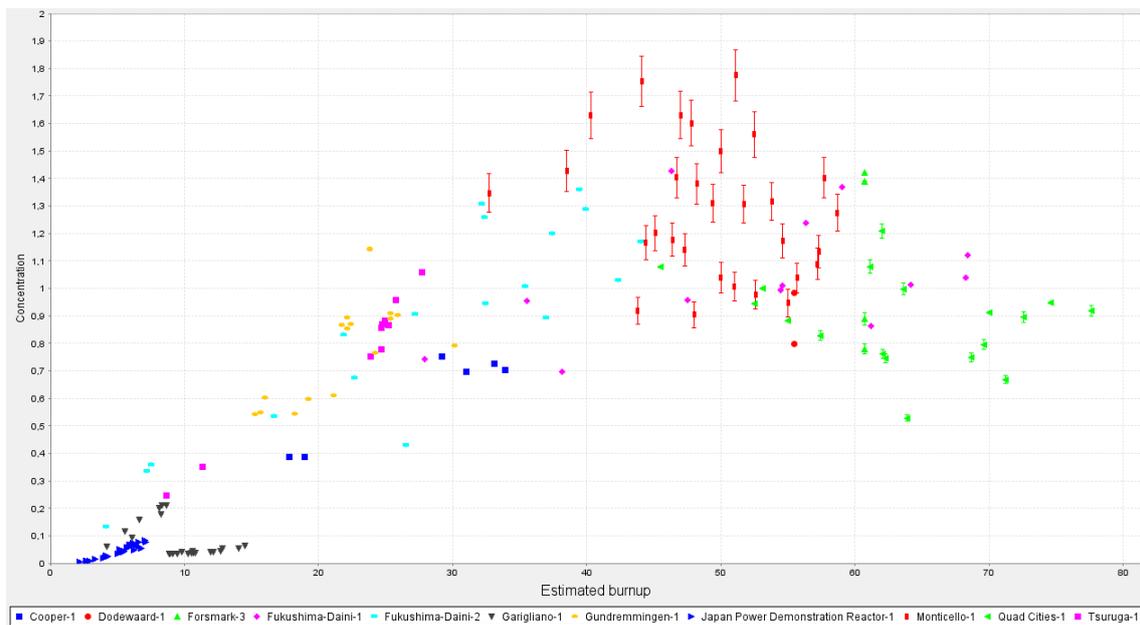
**Abb. 3.8** Übersicht über die gemessenen Konzentrationen an  $^{238}\text{Pu}$  in Abhängigkeit vom Probenabbrand für alle radiochemischen SWR-Analyseproben



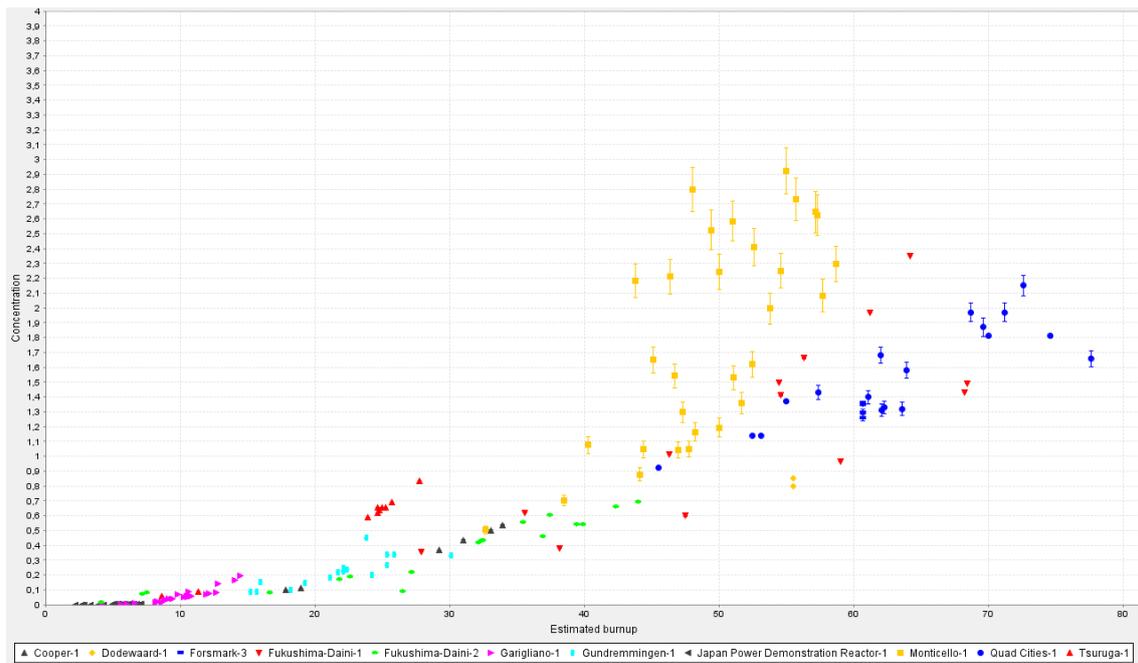
**Abb. 3.9** Übersicht über die gemessenen Konzentrationen an  $^{239}\text{Pu}$  in Abhängigkeit vom Probenabbrand für alle radiochemischen SWR-Analyseproben



**Abb. 3.10** Übersicht über die gemessenen Konzentrationen an  $^{240}\text{Pu}$  in Abhängigkeit vom Probenabbrand für alle radiochemischen SWR-Analyseproben



**Abb. 3.11** Übersicht über die gemessenen Konzentrationen an  $^{241}\text{Pu}$  in Abhängigkeit vom Probenabbrand für alle radiochemischen SWR-Analyseproben



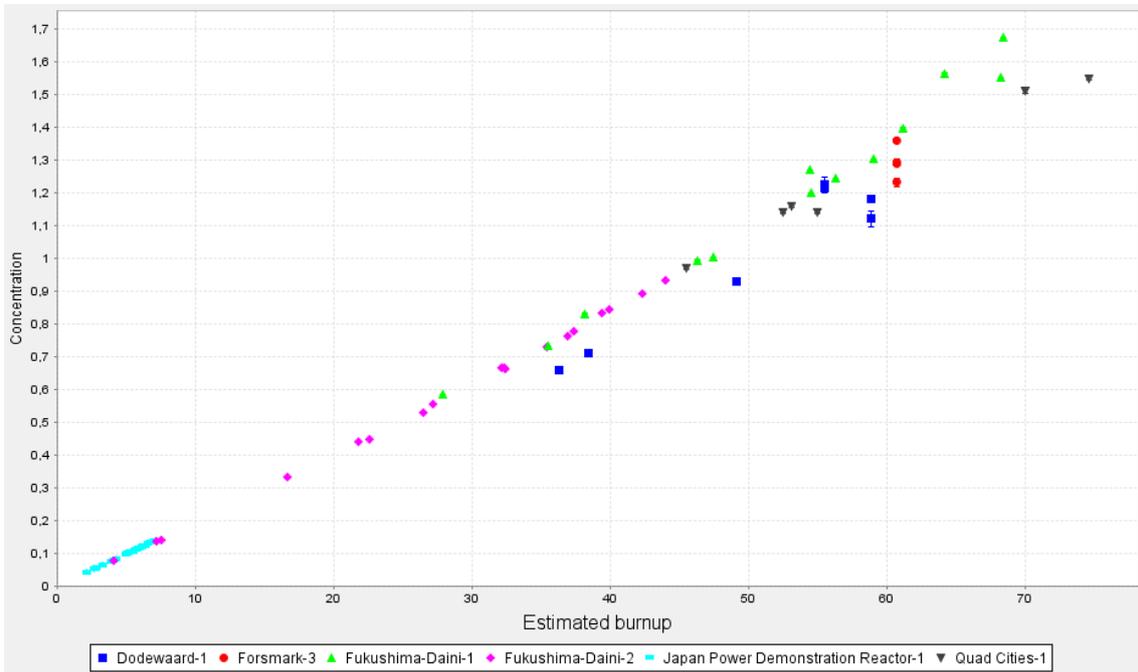
**Abb. 3.12** Übersicht über die gemessenen Konzentrationen an  $^{242}\text{Pu}$  in Abhängigkeit vom Probenabbrand für alle radiochemischen SWR-Analyseproben

Man erkennt die Abnahme der Konzentrationen an  $^{235}\text{U}$  (Verbrauch; Abb. 3.5) und  $^{238}\text{U}$  (Verbrauch, Transmutation; Abb. 3.7) mit zunehmendem Abbrand. Ebenso sichtbar wird die Zunahme von  $^{236}\text{U}$  (Abb. 3.6) und der Plutoniumisotope mit dem Abbrand. Lediglich  $^{239}\text{Pu}$  (Abb. 3.9), das während der Bestrahlung sowohl erzeugt als auch signifikant verbraucht wird, zeigt für höhere Abbrände eine Art Sättigungsverhalten in der Konzentration, welches aus der Kompensation von Erzeugung und Verbrauch zu erklären ist. Auch ist zu erkennen dass im Fall des  $^{236}\text{U}$  die Streuung der Messpunkte für Fukushima Daini-1 wesentlich höher ist und der Verlauf weniger linear mit dem Abbrand als im Fall der anderen dargestellten Messprogramme. Ein ähnliches Bild für diesen Probensatz zeigt sich, in geringerer Ausprägung, auch für einige andere Nuklide; dieses Phänomen könnte durch die vergleichsweise hohen Probenabbrände dieser Serie mit begründet sein, sowie ggf. durch (undokumentierte) starke Schwankungen in der Bestrahlungsgeschichte.

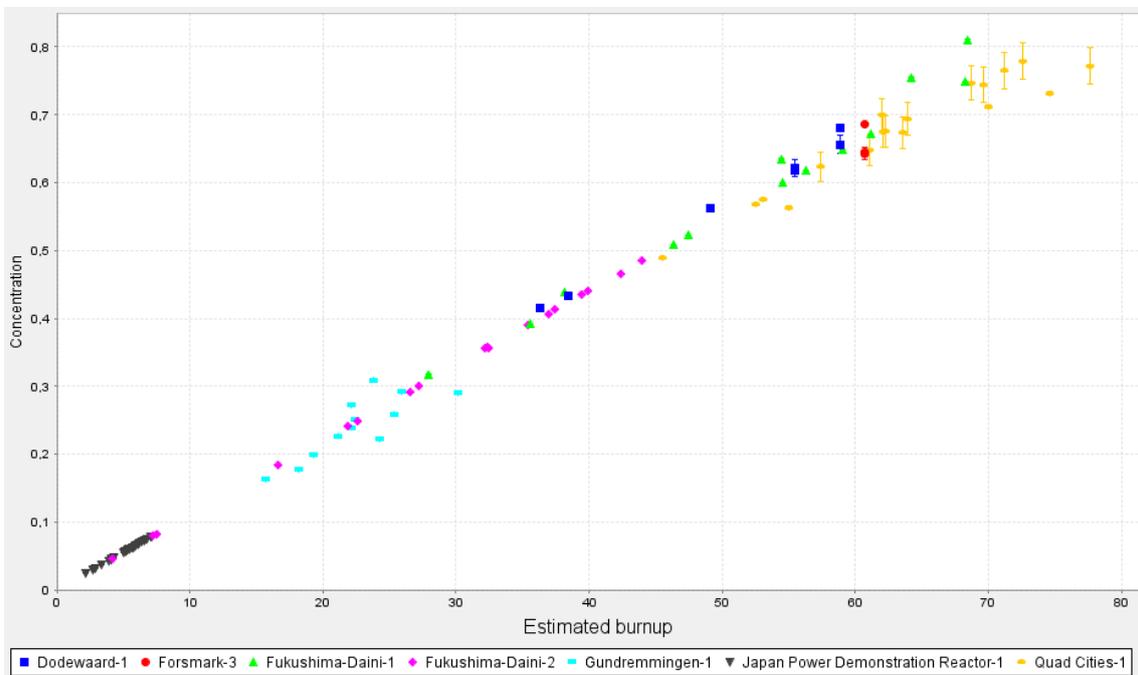
Allgemein ist je nach spektraler Sensitivität der Nuklide deren Streuung aufgrund unterschiedlicher Bestrahlungsbedingungen und unabhängig von Messmethode und –genauigkeit verschieden stark ausgeprägt.

Neben den Uran- und Plutoniumnukliden sind auch diejenigen Nuklide von Interesse, welche als sogenannte Abbrandmarker fungieren. In Abb. 3.13 und Abb. 3.14 sind

stellvertretend hierfür die gemessenen Konzentrationen von  $^{146}\text{Nd}$  und  $^{148}\text{Nd}$  für alle Proben aus SWR-Brennstoff in Abhängigkeit von dem Probenabbrand dargestellt.



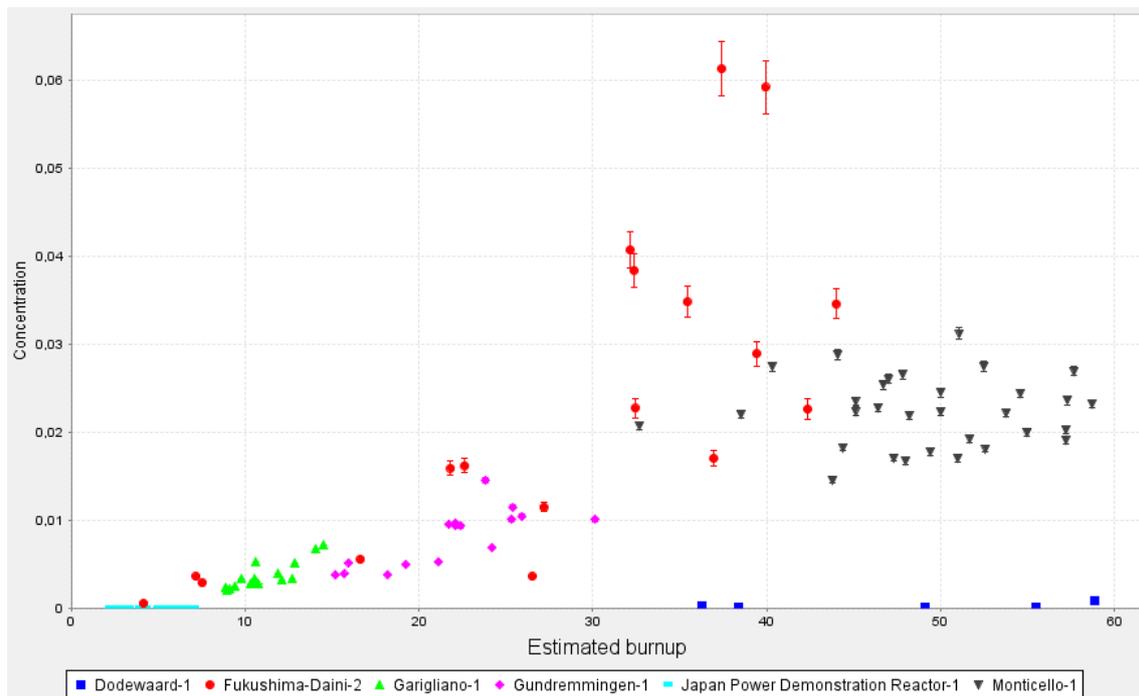
**Abb. 3.13** Übersicht über die gemessenen Konzentrationen an  $^{146}\text{Nd}$  in Abhängigkeit vom Probenabbrand für alle radiochemischen SWR-Analyseproben



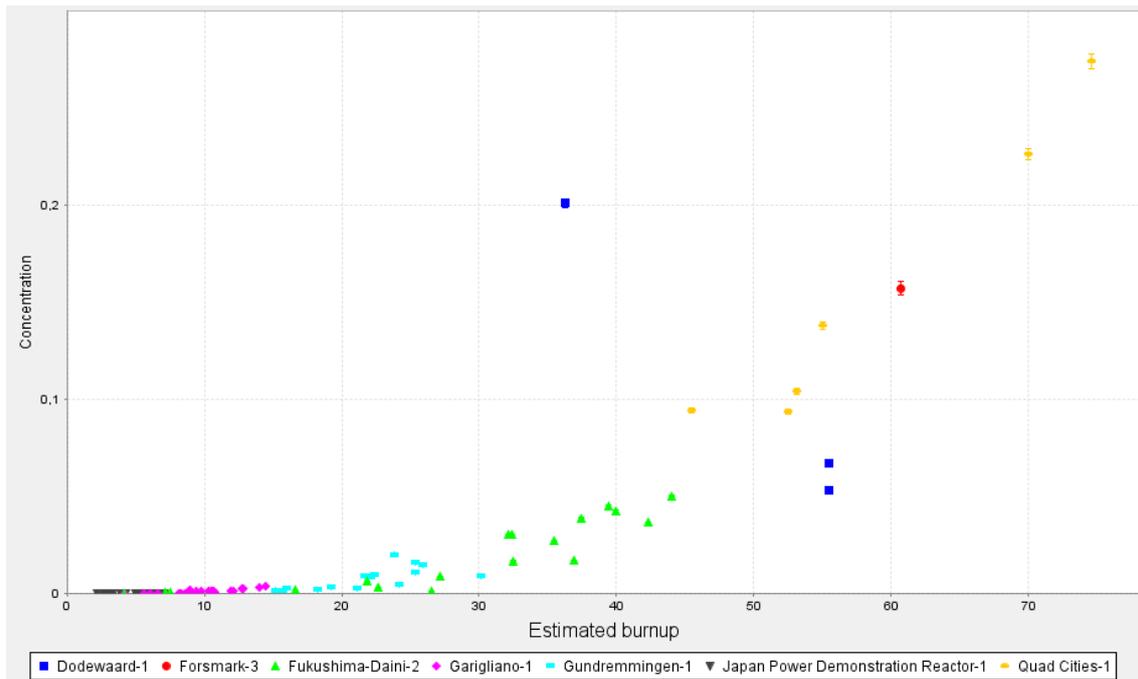
**Abb. 3.14** Übersicht über die gemessenen Konzentrationen an  $^{148}\text{Nd}$  in Abhängigkeit vom Probenabbrand für alle radiochemischen SWR-Analyseproben

In beiden Abbildungen ist der nahezu lineare Anstieg der Konzentration dieser beiden Neodym-Isotope mit dem Abbrand bis ca. 68 GWd/tHMi zu erkennen. Die niedrige Streubreite zeigt zudem die geringe Sensitivität der erzeugten Mengen dieser Isotope von den expliziten Bestrahlungsbedingungen und dem jeweils vorherrschenden Neutronenspektrum.

Die folgenden beiden Abbildungen zeigen die gemessenen Konzentrationen der radiologisch bedeutsamen Nuklide  $^{242}\text{Cm}$  und  $^{244}\text{Cm}$  für alle Proben aus SWR-Brennstoff in Abhängigkeit vom Probenabbrand.



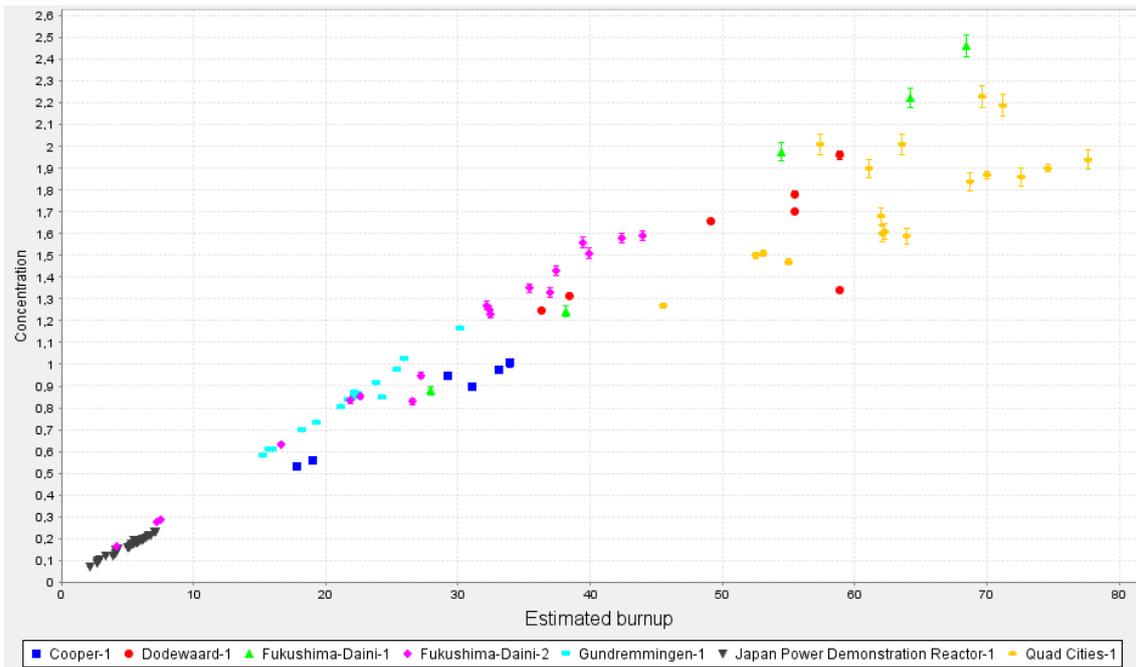
**Abb. 3.15** Übersicht über die gemessenen Konzentrationen an  $^{242}\text{Cm}$  in Abhängigkeit vom Probenabbrand für alle radiochemischen SWR-Analyseproben



**Abb. 3.16** Übersicht über die gemessenen Konzentrationen an  $^{244}\text{Cm}$  in Abhängigkeit vom Probenabbrand für alle radiochemischen SWR-Analyseproben

In beiden Fällen erkennt man die zunächst langsame, dann verstärkte Zunahme der Konzentration der beiden Curium-Isotope mit zunehmendem Abbrand, sowie eine hohe Streubreite der Messpunkte bei hohen Abbränden. Das zuerst langsame Anwachsen der Konzentrationen spiegelt hier den zunächst notwendigen Aufbau von  $^{239}\text{Pu}$  und daraus resultierend von  $^{241}\text{Am}$  wieder, welches letztlich durch Zerfall und weiteren Neutroneneinfang erst zu  $^{242}\text{Cm}$  führt. Die zu beobachtende große Streuung der Messpunkte dürfte zumindest teilweise durch die Sensitivität der komplexen Curiumaufbauketten gegenüber dem Neutronenspektrum begründet sein.

In Abb. 3.17 sind die gemessenen Konzentrationen des ebenfalls radiologisch bedeutsamen Nuklids  $^{137}\text{Cs}$  für alle Proben aus SWR-Brennstoff in Abhängigkeit von dem Probenabbrand dargestellt.



**Abb. 3.17** Übersicht über die gemessenen Konzentrationen an  $^{137}\text{Cs}$  in Abhängigkeit vom Probenabbrand für alle radiochemischen SWR-Analyseproben

Hier steigt die gemessene Konzentration an  $^{137}\text{Cs}$  mit dem Probenabbrand bis etwa 40 GWd/tSM nahezu linear an, wobei die Messwerte aus Cooper-1 geringfügig systematisch unterhalb den anderen Messpunkten liegen.

### 3.1.2 Informationen zur Bestrahlungsgeschichte der in SFCOMPO-2.0 enthaltenen SWR-Proben

Für alle hier betrachteten Messproben sind die Zusammensetzung des frischen Brennstoffs, ggf. auch hinsichtlich des Gadoliniumgehalts, sowie die wesentlichen geometrischen Abmessungen des Brennelements bzw. Probenstabs hinreichend genau spezifiziert. Dies gilt insbesondere auch für die axiale Position und Größe der entnommenen Messproben. Hinsichtlich der zeitlichen Bestrahlungsgeschichten weisen die Informationen der Proben aus den verschiedenen Reaktoren deutliche Unterschiede hinsichtlich Qualität und Umfang auf. Dies wird in den folgenden Unterkapiteln näher beschrieben.

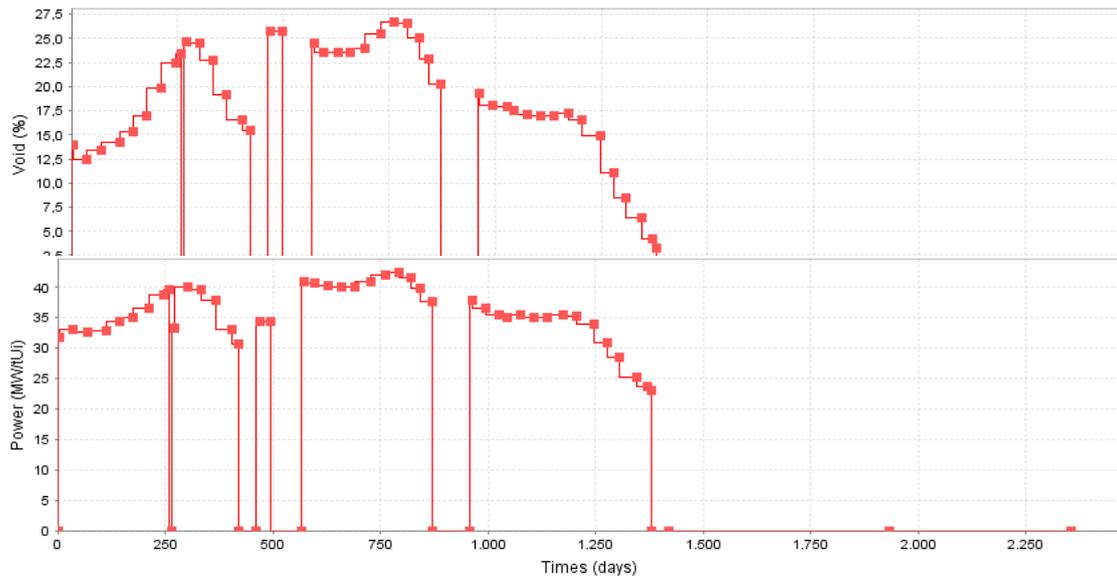
#### 3.1.2.1 Cooper-1

Der Reaktor Cooper-1 ist ein amerikanischer Siedewasserreaktor mit etwa 770 MW elektrischer Leistung und seit Juli 1974 in Betrieb. Die Proben wurden vom Pacific

Northwest National Laboratory (PNNL) im Auftrag des U.S. Department of Energy Office of Civilian Radioactive Waste Management (OCRWM) Programms vermessen. Die verfügbaren Reaktordaten zu Cooper-1 umfassen in Histogrammform detailliert die integrale Reaktorleistung während der Bestrahlung des Brennelements CZ346. Zudem sind Daten zum Abbrand bzw. kumulativen Abbrand des Brennelements gegeben, die auf einer mittleren Brennelement-Leistung pro Zyklus basieren. Letztere Daten werden sowohl für das Brennelement integral als auch für die einzelnen Proben spezifiziert. Probengenaue Daten stehen nicht zur Verfügung. Kühlmitteldruck und –temperatur sowie die Flussrate sind angegeben. Zur zeitlichen Entwicklung des lokalen Dampfblasengehalts ist lediglich ein aus den übrigen Angaben abgeschätzter Zyklusmittelwert spezifiziert.

### **3.1.2.2 Fukushima Daini-1**

Fukushima Daini ist ein japanisches Kernkraftwerk mit 4 Siedewasserreaktoren a 1100 MW elektrischer Leistung. Die Blöcke sind zwischen 1981 und 1986 in Betrieb gegangen. Die Daten zu den Messproben aus Fukushima Daini-1 enthalten außer Start- und Enddatum der Bestrahlungszyklen keine Informationen zu integralen Werten wie Reaktor- oder Brennelement-Leistung. Dafür sind probenspezifisch detaillierte Angaben zur lokalen Leistungs- und Dampfblasenentwicklung während der Bestrahlung verfügbar. In Abb. 3.18 sind exemplarisch die zeitliche Entwicklung der lokalen Leistung und des lokalen Dampfblasengehalts an der Position der Probe „GdB“ dargestellt. Kühlmitteldruck und –temperatur, Dampfblasengehalt sowie die Flussrate sind angegeben.



**Abb. 3.18** Zeitliche Entwicklung der lokalen Leistung und des lokalen Dampfblasen-  
gehalts an der Position der Probe „GdB“ aus dem Kernkraftwerk Fukushi-  
ma Daini-1

### 3.1.2.3 Fukushima Daini-2

Die Daten zu den Messproben aus Fukushima Daini-2 enthalten außer Start- und Enddatum der Bestrahlungszyklen keine Informationen zu integralen Werten wie Reaktor- oder Brennelement-Leistung. Dafür sind probenspezifisch detaillierte Angaben zur lokalen Leistungsentwicklung während der Bestrahlung in Histogrammform verfügbar. Zur Dampfblasenentwicklung ist jeweils ein über den gesamten Bestrahlungszeitraum konstanter Wert angegeben, der vermutlich aufgrund der axialen Position der Probennahme durch Modellannahmen abgeschätzt wurde. Kühlmitteldruck und -temperatur, sowie die Flussrate sind angegeben.

### 3.1.2.4 Gundremmingen A

Gundremmingen A war ein älterer Siedewasserreaktor des Kernkraftwerks Gundremmingen. Dieser Block hatte eine elektrische Leistung von 237 MW und war von 1966 bis 1977 in Betrieb. Die Daten zu den Messproben aus Gundremmingen A enthalten außer Start- und Enddatum der Bestrahlungszyklen keine integralen Informationen zum Reaktorbetrieb, dafür aber zur Brennelementleistung. Auch sind die entsprechenden Daten probenspezifisch in Form punktwiser Werte zum Zyklusende spezifiziert.

Angaben zur zeitlichen Entwicklung des Dampfblasengehalts sind ebenfalls nur zyklengemittelt vorhanden. Kühlmitteldruck und –temperatur sind angegeben, sowie eine Abschätzung der Brennstofftemperatur.

### **3.1.2.5 Dodewaard**

Das Kernkraftwerk Dodewaard war ein niederländischer Siedewasserreaktor mit 60 MWe Leistung, der am 18.10.1968 in Betrieb ging. Im Rahmen des ARIANE Programms wurden eine Urandioxid- (DU1) und vier MOX-Proben (DM1-4) aus drei Stäben dreier 6x6 Brennelemente untersucht. Die Anreicherungen der Brennstäbe der Brennelements lagen zwischen 1,8 und 3,2 Gew.-%, mit der Ausnahme des DU1-Probenstabs, der 4,94 Gew.-% <sup>235</sup>U aufwies. In dem Brennelement waren auch zwei MOX-Brennstäbe enthalten. Der Abbrand der Probe DU1 beträgt etwa 55 GWd/tSM. Gemessen wurden die Massen von 52 Nukliden in zwei unabhängigen radiochemischen Laboratorien.

Die Informationen zu Reaktorauslegung und Betriebsdaten für das Brennelement sind vollständig und besitzen einen hohen Detaillierungsgrad. Für die sehr komplexe Bestrahlungsgeschichte sind ggf. Vereinfachungen erforderlich /HER 98/, /PRI 03/, /NEA 14a/.

### **3.1.2.6 Forsmark-3**

Forsmark-3 ist ein schwedischer Siedewasserreaktor mit 1190 MWe, der am 10.12.1980 seinen kommerziellen Betrieb aufnahm. Aus diesem Reaktor liegt eine radiochemische Analyseprobe aus einem nahezu zentral gelegenen Stab eines SVEA-100 Brennelements vor, wobei die entsprechenden Messungen in drei voneinander unabhängigen radiochemischen Laboratorien zu unterschiedlichen Zeitpunkten durchgeführt wurden. Bei Studsvik wurden die Messungen zwei Mal durchgeführt, 2003 und 2006, so dass insgesamt vier Messwerte je Nuklid vorliegen.

Die Informationen zu Reaktorauslegung und Betriebsdaten für das Brennelement sind vollständig und besitzen einen hohen Detaillierungsgrad. Für die sehr komplexe Bestrahlungsgeschichte sind ggf. Vereinfachungen erforderlich. Verschiedene Differenzen zwischen den unterschiedlichen Laboratorien und Messungen erfordern eine gesonderte Betrachtung /ZWI 08, TÖR 11/.

### **3.1.2.7 Fukushima Daiichi-3**

Fukushima Daiichi-3 ist ein japanischer Siedewasserreaktor mit 784 MWe Leistung, der am 26.10.1974 erstmalig mit dem Netz synchronisiert wurde, und der in Folge des durch den Tsunami am 11.03.2011 verursachten Unfalls zerstört wurde. Radiochemische Analysen für 36 Proben von 18 Stäben aus sieben Brennelementen liegen vor.

Die Daten zum Reaktordesign und zur Leistungsgeschichte sind unvollständig, so dass die Messdaten in dieser Form nicht verwendet werden können. Insbesondere fehlen Angaben zum Dampfblasengehalt und zur Kühlmitteltemperatur, sowie Angaben zu den Abmessungen des Wasserkanals. /HER 98, NEA 12/.

### **3.1.2.8 Garigliano**

Garigliano ist ein italienischer Siedewasserreaktor mit 160 MWe Leistung, der am 01.01.1964 zum ersten Mal mit dem Netz synchronisiert wurde. Es wurden Proben aus 18 Brennstäben in der gleichen Axialhöhe eines Brennelementes sowie acht Proben aus einem Stab eines weiteren Brennelements entnommen. Die Abbrände betragen in etwa die Hälfte des heute typischen SWR-Zielabbrands. Die 12 Eckstäbe der 49 Stäbe des Brennelements hatten eine niedrigere <sup>235</sup>U-Anreicherung. Die Verwendung der vier Proben aus den Eckstäben wird nicht empfohlen, da erwartet wird dass sie einen zusätzlichen Bias in die berechneten Nuklidichten einbringen würden.

Die Informationen zu Reaktorauslegung und Betriebsdaten für das Brennelement sind vollständig, fehlen allerdings teilweise noch in der SFCOMPO-2.0. Die Daten könnten trotz gewisser Unsicherheiten begrenzte Anwendung zur Code-Validierung finden /HER 98/.

### **3.1.2.9 JPDR**

Der „Japan Power Demonstration Reactor“ (JPDR) war ein japanischer Versuchs-Siedewasserreaktor mit 13 MWe Leistung, der erstmals am 26.10.1963 mit dem Netz synchronisiert wurde. Radiochemische Analysen von 24 Proben von acht Brennstäben aus einem einzigen Brennelement wurden durchgeführt. Die Leistungsgeschichten sind im Detail angegeben. Keine der Proben erreichte mehr als ein Drittel des heute typischen Zielabbrands eines Siedewasserreaktors. In den meisten der Proben wurden die

Massen von 29 Nukliden bestimmt. Die Dimensionen des Reaktors, aktive Höhe und Durchmesser, waren signifikant kleiner als bei typischen Siedewasserreaktoren. Die Daten zum JPDR beinhalten die nodalen Dampfblasengehalte für alle 38 Bestrahlungszyklen des Reaktors. Diese Daten können trotz eingeschränkter Repräsentativität grundsätzlich zu Validierungszwecken herangezogen werden /HER 98, NEA 12/.

#### **3.1.2.10 Monticello**

Monticello ist ein US-amerikanischer Siedewasserreaktor mit 600 MWe Leistung, der am 30.06.1971 seinen kommerziellen Betrieb aufnahm. Radiochemische Analysen von 30 Proben aus sechs Brennstäben, darunter ein Gadolinium-haltiger Stab, liegen vor. Die Anfangsanreicherung betrug 2,87 Gew.-%  $^{235}\text{U}$  bei einem mittleren Abbrand von 45 GWd/tSM und lokalen Probenabbränden bis 59 GW/tSM. Dies bedeutet ein signifikantes „Überbrennen“ dieser Proben v. a. hinsichtlich  $^{235}\text{U}$ , aber auch  $^{239}\text{Pu}$ . Deshalb werden kleine absolute Messunsicherheiten zu großen Relativabweichungen in den gemessenen Nuklidmassen.

Die Verwendung dieser Messdaten insbesondere mit eindimensionalen Abbrandverfahren wird nicht empfohlen, auch wegen mangelnder Repräsentativität dieser überbrannten Proben für typische Brennstoffe /HER 98, NEA 12/. Eine Verwendung mit moderneren zwei- oder dreidimensionalen Rechenmethoden ist noch zu überprüfen.

#### **3.1.2.11 Quad Cities-1**

Quad Cities-1 ist ein US-amerikanischer Siedewasserreaktor mit 829 MWe Leistung, der am 12.04.1972 erstmals ans Netz ging. Radiochemische Analyseproben wurden im Rahmen des „Advanced Materials Test“ Programms (ATM) durchgeführt. Dabei wurden die Massen von 30 Nukliden gemessen.

Die Daten zum Reaktordesign und zur Leistungsgeschichte sind unvollständig, so dass die Messdaten in dieser Form nicht verwendet werden können /GUE 91, HER 98/.

### **3.1.2.12 Tsuruga-1**

Tsuruga-1 ist ein japanischer Siedewasserreaktor mit 357 MWe Leistung, der am 14.03.1970 seinen kommerziellen Betrieb aufnahm. Radiochemische Analysen von zwölf Proben aus zwei Stäben wurden durchgeführt. Zehn der Proben mit niedriger Anreicherung aus Eckstäben wurden vermessen, sowie zwei mit höherer jedoch unbekannter Anreicherung.

Die Daten zum Reaktordesign und zur Leistungsgeschichte sind unvollständig, so dass die Messdaten in dieser Form nicht verwendet werden können /HER 98, NEA 12/.

### **3.1.3 Weitere, derzeit nicht in SFCOMPO-2.0 enthaltene Proben**

#### **3.1.3.1 Limerick**

Limerick ist ein US-amerikanisches Kernkraftwerk mit zwei Siedewasserreaktoren mit je 1134 MWe Leistung. Radiochemische Analyseproben wurden im Rahmen des Yucca Mountain Project (YMP) durchgeführt. Dabei wurden acht Proben (zwei mit Gadolinium) aus drei Stäben eines GE 11 9 x 9 Brennelements untersucht, wobei unklar ist in welchem Block das Brennelement im Einsatz war. Die Probenabbrände erstrecken sich von 37 bis 66 GWd/tSM. Die Analysen beinhalten auch die Massen einiger metallischer Spaltprodukte.

Die Messdaten sind öffentlich verfügbar, jedoch sind die Details des GE 11 Brennelements proprietär und nicht zugänglich, so dass die Daten in dieser Form nicht verwendet werden können /NEA 11, RAD 03/.

## **3.2 Bewertung und Schlussfolgerungen**

Unter Betrachtung des Detaillierungsgrads der in SFCOMPO-2.0 vorliegenden Daten zur Bestrahlungsgeschichte einerseits und dem Umfang des Messprogramms andererseits erscheinen die Messungen der Proben aus dem Kernkraftwerk Fukushima Dai-1 und -2 gegenwärtig als am besten geeignet für eine Codevalidierung.

Im Falle von Cooper-1 stellen die recht groben bzw. fehlenden Angaben zu Leistungs- und Dampfblasengeschichte ein Hindernis bei der Modellierung dar. Ähnliches gilt für

die Daten, die aus den Proben aus Gundremmingen A gewonnen wurden, für die einige für die Simulation notwendige Daten fehlen und abgeschätzt werden müssten.

Geeignet für eine Validierung erscheinen weiterhin die Daten aus den Kraftwerken Dodewaard und Forsmark. Von den Daten aus älteren Messprogrammen erscheinen JPDR sowie Garigliano mit gewissen Einschränkungen ebenfalls zur Validierung geeignet. Für die Daten aus Fukushima Daiichi-3 fehlt für eine Nachrechnung vor allem die Dampfblasengeschichte. Andere Daten wie von Tsuruga-1 und Quad Cities-1 sind auf Basis der zur Verfügung stehenden Informationen nicht zur Validierung geeignet, oder sind wie Monticello wegen mangelnder Repräsentativität derzeit nicht zu empfehlen.

Für die in Kapitel 6 beschriebene stochastische Unsicherheitsanalyse wurden aufgrund der hier dargelegten Sachverhalte zum einen die Proben aus Fukushima Daini-2 und zum anderen die Probe F3F6 aus Forsmark-3 ausgewählt. Für erstere gaben die oben dargelegte Datenqualität sowie die zum Zeitpunkt der Auswahl gegebene Verfügbarkeit in SFCOMPO-2.0 den Ausschlag. Letztere war zum Zeitpunkt der Auswahl zwar noch nicht in SFCOMPO-2.0 eingepflegt, war aber aus der Originalliteratur /ZWI 08, TÖR 11/ direkt verfügbar. Der Vorteil dieser Probe besteht zum einen in der Tatsache, dass es sich hier um ein sehr modernes Brennelement handelt und zum anderen in der Diskussion der Unsicherheiten in /ZWI 08/ und /TÖR 11/, die für die stochastische Analyse herangezogen werden können.



## 4 Inventarcode HELIOS

Für die Durchführung der hier vorgesehenen Analysen wurde das zweidimensionale Abbrandberechnungssystem HELIOS der Firma Studsvik /CAS91/ gewählt. Die Vorteile von HELIOS für dieses Projekt liegen in der im Vergleich zu anderen Abbrandberechnungsprogrammen (wie z. B. KENOREST oder TRITON) wesentlich kürzeren Rechenzeit aufgrund des deterministischen Lösungsansatzes bei dennoch maximaler Flexibilität bezüglich der (zweidimensionalen) Geometrie eines zu untersuchenden Brennelementes. Dies ermöglicht die Anwendung der Monte Carlo-Sampling-Methode, bei der eine Vielzahl von Einzelrechnungen mit variierten Parametern ausgewertet wird.

HELIOS ist ein deterministisches zweidimensionales Neutronen- und Gamma-Transportprogramm mit Abbrand- und Zerfallsrechnungen in allgemeinen zweidimensionalen Regionen /CAS91/. Die Entwicklung des Programms begann 1987, 1993 wurde die erste Version 1.0 veröffentlicht. Im Folgenden wird die Version 1.12 verwendet, mit Wirkungsquerschnitten beruhend auf der ENDF/B-VI Bibliothek und für HELIOS in eine 192 Gruppenstruktur angepasst. Die HELIOS Rechenkette ist in Abb. 4.1 schematisch dargestellt.

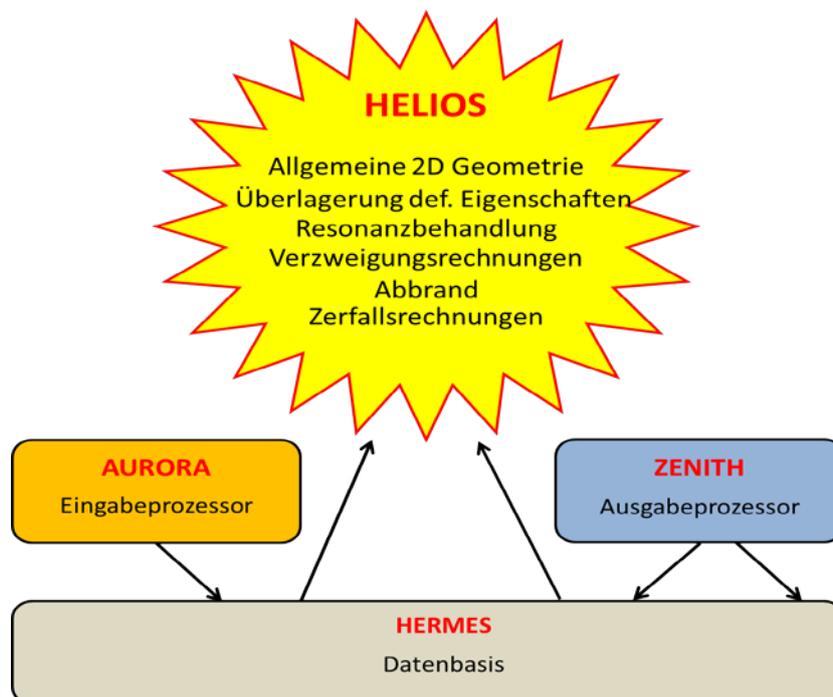


Abb. 4.1 Schematische Darstellung der HELIOS Rechenkette

Um mit HELIOS Berechnungen durchzuführen, benötigt man einen Ein- und Ausgabe-processor, da HELIOS selbst ausschließlich maschinenlesbaren Code verarbeiten kann. Mit dem Eingabeprozessor "Aurora" werden Geometriedaten (Strukturen, lokale Koordinaten, Verknüpfungen sowie Randbedingungen), Materialeigenschaften (Temperaturen, Materialzusammensetzungen und Dichten), Berechnungsdetails (Transportrechnungen, Abbrand, Verzweigungsrechnungen, etc.) und Ausgabeeigenschaften definiert. AURORA übersetzt diese Parameter in die für HELIOS lesbare binäre sog. HERMES-Datenbank. Die errechneten Ergebnisse und Zwischenschritte werden wiederum von HELIOS in die Datenbank geschrieben und können mit dem Ausgabeprozessor ZENITH ausgelesen und relevante Ergebnisse in selbst definiertem ASCII-Format ausgegeben werden.

Zur Überprüfung der komplexen Eingabestrukturen der AURORA-Eingabedateien wurden zusätzlich entsprechende Vergleichsrechnungen zwischen HELIOS und TRITON für das in Kapitel 7 verwendete generisches SWR Brennelement vorgenommen. Diese Vergleiche dienen in erster Linie zur Überprüfung des in der HELIOS-Rechnung hinterlegten Rechenmodells sowie zur besseren Beurteilung der Ergebnisse, siehe Kapitel 7.3.5. Es konnten hierbei auf umfangreiche Erfahrung aus früheren Vorhaben zurückgegriffen werden.

#### **4.1 Geometrieingabedatei für AURORA**

Im Geometrieteil der AURORA-Eingabedatei werden in der Ebene zuerst Punkte, und aus diesen dann Flächen definiert. Letztere werden anschließend mit Materialien verknüpft. Die geometrische Struktur des Modells kann aus beliebig vielen Einzelstrukturen aufgebaut werden, die z. B. verschieden angereicherte Brennstäbe oder Rand-, Eck-, oder Mittenstrukturen definieren. Diese Einzelstrukturen können zu Gruppen zusammengefasst werden, z. B. zu einem Viertel-Brennelement. Solche individuell aufgebauten Viertel werden können anschließen zu einem Brennelement zusammengesetzt werden. So kann die Anreicherung der einzelnen Stäbe in einer Matrix separat angegeben werden. Diese Vorgehensweise hat den Vorteil, dass bei der Anwendung solcher Eingabedateien, eventuelle Änderungen, z. B. in der Anreicherung einzelner Stäbe, leichter vorgenommen werden können, ohne dass der Benutzer tiefere Kenntnisse der übrigen Eingabedaten braucht. Als Randbedingung wird typischerweise auf allen vier Seiten spiegelnde Reflektion angenommen, womit die Einbettung des Brennelements in einen Reaktorkern mit gleicher Brennelementbestückung simuliert wird.

Ein exemplarischer Aufbau der Geometrie aus Geometriestrukturen und -gruppen wird in Kapitel 7.3 für das in Kapitel 7 verwendete generische SWR-Brennelement beschrieben.

In HELIOS ist das gesamte System in Raumelemente unterteilt, in denen Kollisionswahrscheinlichkeiten berechnet werden /CAS91/. Diese Raumelemente werden durch Schnittstellenströme gekoppelt, die entlang der Schnittstellen zweier Raumelemente konstant sind. Die Winkelabhängigkeit dieser Schnittstellenströme wird durch eine Unterteilung der gerichteten Halbkugel in Segmente realisiert und über einen Kopplungsparameter gesteuert, der im Geometrieteil der Eingabedaten von HELIOS spezifiziert werden muss. Vergleichsrechnungen mit verschiedenen Werten des Kopplungsparameter haben gezeigt, dass eine Unterteilung in vier azimutale Sektoren die Genauigkeit der Nachrechnungen der  $k_{\text{eff}}$ -Werte und der Nuklidichten im Vergleich zu niedrigeren Werten teilweise deutlich erhöht, ohne die Rechenzeit erheblich zu erhöhen. Speziell eine Einstellung ohne azimutale Unterteilung stellt eine zu große Vereinfachung dar und liefert unter Umständen stark verfälschte Ergebnisse.

#### **4.2 Material- und Parameter-Eingabedatei für AURORA**

In der Material- und Parameter-Eingabedatei für AURORA werden die Größen, die in der Geometriedatei durch Parameter ausgedrückt wurden, sehr komfortabel und übersichtlich in kompakter Form definiert. Diese Werte werden dann durch AURORA für die Datenbank HERMES in der Geometrieingabedatei an den entsprechenden Stellen ersetzt.

In dieser Material- und Parameter-Eingabedatei werden in einem ersten Block sämtliche Geometriegrößen, wie z. B. Brennstababstand, Radien von Pellets und Hüllrohren und weitere Abstände, bzw. Dicken angegeben. Es folgen Temperaturen, und die Hauptschritte von Leistung und Abbrand der verschiedenen Zyklen.

Im Materialblock werden die Materialien der unterschiedlich angereicherten Brennstäbe, Moderator, Absorber und Strukturmaterialien via Kernzahldichten definiert und diese den entsprechenden Gebieten in der Geometriedatei zugeordnet.

Im letzten Teil dieser Eingabedatei werden für die unterschiedlichen Zyklen Materialien, Dichten, und Temperaturen zusammengefasst, die Unterteilung der Zyklen in mehrere Abbrandschritte und die Ruhezeiten zwischen den Zyklen definiert sowie die Abklingzeit am Ende angegeben.

#### **4.3 Auslesedatei für ZENITH**

In der Auslesedatei für ZENITH werden die zu betrachtenden Größen definiert, die von dem Postprozessor ZENITH im Anschluss an die eigentliche Rechnung aus der binären HERMES-Datenbank in eine ASCII-Ausgabedatei geschrieben werden, die im Anschluss zur weiteren Auswertung verwendet werden kann. Dabei sind zum einen die entsprechenden Größen angeben, wie z. B. Kernzahldichten,  $k_{\text{eff}}$ -Werte, Abbrand, Zeitschritte, usw., zum anderen muss angegeben werden, für welche Nuklide, Zeitschritte, und Brennstäbe diese Werte ausgegeben werden sollen. Da dieser Postprozessor unabhängig von der eigentlichen HELIOS-Rechnung läuft, kann man den Umfang der weiter benutzten Ausgabedaten auch noch nachträglich ändern und spart so unter Umständen die erneute Rechnung, wenn sich das Rechenmodell nicht geändert hat, aber zusätzliche berechnete Größen für eine weitere Analyse von Interesse sind.

## 5 Erweiterungen in SUnCISTT

Dieses Kapitel diskutiert die Erweiterung des vorhandenen GRS-Codes SUnCISTT um die Möglichkeit, Nuklidinventare von mehreren 2D-Rechnungen zu verarbeiten.

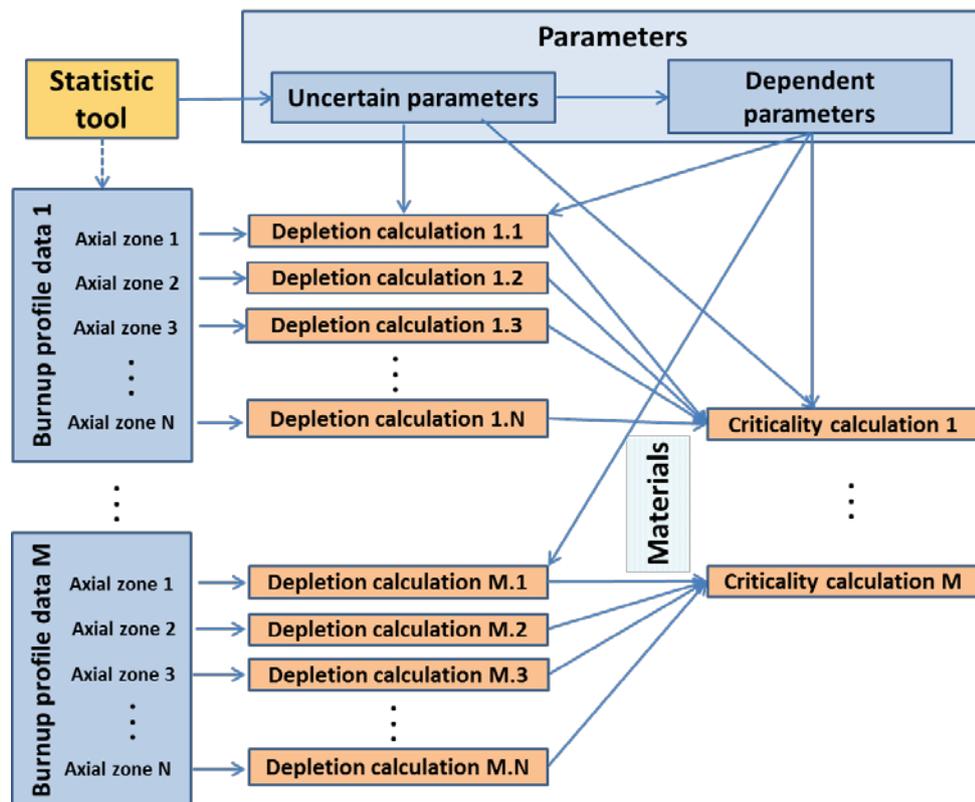
### 5.1 Ausgangspunkt für die SUnCISTT-Erweiterung

Die Erweiterungen der bestehenden SUnCISTT-Anwendung auf Unsicherheitsanalysen für Kritikalitätsrechnungen mit unsicherheitsbehafteten Nuklidinventaren abgebrannter Kernbrennstoffe erfolgte bereits im vorangegangenen Vorhaben 3611R03340 /BEH 14/. Mit ihnen wurde dort eine Unsicherheitsanalyse für einen generischen Transportbehälter mit 32 abgebrannten DWR-Brennelementen unter Berücksichtigung von typischen Abbrandprofilen durchgeführt. Damit ist bereits der grundsätzliche Arbeitsablauf für die hier vorgesehenen Unsicherheitsanalysen im Vorhaben 3611R03340 implementiert worden.

Abb. 5.1 gibt schematisch den Ablauf und den Datenfluss für Unsicherheitsanalysen von Kritikalitätsrechnungen mit unsicherheitsbehafteten Nuklidinventaren wieder. Dabei besteht die grundlegende Idee darin, die unsicherheitsbehafteten Nuklidinventare als abhängige Parameter des Kritikalitätsmodells zu interpretieren. Allerdings bestehen diese Parameterwerte nicht aus einzelnen Zahlenwerten, sondern werden aus den für jedes Material unterschiedlich zusammengesetzten Nuklidvektoren gebildet. Diese wiederum bestehen jeweils aus einem Satz von Nuklidkennnummern und den dazugehörigen Kernzahldichten. Die Nuklidinventare sind mithilfe von Abbrandrechnungen, die ihrerseits von unsicheren Parametern abhängen, zu ermitteln. Dies bedeutet, dass für jede Sample-Rechnung mit dem Kritikalitätsmodell und für jedes darin enthaltene Nuklidinventar eine eigene Abbrandrechnung durchzuführen ist. Da die Berechnung eines großen Satzes von unsicherheitsbehafteten Nuklidinventaren aber wesentlicher Bestandteil von Unsicherheitsanalysen für Abbrandrechnungen mit SUnCISTT ist, werden hier dementsprechend die dazu von SUnCISTT bereitgestellten Funktionalitäten genutzt. In der praktischen Ausführung werden also de facto zwei getrennte Unsicherheitsanalysen mit SUnCISTT durchgeführt: Die erste auf Basis eines Abbrandcodes, um, wie beschrieben, die Nuklidinventare zu berechnen, und die zweite, um damit die eigentliche Unsicherheitsanalyse für das zu untersuchende Kritikalitätsmodell

durchzuführen. Zu diesem Zweck sind beide Unsicherheitsanalysen durch geeignete Parameterwahl und -handhabung aufeinander abzustimmen.

Zu diesem Zweck wurden die beiden eigenständigen SUnCISTT-Anwendungen *bu-orest* für Unsicherheitsanalysen mit dem eindimensionalen Abbrandcode OREST /HES 86/ und *c-scale* für Unsicherheitsanalysen mit den Kritikalitätssequenzen aus dem SCALE-Paket /SCA 11/ bereits im Vorhaben 3611R03340 geeignet erweitert /BEH 14/. So können sie nun gemeinsame unsichere Parameter nutzen. Für die Anwendung *bu-orest* wurde die Möglichkeit geschaffen, eine vordefinierte Bibliothek zur Festlegung des Abbrands, der Leistung, etc. einzulesen und zu verwenden, um so z. B. die axiale Staffelung des Abbrands (Abbrandprofile) abgebrannter Brennelemente zu simulieren. Analog wurde die Anwendung *c-scale* dahingehend erweitert, die im Rahmen einer Unsicherheitsanalyse von *bu-orest* errechneten Nuklidinventare einlesen und weiterverarbeiten zu können. Auf diese Weise entstanden im Vorhaben 3611R03340 die erweiterten SUnCISTT-Anwendungen *bu-orest-profiles* und *c-scale-profiles*.



**Abb. 5.1** Schematischer Ablauf und Datenfluss der Unsicherheitsanalysen für Kritikalitätsrechnungen mit unsicherheitsbehafteten Nuklidinventaren

Der Abbrandcode OREST wurde im Vorhaben 3611R03340 hauptsächlich aufgrund seiner sehr geringen Rechenzeiten in SUnCISTT eingebunden. Für generelle generische Untersuchungen zu DWR-Brennelementen sind die von OREST bereitgestellten Funktionalitäten ausreichend. OREST weist aber aufgrund seiner Struktur, insbesondere die Übersetzung eines Brennelements in eine effektive Stabzelle, verschiedene Limitierungen bei der Simulation komplexer Brennelemente oder bei der Untersuchung von Detailfragen auf. So lassen sich mit OREST z. B. keine Steuerstabkreuze modellieren und auch die Berücksichtigung von verschiedenen Anreicherungen, teillangen Brennstäben etc. kann nur näherungsweise durch die Verwendung einer angepassten, effektiven Stabzelle erfolgen, welche dann ein mittleres Nuklidinventar für das gesamte angenommene Brennelement errechnet. Entsprechend sind auch Untersuchungen zu einzelnen Brennstäben mit OREST nicht möglich. Daher wäre der Einsatz von OREST für die hier vorgesehenen Arbeiten mit einem SWR-Brennelement nur bedingt zweckdienlich. Dies macht das Einbinden eines weiteren Abbrandcodes als Alternative zu OREST in diesem Vorhaben erforderlich.

## **5.2 Einbinden des Abbrandcodes HELIOS in SUnCISTT**

Als ein für die im vorliegenden Vorhaben vorgesehenen Arbeiten geeigneter Abbrandcode erweist sich der von Studsvik entwickelte Abbrandcode HELIOS /CAS 91/ (vergl. Kap. 4). Dieser erlaubt die explizite Modellierung und Berechnung komplexer 2D-Geometrien und benötigt im Vergleich zu anderen vergleichbaren Codes eine deutlich geringere Rechenzeit. Dementsprechend wurde zur Vorbereitung der weiteren Arbeiten HELIOS als Alternative zu OREST in SUnCISTT eingebunden. Im Zuge dieser SUnCISTT-Erweiterung wurde gleichzeitig die bisherige Philosophie, für jeden eingebundenen Code eine eigenständige SUnCISTT-Anwendung zu erstellen, aufgegeben und damit begonnen, zunächst die Abbrandcodes in einer gemeinsamen Anwendung *SUnCISTT-depletion* zusammenzufassen (vergl. Kap. 5.3). Dieses Vorgehen existiert bereits bei den verschiedenen Kritikalitätssequenzen des SCALE-Paket und wurde im Rahmen dieses Vorhabens nun auch für OREST und HELIOS realisiert. Das bisherige Erstellen eigenständiger Anwendungen kann zwar die Berücksichtigung verschiedener Besonderheiten der eingebundenen Codes oder verschiedener analysespezifischer Besonderheiten erleichtern; es birgt aber langfristig das Problem, eine große, für den Anwender unübersichtliche Zahl von spezialisierten SUnCISTT-Anwendungen mit ggf. divergierenden Funktionalitäten zu generieren, wodurch wiederum auch die Wartung des Codes langfristig erschwert wird.

### 5.3 Anwendung SUnCISTT-depletion

Das Einbinden des zusätzlichen Abbrandcodes HELIOS in SUnCISTT sollte, wie bereits beschrieben (Kap. 5.2), nicht in Form einer eigenständigen SUnCISTT-Anwendung erfolgen, sondern wurde stattdessen als Erweiterung der bestehenden Anwendung *bu-orest-profiles* realisiert. Im Zuge dieser Arbeiten wurde die Anwendung *bu-orest-profiles* dann in *SUnCISTT-depletion* umbenannt. Die SUnCISTT-Anwendung *SUnCISTT-depletion* ist also die Fortführung der Anwendungen *bu-orest* bzw. *bu-orest-profiles*, welche somit selbst als eigenständige Anwendungen nicht weitergeführt werden.

Für den Anwender wurden die Änderungen durch die Zusammenführung der beiden Codes OREST und HELIOS in eine gemeinsame SUnCISTT-Anwendung so gering wie möglich gehalten. Beim Programmaufruf ändert sich lediglich das aufzurufende Kommando (nun „runSUnCISTT-depletion.py“, anstatt bisher „runbuorest.py“) und die Option „--seq“ zur Festlegung des zu verwendenden eingebundenen Codes (d. h. aktuell „OREST“ oder „HELIOS“) wurde als verpflichtende Angabe hinzugefügt. Alle weiteren Optionen der bisherigen Anwendung *bu-orest-profiles* konnten unverändert beibehalten werden und wurde intern so angepasst, dass sie auch entsprechend für den Abbrandcode HELIOS zur Verfügung stehen.

Aus SUnCISTT-programminthener Sicht besteht der Hauptunterschied zwischen HELIOS und OREST – weshalb letztlich auch HELIOS einzubinden war – in der Anzahl der Materialien, die während einer Rechnung abgebrannt bzw. bestrahlt werden können. Im Fall von OREST ist dies lediglich ein Material. Dementsprechend besteht das Resultat einer OREST-Rechnung aus den Ergebnisdaten dieses einen Materials. Allerdings können diese Ergebnisdaten wiederum verschiedene Datenblöcke in Form der nuklid- oder elementweisen Zusammensetzung in verschiedenen Einheiten, der Aktivität, der Leistung der abgegebenen Strahlung, etc. enthalten und diese Datenblöcke ihrerseits nochmals in Daten für verschiedene Zerfallszeitschritte aufgeteilt sein. Dagegen ermöglicht HELIOS während einer einzelnen Rechnung den Abbrand bzw. die Bestrahlung von einer beliebigen Anzahl von Materialien. Dementsprechend besteht das Resultat einer HELIOS-Rechnung aus einem entsprechenden Vielfachen der Ergebnisdaten einer OREST-Rechnung. Insbesondere werden die verschiedenen Brennstäbe eines Brennelements in einer Ergebnisdatei ausgegeben. Zusätzlich können die Brennstäbe in Ringzonen unterteilt und diese getrennt ausgegeben werden. Diesem Unterschied war bei der Einbindung von HELIOS Rechnung zu tragen, und die interne

Handhabung und Speicherung sowie die Ausgabe der HELIOS-Resultate im SUnCISTT-Modus „collectResults“ der SUnCISTT-Anwendung *SUnCISTT-depletion* entsprechend konsistent zu erweitern. Für den Anwender sind diese internen Änderungen vollständig transparent.

Zudem erfordert die Einbindung eines neuen Codes in SUnCISTT grundsätzlich die Implementierung einer codespezifischen Methode zum Auslesen der Resultate der Sample-Rechnungen, in diesem Fall zum Auslesen der HELIOS-spezifischen Ausgabe-dateien. Diese Methoden werden für den SUnCISTT-Modus „collectResults“ zum Extrahieren und Zusammenstellen der Resultate für die weitere statistische Analyse benötigt und bilden die einzigen code-spezifischen Anteile in SUnCISTT. HELIOS bietet allerdings mit seinem Modul ZENITH vielfältige Möglichkeiten zum Konfigurieren einer textbasierten Ausgabe-datei durch den Anwender. Ein Berücksichtigen aller Konfigurationsmöglichkeiten war im Rahmen der vorliegenden Arbeit nicht möglich und auch nicht erforderlich. Stattdessen wurde zunächst eine auf eine spezifische Konfiguration abgestimmte Methode zum Auslesen der HELIOS-Resultate implementiert und in SUnCISTT integriert. Diese spezifische ZENITH-Konfiguration wurde für die hier vorgesehenen S/U-Analysen erstellt, beinhaltet dementsprechend alle für die weiteren Arbeitsschritte wichtigen Resultate und wurde für die weiteren Arbeiten in diesem Projekt verwendet. Insbesondere werden mit dieser Konfiguration alle errechneten Nuklidinventare der HELIOS-Rechnungen ausgegeben, die somit entsprechend in SUnCISTT weiterverarbeitet werden können.

Für den Anwender direkt sichtbare Änderungen gegenüber der bisherigen SUnCISTT-Anwendung *bu-orest-profiles* zeigen sich zudem in der Ausgabe der von SUnCISTT zusammengetragenen Resultate der einzelnen Sample-Rechnungen. Grundsätzlich schreibt SUnCISTT die aus den einzelnen Sample-Rechnungen extrahierten Resultate in Tabellenform in eigene Ausgabe-dateien zur weiteren Auswertung oder Visualisierung. Dabei werden die Werte der einzelnen Sample-Rechnungen zeilenweise zusammengestellt und die verschiedenen extrahierten Parameter spaltenweise sortiert. Im Fall von Unsicherheitsanalysen auf Basis von Kritikalitätsrechnungen werden diese Resultate in einer Datei zusammengefasst. Im Fall von Unsicherheitsanalysen auf Basis von OREST-Rechnungen werden alle Resultate eines Zerfallszeitschrittes in jeweils

eine separate Datei geschrieben<sup>1</sup>. Letzteres geschieht zur Reduzierung der Dateigrößen, da in Abbrandrechnungen in der Regel nicht nur einige wenige Werte sondern Nuklidinventare mit bis zu mehreren Hundert Nukliden und ggf. zu jedem Nuklid mehrere Eigenschaften (z. B. Kernzahldichte, Massenanteil am Brennstoff, spezifische Aktivität, emittierte Gammarate, etc.) als Resultat in SUnCISTT betrachtet werden. Im Fall von HELIOS wird die Anzahl der Zahlenwerte, die als Resultate betrachtet werden können, gegenüber OREST nochmals dadurch vervielfacht, so dass nicht nur das Nuklidinventar eines einzelnen Brennstabs, sondern Inventare einer Vielzahl an Brennstäben oder zusätzlich von Ringzonen der Brennstäbe in einer Abbrandrechnung ermittelt werden können. Daher wurde die SUnCISTT-Anwendung *SUnCISTT-depletion* bei der Ausgabe der Resultate dahingehend erweitert, dass die Resultate der Sample-Rechnungen je eines berechneten Nuklidinventars und je eines Zerfallszeitschrittes in eine separate Ausgabedatei geschrieben werden. Dementsprechend kann so eine vergleichsweise große Anzahl an Ausgabedateien zur weiteren Auswertung oder Visualisierung entstehen.

Um die verschiedenen Nuklidinventare aus derselben HELIOS-Rechnung für die weitere Verwendung eindeutig zuordnen zu können, war zusätzlich die Kodierung der Inventare zu erweitern. Bislang erfolgte eine Benutzer-definierte Kodierung durch eine beliebig lange Abfolge positiver ganzer Zahlen in der Form „*i\_j...\_n*“, mit der auch gleichzeitig die notwendigen OREST-Rechnungen programmintern kodiert wurden. Für Unsicherheitsanalysen mit OREST wird diese Form auch weiterhin beibehalten. Im Fall der Unsicherheitsanalysen mit HELIOS wurde dagegen die Kodierung der Nuklidinventare durch den Zusatz „*\_FAr\_FRs\_AZt\_RZq*“ erweitert. Dabei sind *r*, *s*, *t* und *q* wiederum positive ganze Zahlen und geben die Position des Nuklidinventars im HELIOS-Modell aufgeschlüsselt nach Brennelement (*FA*), Brennstab (*FR*), Axialzone (*AZ*) und Ringzone (*RZ*) wieder. Die Zuordnung nach Brennelement, Brennstab, Axialzone und

---

<sup>1</sup> Generell handhabt SUnCISTT Parameter, ohne dass diese eine festgelegte Bedeutung haben. Ein von OREST oder HELIOS errechnetes Nuklidinventar wird in *SUnCISTT-depletion* als ein Satz von eigenständigen Ergebnisparametern interpretiert, wobei einem solchen Parametersatz mehrfach Zahlenwerte zugeordnet werden können (hier in Form mehrerer Zeitschritte). Beim Einlesen von Nuklidinventaren in *c-scale-profiles* wird ein Inventar als ein einzelner Parameter gehandhabt, welcher nicht nur einen einzelnen Zahlenwert, sondern eine Liste von Zahlenwerten repräsentiert. Bislang treten diese speziellen Parametereigenschaften nur in Verbindung mit Zeitschritten aus Abbrandrechnungen bzw. mit einzulesenden Nuklidinventaren auf. Um eine für den Leser anschauliche Darstellung der implementierten Erweiterung zu geben, wird hier der entsprechende Bezug zu den konkreten Anwendung dieser Erweiterungen für die Beschreibung der Arbeiten anstelle einer rein abstrakten, auf Parametereigenschaften bezogenen Beschreibung genutzt.

Ringzone erfolgt dabei in der in SUnCISTT implementierten spezifischen ZENITH-Konfiguration.

Demgegenüber wurde aber die Ausgabe aller errechneten Nuklidinventare in eine einzelne zusätzliche, speziell formatierte Datei zur weiteren Verwendung in der SUnCISTT-Anwendung *c-scale-profiles* beibehalten. Hier wurde lediglich die erweiterte Kodierung der Nuklidinventare im Fall von Unsicherheitsanalysen mit HELIOS integriert. Diese als „Schnittstelle“ zwischen *SUnCISTT-depletion* und *c-scale-profiles* fungierende Datei kann im Fall vieler in den Kritikalitätsrechnungen der Unsicherheitsanalyse mit *c-scale-profiles* zu betrachtender abgebrannter bzw. bestrahlter Materialien mit ausführlichen Nuklidinventaren sehr groß werden. Damit kann sie ggf. einen limitierenden Faktor in der Anzahl der Materialien oder Nuklide pro Material bilden, welche ausgetauscht werden können.

Die korrekte Implementierung und Einbindung von 2D-Abbrandrechnungen unter Berücksichtigung axialer Abbrandprofile und der anschließende Übertrag der ermittelten Nuklidinventare in 3D-Kritikalitätsrechnungen wurde mit Hilfe eines stark vereinfachten Rechenmodells getestet. Dieses Modell mit drei axialen Zonen und 2x2 Brennstäben erlaubt die exakte manuelle Überprüfung aller notwendigen Rechnungen und Ersetzungen durch SUnCISTT, wodurch die korrekte Buchhaltung der neu implementierten Programmteile sichergestellt und qualitätsgesichert werden konnte.



## **6 Stochastische Analysen von experimentellen Nachbestrahlungsproben**

### **6.1 Zielsetzung**

Im Rahmen des Vorhabens 3614R03341 wurden Proben von Nachbestrahlungsanalysen nachgerechnet und der Einfluss von Herstellungstoleranzen und Unsicherheiten in Parametern der Leistungsgeschichte auf die Nuklidzusammensetzung von Siedewasserbrennelementen untersucht. Hierzu wurden zwei Stäbe aus dem japanischen Fukushima-Daini-2 Reaktor und ein Stab aus dem schwedischen Forsmark-2 Reaktor ausgewählt. Von diesen drei Stäben wurden insgesamt 19 Proben radiochemisch untersucht, deren Nominalfälle zunächst nachgerechnet wurden. Für insgesamt sieben Proben verteilt auf die drei Stäbe wurden Unsicherheitsanalysen durchgeführt. Die Abbrandrechnungen wurden, wie bereits beschrieben, mit dem Abbrand Programm HELIOS durchgeführt (Kap. 4, /CAS91/).

Zur besseren Visualisierung und Auswertung der Ergebnisse wurden Python-Skripte entwickelt, die die Darstellung verschiedener berechneter Größen und deren Vergleich mit experimentellen Werten erlauben.

### **6.2 Erstellung eines Python Skriptes zur Visualisierung von Abbrandrechnungen mit HELIOS**

Für die bessere und schnellere Visualisierung der Ergebnisse der Abbrandrechnungen mit HELIOS wurde das Python 3-Skript *plotBurnup.py* entwickelt. Dieses erlaubt den Vergleich mit experimentellen Daten und die gleichzeitige Anzeige der Daten mehrerer Proben. Es liest mit Hilfe einer Konfigurationsdatei zum einen die Ausgabedatei(en) der Abbrandrechnungen von HELIOS ein, die mit dem Outputprozessor ZENITH in einem speziellen, vereinheitlichten Format gespeichert wurden. Dabei werden die gespeicherten Nuklidkennnummern, die  $k_{\text{eff}}$  Werte, die  $k_{\text{inf}}$  Werte, der spezifizierte Abbrand, der Abbrand des gesamten Brennelements, der Abbrand jedes einzelnen Stabes, die Zeitschritte und die Konzentrationen der Nuklide in Gramm pro Tonne anfänglichem Schwermetall [g/tSM] eingelesen. Zum anderen liest *plotBurnup.py* eine Textdatei, in der die experimentellen Werte der Nachbestrahlungsanalysen gespeichert sind. In dieser Datei sind die Probenamen, die axialen Positionen der Proben, die experimen-

tellen Nuklidkennnummern, die Konzentrationen der Nuklide in g/tSM und die Leistungs- und Abbrand Historie gespeichert. In dieser Konfigurationsdatei kann zusätzlich angegeben werden, ob für gewisse Nuklide bzw. Proben unterschiedliche Abbrandschritte berücksichtigt werden sollen. Dies ist z. B. nötig, wenn einzelne Nuklide der experimentellen Analyse auf das Bestrahlungsende zurückgerechnet werden, während andere für den Zeitpunkt der Analyse angegeben werden, die typischerweise nach einigen Jahren Abklingzeit erfolgt. Auch erfolgt die Analyse unterschiedlicher Nuklide teilweise zu verschiedenen Zeitpunkten.

Das Skript ermöglicht die graphische Darstellung folgender Größen:

- $k_{\text{eff}}$ ,  $k_{\text{inf}}$  und Abbrand gegen die Zeit oder gegen den Abbrand (Brennelement- oder Stababbrand).
- $k_{\text{eff}}$ ,  $k_{\text{inf}}$  und Abbrand (Brennelement- oder Stababbrand) gegen die Probenposition im Brennstab für jeden beliebigen Abbrandschritt.
- Konzentration eines oder mehrerer Nuklide eines Stabes in g/tSM gegen die Zeit oder gegen den Abbrand.
- 2D Plot des Abbrands aller Stäbe für eine Probenrechnung für jeden beliebigen Abbrandschritt.
- 2D Plot der Konzentration eines Nuklids eines Stabes in g/tSM für eine Probenrechnung für jeden beliebigen Abbrandschritt.
- C/E-Plot: Berechnete Nuklidkonzentrationen geteilt durch experimentelle Nuklidkonzentrationen minus 1 für einen Stab für jeden beliebigen Abbrandschritt. Entweder für alle Nuklide oder für eine Auswahl.

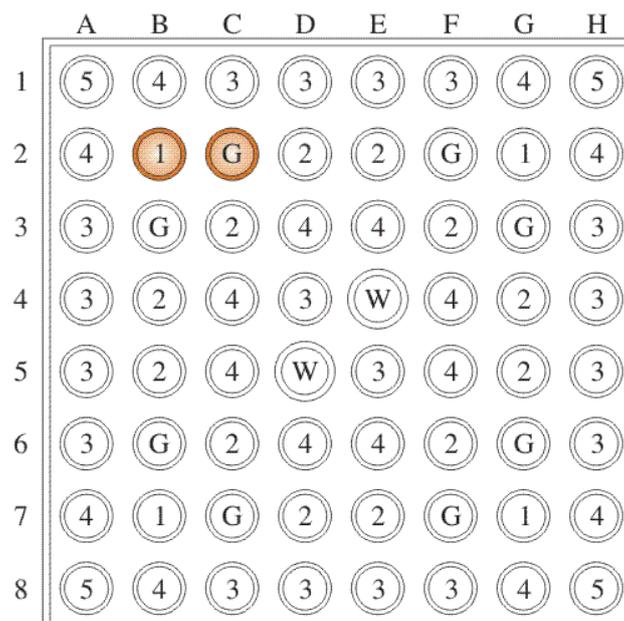
Die Schriftgrößen der Achsenbeschriftungen und Legenden, die Sprache der Beschriftungen (Deutsch oder Englisch) und der Wertebereich des Plots lassen sich per Schlüsselwörter verändern. Die erzeugten Bilder lassen sich in den Formaten "eps" und "png" abspeichern und die C/E-Werte in einer Textdatei abspeichern. Außerdem ermöglicht das Skript die Erzeugung von Template-Dateien für die Konfigurationsdatei, die ZENITH-Eingabedatei und den Programmteil, der für die korrekte Ausgabe in der AURORA-Eingabedatei eingefügt werden muss.

## 6.3 Nachrechnung der Fukushima-Daini-2 Abbrand Proben

### 6.3.1 Experimentbeschreibung

Bei den beiden hier betrachteten Stäben des japanischen Reaktor Fukushima-Daini-2 handelt es sich um den reinen  $\text{UO}_2$  Brennstab (BS) SF98 und dem mit Gadolinium versetzten Brennstab SF99 /MIC 14/, /MER 10/, /NAK 02/. Beide stammen aus demselben Brennelement 2F2DN23, einem 8x8 Hitachi Siedewasserbrennelement, das für eine Dauer von 1174 Tagen vom 14.01.1989 bis zum 16.11.1992 im Reaktor bestrahlt wurde. Die Positionen der zwei Stäbe im Brennelement sind aus Abb. 6.1 in orange ersichtlich, BS SF98 ist mit einer orangenen „1“ gekennzeichnet, BS SF99 mit einem orangenen „G“.

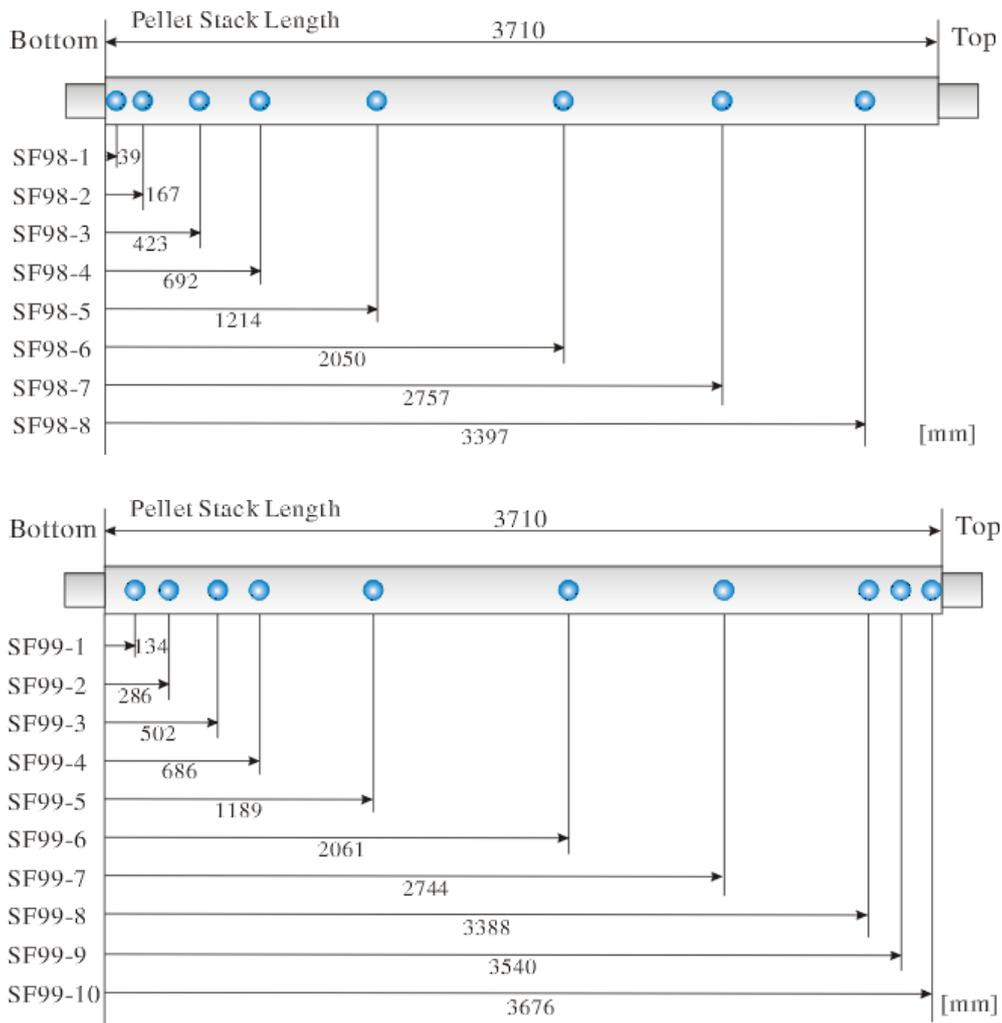
Zusätzlich zu zwei wasserführenden Rohren in der Mitte des Brennelements (in Abb. 6.1 mit „W“ gekennzeichnet), gibt es Brennstäbe mit 6 verschiedenen Anfangsanreicherungen, siehe Tab. 6.1 Angegeben ist die Brennstabnummer in Abb. 6.1, die Farbe in Abb. 6.3, die durchschnittlichen  $^{235}\text{U}$ -Gewichtsprozent des gesamten Stabes, die effektiven  $^{235}\text{U}$ -Gewichtsprozent der aktiven Zone, und die Gd-Gewichtsprozent der gadoliniumhaltigen Brennstäbe in der aktiven Zone. Alle BS haben einen Reflektor aus natürlichem Uran am oberen und unteren Ende des Brennstabs mit 0,71 Gew.-%  $^{235}\text{U}$ . Die axialen Positionen der Probeentnahmen sind in Abb. 6.2 gezeigt.



**Abb. 6.1** Geometrie des Brennelements 2F2DN23 mit den zwei untersuchten Brennstäben SF98 (1) und SF99 (G) in orange /MIC 14/

**Tab. 6.1** Anfangsanreicherungen aller Brennstäbe

BS Nummer in Abb. 6.1	Farbe in Abb. 6.3	durchschn. Gew.-% <sup>235</sup> U	effektive Gew.-% <sup>235</sup> U
1	dunkelblau	3,63	3,91
2	gelb	3,22	3,45
3	grün	3,18	3,41
4	hellblau	2,72	2,90
5	hellrosa	1,89	2,00
G	pink	3,18	3,40 + 4,5/3,0 Gd



**Abb. 6.2** Positionen der Probenentnahmen für Experiment SF98 und SF99 /MER 10/

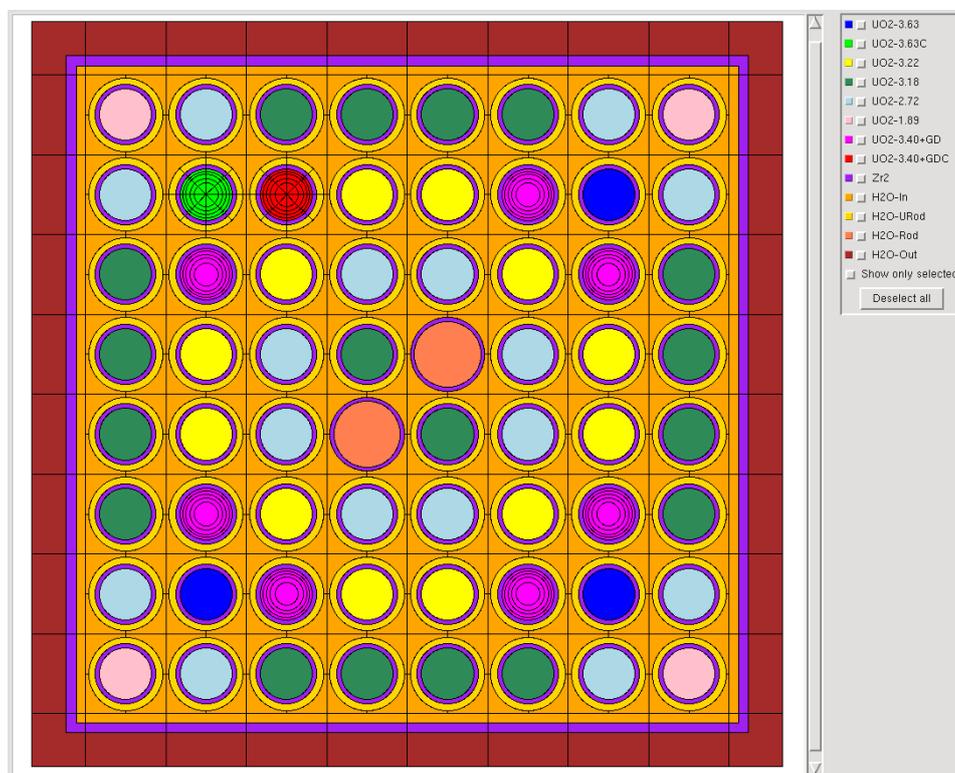
Dabei ist zu beachten, dass die Proben SF98-1, SF99-1 und SF99-10 innerhalb des Reflektorbereichs liegen, der natururanhaltiges  $\text{UO}_2$  enthält. Ebenso ist zu berücksichtigen, dass SF98-2 und SF99-9 sehr nahe an diesem Bereich liegen (Entfernung nur 12 mm bzw. 15 mm). Der dadurch im Reaktor auftretende 3D-Effekt des Neutronenflusses kann aber durch den 2D-Code HELIOS nicht vollständig wiedergegeben werden, was bei der Bewertung der Nachrechnungen zu berücksichtigen ist.

### 6.3.2 Modellerstellung für HELIOS

Das Modell des Brennelements wurde möglichst umfassend und realitätsnah in HELIOS implementiert, um eine korrekte Nachrechnung der Bestrahlungsproben zu gewährleisten.

#### 6.3.2.1 Geometrisches Modell

Das geometrische Modell des Brennelements 2F2DN23 in HELIOS-Geometrie ist in Abb. 6.3 gezeigt. Die numerischen Werte der verwendeten geometrischen Größen sind in Tab. 6.2 angegeben.



**Abb. 6.3** Geometrie des Brennelements 2F2DN23 in HELIOS-Geometrie

**Tab. 6.2** Verwendete geometrische Größen

<b>Geometrische Größe</b>	<b>Verwendeter Wert</b>
Brennstababstand	1,63 cm
Radius Brennstoff ( $r_{BS}$ )	0,527 cm
Radius Hüllrohr außen	0,615 cm
Radius H <sub>2</sub> O um BS	0,750 cm
Radius Wasserrohr innen	0,675 cm
Radius Wasserrohr außen	0,750 cm
Dicke Wasserfilm innerhalb BE-Kasten	0,180 cm
Dicke Wasserfilm außerhalb BE-Kasten	0,697 cm
Dicke BE-Kasten	0,180 cm

HELIOS bietet keine Möglichkeit einen leeren Bereich zu definieren oder das Element Helium zu verwenden, um den Abstand zwischen Brennstoff und Hüllrohr zu modellieren. Da außerdem der Brennstoff während der Bestrahlung einem gewissen Schwellen unterliegt (engl.: swelling), wird in den Rechnungen angenommen, dass der Brennstoff das komplette Hüllrohr ausfüllt und es keinen Spalt zwischen Hüllrohr und Brennstoff gibt. Die Vergrößerung der Querschnittsfläche um 4,5 % wurde durch eine entsprechende Verringerung der Brennstoffdichte ausgeglichen, sodass die lineare Brennstoffdichte und die Brennstoffgesamtmasse erhalten bleiben.

Da sich das Spektrum der Neutronen im Wassermoderator unter Umständen stark ändert, wurde um die Brennstäbe ein 0,135 cm starker Wasserring als eigenständiges Geometrieelement eingefügt (dunkelgelb). Dieses Material besitzt dieselbe Nuklidzusammensetzung und Dichte wie das Wasser, das sich zwischen den Brennstäben befindet (orange). Im Zentrum befinden sich zwei größere Wasserrohre. Das enthaltene Wasser (dunkelorange) hat die nominale Dichte von Wasser bei den angenommenen Temperaturen und Drücken ohne Dampfblasen. Auch das Wasser außerhalb des begrenzenden Brennelementkastens (braun) besitzt diese nominale Dichte.

Die Brennstoffzone der gadoliniumhaltigen Stäbe (SF-99 in Rot und weitere sieben pinke BS) ist in fünf Ringzonen mit gleicher Fläche unterteilt, um den Abbrand des Gadoliniums, der vor allem in der frühen Bestrahlungsphase radial stark variiert, korrekt zu modellieren. Diese Unterteilung wurde auch bei dem zweiten Probenstab angewendet (SF98, hellgrün). Zusätzlich wurden die zwei Probenstäbe in acht azimutale Sektoren eingeteilt, um etwaige winkelabhängige Flussverteilungen berücksichtigen zu können. Bei der Analyse der Ergebnisse und dem Vergleich mit den experimentellen

Daten werden die Nuklidichten über die Radial- und Azimutalzonen gemittelt, da die experimentellen Daten nicht in dieser feinen Auflösung vorliegen. Zusätzlich im Modell verwendete Größen sind in Tab. 6.3 angegeben. Die Temperatur des Kühlmittels variiert für die einzelnen Proben leicht und liegt zwischen 551,6 K (untere Proben) und 559,15 K (obere Proben). Dabei wird die Maximaltemperatur (559,15 K) ab einer Höhe von ca. 650 mm erreicht und bleibt aufgrund des Zweiphasengemisches von Wasser und Dampf und des zunehmenden Dampfblasengehalts nach oben hin konstant.

**Tab. 6.3** Zusätzlich verwendete Größen

Größe	Verwendeter Wert
Temperatur Brennstoff	900,0 K
Temperatur Hüllrohr	600,0 K
Nominale Dichte H <sub>2</sub> O	0,74019 g/cm <sup>3</sup>

Es wurden weitere Vergleichsrechnungen mit zwei detaillierteren Modellen für die Experimente SF98-03 und -05 und SF99-03 und -05 durchgeführt. Bei einem Modell wurden die Geometrielemente des umgebenden Wasserkastens zusätzlich in x- und y-Richtung unterteilt, drei Wasser-Ringzonen um die Brennstäbe und zusätzlich in die vier Ecken der Pinzellen dreieckige Geometrielemente eingefügt sowie die gadoliniumhaltigen Stäbe und die Probenstäbe in zehn statt fünf Ringzonen unterteilt. In dem zweiten Modell wurden zusätzlich alle Brennstäbe in zehn Ringzonen unterteilt. Beide Modelle lieferten für alle vier Fälle keine signifikanten Unterschiede in den berechneten Ergebnissen, während sich die Rechenzeit von etwa 10 Minuten erheblich auf 30 bzw. 50 Minuten erhöhte. Deshalb wurden für alle weiteren Rechnungen die einfachen Modelle ohne die genannten Ergänzungen verwendet.

### 6.3.2.2 Materialien

Im Folgenden sind die verwendeten Materialien aufgelistet. Für die Hüll- und Wasserrohre sowie den Brennelementkasten wird Zircaloy-2 mit einer Kernzahldichte von  $2,338 \times 10^{-2}$  angenommen. Die Dichte des Wassers in den zwei Wasserkanälen und außerhalb des Brennelementkastens besitzt die nominale Dichte von  $\rho_{\text{H}_2\text{O}} = 0,74019 \text{ g/cm}^3$ . In Referenz /NAK02/ sind die anfänglichen Nuklidzusammensetzungen der zwei Stäbe SF98 und SF99 angegeben. Aus deren Verhältnis, der durchschnittlichen Anreicherung (siehe Tab. 6.1) und den Natururanreflektoren an beiden Enden des Brennelements wurden die Anfangsanreicherungen aller Brennstäbe ermit-

telt (siehe Tab. 6.4). Hinzu kommen bei den Gadoliniumstäben im Hauptteil des Brennelements 4,5 Gew.% Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Die Proben SF98-8, SF99-8 und SF99-9 wurden aus dem oberen Teil des Brennstabs entnommen, wo die Gadoliniumkonzentration mit 3,0 Gew.% Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> geringer ist. Die über den Hüllrohrinnendurchmesser verschmierte Brennstoffdichte hat einen Wert von 9,943 g/cm<sup>3</sup>.

**Tab. 6.4** Anfangsanreicherungen aller Brennstäbe

<b>BS Nummer</b>	<b>durchschn. Gew.% <sup>235</sup>U</b>	<b>eff. Gew.% <sup>234</sup>U</b>	<b>eff. Gew.% <sup>235</sup>U</b>	<b>eff. Gew.% <sup>236</sup>U</b>	<b>eff. Gew.% <sup>238</sup>U</b>
1	3,63	0.035	3.910	0.018	96.037
2	3,22	0.031	3.448	0.016	96.505
3	3,18	0.030	3.405	0.016	96.549
4	2,72	0.026	2.903	0.013	97.058
5	1,89	0.018	1.997	0.009	97.976
G	3,18	0.030	3.410	0.016	96.544

### 6.3.2.3 Abbrandhistorie

Für alle Proben ist in Referenz /NAK02/ die am Probenort lokale Leistungshistorie (Leistung in MW/tSM und Dauer in Tage) angegeben. Da HELIOS die globale Leistung des Brennelements und den globalen Abbrand pro Abbrandschritt als Eingabe benötigt, wurde in einem ersten Schritt ermittelt, um welchen Faktor die lokale Leistung und der lokale Abbrand von den jeweiligen globalen Werten abweicht (siehe Tab. 6.5).

In einem zweiten Schritt wurde der Wert des Zielabbrands optimiert, indem die Leistung und damit der Abbrand so angepasst wurden, dass die berechneten Werte der <sup>148</sup>Nd-Kernzahldichten möglichst genau mit den experimentellen Werten übereinstimmen. Da dieses Nuklid bei der Kernspaltung weitgehend unabhängig von den beteiligten Reaktionskanälen entsteht, ist es ein gutes experimentelles Maß für den Abbrand. Die resultierenden Korrekturfaktoren der Leistung und des Abbrands sind in Tab. 6.5 dargestellt. Die resultierenden Leistungs- und Abbrandhistorien sind in Abb. 6.4 für alle Fälle visualisiert.

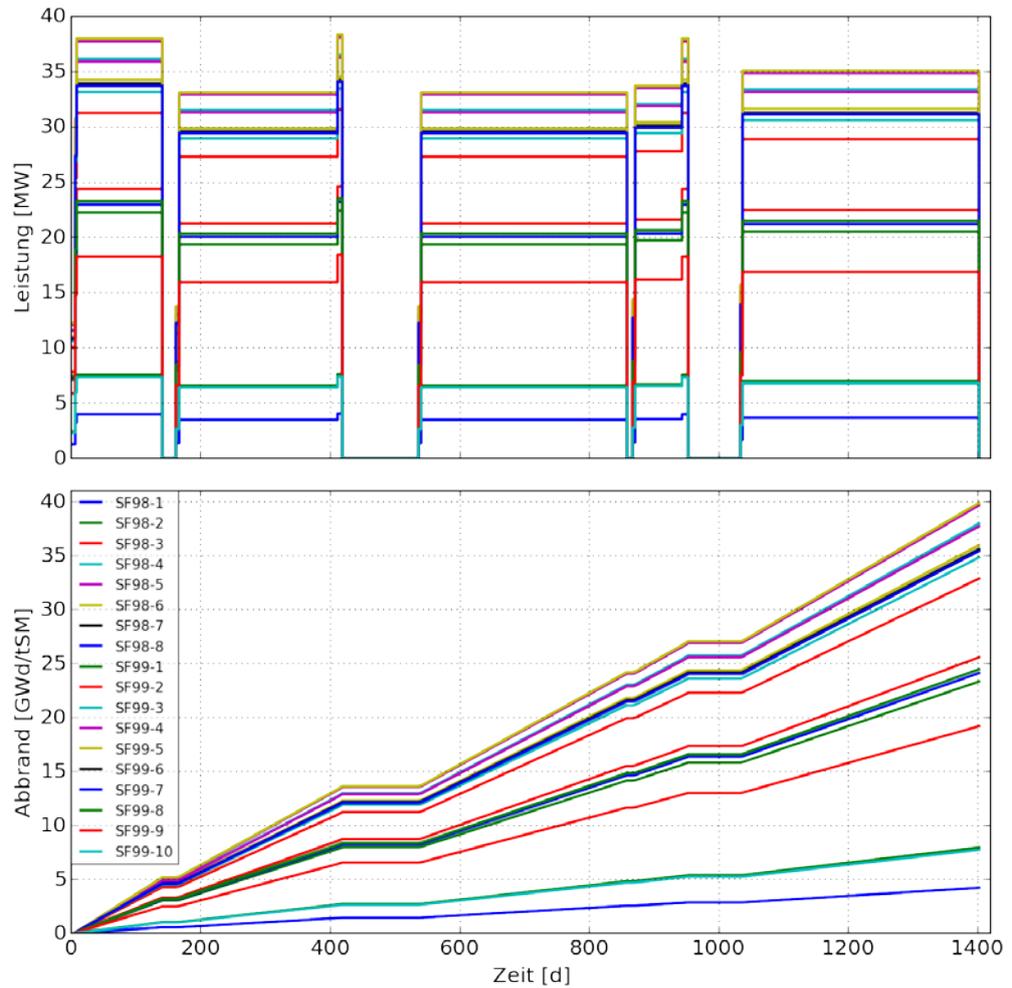
**Tab. 6.5** Korrekturfaktoren für Leistung und Abbrand

Fall	Korrekturfaktor aufgrund Leistungsverteilung	Zusätzlicher Korrekturfaktor aufgrund von <sup>238</sup> Nd	Dampfblasengehalt [%]	Moderatordichte [kg/m <sup>3</sup> ]
SF98-01	1,0140	1.001	0.0	0.74019
SF98-02	0,8966	0.982	0.0	0.74019
SF98-03	0,9056	0.983	3.0	0.71908
SF98-04	0,9121	0.983	11.0	0.66279
SF98-05	0,9144	0.986	32.0	0.51502
SF98-06	0,9100	0.990	54.5	0.35670
SF98-07	0,9095	0.993	68.0	0.26171
SF98-08	0,8957	0.990	73.0	0.22652
SF99-01	1,0563	0.999	0.0	0.74019
SF99-02	1,1820	0.955	1.4	0.73034
SF99-03	1,1000	0.975	5.8	0.69938
SF99-04	1,0880	0.978	10.8	0.66420
SF99-05	1,0890	0.978	27.7	0.54528
SF99-06	1,1320	0.969	54.7	0.35529
SF99-07	1,1440	0.966	66.5	0.27226
SF99-08	1,1790	0.952	71.7	0.23567
SF99-09	1,2340	0.935	72.9	0.22723
SF99-10	1,0953	0.985	74.3	0.21738

In Referenz /NAK 02/ ist der Dampfblasengehalt (void) an den Positionen aller Proben angegeben. Daraus kann mit Formell (1) die jeweilige Moderatordichte berechnet werden.

$$\rho_{H_2O} = \rho_{H_2O,flüssig}(T[°C]) * (1 - void) + \rho_{H_2O,Dampf}(T[°C]) * void \quad (6.1)$$

Die verwendeten Dampfblasengehalte und die resultierenden Dichten sind in Tab. 6.5 angegeben.



**Abb. 6.4** Leistungs- und Abbrandhistorien für alle Fälle

### 6.3.3 Abbrandrechnungen und Resultate

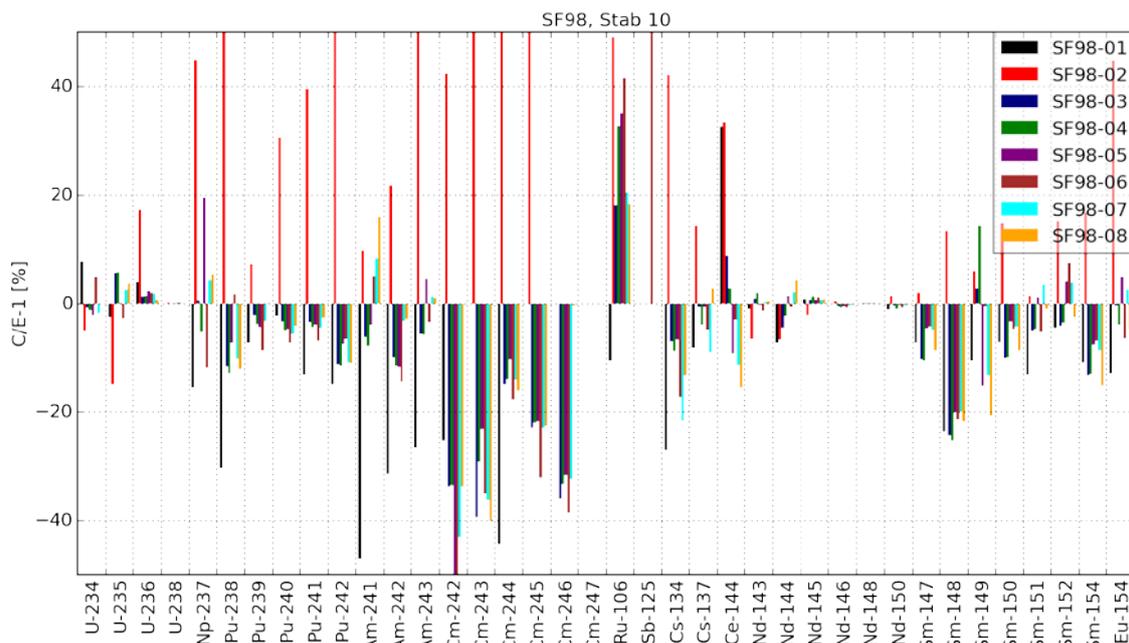
Die experimentell gemessenen Nuklidzusammensetzungen aller betrachteten Proben in g/tSM sind in Referenz /HUT 87/ berichtet. Alle experimentell ermittelten Konzentrationen wurden auf den Zeitpunkt der Entladung korrigiert, ausgenommen die Samarium-Isotope. Deren Abklingzeiten bis zur Messung sind für die verschiedenen Proben unterschiedlich (siehe Tab. 2.1).

**Tab. 6.6** Abklingzeiten für Samarium

Fälle	Abklingzeiten für Samarium
SF98-01, 02, 03, 04	5,5 Jahre
SF98-05, 07, 08	5,9 Jahre
SF98-06	6,2 Jahre
SF99-02, 04, 06, 10	keine Daten
SF99-01, 03, 05, 07, 09	6,7 Jahre
SF98-08	6,5 Jahre

Die Abklingzeiten für Samarium für alle Proben wurden bei den Abbrandrechnungen beachtet, sodass die berechneten Konzentrationen direkt mit den experimentellen Werten verglichen werden können.

In Abb. 6.5 ist dieser Vergleich für alle Proben des Stabs SF98 dargestellt. Die Abbildung zeigt für alle Nuklide die Abweichungen der Verhältnisse der berechneten Konzentrationen zu den experimentellen Konzentrationen von 1 in Prozent ( $C/E-1$ ).

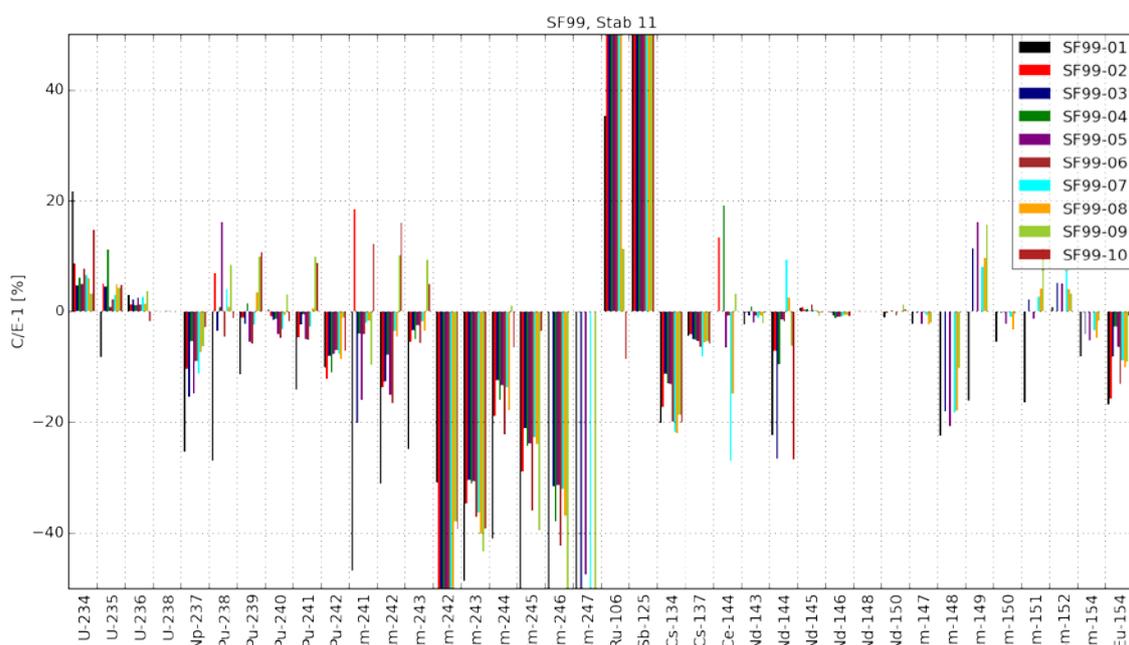


**Abb. 6.5** Vergleich von berechneten und experimentellen Nuklidkonzentrationen für Stab SF-98

Wie in Abschnitt 6.3.2.3 beschrieben, wurde der Abbrand so variiert, dass die berechneten  $^{148}\text{Nd}$ -Konzentrationen mit den experimentellen Werten möglichst gut übereinstimmen (Abweichung  $< 0,03\%$ ). Dadurch stimmen auch die anderen Neodymisotope sehr gut mit den experimentellen Werten überein. Die Probe SF98-2 (rot) liegt nur

1,2 cm vom unteren Natururanreflektor entfernt, weshalb 3D-Effekte der Flussverteilung beim Abbrand eine nicht vernachlässigbare Rolle spielen. Da HELIOS ein reiner 2D-Code ist, sind die großen Abweichungen zwischen Berechnung und Experiment darauf zurückzuführen, dass diese Effekte nicht berücksichtigt werden können.

Die Abweichung von  $^{238}\text{U}$  ist für alle Proben kleiner als 0,15 %. Die Abweichungen der übrigen Uranisotope liegt unter 5 %, die Plutoniumkonzentrationen werden im allgemeinen 5-15 % unterschätzt. Die beobachteten Abweichungen zwischen Rechnung und Experiment liegen insgesamt in einem Bereich, wie er auch schon in vorhergehenden Analysen beobachtet wurden /BEH 12/.



**Abb. 6.6** Vergleich von berechneten und experimentellen Nuklidkonzentrationen für Stab SF-99

In Abb. 6.6 ist dieselbe Analyse für den gadoliniumhaltigen Stab SF-99 gezeigt. Auch hier sind die Abweichungen der Neodymisotope und von  $^{238}\text{U}$  verschwindend gering (Abweichung  $^{148}\text{Nd} < 0,4\%$ ). Bei diesem Stab befindet sich die Probe SF99-01 im Natururanreflektor nur 2,1 cm vom aktiven Bereich entfernt, wodurch auch hier 3D Effekte einen Einfluss haben, die in der Rechnung nicht berücksichtigt werden können. Dies erklärt die vergleichsweise hohen Abweichungen zwischen Rechnung und Experiment für diese Probe.

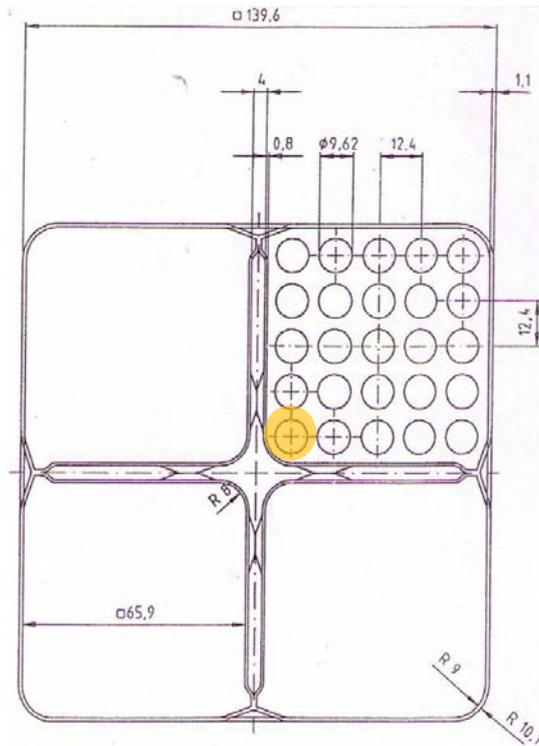
Bei diesem Experiment werden im Wesentlichen die Konzentrationen der Uranisotope mit 3 – 8 % über- und die der Plutoniumisotope mit 0 – 10 % unterschätzt. Diese Abweichungen zwischen Rechnung und Experiment liegen im Bereich der typischerweise für solche Nachrechnungen beobachteten Werten.

## **6.4 Nachrechnung der Forsmark 3 Abbrand Probe**

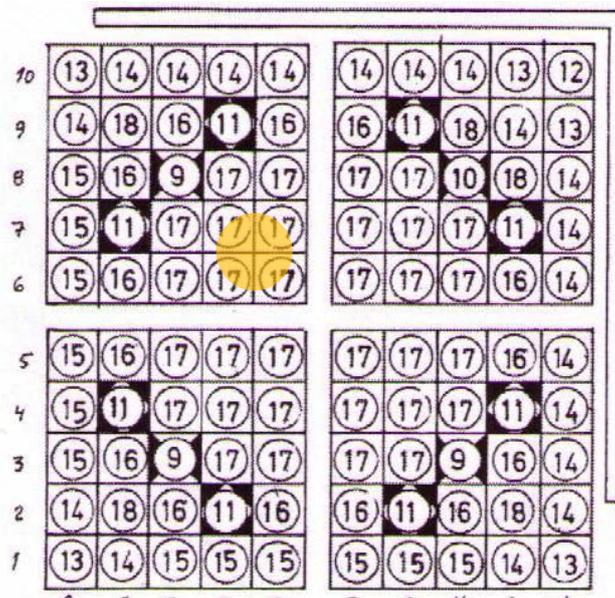
Neben den Nachrechnungen der Nachbestrahlungsproben aus Fukushima wurde auch die eine zur Verfügung stehende Probe des Reaktors Forsmark-3 modelliert und analysiert. Für diese eine Probe lassen sich vier chemische Analysen aus drei Laboratorien zu drei verschiedenen Zeitpunkten finden: Harwell 1996, Dimitrovgrad 1996, Studsvik 2003, und nochmals Studsvik 2006.

### **6.4.1 Experimentbeschreibung**

Der schwedische Siedewasserreaktor Forsmark-3 lieferte während der Bestrahlung der experimentellen Probe bis Zyklus 4 3020 MW, ab Zyklus 5 3300 MW thermische Leistung /ZWI08/, /TÖR 11/. Bei dem Probenstab handelt es sich um den reinen  $\text{UO}_2$ -Brennstab auf Position F6 (siehe Abb. 6.7 und Abb. 6.9, orange). Er stammt aus der Baugruppe 14595, einem SVEA-100 Siedewasserbrennelement mit 100 Brennstäben in vier 5 x 5 Untergruppen. Diese sind durch sogenannte Wasserflügel separiert, die von nichtsiedendem Wasser durchflossen werden und dieses dadurch auch in den oberen Teil des Brennelements bringen. Das Brennelement wurde für eine Dauer von 2136 Tagen vom 01.08.1987 bis zum 06.06.1993 bestrahlt. Die Geometrie des Brennelements mit den zugehörigen Größenangaben ist aus Tab. 6.8 ersichtlich.



**Abb. 6.7** Geometrie des Brennelements 14595 mit dem untersuchten Brennstab auf Position F6 in orange /TÖR 11/



**Abb. 6.8** Position F6 des untersuchten Brennstabes (orange) /TÖR 11/

Die Brennstäbe haben sechs verschiedene Anfangsanreicherungen, wobei je nach Position im Brennelement und umliegenden Brennstäben, mehrere separate Geometrie-Einheiten zur Modellierung von Stäben gleicher Anreicherung definiert wurden (siehe Tab. 6.7). Die in Tab. 6.7 angegebene Brennstabnummer entspricht jeweils der

Positionsnummer in Abb. 6.8, die Farbe der jeweiligen in Abb. 6.9. Die durchschnittlichen  $^{235}\text{U}$ -Gewichtsprozent beziehen sich auf den gesamten Stab, die effektiven  $^{235}\text{U}$ - und die Gd-Gewichtsprozent auf die aktive Zone.

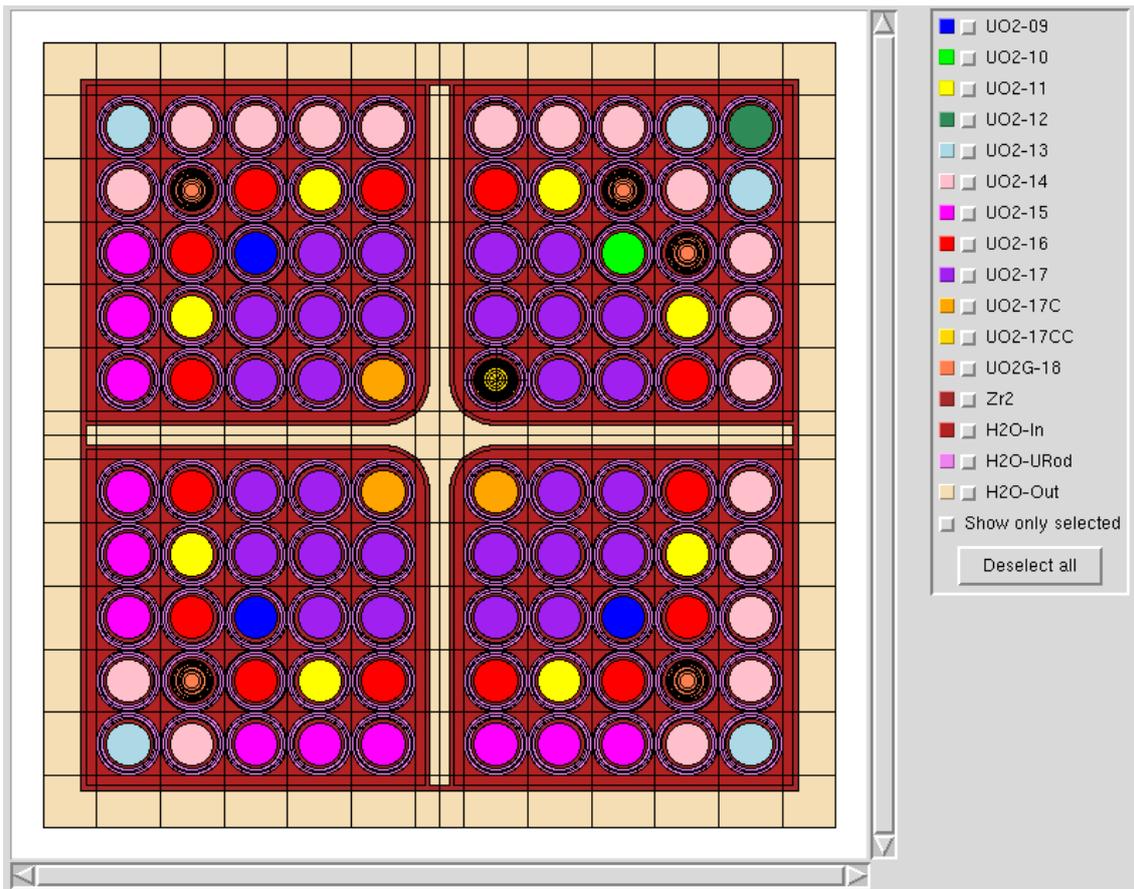
**Tab. 6.7** Anfangsanreicherungen der Brennstäbe in dem betrachteten Forsmark-3 Brennelement

<b>BS Nummer</b>	<b>Farbe in Abb. 6.3</b>	<b>Durchschn. Gew.% <math>^{235}\text{U}</math></b>	<b>eff. Gew.% <math>^{235}\text{U}</math></b>
9	dunkelblau	4,00	3.97
10	hellgrün	3,60	3.57
11	gelb	3,60	3.57
12	dunkelgrün	1,98	1.96
13	hellblau	2,22	2.20
14	blassrot	2,81	2.79
15	pink	3,17	3.14
16	rot	3,60	3.57
17	lila	4,00	3.97
18	orange/ schwarz	3,17	3.14 + 3,15 Gd

Die analysierte Probe wurde auf einer Höhe von 220,0 cm entnommen. Damit stammt sie aus dem mittleren Teil der 375,0 cm langen aktiven Zone. Somit können 3D-Effekte, die an den Enden des Brennelements verstärkt auftreten, vernachlässigt werden und der 2D-Code HELIOS kann ohne Einschränkungen angewendet werden.

#### **6.4.2 Erstellung des geometrischen Modells für HELIOS**

Das Modell des Brennelements wurde möglichst umfassend und realitätsnah gemäß der zur Verfügung stehenden Informationen in HELIOS implementiert um eine korrekte Nachrechnung der Bestrahlungsproben zu gewährleisten. Das geometrische HELIOS-Modell des Brennelements 14595 ist in Abb. 6.9 gezeigt. Die numerischen Werte der verwendeten geometrischen Größen sind in Tab. 6.8 angegeben.



**Abb. 6.9** Einfache Geometrie des Forsmark-Brennelements 14595 in HELIOS

**Tab. 6.8** Verwendete geometrische Größen des Forsmark-Brennelements

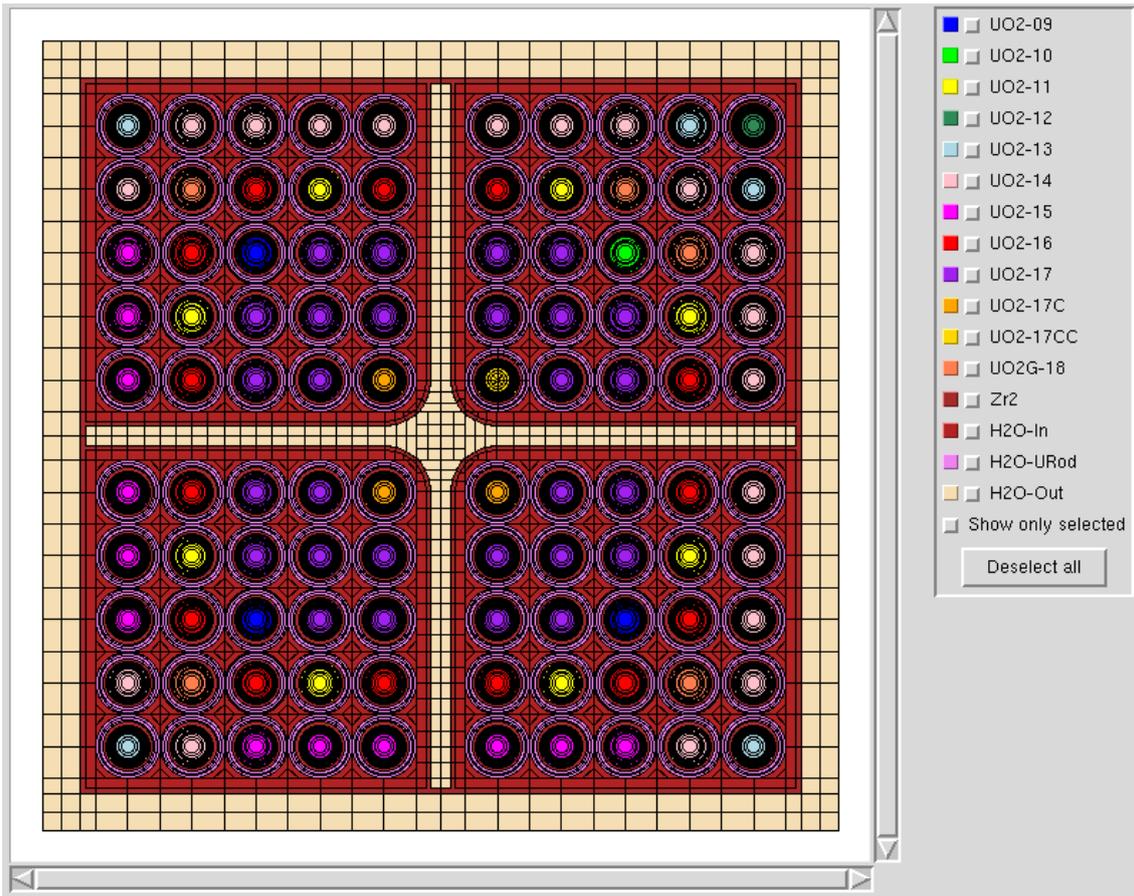
Geometrische Größe	Verwendeter Wert
Brennstababstand	1,24 cm
Durchmesser Brennstoff ( $2 r_{BS}$ )	0,836 cm
Durchmesser Hüllrohr außen	0,962 cm
Durchmesser H <sub>2</sub> O um BS	1,15 cm
Dicke Wasserflügel	0,08 cm
Dicke H <sub>2</sub> O in Wasserflügel	0,4 cm
Dicke Wasserfilm innerhalb BE Kasten	0,195 cm
Dicke Wasserfilm außerhalb BE Kasten	0,7275 cm
Dicke BE Kasten	0,110 cm

Wie bei den Rechnungen zu den Fukushima-Proben, wird auch bei den Rechnungen zum Forsmark-Brennelement angenommen, dass der Brennstoff das komplette Hüllrohr ausfüllt und es keinen Spalt zwischen Hüllrohr und Brennstoff gibt. Die Vergrößerung der Querschnittsfläche um 4,2 % wurde durch eine Verringerung der Brennstoff-

dichte ausgeglichen, sodass die lineare Brennstoffdichte und die Brennstoffgesamtmasse erhalten bleiben.

Da der Neutronenfluss im Moderator unter Umständen räumlich stark variiert, wurden auch bei diesen Rechnungen um die Brennstäbe zusätzliche Wasserringe als eigenständige Geometrielemente eingefügt (blassrosa), die den Raum zwischen Hüllrohr und Stabzellenbegrenzung ausfüllen. Dieses Wasser besitzt dieselbe Nuklidzusammensetzung und Dichte wie das Wasser, das sich zwischen den Brennstäben befindet (rotbraun). Das Wasser im Wasserflügel und außerhalb des begrenzenden Brennelementkastens (beige) hat die nominale Dichte von Wasser bei entsprechender Temperatur und Druck ohne Dampfblasen.

Die Brennstoffzone der gadoliniumhaltigen Stäbe (orange/schwarz) ist in zehn Ringzonen gleicher Fläche unterteilt, um den Abbrand von Gadolinium, der vor allem in der frühen Bestrahlungsphase radial stark variiert, korrekt berechnen zu können. Diese Unterteilung und zusätzlich acht azimutale Sektoren wurde auch bei dem Probenstab F6 angewendet, um etwaige winkelabhängige Flussverteilungen berücksichtigen zu können (gelb/schwarz, linke unter Ecke des rechten oberen Quadranten). Auch für die Forsmark-Probe wurde ein Modell mit ähnlich erhöhter Komplexität wie für die Fukushima-Proben getestet, nämlich zehn Ringzonen für alle Brennstäbe, eine feinere geometrische Unterteilung der Wasserflügel und des umgebenden Wasserkastens und zusätzliche dreieckige Geometrielemente in den Ecken der Pinzellen, siehe Abb. 6.10. Diese erhöhte Genauigkeit führt auch für die Forsmark-Probe zu keiner signifikanten Änderung der Ergebnisse, während der Rechenaufwand deutlich steigt. Aus diesen Gründen wurde im Folgenden das einfachere Modell verwendet. Der Vergleich des komplexeren Modells und weiterer Testrechnungen ist in Abb. 6.13 und Abb. 6.14 gezeigt. Zusätzlich verwendete Modellgrößen sind in Tab. 6.9 angegeben.



**Abb. 6.10** komplexe Geometrie des Forsmark-Brennelements 14595 in HELIOS

**Tab. 6.9** Zusätzlich verwendete Größen des Forsmark-Brennelements

Größe	Verwendeter Wert
Temperatur Brennstoff	873 K
Temperatur Hüllrohr	600,0 K
Temperatur H <sub>2</sub> O	559,5 K
Nominale Dichte H <sub>2</sub> O	0,73968 g/cm <sup>3</sup>

Gerade bei diesem Modell zeigt sich eine deutlich verbesserte Übereinstimmung zwischen Nachrechnung und Experiment bei Verwendung des in Kapitel 4.1 vorgestellten Kopplungsparameters,  $\beta_k = 4$  im Vergleich zu  $\beta_k = 1$ . Der größere Einfluss dieses Parameters im Vergleich zu den Fukushima-Proben lässt sich darauf zurückführen, dass der hier untersuchte Probenstab ein innerer Eckstab ist, der auf zwei Seiten von weiteren Brennstäben umgeben ist, während sich auf den anderen beiden Seiten die Wasserflügel befinden. Dadurch ist in der Umgebung des Probenstabes das Neutronenspektrum winkelabhängig. Diese wird durch eine genauere Unterteilung der Schnittstellenströme besser wiedergegeben, was eine genauere Reproduktion der

Nukliddichten erlaubt. Eine noch feinere Unterteilung der Schnittstellenströme führt bei weiter erhöhtem Rechenaufwand zu keinen signifikanten Unterschieden in den berechneten Kernzahldichten, weshalb im Weiteren darauf verzichtet wurde.

### 6.4.3 Verwendete Materialien

Im Folgenden sind die verwendeten Materialien aufgelistet. Aufgrund von fehlenden Angaben wird als Material der inneren Wasserflügel und des äußeren Kastens Zircaloy-2 angenommen. Es wird die gleiche Zusammensetzung verwendet, die für die Hüllrohre angegeben ist. Die Abstandshalter innerhalb der Wasserflügel und zwischen den Brennstäben werden im Modell vernachlässigt. Damit bestehen die Hüllrohre, die Wasserflügel, der äußere Kasten und der Brennelementkasten aus Zircaloy-2 mit einer Dichte von  $6,57 \text{ g/cm}^2$ . Die Dichte des Wassers in den Wasserflügeln und außerhalb des Brennelementkastens besitzt die nominale Dichte von  $\rho_{\text{H}_2\text{O}} = 0,73968 \text{ g/cm}^3$ . In Referenz /TÖR 11/ sind die anfänglichen Nuklidzusammensetzungen des Stabes an Position F6 angegeben. Aus deren Verhältnis und der durchschnittlichen Anreicherung (siehe Tab. 6.7), wurden die Anfangsanreicherungen aller Brennstäbe ermittelt (siehe Tab. 6.10). Die innerhalb der Hüllrohre verschmierte Brennstoffdichte hat einen Wert von  $10,048 \text{ g/cm}^3$ . Hinzu kommen bei den gadoliniumhaltigen Stäben 3,15 Gew.-%  $\text{Gd}_2\text{O}_3$ .

**Tab. 6.10** Anfangsanreicherungen aller Brennstäbe des Forsmark-Brennelements

<b>BS Nummer</b>	<b>durchschn. Gew.% <math>^{235}\text{U}</math></b>	<b>eff. Gew.% <math>^{234}\text{U}</math></b>	<b>eff. Gew.% <math>^{235}\text{U}</math></b>	<b>eff. Gew.% <math>^{236}\text{U}</math></b>	<b>eff. Gew.% <math>^{238}\text{U}</math></b>
9	4,00	0.031	3.965	0.013	95.991
10	3,60	0.028	3.569	0.012	96.392
11	3,60	0.028	3.569	0.012	96.392
12	1,98	0.015	1.963	0.006	98.016
13	2,22	0.017	2.201	0.007	97.775
14	2,81	0.022	2.785	0.009	97.184
15	3,17	0.025	3.142	0.010	96.823
16	3,60	0.028	3.569	0.012	96.392
17	4,00	0.031	3.965	0.013	95.991
18	3,17	0.025	3.142	0.010	96.823

#### 6.4.4 Vereinfachte Abbrand-Historie

In einem ersten Schritt wurde eine deutlich vereinfachte Leistungshistorie angenommen, die in Tab. 6.11 dargestellt ist. Dabei wurde die Leistung innerhalb jedes der sechs Zyklen gemittelt und anschließend so normiert, dass die berechnete Konzentration von  $^{148}\text{Nd}$  mit dem über alle vier Analysen gemittelten experimentellen Wert übereinstimmt (Abweichung < 0,2 %). Dafür wurde die Leistung und damit der Abbrand mit dem Faktor 1,003 multipliziert.

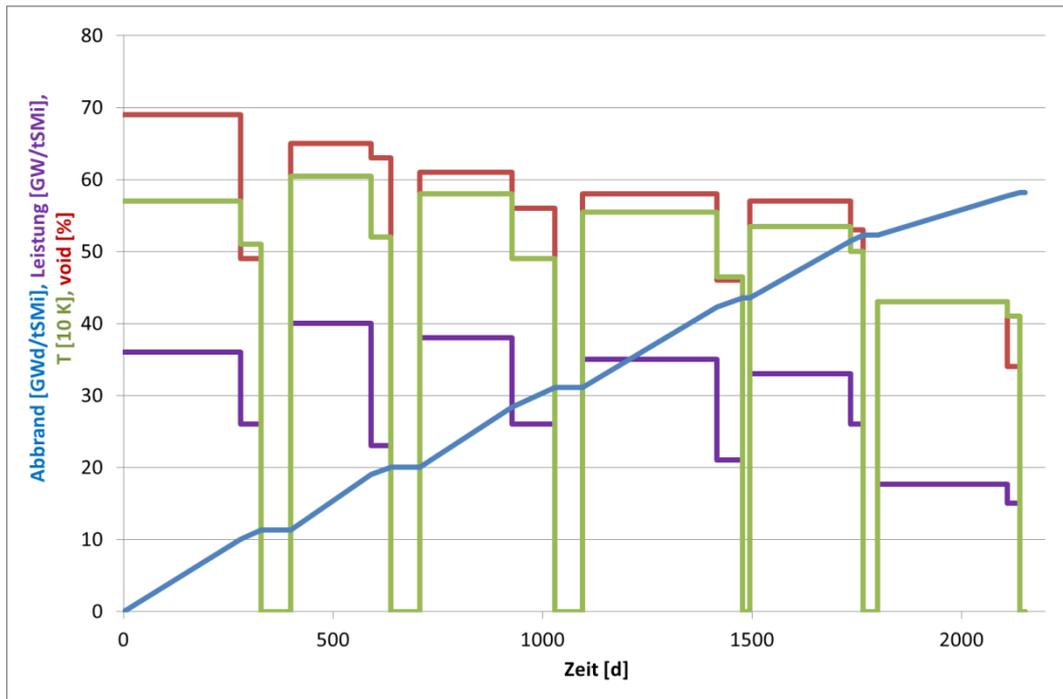
**Tab. 6.11** vereinfachte Abbrand Historie

Zyklus	aktive Tage [d]	Abklingzeit [d]	Leistung [MW/tSM]	Kumulierter Abbrand [MWd/tSM]	Dampfblasengehalt [%]	$\rho_{\text{H}_2\text{O}}$ [g/cm <sup>3</sup> ]
1	378	21	34.46	11.79	68.60	0.2573
2	280	28	36.63	20.88	64.60	0.2854
3	371	18	34.12	32.35	58.70	0.3269
4	381	18	32.68	45.34	54.90	0.3537
5	254	34	32.15	54.39	56.50	0.3424
6	353	-	17.42	60.57	42.50	0.4408

Die Kühlmitteltemperatur an der Probenposition beträgt 559,5 K, der mittlere Gesamt- abbrand beläuft sich nach obiger Korrektur auf 60,57 GWd/tSM. Der Dampfblasen- gehalt reduziert sich von anfänglich 68,6 % auf 42,5 % zum Ende des Zyklus. Aus dem angegebenen Dampfblasengehalt und Gleichung (1) kann mit der Wasserdichte von  $\rho_{\text{H}_2\text{O,flüssig}} = 0,73968 \text{ g/cm}^3$  und der Wasserdampfdichte von  $\rho_{\text{H}_2\text{O,Dampf}} = 0,03653 \text{ g/cm}^3$  die absoluten Moderatorichten für die sechs Zyklen berechnet werden, siehe Tab. 6.11.

#### 6.4.5 Detaillierte Abbrand Historie

In der aktuellen Version der SFCOMPO-2.0 der OECD/NEA /MIC 14/ ist für den Probenort die zeitlich sehr detaillierte Historie der linearen Leistung in kW/m, des Abbrands, der Brennstofftemperatur, und des Dampfblasengehalts angegeben. Für die sechs Zyklen liegen jeweils 92 Datenpunkte vor. Aus diesen Daten wurde durch Mittelung über jeweils den ersten Hauptteil jedes Zyklus und typischerweise den letzten Monat eine detaillierte Abbrandhistorie mit zwölf Schritten und sechs Stillstandszeiten ermittelt. Die entsprechenden Verläufe sind in Abb. 6.11 gezeigt.

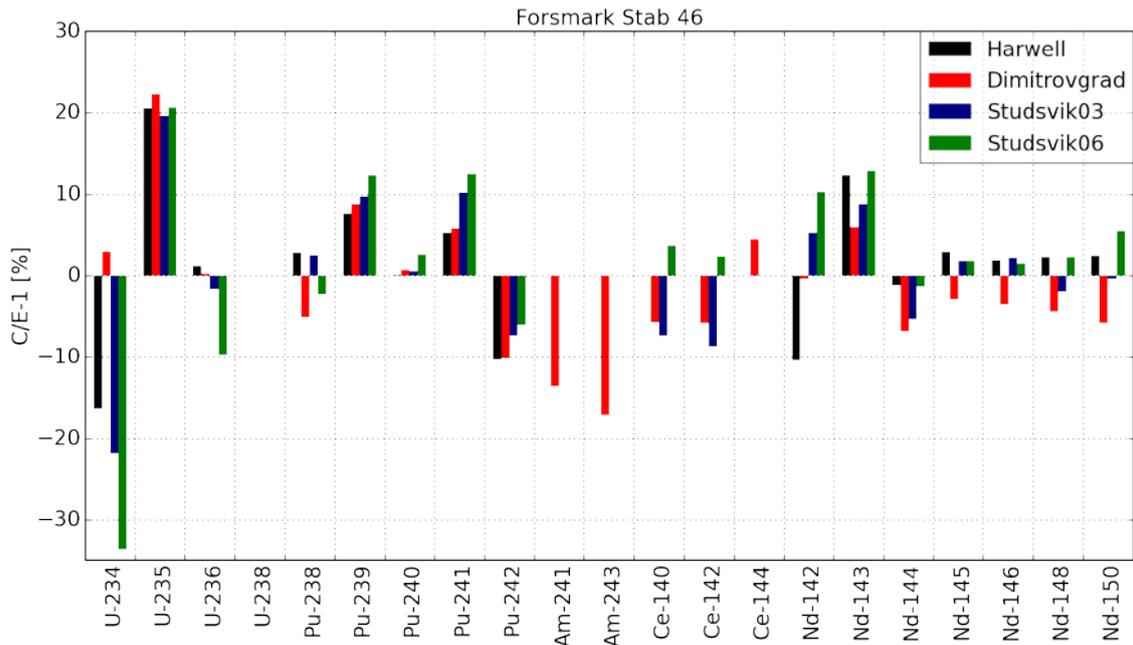


**Abb. 6.11** Detailliertere Abbrand-, Leistungs-, Temperatur-, und Void-Historie

Um auch für diese Abbrandhistorie die gemittelte experimentelle  $^{148}\text{Nd}$  Konzentration zu erreichen, war die Leistung und damit auch der Abbrand im Anschluss mit dem Faktor 0,9977 zu multiplizieren.

#### 6.4.6 Abbrandrechnung und Resultate

Für das Forsmark-Experiment sind in der Literatur für alle Analysen nicht die absoluten Nuklidmassen gegeben, sondern die Massen der jeweiligen Nuklide im Verhältnis zu  $^{238}\text{U}$  /TÖR 11/, /MIC 14/. Folglich ist für jedes berechnete Nuklid zuerst dieses Verhältnis zu bilden, welches dann für die Berechnung der Abweichung von berechneten zu experimentellen Werten von 1 (C/E-1) verwendet wird. In Abb. 6.12 sind die C/E-Ergebnisse mit normaler Geometrie (eine Ringzone für alle nicht-Gd-Brennstäbe) und vereinfachter Abbrand Historie für alle vier experimentellen Analysen gezeigt.



**Abb. 6.12** Vergleich von berechneten und experimentellen Nuklidkonzentrationen (C/E-1) für Experiment F6

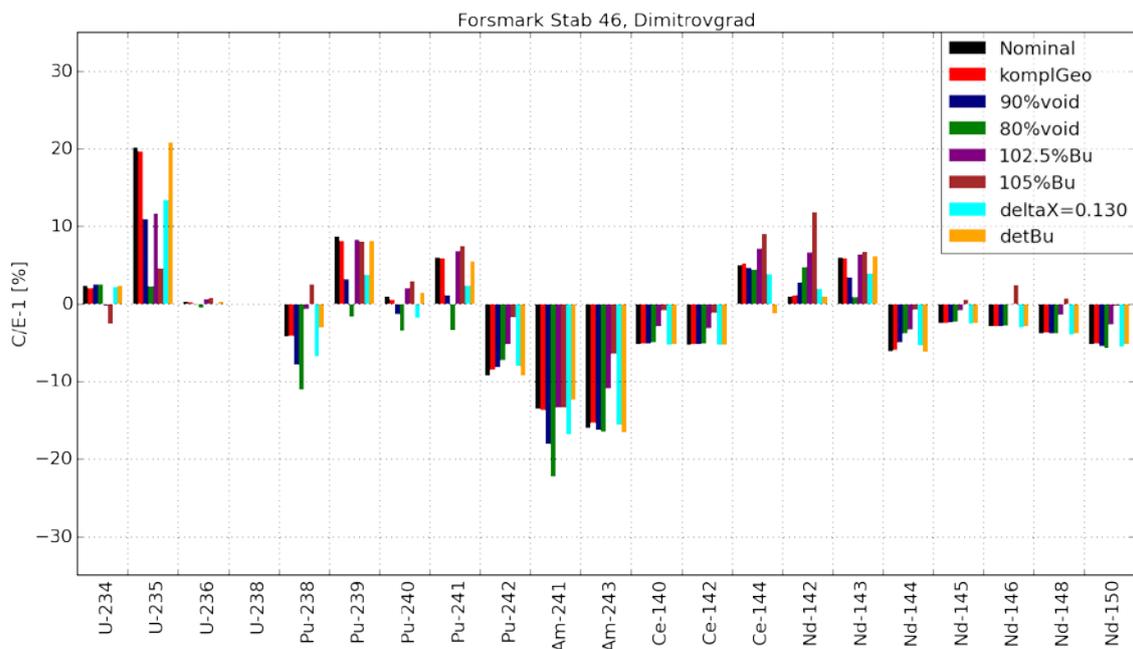
Die Ergebnisse der vier Analysen weichen teilweise stark voneinander ab. Ähnlich große Abweichungen wurden auch bei anderen Untersuchungen mit anderen Abbrandprogrammen gefunden. Aufgrund der Bildung des Verhältnisses zu  $^{238}\text{U}$  ist bei diesem Nuklid die Abweichung zwischen Nachrechnung und Experiment definitionsgemäß gleich Null. Die Konzentration von  $^{235}\text{U}$  wird bei der Berechnung mit etwa 20% überschätzt. Dies kann ein Indiz auf einen zu geringen Abbrand sein. Die Überschätzung von  $^{239}\text{Pu}$  und  $^{241}\text{Pu}$  um knapp 10% weisen auf ein zu hartes Neutronenspektrum in der Nachrechnung hin, da ein härteres Neutronenspektrum zu einer Erhöhung des Neutroneneinfangs bei  $^{238}\text{U}$  führt. Ein zu hartes Neutronenspektrum ist ebenso mit der überschätzten  $^{235}\text{U}$ -Konzentration konsistent. Denn bei einem weicherem Spektrum würde weniger Leistung aufgrund der Spaltung von Plutonium frei, folglich würde bei vorgegebenem Abbrand mehr  $^{235}\text{U}$  abgebrannt werden, was die hier beobachtete Überschätzung von  $^{235}\text{U}$  verringern würde.

Um einen möglichen Ursprung dieser Abweichungen zu ermitteln, wurden im Folgenden einige Änderungen am Rechenmodell verwirklicht und deren Einfluss auf die C/E-Werte untersucht. Dabei wurden folgende Modifikationen betrachtet:

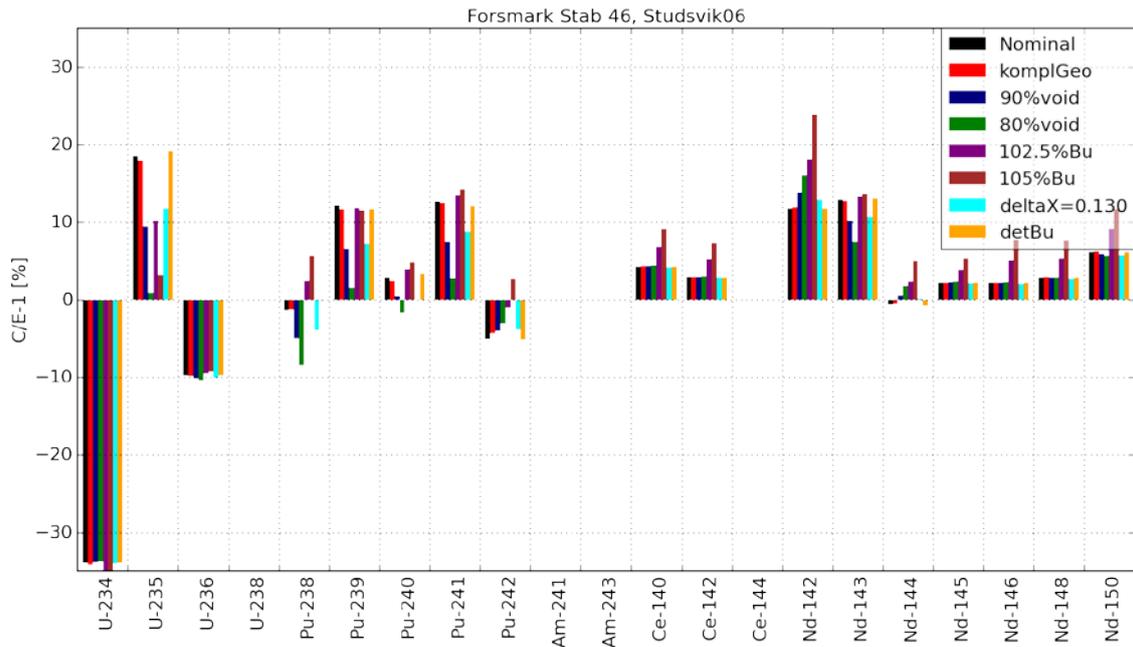
- Komplexere Geometrie (siehe Kapitel 6.4.2).
- Verringerung des Dampfblasengehalts im Brennelement um 10% und 20%, was einer in etwa gleichen Erhöhung der Moderatorichte entspricht.

- Erhöhung des Abbrands um 2,5 % und 5 %.
- Verschiebung aller Stäbe um 0,130 cm in x- und y-Richtung nach außen (10 % des Brennstabdurchmessers), da keine Information vorliegt, ob sich die 5 x 5 Brennstabbündel mittig in den vier Quadranten des Brennstabkastens befinden. Dies ist der modellbedingt maximale Wert, damit sich die Brennstäbe noch in den Einheitszellen befinden.
- Detaillierte Abbrand-, Leistungs-, Void- und Temperaturhistorie (siehe Kapitel 6.4.5).

In Abb. 6.13 und Abb. 6.14 sind die jeweiligen C/E-Werte mit den Messungen von Dimitrovgrad und Studsvik06 im Vergleich zu dem Referenzfall aus Abb. 6.12 gezeigt (Nominal, schwarz). Die C/E-Werte dieser beiden Analysen liegen am weitesten auseinander.



**Abb. 6.13** Vergleich von berechneten und experimentellen Nuklidkonzentrationen (Dimitrovgrad) für verschiedene Änderungen am Modell



**Abb. 6.14** Vergleich von berechneten und experimentellen Nuklidkonzentrationen (Studsvik06) für verschiedene Änderungen am Modell

Folgende Beobachtungen können gemacht werden:

- Zwischen einfacher und komplexer Geometrie sind die Unterschiede vernachlässigbar gering, und es lässt sich keine generelle Aussage treffen welches Modell die experimentellen Werte besser wiedergibt. Aufgrund des deutlich einzusparenden Rechenaufwands wird für alle weiteren Analysen und insbesondere für die Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalyse die einfache Geometrie verwendet.
- Die Erniedrigung des Dampfblasengehalts (Erhöhung der Moderatorichte) führt bei  $^{235}\text{U}$  und den Plutoniumisotopen generell zu einer besseren Übereinstimmung, wobei das Optimum für  $^{235}\text{U}$  bei 80 % und für die Plutoniumisotope eher bei 90 % liegt.
- Die Erhöhung des Abbrands führt zwar bei  $^{235}\text{U}$  zu einer deutlich besseren Übereinstimmung (Optimum bei etwa plus 4 %), der Einfluss auf Plutonium fällt aber deutlich geringer aus. Bei einigen Spaltprodukten verschlechtert sich die Übereinstimmung deutlich. Während im Vergleich zu den Dimitrovgrad-Messungen die Neodymisotope bei einer Erhöhung um etwa 2 % deutlich besser getroffen werden, entfernen sich für die Studsvik06-Analyse die Nuklidichten des Abbrandindikators  $^{148}\text{Nd}$  von dem gemessenen experimentellen Wert.
- Die Verschiebung der Brennstäbe nach außen führt weitgehend zu einer etwas besseren Übereinstimmung mit den experimentellen Werten. Auch hierbei wird

das Spektrum aufgrund der veränderten Moderation zu niedrigeren Energien hin modifiziert.

- Die detaillierte Abbrandhistorie hat einen geringen Einfluss auf die meisten Nuklidkonzentrationen und verschlechtert z. B. für  $^{235}\text{U}$  die Übereinstimmung geringfügig. Nur bei Nukliden, deren Konzentrationen eine starke Sensitivität auf die zum Bestrahlungsende hin herrschende Leistung zeigen, ergibt sich eine etwas bessere Übereinstimmung, z. B.  $^{241}\text{Am}$  und  $^{144}\text{Ce}$ .

Aus diesen Beobachtungen kann geschlossen werden, dass in der experimentellen Beschreibung der Abbrandbedingungen der Dampfblasengehalt eventuell überschätzt oder der Abbrand eventuell unterschätzt wird. Dabei ist eine Kombination aus beiden Effekten möglich. Hinsichtlich des Abbrands zeigt die große Streubreite der experimentellen Untersuchungen für  $^{148}\text{Nd}$  bereits, dass die Abbrandbestimmung einer recht großen Unsicherheit unterliegt. Da der Abbrand so normiert wurde, dass der Mittelwert der  $^{148}\text{Nd}$  Analysen korrekt wiedergegeben wird, liegt die Schlussfolgerung nahe, dass die entsprechenden Werte aus den Analysen von Dimitrovgrad und Studsvik03 näher an den tatsächlichen Werten liegen als die der anderen beiden Analysen.

## 6.5 Stochastische Unsicherheitsanalyse auf Systemparameter

Für eine Auswahl der in Kapitel 6.3 und 6.4 analysierten Nachbestrahlungsproben wurden stochastische Unsicherheitsanalysen auf Basis unsicherer Systemparameter durchgeführt, um den Einfluss dieser Unsicherheiten auf die Nuklidzusammensetzung des bestrahlten Brennstoffs zu ermitteln. Zu diesen Parametern gehören neben geometrischen Größen und der Brennstoffzusammensetzung auch Abbrandgrößen. Diese beinhalten bei Siedewasserreaktoren neben dem Abbrand und den Temperaturen auch den Dampfblasengehalt. In der Unsicherheitsanalyse werden die Effekte auf diejenigen Nuklide betrachtet, die auch in den chemischen Analysen analysiert wurden. Für alle Nuklide wurde jeweils der Pearson-Korrelationskoeffizient zwischen der Nuklidmasse und jedem unsicheren Parameter ermittelt. Zu beachten ist, dass es sich hierbei nicht um eine klassische Sensitivität handelt, sondern der jeweilige Einfluss der tatsächlichen Variation des unsicheren Systemparameters auf die Unsicherheit der berechneten Nuklidmasse ermittelt wird.

Außerdem wurde die Summe aus den rechnerisch ermittelten Unsicherheiten der Nuklidmassen und den experimentellen Unsicherheiten mit den Abweichungen zwischen

Berechnung und Experimente verglichen, um zu ermitteln ob die sich aus den unsicheren Abbrandgrößen ergebenden Unsicherheiten der Nuklide die Abweichungen zwischen Nachrechnung und Messung erklären können.

In der zur Verfügung stehenden freien Literatur finden sich zwar teilweise Unsicherheiten zu den experimentellen Nuklidmassen, allerdings sind Betreiberangaben zu Unsicherheiten der Systemparameter kaum verfügbar. Bei der Analyse der uns vorliegenden Dokumente konnten nur zwei Quellen mit entsprechenden Daten gefunden werden. In der Evaluation der experimentellen Probe F3F6 aus dem schwedischen Siedewasserreaktor Forsmark-3 im Zuge der SFCOMPO /TÖR 11/ sind einige Unsicherheiten angegeben. Diese sind in Tab. 6.12 wiedergegeben. Zusätzlich sind die sich daraus berechneten relativen Unsicherheiten für die zwei Reaktoren Fukushima und Forsmark angegeben, die mithilfe der Unsicherheitsanalyse untersucht wurden.

**Tab. 6.12** Unsicherheiten der Forsmark-3-Probe F3F6 nach /TÖR 11/

Größe	Bezeichner	Gegebene Unsicherheit	Rel. Unsicherheit für Fukushima	Rel. Unsicherheit für Forsmark
Hüllrohraußendurchmesser	$d_{\text{clad out}}$	$\pm 0,005 \text{ cm}$	0,4 %	0,5 %
Brennstoffdichte	$\rho_{\text{fuel}}$	$\pm 0,10 \text{ g/cm}^3$	1,0 %	1,0 %
Dampfblasengehalt	void	$\pm 3,0 \%$	3,0 %	3,0 %
Brennstofftemperatur	$T_{\text{fuel}}$	$\pm 50^\circ \text{ C}$	5,6 %	6,1 %
Anreicherung $^{235}\text{U}$	$\text{wt}\% \text{ } ^{235}\text{U}$	$\pm 0,0005 \%$	0,013 - 0,025 %	0,013 – 0,025 %
Abbrand	burnup	$\pm 3,5 \%$	3,5 %	3,5 %

Eine zweite Quelle, in der typische Unsicherheiten für den Betrieb von Siedewasserreaktoren angegeben sind, ist der „Leitfaden für die Bewertung von abgebrannten Nachbestrahlungsproben“, der im Zuge der SFCOMPO von der OECD/NEA veröffentlicht wurde /OEC 14/. Die angegebenen Werte sind in Tab. 6.13 wiedergegeben. Auch für diese Daten sind die sich daraus ergebenden relativen, bzw. absoluten Unsicherheiten für die zwei analysierten Reaktoren Fukushima und Forsmark angegeben.

**Tab. 6.13** Typische Unsicherheiten von Siedewasserreaktoren nach /OEC 14/

Größe	Bezeich- ner	Gegebene Unsi- cher- heit	Rel. Unsi- cherheit für Fukushima	Rel. Unsi- cherheit für Forsmark
Brennstoffdurchmesser	$d_{\text{fuel}}$	$\pm 0,02$ cm	1.9 %	2,4 %
Hüllrohrinnendurchmesser (nicht verwendet)		$\pm 0,02$ cm	1.9 %	2,4 %
Hüllrohraußendurchmes- ser	$d_{\text{clad out}}$	$\pm 0,02$ cm	1.6 %	2,1 %
Effektiver Brennstabab- stand	$d_{\text{pitch eff}}$	$\pm 0,004$ cm	0.2 %	0,3 %
Brennstoffdichte	$\rho_{\text{fuel}}$	$\pm 1,5$ %	1.5 % ( $\rightarrow 0.1491$ g/cm <sup>3</sup> )	1,5 % ( $\rightarrow 0,1507$ g/cm <sup>3</sup> )
Dampfblasengehalt	void	$\pm 6$ %	6 %	6 %
Brennstofftemperatur	$T_{\text{fuel}}$	$\pm 5$ %	5 % ( $\rightarrow 45$ K)	5 % ( $\rightarrow 41,15$ K)
Anreicherung <sup>235</sup> U	wt% <sup>235</sup> U	$\pm 0,05$ %	1.279 – 2.504 %	1,261 – 2,547 %
Abbrand	burnup	$\pm 2$ %	2 %	2 %

Für die stochastische Unsicherheitsanalyse wurde die Monte-Carlo-Methode angewendet, bei der von den unsicheren Systemparametern entsprechend ihrer Verteilungen voneinander unabhängige Stichproben erstellt werden (jeweils 250 Werte). Mit Hilfe dieser Werte werden aus einem HELIOS-Eingabetemplate des Rechenmodells 250 Eingabedateien erzeugt. Diese werden einzeln berechnet und die Ergebnisse anschließend stochastisch ausgewertet und mit den experimentellen Daten verglichen. Aufgrund der spärlichen Informationen zu unsicheren Systemparametern in der Literatur wurden beide Sätze von Unsicherheiten auf sieben der oben analysierten Proben angewendet.

### 6.5.1 Unsicherheitsanalysen der Fukushima-Daini-2 Proben

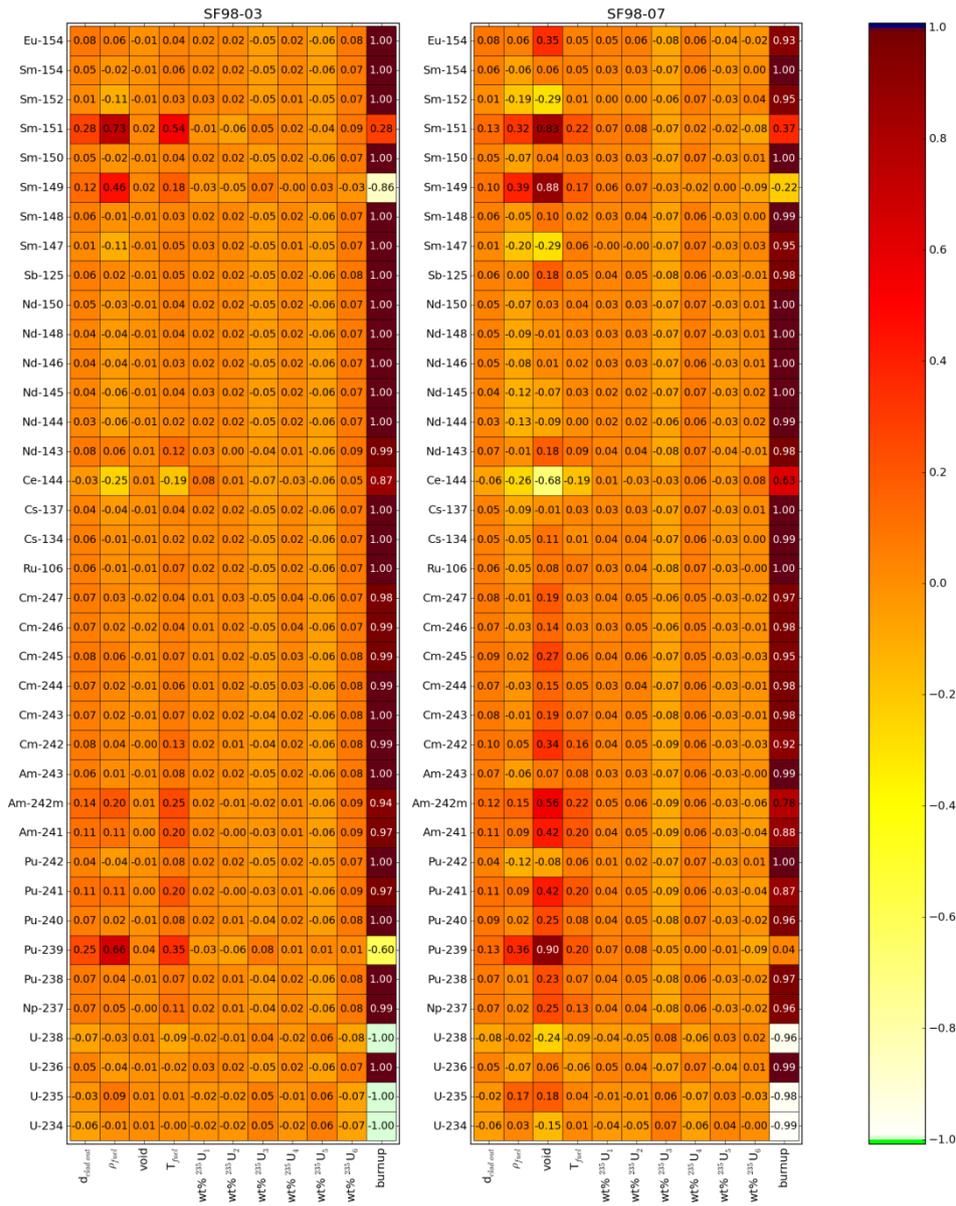
Die Unsicherheitsanalyse wurde auf die Fukushima-Daini-2-Proben mit beiden Sätzen an Unsicherheiten angewendet, da für diesen Reaktor keine spezifischen Informationen zur Verfügung stehen. Für insgesamt sechs Proben aus beiden Stäben wurde die Unsicherheitsanalyse auf Systemparameter durchgeführt, drei Fälle aus Stab SF98 und drei Fälle aus dem gadoliniumhaltigen Stab SF99. Eine Übersicht über die gerechneten Proben und die wichtigsten Parameter findet sich in Tab. 6.14.

**Tab. 6.14** Analysierte Proben des Reaktors Fukushima-Daini-2

Proben	Dampfblasen- gehalt [%]	Temperatur Moderator [K]	Mittlerer Abbrand [GWd/tSM]
SF98:			
SF98-03	3,0	556,0	32,87
SF98-05	32,0	559,15	39,66
SF98-07	68,0	559,15	35,60
SF99:			
SF99-02	1,4	554,95	25,58
SF99-05	27,5	559,15	39,89
SF99-07	66,5	559,15	35,44

#### 6.5.1.1 Unsicherheitsanalyse mit Unsicherheitsdaten aus dem Forsmark-Bericht

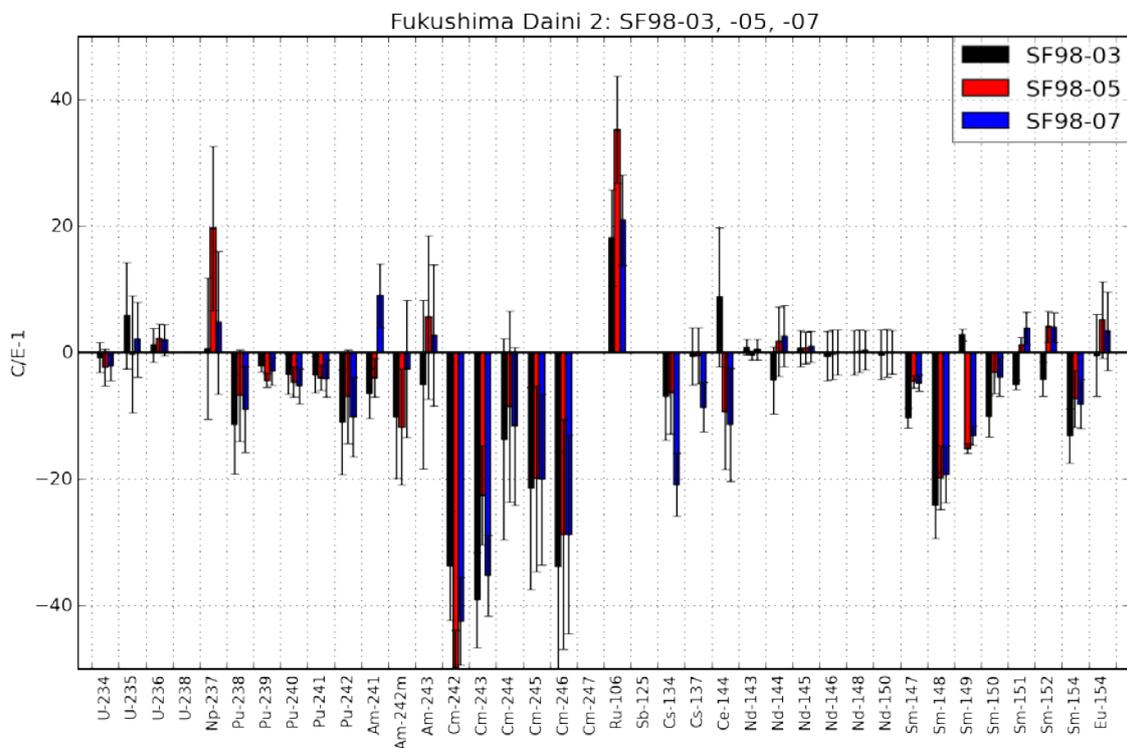
Zuerst wird die Unsicherheitsanalyse mit Unsicherheiten der Systemparameter aus dem Forsmark-Bericht betrachtet. Sowohl die Abbrandbedingungen, als auch die resultierenden Korrelationen zwischen den Nukliden und den unsicheren Systemparametern sind paarweise jeweils sehr ähnlich (SF98-03/SF99-02, SF98-05/SF99-05, SF98-07/SF99-07). Außerdem liegen die Korrelationen der Fälle SF98-05/SF99-05 zwischen den anderen beiden untersuchten Paaren, sodass im Folgenden exemplarisch nur SF98-03 und SF98-07 näher betrachtet werden. In Abb. 6.15 sind die errechneten Pearson-Korrelationskoeffizienten zwischen allen Nukliddichten und den variierten Parametern gemäß den Unsicherheiten aus dem Forsmark-Bericht gezeigt.



**Abb. 6.15** Korrelation der Nukliddichten mit variierten Parametern mit Forsmark-  
Unsicherheiten

Für die Unsicherheiten fast aller Nukliddichten ist ausschließlich die Variation des Abbrands ausschlaggebend (Korrelation  $\sim -1$  oder  $1$ ). Für einige Nuklide spielen auch die Brennstoffdichte und die Brennstofftemperatur eine Rolle. Bei steigendem Dampfblasengehalt (SF98-07) wirkt sich auch die Variation dieses Werts auf einige Nuklide aus, deren Erzeugung und Abbrand sensitiv auf die Neutronenenergie und damit das Moderationsverhältnis reagieren. Dies ist am deutlichsten bei  $^{239}\text{Pu}$  zu sehen, das bei 66,4 % Dampfblasengehalt fast ausschließlich vom Parameter *void* abhängt und nicht mehr vom Abbrand. Für die Analyse des Brennstabs SF99 ergibt sich ein fast identisches Bild.

In Abb. 6.16 sind exemplarisch für die drei experimentellen Proben SF98-03, -05 und -07 die Mittelwerte der C/E-Werte und deren kombinierten  $1\sigma$ -Unsicherheiten aufgrund des Samplings mit Forsmark-Unsicherheiten und der experimentellen Unsicherheiten gezeigt.



**Abb. 6.16** Mittelwerte von C/E-1 mit kombinierten  $1\sigma$  Unsicherheiten aufgrund des Samplings mit Forsmark-Unsicherheiten und den experimentellen Unsicherheiten der chemischen Analyse für die Experiment SF98-03, 05, und -07

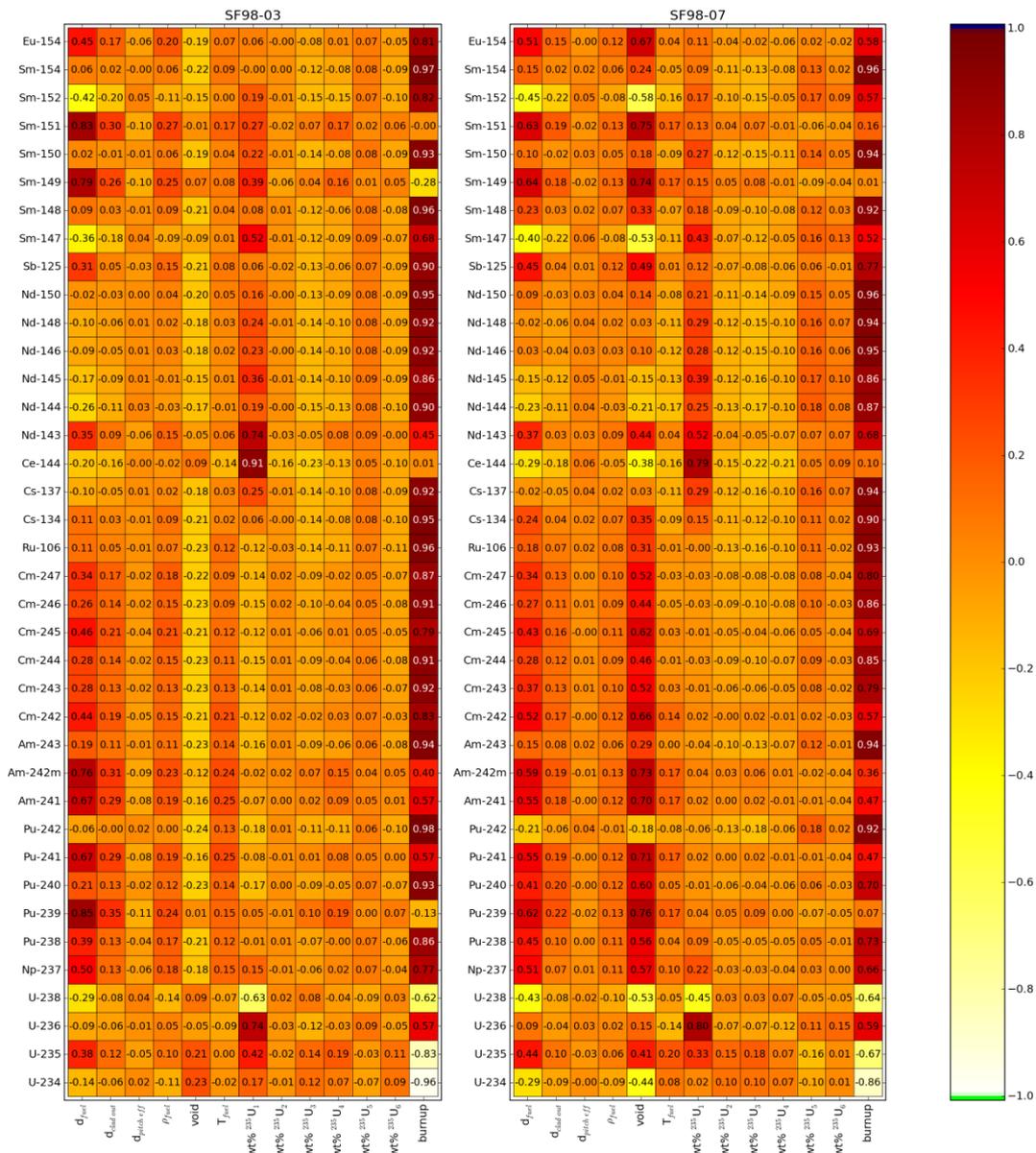
Bei den Uran- und Neodym-Isotopen liegen die Nachrechnungen innerhalb der  $1\sigma$ -Unsicherheiten des Samplings. Die Abweichungen von Np, Pu, Am,  $^{244}\text{Cm}$ , Cs, Eu und einiger Sm-Isotope liegen meist innerhalb oder nur knapp außerhalb der  $1\sigma$ -Unsicherheit. Für alle übrigen Isotope, ausgenommen  $^{242,243}\text{Cm}$ ,  $^{106}\text{Ru}$  und  $^{148}\text{Sm}$ , liegen die Abweichungen innerhalb einer  $2\sigma$ -Unsicherheit. Die Unterschätzung von Curium in Abbrandrechnungen ist ein bekannter Effekt, der auf Defizite in den Wirkungsquerschnitten in den verwendeten Bibliotheken zurückzuführen ist /KIL05/. Hier ist eine Verbesserung der Ergebnisse durch eine Verwendung aktuellerer Wirkungsquerschnittsdaten zu erwarten, die allerdings für die verwendete HELIOS-Version nicht zur Verfügung stehen. Beim metallischen Ruthenium ergibt sich die Schwierigkeit, dass es im Brennstab zusammen mit anderen metallischen Spaltprodukten agglomeriert und

dadurch chemisch teilweise inertisiert wird. Damit besteht vor allem bei älteren chemischen Analysen die Möglichkeit, dass das Ruthenium nicht vollständig und damit nicht quantitativ aufgelöst werden konnte und somit die experimentell gemessene Nuklidichten ggf. deutlich niedriger ausfallen können, als sie in Wirklichkeit vorliegen.

Somit zeigt sich, dass die Unsicherheiten der berechneten Nuklidichten aufgrund der Unsicherheiten der Abbrandbedingungen (für die Forsmark-Unsicherheiten hauptsächlich der Abbrand selbst) die Abweichungen von Nachrechnung zu Experiment weitgehend erklären können. Für die Analyse des Brennstabs SF99 ergibt sich ein ähnliches Bild. Für eine eventuelle Validierung eines Abbrandcodes für die Anwendung beim Abbrandkredit sind sowohl die experimentellen Unsicherheiten als auch die sich aus der Unsicherheitsanalyse ergebenden Unsicherheiten konservativ zu berücksichtigen, z. B. für Isotopenkorrekturfaktoren.

#### **6.5.1.2 Unsicherheitsanalyse mit OECD/NEA Unsicherheiten**

Des Weiteren wurde die Unsicherheitsanalyse auch mit den Unsicherheiten aus dem OECD/NEA-Bericht durchgeführt. Auch bei dieser Analyse erweisen sich die resultierenden Korrelationen zwischen den Nukliden und den unsicheren Systemparametern paarweise als jeweils sehr ähnlich (SF98-03/SF99-02, SF98-05/SF99-05, SF98-07/SF99-07). Außerdem liegen wieder die Korrelationen der Fälle SF98-05/SF99-05 zwischen den anderen beiden untersuchten Fällen, sodass, ebenso wie in Abschnitt 6.5.1.1, im Folgenden exemplarisch nur SF98-03 und SF98-07 näher betrachtet werden. In Abb. 6.17 sind die Pearson-Korrelationskoeffizienten zwischen allen Nuklidichten und den variierten Parametern nach den Unsicherheiten aus dem OECD/NEA-Bericht gezeigt.



**Abb. 6.17** Korrelation der Nuklidichten mit variierten Parametern mit OECD/NEA Unsicherheiten

Es ist zu erkennen, dass sich für die im OECD/NEA-Bericht gegebenen Unsicherheiten Unterschiede in den Abhängigkeiten im Gegensatz zu der Unsicherheitsanalyse mit Unsicherheitsdaten aus /TÖR 11/ (Forsmark-Bericht) ergeben. So ist, neben dem Abbrand, für zahlreiche Nuklide auch der Brennstoffdurchmesser für die Unsicherheiten der Nuklidmassen relevant, der sowohl das Moderationsverhältnis als auch den zur Verfügung stehenden Brennstoff beeinflusst. Dieser Wert wurde im Forsmark-Bericht nicht als unsicherer Parameter angegeben und fehlt deshalb bei der vorherigen Betrachtung. Der Einfluss der spektrumsrelevanten Größen wie Dampfblasengehalt und äußerer Hüllrohrdurchmesser ist ähnlich wie im Fall der Unsicherheitsdaten des Fors-

mark-Berichts. Naturgemäß ist der Einfluss des Dampfblasengehalts bei Probe SF98-03 weitgehend vernachlässigbar, da der Wert mit 3 % sehr gering ist, tritt aber bei Probe SF98-07 für zahlreiche Nuklide deutlich zutage.

Einige Nuklide ( $^{236}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{143}\text{Nd}$ ,  $^{144}\text{Ce}$  und  $^{147}\text{Ce}$ ) sind auf die Anfangsanreicherung des Probenstabs (Parameter  $\text{wt}\%^{235}\text{U}_7$ ) deutlich sensitiv. Zu beachten ist hier, dass die im OECD/NEA-Bericht gegebenen Unsicherheiten der Anreicherungen um etwa den Faktor 100 größer sind als im Forsmark-Bericht. Bei den drei untersuchten Proben aus Stab SF99 sind diese Nuklide in ähnlicher Weise auf dessen Anfangsanreicherung (Parameter  $\text{wt}\%^{235}\text{U}_6$ ) sensitiv.

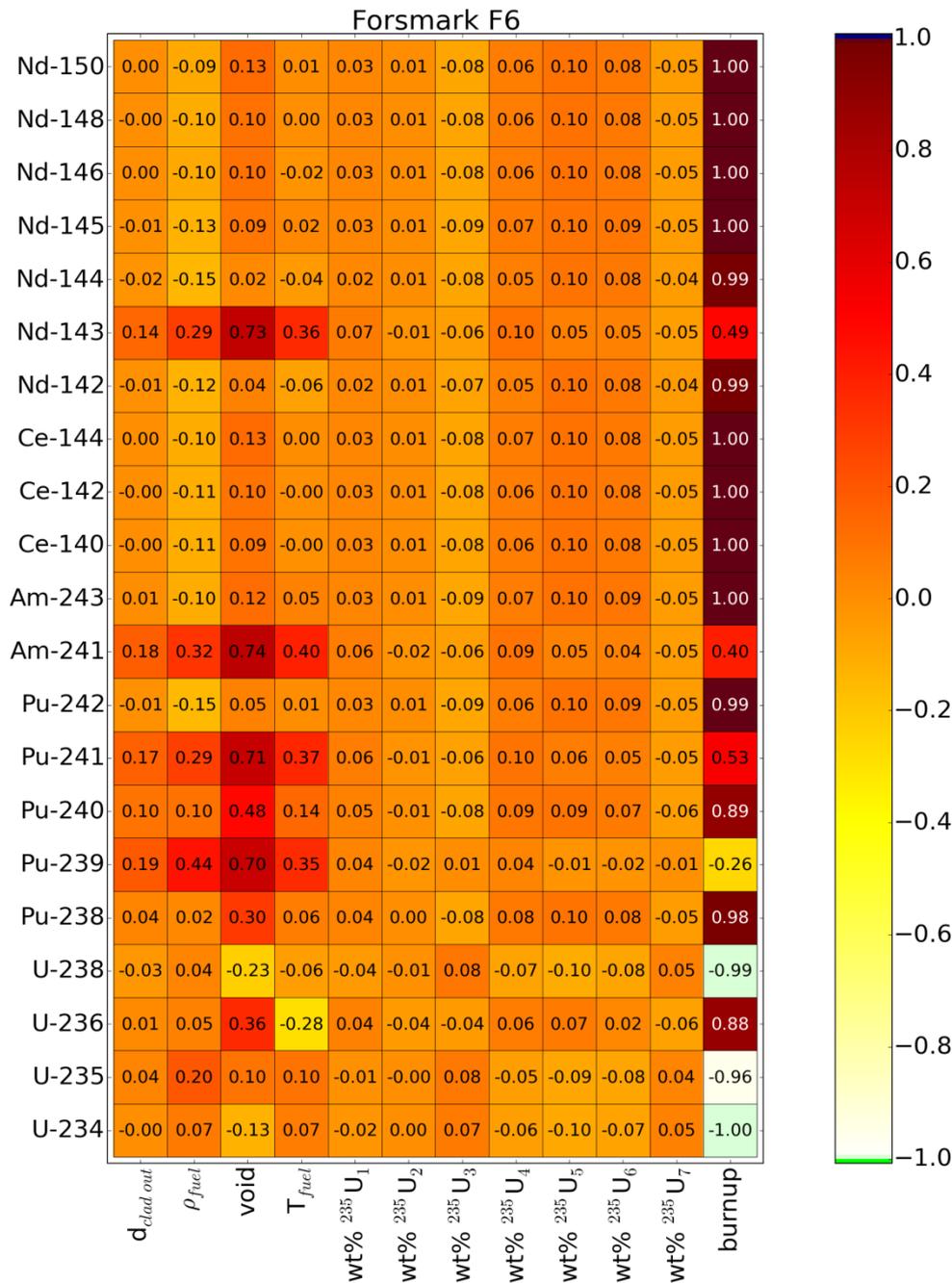
Der Vergleich der kombinierten  $1\sigma$ -Unsicherheiten von C/E-1 aufgrund des Samplings mit OECD/NEA-Unsicherheiten und der Unsicherheiten der experimentellen Untersuchungen mit der mittleren Abweichung zwischen Nachrechnung und Experiment (C/E-1) führt zu vergleichbaren Ergebnissen, wie in Kapitel 6.5.1.1 für die Forsmark-Unsicherheiten (siehe Abb. 6.16). Die Unsicherheiten der Nuklidmassen liegen bei sehr ähnlichen Werten, sodass sie innerhalb des  $2\sigma$ -Intervalls die teils großen Abweichungen zwischen Nachrechnung und Experiment weitgehend erklären können.

## **6.5.2 Unsicherheitsanalysen der Forsmark-Probe**

Die Unsicherheitsanalyse wurde auch auf die zur Verfügung stehende Analyseprobe des Forsmark-Reaktors mit beiden Sets von Unsicherheiten angewendet.

### **6.5.2.1 Unsicherheitsanalyse mit Forsmark-Unsicherheiten**

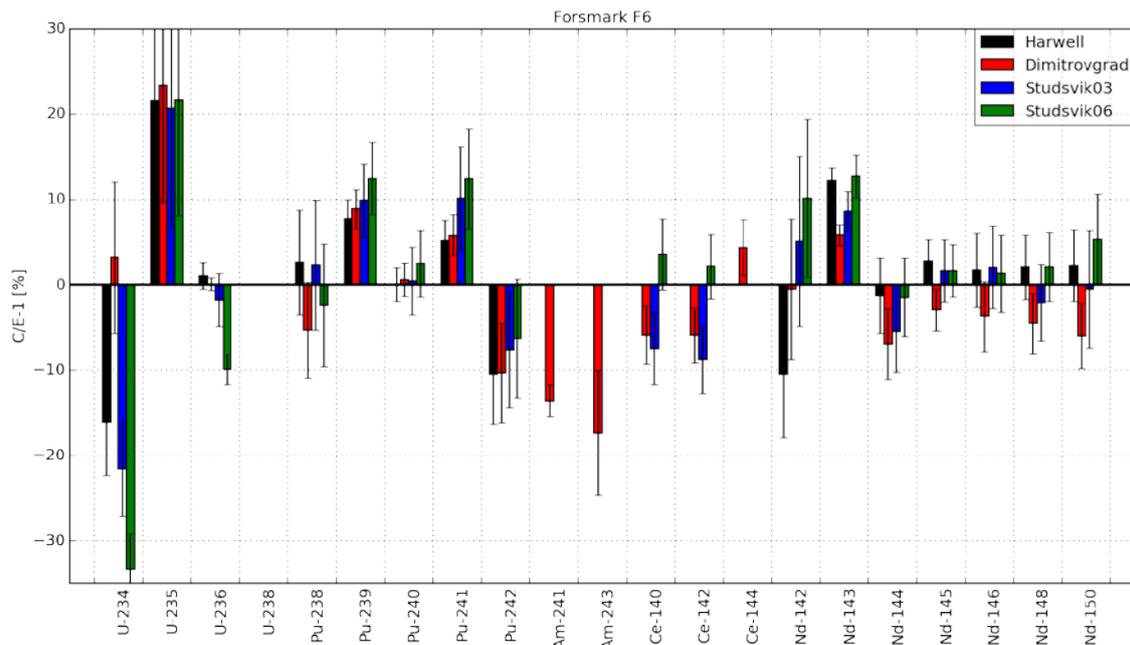
In Abb. 6.18 sind die Pearson Korrelationskoeffizienten zwischen allen Nukliddichten der experimentellen Probenanalyse und den variierten Parametern nach den Unsicherheiten aus dem Forsmark-Bericht dargestellt.



**Abb. 6.18** Korrelation der Nukliddichten mit variierten Parametern nach Forsmark-  
Unsicherheiten

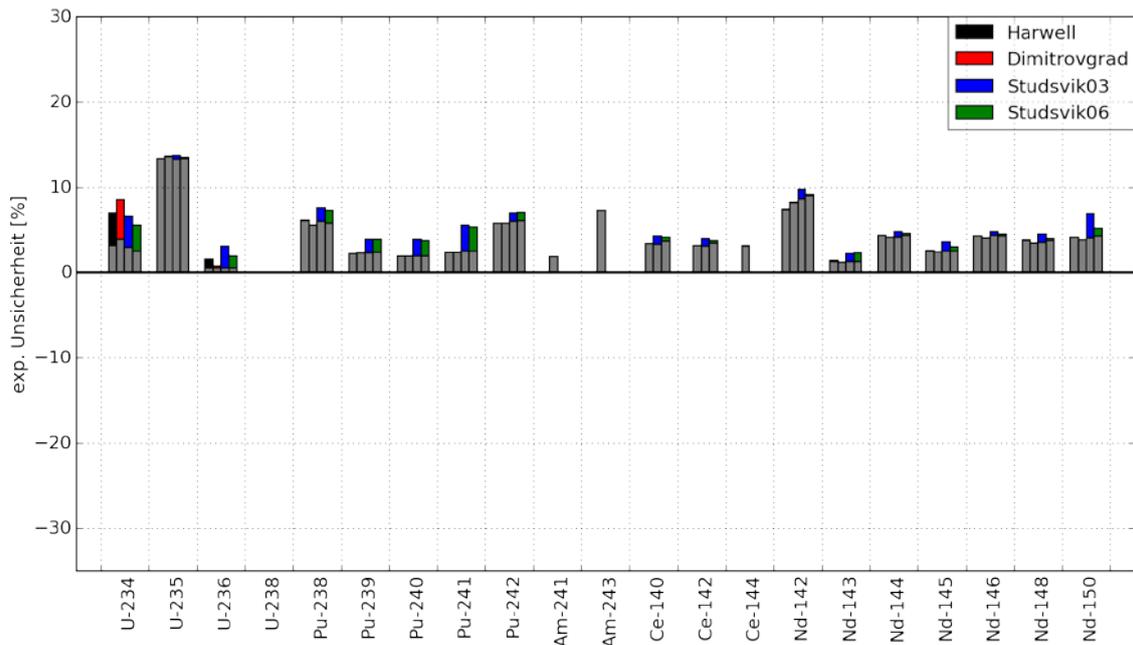
Dabei zeigt sich ein ähnliches Bild, wie bei den Fukushima-Proben mit höherem Dampfblasengehalt: Für die Unsicherheiten eines Großteils der Nuklide ist ausschließlich oder zu einem großen Teil die Unsicherheit des Abbrands verantwortlich. Bei denselben Nukliden wie bei den Fukushima-Proben kommen noch Sensitivitäten auf spektralverändernde Effekte wie den Dampfblasengehalt, die Brennstoffdichte und den Hüllrohräußendurchmesser hinzu.

In Abb. 6.19 sind für die Forsmark-Probe die Mittelwerte von C/E-1 und deren kombinierten  $1\sigma$ -Unsicherheiten aufgrund des Samplings mit Forsmark-Unsicherheiten und den Unsicherheiten der vier experimentellen Untersuchungen gezeigt. Dabei liegen die angegebenen experimentellen Unsicherheiten im Bereich von wenigen Promille bis einigen Prozent, sodass sie gegenüber den Unsicherheiten aus dem Sampling zumeist vernachlässigt werden können.



**Abb. 6.19** Mittelwert von C/E-1 im Vergleich zur Unsicherheit von C/E-1 aufgrund des Samplings mit Forsmark Unsicherheiten für die Forsmark Probe

Abb. 6.20 zeigt für alle experimentellen Untersuchungen die Zusammensetzung der Gesamtunsicherheiten aus experimentellen Unsicherheiten und Samplingunsicherheiten mit dem gleichen Abbildungsmaßstab wie Abb. 6.19. Dabei stellen die farbigen Balken die (quadratisch addierte) kombinierte Unsicherheit dar, während die grauen Balken die reinen Samplingunsicherheiten zeigen. Bis auf wenige Nuklide dominieren die Samplingunsicherheiten die Gesamtunsicherheiten, ganz besonders für die Harwell- und Dimitrovgrad- Messungen, bei denen fast alle experimentellen Messunsicherheiten der Nuklide deutlich niedriger liegen als bei den Studsvik-Messungen. Vergleicht man die C/E-Werte zahlreicher Nuklide mit den experimentellen Unsicherheiten, so fällt vor allem für die Harwell- und Dimitrovgrad-Messungen auf, dass diese innerhalb der Unsicherheiten nicht übereinstimmen und somit die angegebenen Unsicherheiten vermutlich unterschätzt wurden.



**Abb. 6.20** Relative Unsicherheiten der experimentellen Messungen der Forsmark-Probe

Bei der Berechnung der Nominalwerte von C/E-1 in Kapitel 6.4.6 fielen schon die teils großen Abweichungen zwischen Nachrechnung und Experiment auf, die in diesem Umfang aber auch bei anderen Untersuchungen mit anderen Abbrandcodes (z. B. KENOREST und TRITON) aufgefallen sind. Allerdings weichen schon die Ergebnisse der einzelnen Messungen deutlich voneinander ab. Bei Betrachtung der Unsicherheiten der C/E-Werte fallen folgende Punkte auf:

- Für zahlreiche Nuklide liegen die Nachrechnungen aller Proben innerhalb der  $1\sigma$  Unsicherheit oder knapp außerhalb:  $^{236}\text{U}$ ,  $^{238,240}\text{Pu}$ ,  $^{144}\text{Ce}$  und Neodym (außer  $^{142,143}\text{Nd}$ ).
- Für einige Nuklide liegen eine, oder mehrere Nachrechnungen innerhalb der  $1\sigma$  Unsicherheit:  $^{234}\text{U}$ ,  $^{241,242}\text{Pu}$ ,  $^{140,142}\text{Ce}$  und  $^{142}\text{Nd}$ .
- Für einige Nuklide liegen die Nachrechnungen aller Proben innerhalb der  $2\sigma$  Unsicherheit oder knapp außerhalb:  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  und  $^{243}\text{Am}$ .
- Zwei Nuklide liegen deutlich außerhalb der berechneten Unsicherheiten:  $^{241}\text{Am}$  und  $^{143}\text{Nd}$ .

Die durch Variation nach Forsmark-Unsicherheiten resultierenden Unsicherheiten von  $^{148}\text{Nd}$  spiegeln die Abweichungen der vier PIE Proben wieder. Die Standardabweichung

chung der vier Messungen liegt bei etwa 3,5 %. Allerdings ist zu beachten, dass über diese Standardabweichung der in Referenz /TÖR 11/ gegebene Wert für die Unsicherheit des Abbrands ermittelt wurde, welcher wiederum in die Unsicherheitsanalyse eingeflossen ist.

### 6.5.2.2 Unsicherheitsanalyse mit OECD/NEA Unsicherheiten

Die Unsicherheitsanalyse für die Forsmark-Probe wurde auch mit den Unsicherheiten aus dem OECD/NEA-Bericht durchgeführt. Für die Sensitivitäten der Nuklidunsicherheiten auf die variierten Abbrandparameter ergibt sich Abb. 6.21.

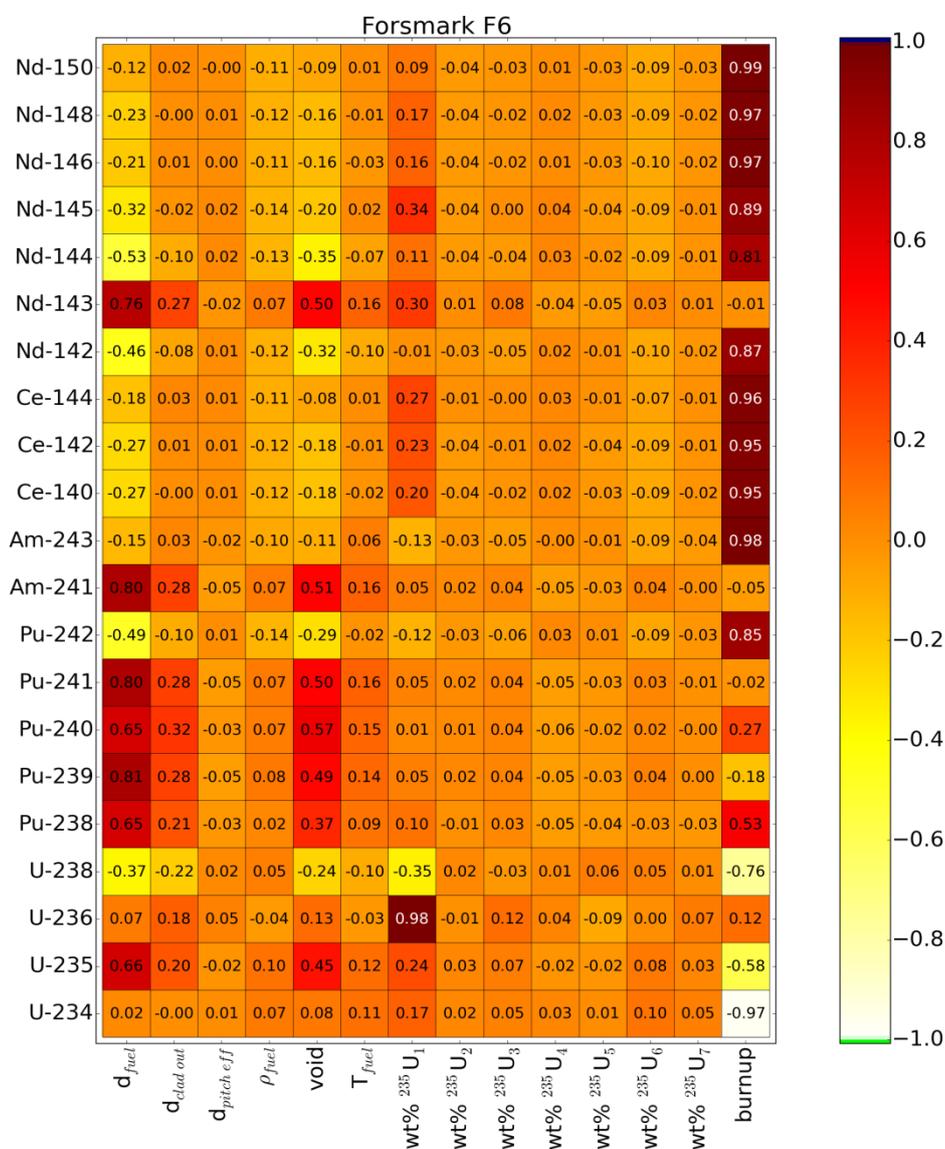


Abb. 6.21 Korrelation der Nukliddichten der Forsmark-Probe mit den variierten Parametern nach OECD/NEA-Unsicherheiten

Ähnlich wie für die Fukushima-Nachrechnungen ergeben sich für die OECD/NEA-Unsicherheiten Unterschiede zu den Forsmark-Unsicherheiten. So ist neben dem Abbrand für zahlreiche Nuklide auch der Brennstoffdurchmesser für die Unsicherheiten der Nuklidmassen relevant, der sowohl das Moderationsverhältnis, als auch den zur Verfügung stehenden Brennstoff beeinflusst. Der Einfluss der spektrumsrelevanten Größen wie Dampfblasengehalt und äußerer Hüllrohrdurchmesser ist im Vergleich geringer und für die meisten Nuklide zu vernachlässigen.

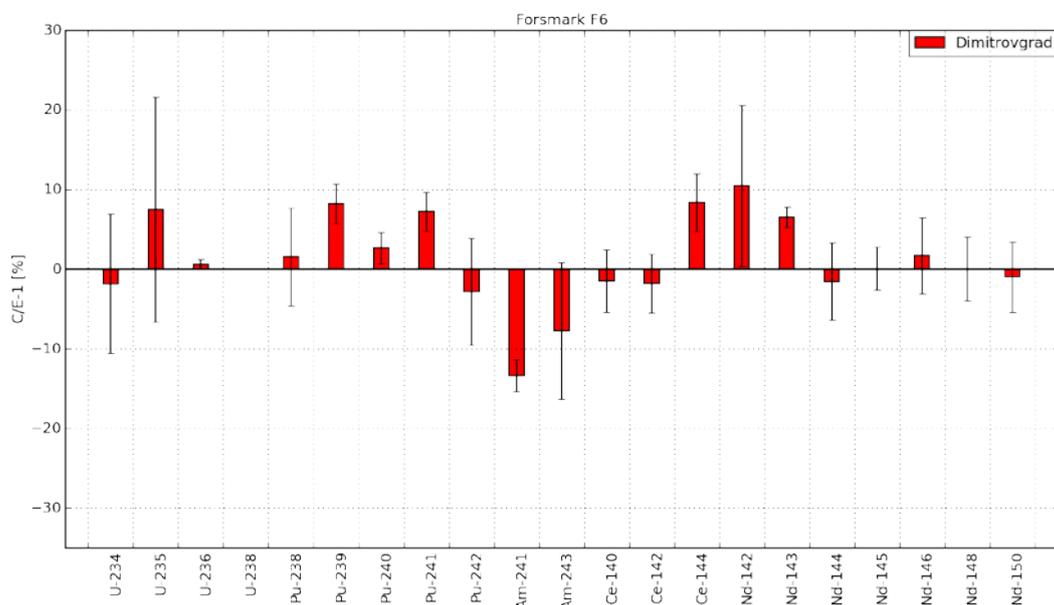
Für zwei Nuklide ( $^{236}\text{U}$  und  $^{144}\text{Ce}$ ) sind die Nukliddichten auf die Anfangsanreicherung des Probenstabs mit  $^{235}\text{U}$  (Parameter  $wt\%^{235}\text{U}_i$ ) stark sensitiv. Zu beachten ist hier, dass die im OECD/NEA-Bericht gegebenen Unsicherheiten der Anreicherungen um etwa den Faktor 100 größer sind als im Forsmark-Bericht.

Der Vergleich der kombinierten  $1\sigma$ -Unsicherheiten von C/E-1 aufgrund des Samplings mit OECD/NEA-Unsicherheiten und den Unsicherheiten der vier experimentellen Untersuchungen mit den mittleren Abweichungen zwischen Nachrechnung und Experiment (C/E-1) zeigt keine großen Unterschiede zu der Analyse mit Forsmark-Unsicherheiten. Die Unsicherheiten sind je nach Nuklid zum Teil etwas kleiner oder größer, liegen aber allgemein im gleichen Wertebereich.

### **6.5.2.3 Unsicherheitsanalyse mit Forsmark-Unsicherheiten und Vergleich nur mit der Dimitrovgrad-Messung**

Bei der Parameterstudie in Kapitel 6.4.6 fällt auf, dass bei Erhöhung des Abbrandes die Abweichungen zwischen Nachrechnung und experimentellen Werten der Dimitrovgrad-Messung für fast alle Nuklide geringer werden (siehe Abb. 6.13). Da die Übereinstimmung der berechneten  $^{148}\text{Nd}$ -Nukliddichte mit dem experimentellen Wert zwischen einer Erhöhung von 2,05 % und 5 % liegt und dies auch in der Größenordnung der Unsicherheit auf den Abbrand liegt (Forsmark: 3,5 %, OECD/NEA: 2 %), wurde die Unsicherheitsanalyse nochmals mit der Dimitrovgrad-Messung allein wiederholt. Nach Anpassung des Zielabbrandes auf eine Übereinstimmung der berechneten  $^{148}\text{Nd}$ -Nukliddichte mit dem experimentellen Wert wurde die Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalyse mit den Unsicherheiten aus dem Forsmark-Bericht und den von der OECD/NEA gegebenen Werten erneut durchgeführt.

Dabei liefert die Sensitivitätsanalyse bis auf numerische Abweichungen innerhalb der statistischen Unsicherheiten die gleichen Ergebnisse wie bereits in Kapitel 6.5.2.1 und 6.5.2.2 bzw. in Abb. 6.18 und Abb. 6.21 gezeigt, welche daher hier nicht erneut wiedergegeben werden. Der Vergleich der ermittelten Unsicherheiten mit den Abweichungen zwischen Nachrechnung und experimentellen Untersuchungen ist in Abb. 6.22 gezeigt. Hierbei wurden die Unsicherheiten aus dem Forsmark-Bericht verwendet. Das zweite Set an Unsicherheiten aus dem OECD/NEA-Bericht liefert sehr ähnliche Ergebnisse. Neben einer deutlich besseren Übereinstimmung von  $^{235}\text{U}$  liegen nun auch die Neodym- und Plutonium-Isotope näher an den experimentellen Werten. Es bleiben nur noch  $^{239,241}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  und  $^{243}\text{Nd}$  außerhalb des  $2\sigma$ -Unsicherheitsintervalls.



**Abb. 6.22** Mittelwert von C/E-1 im Vergleich zur Unsicherheit von C/E-1 aufgrund des Samplings mit Forsmark-Unsicherheiten für die Forsmark-Probe

## 6.6 Zusammenfassung und Schlussfolgerungen

Im Rahmen dieses Vorhabens wurden insgesamt 19 Abbrandproben aus drei Nachbarstrahlungsexperimenten nachgerechnet und für 7 Proben der Einfluss von Herstellungstoleranzen auf die Nuklidzusammensetzung von Siedewasserbrennelementen durch eine Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalyse untersucht. Die Proben stammen aus zwei Stäben aus dem japanischen Kraftwerk Fukushima-Daini-2 und aus einem Stab aus dem schwedischen Kraftwerk Forsmark-2. Für die Abbrandrechnungen kam das 2D-Inventarprogramm HELIOS zum Einsatz. Zusätzlich wurde das GRS-

Programm SUNCISTT und einige Python-Skripte zur Erstellung, Auswertung und Visualisierung der Rechnungen verwendet.

Die Nachrechnung der Nominalfälle der Fukushima-Proben ergab für die meisten analysierten Nuklide C/E-Werte, die vergleichbar mit analogen Rechnungen durch andere Gruppen und mit anderen Rechencodes sind. Die Abweichungen der experimentellen und errechneten Werte für Uran, Plutonium und Neodym lagen bei unter 10 %. Für einige Proben, die nahe der Übergänge von angereichertem Uran zu Natururan entnommen wurden, weichen die berechneten Nukliddichten stark von den gemessenen Werten ab. Dies kann durch die fehlende Möglichkeit des 2D-Abbrandprogramms HELIOS erklärt werden, 3D-Effekte zu berücksichtigen.

Die Nachrechnung der Forsmark-Probe ergab im Vergleich mit den vorliegenden vier chemischen Analysen teils deutliche Abweichungen in den Nukliddichten bis 15 %, z. B. bei  $^{235}\text{U}$ . Insgesamt entsprechen diese Abweichungen zwischen Experiment und Nachrechnung den bekannten Erfahrungen mit KENOREST und TRITON. Untersuchungen zu möglichen Erklärungen, bzw. Ursachen zeigen aber: Wird der Dampfblasengehalt um etwa 10 % – 20 % verringert oder der Abbrand um 5 % erhöht, verringern sich die Abweichungen deutlich.

In einem zweiten Schritt wurden insgesamt sieben Nachbestrahlungsproben einer stochastischen Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalyse unterzogen. Dabei wurden zwei unterschiedliche Sätze von Parameterunsicherheiten auf alle Proben angewendet: Der eine der beiden Datensätze ist den Veröffentlichungen zur Evaluierung der Forsmark-3-Daten entnommen (/TÖR 11/, /ZWI 08/), der andere stammt aus dem OECD/NEA-State-of-the-art Report /NEA 11/. Dabei weist der zweite Datensatz zusätzliche unsichere Parameter auf, die im ersten nicht enthalten sind. Teilweise unterscheiden sich auch die angegebenen Unsicherheiten deutlich voneinander.

Bei allen analysierten Proben zeigt die Sensitivitätsanalyse mit den Forsmark-Unsicherheiten für die meisten Nuklide fast ausschließlich eine Abhängigkeit der Nuklidmasse vom Abbrand. Bei höheren Dampfblasengehalten spielen teilweise auch solche Größen eine Rolle, die Einfluss auf das Neutronenspektrum haben. Aufgrund der unterschiedlichen Unsicherheiten im OECD/NEA-Bericht wirken sich hier für zahlreiche Nuklide neben dem Abbrand auch die Brennstoffdichte, die Anfangsanreicherung des Probenstabs und spektrumverändernde Größen auf zahlreiche Nukliddichten aus.

Vergleicht man die kombinierten Unsicherheiten der berechneten C/E-Werte und die experimentellen Unsicherheiten der chemischen Analyse mit den Abweichungen zwischen Berechnung und Experiment, so ergibt sich bei den Fukushima-Nachrechnungen für zahlreiche Nuklide eine Übereinstimmung innerhalb bzw. knapp außerhalb des  $1\sigma$ -Intervalls, und für alle bis auf vier Nuklide innerhalb des  $2\sigma$ -Intervalls. Bei Verwendung der OECD/NEA-Unsicherheiten liegen die Unsicherheiten von C/E-1 trotz stark unterschiedlicher Sensitivitäten der Nuklidmassen auf die variierten Parameter sehr nah bei den zuvor ermittelten Werten.

Bei der Durchführung dieses Vergleichs für die Forsmark-Probe zeigt sich ein ähnliches Bild. Für  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238,240}\text{Pu}$ , und  $^{144,145,146,148,150}\text{Nd}$  liegen die Werte für alle Analysen innerhalb oder knapp außerhalb der  $1\sigma$ -Unsicherheit. Für  $^{234}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ ,  $^{140,142}\text{Ce}$ , und  $^{142}\text{Nd}$  liegt mindestens eine Analyse in diesem Intervall. Auch bei diesem Experiment ergibt sich unter Verwendung der OECD/NEA-Unsicherheiten ein sehr ähnliches Bild. Bei der Nachrechnung der Nominalwerte von C/E-1 der Forsmark-Proben würde eine Verringerung des Dampfblasengehalts um 10 - 20 % und/oder eine Erhöhung des Abbrandes um 5 % die experimentellen Analysen deutlich besser reproduzieren. Bei Anwendung dieser Bedingungen auf die Nominalwerte, liegen so gut wie alle Abweichungen der C/E-Werte innerhalb der ermittelten  $1\sigma$ -Unsicherheit.

Zusammenfassend erlauben es die hier durchgeführten Unsicherheitsanalysen, vertiefte quantitative Aussagen über die Übereinstimmung von experimentellen und rechnerischen Werten zu treffen. Die kombinierte Unsicherheit aus Rechnung und Experiment bietet ein Maß, um nuklidweise die Konsistenz der Ergebnisse zu verifizieren. Bei den hier untersuchten Nachbestrahlungsanalyseproben kann aus den ermittelten Unsicherheiten der Schluss gezogen werden, dass diese für eine Validierung eines Abbrandprogramms geeignet sind. Von wenigen Ausnahmen abgesehen, stimmen die berechneten Nuklidkonzentrationen mit den gemessenen im Rahmen der ermittelten Unsicherheiten überein. Die Proben aus Fukushima Daini-2 zeigen dabei eine tendenziell höhere Qualität. An den Forsmark-3 Proben kann eine mögliche Schwierigkeit bei der Nachrechnung von SWR Proben aufgezeigt werden: Inkonsistenzen bei neutronspektrometrie-relevanten Größen wie zum Beispiel dem Dampfblasengehalt können zu signifikanten Abweichungen bei wichtigen Nukliden wie z. B. bei  $^{239}\text{Pu}$  führen.

Insgesamt ist eine Ergänzung der Probennachrechnung um eine begleitende Unsicherheitsanalyse empfehlenswert. Diese sollte genutzt werden, um einerseits die Kon-

sistenz der Nachrechnung zu prüfen. Gleichzeitig sollte die durch die Unsicherheitsanalysen erzielte Information über Ergebnisunsicherheiten der Abbrandrechnung auch in eine Validierung eines Abbrandrechenprogramms einbezogen werden, zum Beispiel durch eine entsprechende Berücksichtigung bei der Bestimmung von Isotopenkorrekturfaktoren. Darüber hinaus können einzelne Nuklide aus einer Validierung ausgenommen werden, wenn die Unsicherheitsanalyse eine Inkonsistenz zwischen experimentellem Wert und Nachrechnung ergibt. Im Fall der Proben aus Fukushima-Daini-2 wäre das beispielsweise für  $^{106}\text{Ru}$  der Fall. Die Methode kann auch dazu genutzt werden, solche Nachbestrahlungsanalyseproben in eine Validierung mitaufzunehmen, bei denen einzelne für die Nachrechnung benötigten Angaben fehlen. Diese können durch typische Werte abgeschätzt werden und die Unkenntnis des wahren Werts durch eine geeignete Verteilung bei der Unsicherheitsanalyse berücksichtigt werden.

## **7           Kritikalitätsanalysen für ein generisches SWR-BE in generische Lageranordnungen**

### **7.1       Zielsetzung**

Um die Möglichkeiten zu untersuchen, Abbrandkredit mit validierten Abbrandcodes auf Siedewasserreaktoren zu erweitern, wurden Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalysen auf Basis eines generischen, modernen SWR-BE-Designs durchgeführt. Es wurde eine Rechenkette entwickelt, die aus einem konsistenten SWR-Bestrahlungsmodell besteht, gefolgt von Abbrandrechnungen und schließlich einer dreidimensionalen Kritikalitätsrechnung. Das Bestrahlungsmodell verknüpft axiale Profile von Leistung, Abbrand und Moderatorichte des BE in 24 axialen Zonen. In vereinfachter Weise beinhaltet es auch den Einsatz von Steuerstabkreuzen. Die Abbrandrechnungen für das BE wurden in axialen Scheiben mit dem 2D-Abbrandcode HELIOS 1.12 /CAS91/ durchgeführt. Die Kritikalitätsrechnungen wurden in 3D-Geometrie mit KENO-Va aus dem SCALE 6.1.2-Paket /SCA 11/ durchgeführt, in der mehrere Brennelemente in einem generischen Transportbehälter oder in einem Lagergestell betrachtet werden.

Es wurde eine Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalyse zu der gesamten Berechnungskette durchgeführt, die die Auswirkungen der Unsicherheiten des Bestrahlungsmodells auf die Unsicherheit der Reaktivität der Brennelemente im Transportbehälter oder Lagergestell analysiert. Geometrische Unsicherheiten wurden ebenfalls in die Analyse mit einbezogen. Es wurde eine Parameterstudie über die Verwendung von Steuerstabkreuzen während der Bestrahlung durchgeführt. Ziel war es insgesamt, quantitative Unsicherheitsdaten zu erhalten, um konservative Bestrahlungsprofile ableiten zu können, die auf der anderen Seite möglichst realitätsnah sind, um keine unnötigen Reaktivitätssicherheitsmargen einzuführen. Es wurde der sog. „Monte-Carlo-Sampling“-Ansatz gewählt, den das GRS-Tool SUnCISTT anwendet. Das heißt, dass die Modellberechnung unter Verwendung statistisch veränderter Sätze der unsicheren Eingabeparameter wiederholt und die Verteilungen der Ergebniswerte statistisch analysiert werden.

## 7.2 Erstellung eines konsistenten SWR Bestrahlungsmodells

Als erster Schritt der Rechenkette für die Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalyse eines modernen und repräsentativen SWR-Brennelements wurde ein SWR-Bestrahlungsmodell entwickelt, das zum einen die typischen Unsicherheiten der Bestrahlungsgrößen eines typischen Siedewasserreaktors berücksichtigt und diese zum anderen physikalisch sinnvoll miteinander verknüpft. Das Modell betrachtet axiale Profile der Leistung, des Abbrands und des Dampfblasengehalts sowie in einer Parameterstudie auch Steuerstabkreuze, die von unten in den Reaktorkern gefahren werden.

Dieses konsistente Modell wird im Weiteren für die Abbrand- und Kritikalitätsrechnungen verwendet. Dabei wird das gesamte Brennelement in 24 äquidistante Axialzonen unterteilt, und in einem zweiten Schritt die Abbrandrechnungen in 2D-Geometrie durchgeführt. Anschließend werden die berechneten Nuklide in einem 3D-Kritikalitätsmodell zusammengeführt, das wiederum aus 24 Axialzonen besteht.

Bei Betrachtung der typischen Größen aller Brennelemente eines kompletten Siedewasserreaktorkerns können allgemeine Zusammenhänge für typische Abbrandverläufe ermittelt werden. Die Details hängen von der genauen, hier nicht näher bekannten bzw. spezifizierten Beladestrategie ab. Für den in diesem Vorhaben betrachteten Kern werden folgende, z. T. voneinander abhängige Eigenschaften angenommen:

- Zyklusübergreifend sinkt mit höherem Abbrand die Leistung des BE.
- Damit sinkt mit ansteigender Zykluszahl die Leistung des BE.
- Mit sinkender Leistung verringert sich der Dampfblasengehalt. Damit steigt die Moderatorichte.
- In den inneren 80 % des Reaktorkerns bleibt die Leistung radial weitgehend konstant.
- In den äußeren 20 % des Reaktorkerns sinkt die Leistung radial signifikant ab.

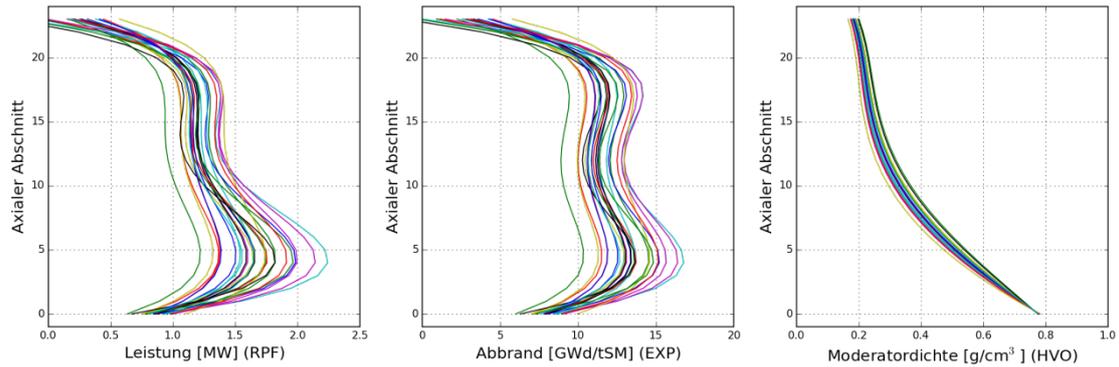
Daraus lassen sich für die Profile von Leistung, Abbrand und Moderatorichte, die das konsistente SWR-Bestrahlungsmodell enthalten soll, folgende Annahmen ableiten, die durch typische Profilformen aus Reaktorkernsimulationskurven ergänzt werden:

- Aufgrund der Dampfblasenverteilung besitzen sowohl die Leistungsverteilung als auch der Abbrand im unteren BE-Teil höhere Werte als im oberen Teil.
- Die Form der Abbrandprofile ist stark an die Leistungsprofile gekoppelt.

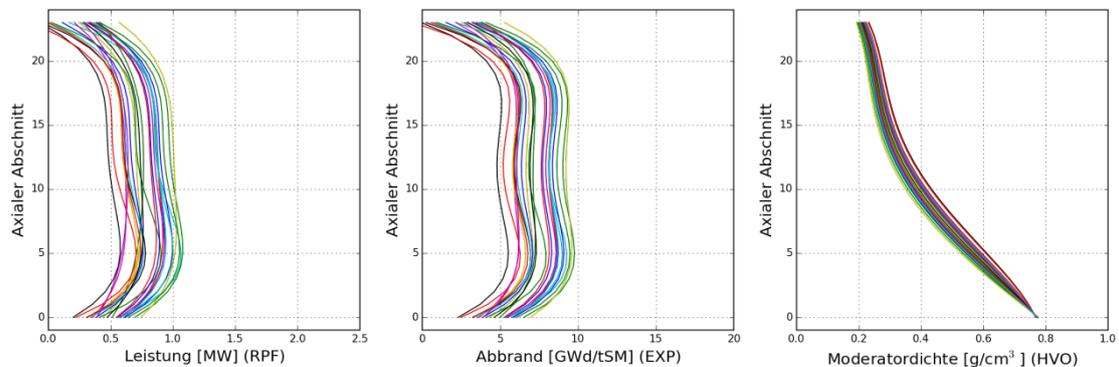
- Mit wachsendem Abbrand nimmt die Leistung über die gesamte BE-Höhe ab und wird symmetrischer.
- Damit verringert sich der pro Zyklus zusätzlich erreichte Abbrand und flacht auch von der Profilform her ab.
- Damit erhöht sich auch die Moderator-dichte mit zunehmendem Abbrand.

Aus diesen grundsätzlichen Überlegungen und aus typischen axialen Profilen der Leistung, des Abbrandes und der Moderator-dichte wurde ein SWR-Bestrahlungsmodell entwickelt, das diese drei Größen konsistent miteinander in Bezug setzt. Dabei werden die drei Profile jeweils durch ein Polynom vierten Grades ausgedrückt, in denen die Koeffizienten vor den Exponenten nicht unabhängig sind, sondern teilweise voneinander abhängen, um eine grundlegende Profilform vorzugeben. So sind für die Leistung und den Abbrand die zwei Koeffizienten vor dem konstanten und dem linearen Term und für die Moderator-dichte der Koeffizient vor dem linearen Term unabhängig voneinander.

Die Profile der drei physikalischen Größen werden miteinander gekoppelt, indem die beiden Koeffizienten des Abbrands linear von den beiden zugehörigen Koeffizienten der Leistung und der lineare Koeffizient der Moderator-dichte von dem konstanten Koeffizienten der Leistung abhängen. Damit bleiben insgesamt bei fünf Zyklen zehn freie Parameter für die Erstellung der axialen Profile von Leistung, Abbrand und Moderator-dichte, die entsprechend der Verteilungen des Modells gewürfelt werden: also für jeden der fünf Zyklen jeweils die Faktoren vor den konstanten und linearen Termen der Leistungspolynome. Somit verbleiben in der Unsicherheitsanalyse pro Zyklus zwei unabhängige Parameter. Mit Hilfe dieser Abhängigkeiten und typischer Verteilungsfunktionen der freien unabhängigen Parameter werden die axialen Profile gewürfelt. Für das Ende des ersten Zyklus ergeben sich für 25 Samples die Kurven in Abb. 7.1, für das Ende des vierten Zyklus die Kurven in Abb. 7.2.



**Abb. 7.1** Gewürfelte axiale Profile der Leistung, des Abbrands und der Moderator-  
dichte zum Ende des ersten Zyklus



**Abb. 7.2** Gewürfelte axiale Profile der Leistung, des Abbrands und der Moderator-  
dichte zum Ende des vierten Zyklus

Diese recht große Variation ist hier nicht als die Unsicherheit eines einzelnen Brennelements an einer definierten Position im Reaktorkern zu verstehen, sondern als Bereich möglicher Abbrandbedingungen vieler Brennelemente im Reaktor. Vor allem zu Beginn der Bestrahlung zeigen Leistung und Abbrand einen deutlich höheren Wert in den unteren axialen Zonen. In späteren Zyklen sind die Profile deutlich symmetrischer.

Aus den Profilen dieser drei Größen werden auf 24 äquidistanten Höhen die jeweiligen Werte extrahiert und in die 24 separaten 2D-Abbrandrechnungen übertragen.

Eine vollständig konsistente Berücksichtigung der Steuerstabkreuze ist im Rahmen dieses Bestrahlungsmodells nicht möglich. Da diese die Leistung im Einfahrbereich von unten deutlich erniedrigen, verringern sie im gleichen Bereich auch den erreichten Abbrand, erhöhen aber über die gesamte Brennelementhöhe die Moderator-  
dichte, da es aufgrund der geringeren Leistung zu geringerem Sieden kommt. Die realistische

Wiedergabe eines solchen Zusammenhangs ist im Rahmen eines parametrischen Modells kaum möglich, sondern erfordert letztlich die Anwendung eines thermohydraulischen Codes, der die vier Größen Leistung, Abbrand, Moderatorichte und Steuerstabkreuzeneinsatz gekoppelt simulieren kann. Eine vereinfachte Berücksichtigung der Steuerstabkreuze in dem verwendeten Bestrahlungsmodell und die damit durchgeführten Studien sind in Kapitel 7.5 dargelegt.

### 7.3 Modellentwicklung des untersuchten generischen Brennelements

Für die in diesem Projekt durchgeführten Analysen zu einem modernen SWR-Brennelement wurde ein generisches Rechenmodell erstellt, das von der Geometrie her an das SWR-Brennelement SVEA-96 Optima-2 der Firma Westinghouse angelehnt ist. Ein Foto des zugrunde liegenden originalen Brennelements ist in Abb. 7.3 zur Illustration der komplexen Geometrie von SWR-BE beispielhaft gezeigt.



**Abb. 7.3** Beispielhafte Abbildung des SVEA-96 Optima-2 Brennelements /WES 16/ zur Illustration der komplexen Geometrie von SWR-BE

#### 7.3.1 Belegungsplan des untersuchten Brennelements

Das hier betrachtete generische SWR-Brennelement besitzt  $10 \times 10 = 4$  Brennstäbe in vier  $5 \times 5 = 1$  Gruppen, wobei jeweils der innerste Brennstab durch den zentralen Wasserkanal ersetzt ist. Wesentliche Charakteristika des verwendeten Modells sind:

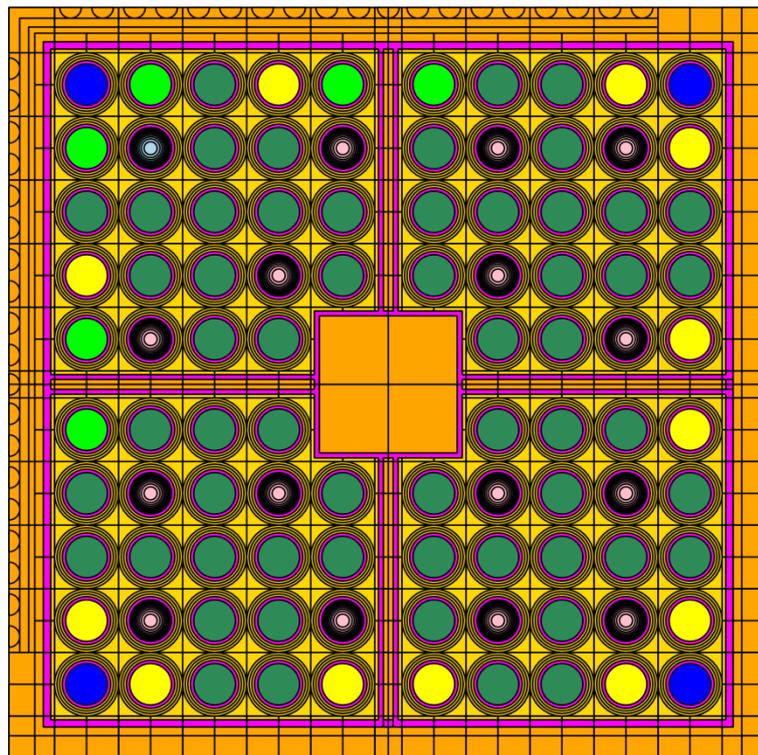
- 96 Brennstäbe mit fünf radial variierender Anreicherung mit  $^{235}\text{U}$  (3,6 Gew.-%, 4,0 Gew.-%, 4,4 Gew.-%, 4,8 Gew.-%, 4,95 Gew.-%).
- Zwölf teillange Brennstäbe (4 x 1/3, 8 x 2/3 Länge) erzeugen axial variierende Belegung zur effizienteren Steuerung des axialen Abbrandes.
- Abbrennbare Absorber mit 3,0 Gew.-% Gadoliniumgehalt in jeweils 4 x 4 Brennstäben ( $\text{Gd}_2\text{O}_3$ ) mit 4,0 Gew.-% bzw. 4,8 Gew.-%  $^{235}\text{U}$ .
- Nur eine diagonale Symmetrieachse (Abb. 7.4: links oben nach rechts unten).
- Zentraler quadratischer Wasserkanal (zur Vereinfachung im verwendeten Rechenmodell um  $45^\circ$  Grad gedreht).
- Vier kreuzförmig angeordnete Wasserflügel, die das Brennelement in vier 5 x 5 Untergruppen teilen.
- Die erhöhte Wasserdichte im oberen BE-Bereich aufgrund des Ausbleibens von Sieden in diesen Wasserkanälen dient der besseren Energieverteilung innerhalb dieses Brennelements.

Für einen detaillierteren Überblick über das Design des SVEA-96 Optima-2 Brennelements und dessen Konsequenzen im Reaktorbetrieb siehe z. B. /HEL01/. Für vollbesetzte Axialzonen zeigt Abb. 7.4 die radial variablen Brennstabanreicherungen bezgl.  $\text{UO}_2$  und der abbrennbaren Neutronenabsorber  $\text{Gd}_2\text{O}_3$ . Der dargestellte Belegungsplan resultiert für die gezeigte Axialzone in einer mittleren Anreicherung von 4,71 Gew. %  $^{235}\text{U}$ .

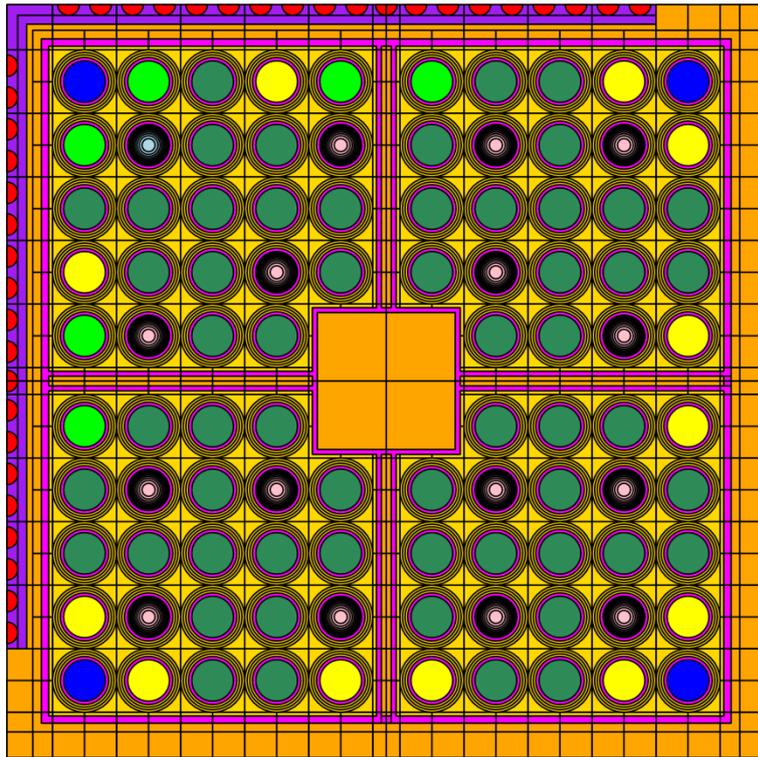


des Steuerstabkreuzes ändern sich: Bei ausgefahrenem Steuerstabkreuz ist dessen Material als Wasser (Moderator) definiert, bei eingefahrenem Steuerstabkreuz als Metallstruktur und Absorber. Die zugehörigen geometrischen Strukturen des Modells sind in Abb. 7.5 und Abb. 7.6 gezeigt. Das Brennelement ist aus 16 definierten Einzelstrukturen aufgebaut, wovon sechs die verschieden angereicherten Brennstäbe sind. Diese teilen sich geometrisch in  $\text{UO}_2$ -Stäbe und in gadoliniumhaltige Stäbe auf. Die Stäbe mit  $\text{Gd}_2\text{O}_3$ -Anteil sind in zehn flächengleiche Ringzonen unterteilt, ersichtlich aus Abb. 7.7. Zusätzlich wurden um jeden Brennstab drei Ringzonen Wasser eingefügt, um die Neutronenflussänderung im moderierenden Wasser genauer berechnen zu können.

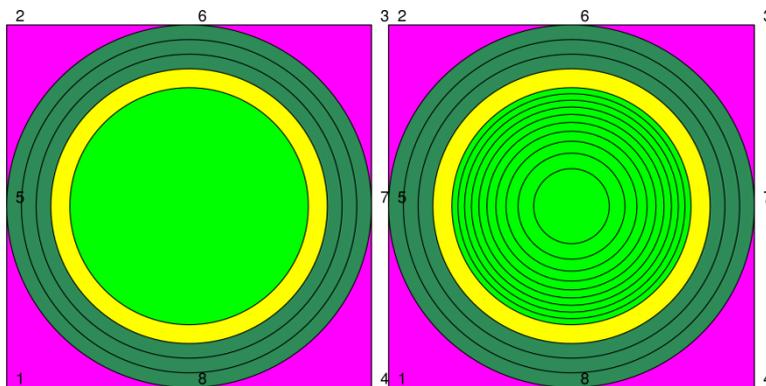
Die Farben orange bzw. gelb in Abb. 7.5 und Abb. 7.6 repräsentiert den Moderator (Wasser), mit eventuell verringerter Dichte aufgrund des in Siedewasserreaktoren typischen Dampfblasengehalts. Die Bereiche im zentralen Wasserkasten, den Wasserflügeln und außerhalb des Brennelementkastens in orange kennzeichnen die Bereiche mit voller Wasserdichte ohne Sieden.



**Abb. 7.5** HELIOS-Modell des betrachteten generischen SWR-Brennelements ohne Steuerstabkreuz



**Abb. 7.6** HELIOS-Modell des betrachteten generischen SWR-Brennelements mit Steuerstabkreuz



**Abb. 7.7** HELIOS-Strukturelemente für  $\text{UO}_2$  (links) und Gadolinium-haltige (rechts) Brennstäbe

### 7.3.3 Erstellung des dreidimensionalen Modells in SCALE Geometrie durch ein Python-Skript

Es wurde ein Python Skript entwickelt, das möglichst flexibel die von SUnCISTT benötigte Template-Datei für das dreidimensionale KENO-Va-Modell des generischen Siedewasserbrennelements mit 24 Zonen in einem generischen Transportbehälter oder einem generischen Lagerbecken erstellen kann. Hierbei ist eine der Hauptaufgaben,

die große Anzahl an Materialien den richtigen Geometrieelementen zuzuordnen, da jede Zone und jeder definierte Brennstab (52 Stück pro Zone) ein eigenes, bestrahltes Material erhält. Damit ergeben sich neben den Strukturmaterialien allein 1168 unterschiedliche Brennstoffmaterialien.

In dem Kritikalitätsmodell sind die gadoliniumhaltigen Brennstäbe nicht mehr in Radialzonen unterteilt, da ihre Materialzusammensetzungen beim Auslesen der Abbrandrechnungen über die Ringzonen verschmiert werden. In axialer Richtung besteht das Brennelement aus drei gleich langen Hauptzonen und einem 10 cm langen Natururan-Reflektor am oberen Ende des BE. In der untersten Ebene sind alle Brennstabpositionen besetzt, in der mittleren fehlt in den vier äußeren BE-Ecken jeweils der äußerste Eckstab. In der obersten Ebene fehlen zusätzlich die acht innersten, an den zentralen Wasserkanal angrenzenden Stäbe. Die Hauptzonen sind jeweils in acht Unterzonen unterteilt, sodass sich insgesamt die 24 Axialzonen ergeben.

#### **7.3.4 Abbranddaten**

Für die Berechnung wurden eine Energiedichte des Reaktors von 28 kW/kgU und ein gemittelter Abbrand des Brennelements von 40 GWd/tSM unterstellt. Dieser Abbrand wird unter der Annahme von voller Leistung nach circa 1428 Tagen erreicht. Die Zyklusaufteilung wurde zu vier Zyklen à 300 Tagen und einem fünften Zyklus zu 228,57 Tagen angenommen (Tab. 7.1). Entsprechend wird in einem 300 Tage Zyklus 8,4 GWd/tSM und in einem 228,57 Tage dauernden Zyklus 6,4 GWd/tSM abgebrannt. Die Stillstandszeit zwischen den Zyklen wurde zu je 60 Tagen gewählt. Die Abklingzeit zum Ende aller Zyklen wurde mit fünf Jahre (1826 Tagen) angesetzt. Die Zyklen werden so in mehrere Zeitschritte unterteilt, dass der Abbrand pro Zeitschritt vor Erreichen des Gadolinium-Peaks etwa 0,5 GWd/tSM und im Anschluss etwa 1 GWd/tSM beträgt. Vergleichsrechnungen mit verschiedenen Abbrandintervallen haben gezeigt, dass das Reaktivitätsmaximum bei erhöhter Genauigkeit, d. h. bei kleineren Abbrandschritten, etwas früher auftritt und einen nur wenig höheren Wert besitzt. Im Detail zeigt sich, dass die Abweichung im Neutronenmultiplikationsfaktor  $k_{\text{eff}}$  zwischen der hier verwendeten Einteilung und einer achtmal genaueren Einteilung für HELIOS-Rechnungen nur 0,2 % und mit einer viermal genaueren Einteilung für TRITON-Rechnungen (vergl. Kap. 7.3.5) nur 0,6 % beträgt. Die maximalen Unterschiede der Nukliddichten zwischen der nominellen und der feinsten gerechneten Einteilung liegen für die meisten Nuklide unter 0,25 %. Die hier verwendete Schrittweite von 0,5 GWd/tSM bildet also einen

guten Kompromiss zwischen Genauigkeit und Rechengeschwindigkeit. Die dazu vorgenommenen Rechnungen sind in einem begleitenden technischen Bericht dargestellt /SOM 17/.

**Tab. 7.1** Abbranddaten

Zyklusdauer [d]	Reaktorleistung	Abbrand [GWd/tSM]	Stillstandszeit [d]
300	100 %	8,4	60
300	100 %	8,4	60
300	100 %	8,4	60
300	100 %	8,4	60
228.57	100 %	6,4	1826

### 7.3.5 Vergleichsrechnungen mit TRITON und Parameterstudie auf die Länge der Abbrandschritte

Zur Überprüfung der HELIOS-Eingabedateien wurden einige Vergleichsrechnungen und Voruntersuchungen durchgeführt /SOM 17/. Dabei wurden die von HELIOS berechneten Verläufe des Neutronenmultiplikationsfaktors  $k_{\text{eff}}$  mit den Ergebnissen von entsprechenden TRITON-Rechnungen verglichen. Zusätzlich zu  $k_{\text{eff}}$  wurden die Nukliddichten nach 40 GWd/tSM Abbrand für einen Satz von Nukliden, welche die Reaktivität des abgebrannten Brennelements dominieren, verglichen. Die detaillierten Ergebnisse wurden im beiliegenden technischen Bericht dokumentiert /SOM 17/. Die maximale Abweichung von  $k_{\text{eff}}$  zwischen den beiden Rechenprogrammen liegt bei 0,6 % für 70 % Dampfblasengehalt. Der Vergleich der Nuklidinventare liefert Unterschiede, die weitgehend konsistent mit früheren Untersuchungen sind, z. B. in /HAN 15/.

## 7.4 Studien unter Verwendung des Bestrahlungsmodells

In diesem Kapitel werden mit Hilfe des oben diskutierten SWR-Brennelement-Modells die Nuklidinventare während und nach der Bestrahlung in Folge der Variation typischer SWR-spezifischer Parameter untersucht. Diese Parameter beinhalten die axiale und horizontale Heterogenität bezüglich Brennstoffzusammensetzungen, den Einsatz von Steuerstabkreuzen, und die Variation der Abbrandbedingungen. Weiter werden die axialen Auswirkungen untersucht, die sich durch verschiedene Betriebsarten der Reak-

toroperation auf das Nuklidinventar ergeben, so zum Beispiel ein längerfristiges Einfahren der Steuerstabkreuze oder eine Variation der effektiven Dichte und Temperatur. Dazu wird das GRS-Werkzeug SUnCISTT mit den in Kapitel 4 vorgestellten Erweiterung verwendet.

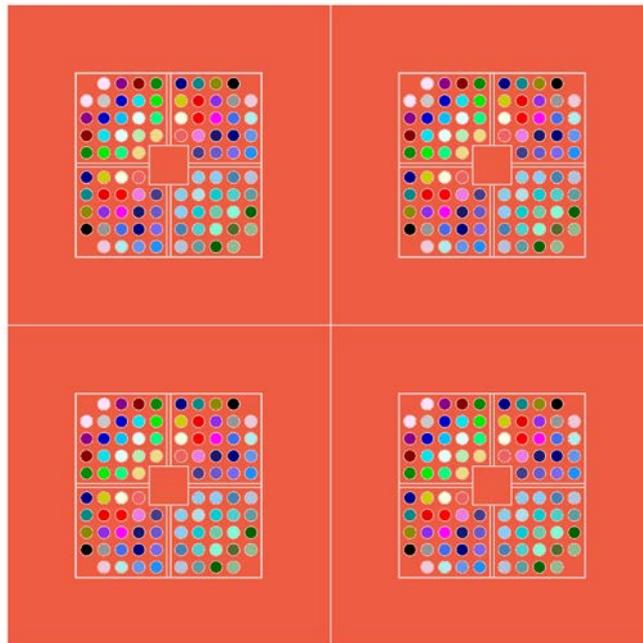
#### **7.4.1 Zielsetzung**

Auf Basis des in Kapitel 7.2 erstellten konsistenten SWR Bestrahlungsmodells wurden Unsicherheits- und Sensitivitätsanalysen für eine generische Lageranordnung und einen generischen Transportbehälter erstellt. Dabei wird untersucht, wie sich der Neutronenmultiplikationsfaktor von Systemen mit bestrahlten SWR-Brennelementen und dessen Unsicherheiten in Abhängigkeit von möglichst realistischen Abbrandbedingungen und -variationen verhält.

Für diese Untersuchungen wurde eine kombinierte Rechenkette aus 2D-Abbrand- und 3D-Kritikalitätsrechnung entwickelt (Kap. 7.2). Diese wurde auf das in Kapitel 7.3 vorgestellte generische Siedewasserbrennelement basierend auf dem SVEA 96 Optima 2-BE angewendet und für die Kritikalitätsrechnung innerhalb eines generischen Nasslagergestells bzw. eines generischen Transportbehälters betrachtet.

#### **7.4.2 Geometrisches Modell des generischen Nasslagergestells**

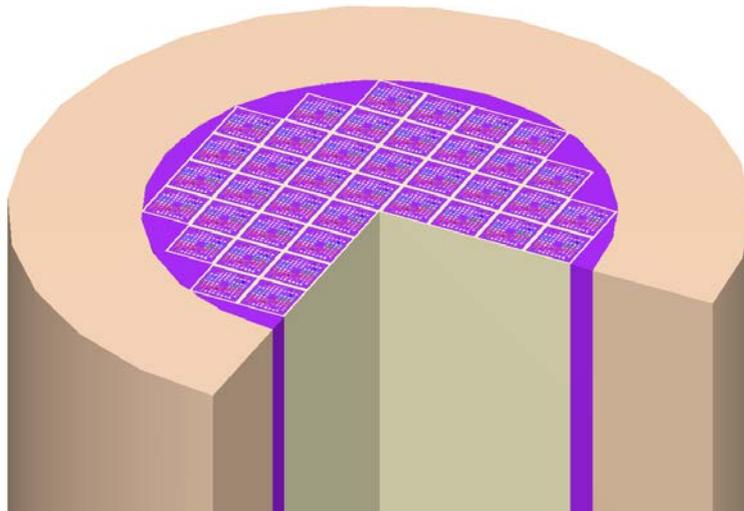
Die generische Lageranordnung für die Kritikalitätsrechnung des Brennelements weist folgende Charakteristika auf: Es wurde ein unendliches Gitter an Brennelementen mit einer Gitterkonstante von 24 cm angenommen, dessen Zwischenräume mit nicht-siedendem Wasser (300 K) bei voller Dichte gefüllt sind (siehe Abb. 7.8). Unterhalb der Brennelemente befinden sich 30 cm Wasser und weitere 50 cm Beton. Oberhalb der Brennelemente befinden sich 100 cm Wasser.



**Abb. 7.8** Geometrisches Modell des generischen Transportbehälters

### 7.4.3 Geometrisches Modell des generischen Transportbehälters

Der generische Transportbehälter für die Kritikalitätsberechnung des Brennelements weist folgende Charakteristika auf: Der zylinderförmige Behälter besitzt einen Außenradius von gut einem Meter und eine Gesamthöhe von etwa 5,5 m, und wird für die Kritikalitätsanalyse als mit Wasser geflutet angenommen. Die etwa 50 cm dicke Außenwand, Bodenplatte und Kopfplatte bestehen aus Karbonstahl. Die 52 Brennelemente sind gitterförmig angeordnet, wobei die Gitterkästen aus Borstahl bestehen. Diese Kästen besitzen eine Innenweite von gut 15 cm, sodass um die Brennelemente jeweils ein Wasserfilm verbleibt. Die Anordnung der Brennelemente im Behälter ist aus Abb. 7.9 ersichtlich. Zusätzlich befinden sich an jedem Brennelement noch ein 24 cm dicker Stahlkopf und ein 30 cm dicker Stahlfuß.



**Abb. 7.9** Geometrie des generischen Transportbehälters

#### **7.4.4 Rechenkette aus Abbrand- und Kritikalitätsrechnung**

Wie bereits beschrieben besteht die Rechenkette der Unsicherheits- und Sensitivitätsuntersuchungen aus einer Kopplung des konsistenten SWR-Bestrahlungsmodells (Kap. 7.2) mit axial separaten 2D-Abbrandrechnungen und einer 3D-Kritikalitätsrechnung.

Aus den stochastisch ermittelten („gewürfelten“) Profilen von Leistung, Abbrand und Moderatorordichte des SWR-Bestrahlungsmodells wurden für die 24 2D-Abbrandrechnungen der einzelnen Axialzonen die entsprechenden Werte extrahiert, und in die Eingabedateien der übertragen, die anschließend ausgeführt wurden.

Für die Kritikalitätsrechnung des gesamten Brennelements in der generischen Lager- oder Transportumgebung wurden die Nuklidinventare aller Brennstäbe aller 24 Axialzonen eingelesen und in das entsprechende 3D-Kritikalitätsmodell übertragen, das die Einteilung in 24 Axialzonen widerspiegelt. Dabei ergeben sich pro Analyse 22,8 Millionen Nuklide, die korrekt übertragen werden müssen: 95 Brennstäbe x 24 Axialzonen x 250 Samples x 40 Nuklide. Die Kritikalitätsrechnungen wurden anschließend statistisch ausgewertet, um den Einfluss der variierten unsicheren Größen bei der Abbrandrechnung auf die Ergebnisse der Kritikalitätsrechnung, wie  $k_{\text{eff}}$  oder EALF („Energy of the average lethargy causing fission“), zu ermitteln.

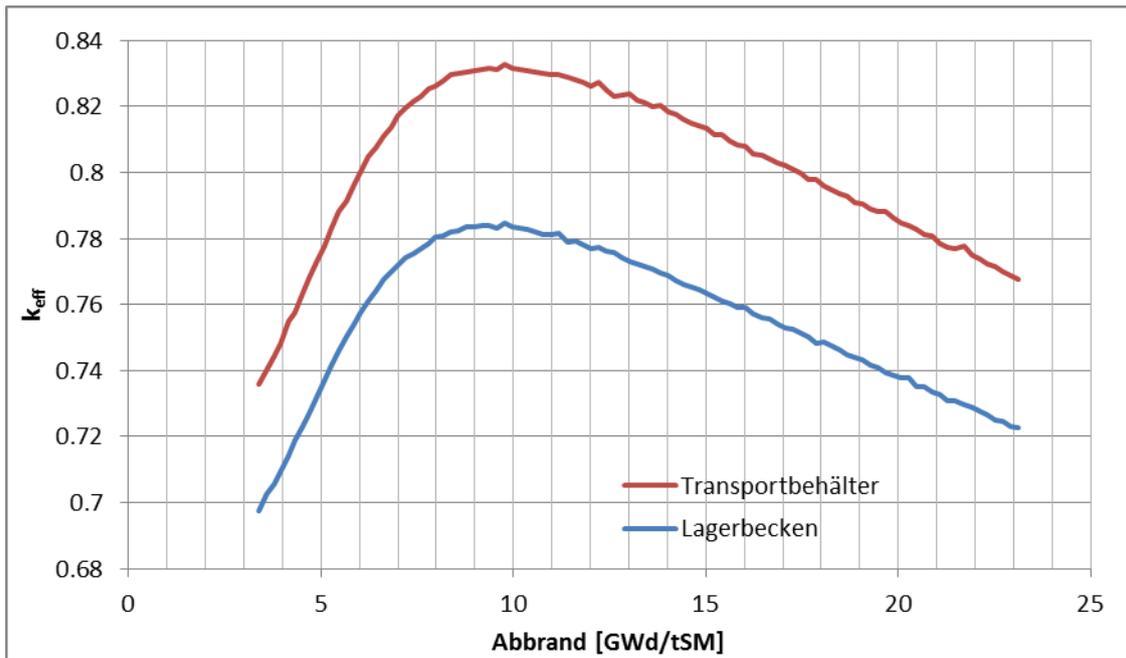
Aufbauend auf der Rechenkette wurden zahlreiche Untersuchungen durchgeführt:

- Durch lineare Variation des Gesamtabbrandes wurden der Verlauf des Multiplikationsfaktors und damit die Position des Gadolinium-Peaks ermittelt.
- Durch individuelle Variation der Profile von Abbrand, Leistung, und Moderator-dichte für jede der 24 Zonen um 10 % wurde ermittelt, auf welchen axialen Bereich  $k_{\text{eff}}$  beim Abbrand von einem bis fünf Zyklen sensitiv reagiert.
- Auf das in Kapitel 7.2 entwickelte konsistente SWR-Bestrahlungsmodell wurde die Sensitivitätsanalyse angewendet.
- Zusätzlich zu dem SWR-Bestrahlungsmodell wurde der kombinierte Einfluss von typischen geometrischen Variationen auf  $k_{\text{eff}}$  untersucht.

#### 7.4.5 Verlauf des Multiplikationsfaktors

Um den Verlauf der Reaktivität und die Position des Gadolinium-Peaks im generischen Transportbehälter und der generischen Lageranordnung zu bestimmen, wurde mit einem Zyklus der Abbrandbereich des gesamten Brennelements von 3,4 GWd/tSM bis 23,1 GWd/tSM mit 100 Einzelrechnungen kontinuierlich durchgeführt. Dabei wurde das konsistente SWR-Bestrahlungsmodell verwendet, und nur der Faktor vor dem konstanten Term des Abbrandes linear zwischen 0 und 20 erhöht. Ferner wurde die Anzahl der Abbrandschritte konstant gehalten, sodass sich auch die Länge der Zeitschritte von Rechnung zu Rechnung vergrößert. Die so erreichte maximale Abbrandschrittweite beträgt etwa 0,7 GWd/tSM. Damit bleiben die Moderator-dichte, das Leistungsprofil und die Form des Abbrandprofils gleich, nur der Wert des Abbrandes erhöht sich über alle Axialzonen. Für das Leistungs- und Moderator-dichteprofil wurden die Mittelwerte des ersten Zyklus verwendet. Die beiden resultierenden  $k_{\text{eff}}$ -Kurven sind in Abb. 7.10 gezeigt.

Der jeweils maximale Multiplikationsfaktor (Transportbehälter: 0,8326, Lagerbecken: 0,7847) liegt bei einem Abbrand von 9,78 GWd/tSM.



**Abb. 7.10** Verlauf der Multiplikationsfaktoren mit dem Gesamtabbrand des Brennelements im generischen Transportbehälter und der generischen Lageranordnung

#### 7.4.6 Variation einzelner Axialzonen

Unter der Annahme, dass alle fünf Zyklen exakt gleich verlaufen, wurden Abbrand, Leistung und Moderatorichte für jede der 24 Zonen individuell und unabhängig voneinander um 10 % um die jeweiligen Mittelwerte variiert. Dies führt zu axial unstetigen Profilen, da zwar die mittleren axialen Profile der drei Größen verwendet werden, jede Axialzone aber unabhängig von den angrenzenden Zonen erhöht oder verringert wird. Außerdem kann es zu unphysikalischen Zusammenhängen kommen, sodass in einer Axialzone die Leistung steigt, der Abbrand aber sinkt, was unter realen Bedingungen nicht vorkommt. Auf der anderen Seite lässt sich mit dieser Methode bestimmen, auf welche Größen in welcher axialen Zone der resultierende Wert von  $k_{\text{eff}}$  der Brennelemente in der Lager- oder Transportanordnung sensitiv reagiert.

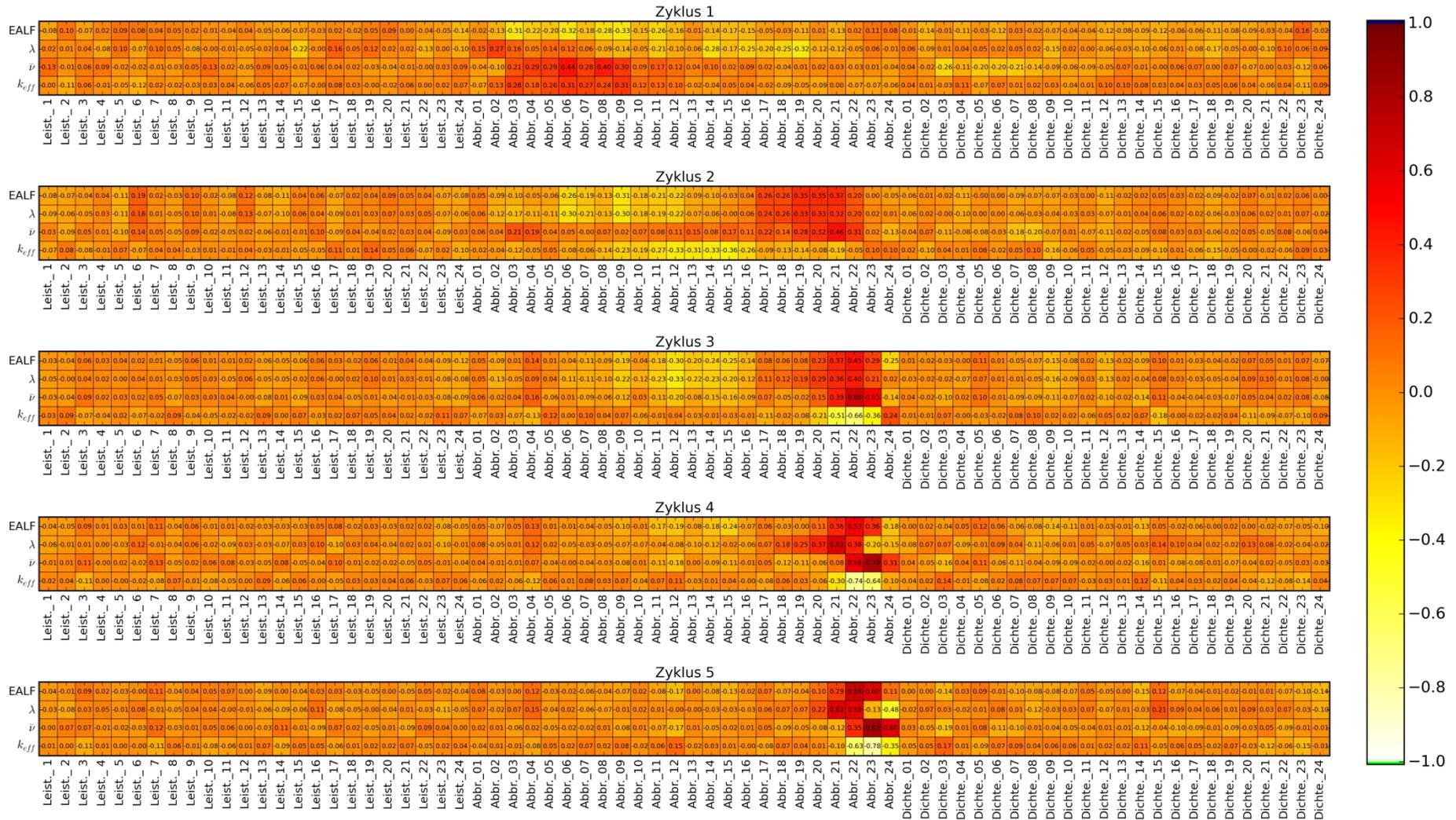
Nach Berechnung aller Nuklidinventare aller Axialzonen und nachfolgenden Kritikalitätsrechnungen können die globalen Größen des gesamten Brennelements im Transportbehälter oder der Lageranordnung aus den Ergebnisdateien extrahiert werden. Diese sind z. B. EALF (Energy of Average Lethargy causing Fission = Energie der durchschnittlichen Lethargie der Spaltung verursachenden Neutronen),  $\lambda$  (freie Weglänge),  $\bar{\nu}$  (mittlere Anzahl von emittierten Spaltneutronen) und  $k_{\text{eff}}$  (Multiplikationsfak-

tor). Im Folgenden werden, soweit nicht anders erwähnt, nur die Ergebnisse des generischen Transportbehälters gezeigt, da die entsprechenden Sensitivitäten und Abhängigkeiten für das generischen Lagerbeckens äquivalent gelten.

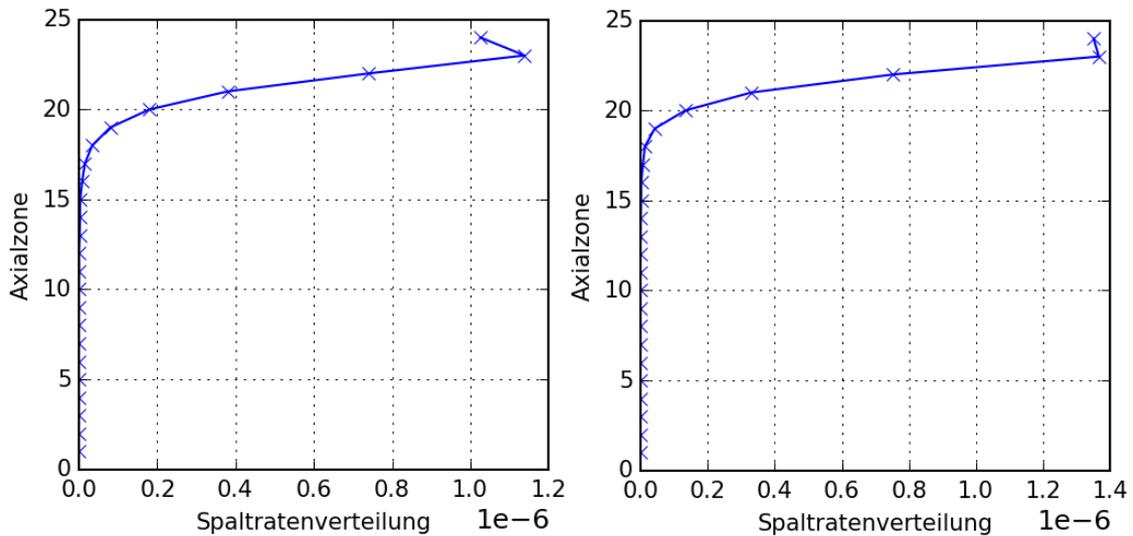
Für die Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse werden die Pearson-Korrelationskoeffizienten zwischen allen variierten Parametern (24 Zonen mal die drei Größen Leistung, Abbrand und Moderatorichte) und den obigen Ergebnisgrößen gebildet, um den relativen Einfluss der Variationen auf die Ergebnisse zu ermitteln. Diese stellen keine klassische Sensitivität dar, sondern bezeichnen den Einfluss der tatsächlichen Variation der unsicheren Parameter auf die Unsicherheit der berechneten Ergebnisgrößen.

Abb. 7.11 zeigt die Korrelation von EALF,  $\lambda$ ,  $\bar{v}$ , und  $k_{\text{eff}}$  des generischen Transportbehälters mit der zonenweise variierten Leistung, Abbrand und Moderatorichte nach jeweils ein, zwei, drei, vier und fünf Zyklen Abbrand. Zuerst wird der unterste Block mit fünf Zyklen Abbrand diskutiert. Es ist deutlich zu erkennen, dass alle diese Werte nur sensitiv auf die Abbrandvariation der obersten vier Zonen sind. Dies ist konsistent mit den axialen Profilen der Spaltdichten, gezeigt in Abb. 7.12 für zwei beliebig ausgewählte Samples. Diese haben ihr Maximum in den obersten Zonen des Brennelements. Die Spaltraten in den übrigen Zonen sind demgegenüber deutlich geringer bzw. vernachlässigbar. Aufgrund der Form der Abbrandprofile liegt in den obersten Zonen der geringste Abbrand vor, weshalb sie die Reaktivität der Anordnung dominieren.

Die Korrelationen zwischen dem Abbrand und  $k_{\text{eff}}$  sind für die relevanten Zonen deutlich negativ. Da sich das Brennelement nach fünf Zyklen deutlich nach dem Gadolinium-Peak befindet, bedingt ein höherer Abbrand einen kleineren Multiplikationsfaktor, da weniger Spaltstoff zur Verfügung steht.



**Abb. 7.11** Korrelation von EALF,  $\lambda$ ,  $\bar{v}$ , und  $k_{eff}$  mit der zonenweise variierten Leistung, Abbrand und Moderatorerdichte nach jeweils 1, 2, 3, 4 und 5 Zyklen Abbrand



**Abb. 7.12** Axiales Profil der Spaltdichte zweier beliebig ausgewählter Samples nach 5 Zyklen

Anders sieht die Situation nach nur einem Zyklus aus, bei dem sich der oberste Block von Abb. 7.11 ergibt. Hier ist  $k_{\text{eff}}$  (und die anderen Werte) auf die Variation des Abbrandes im unteren Drittel des Brennelements sensitiv, allerdings mit positiven Korrelationen, d. h. ein höherer Abbrand bedingt hier einen höheren Multiplikationsfaktor. Dies ist damit zu erklären, dass sich das Brennelement mit 9,2 GWd/tSM nach einem Zyklus noch knapp vor dem Gadolinium-Peak befindet, und so ein höherer Abbrand ein weiteres Ausbrennen des Neutronenabsorbers Gadolinium bedingt und somit zu einer höheren Reaktivität des Brennstoffs führt.

Die mittleren drei Blöcke von Abb. 7.11 zeigen dieselben Korrelationen für den Abbrand nach zwei, drei, und vier Zyklen. Dabei zeigt sich, dass nach zwei Zyklen über einen großen Bereich des Brennelements negative Korrelationen auftreten, die ab dem dritten Zyklus stärker werden und sich mehr und mehr auf wenige obere Zonen konzentrieren. Der Anstieg der Korrelationen ist damit zu erklären, dass der Gadolinium-Peak mit einem Abbrand von 18,4 WGd/tSM überwunden ist und bei weiter zunehmendem Abbrand die unteren und mittleren Zonen gegenüber den obersten Zonen vermehrt abgebrannt werden, sodass eine immer kleiner werdende Zahl an oberen Zonen die Reaktivität des Brennelements dominiert.

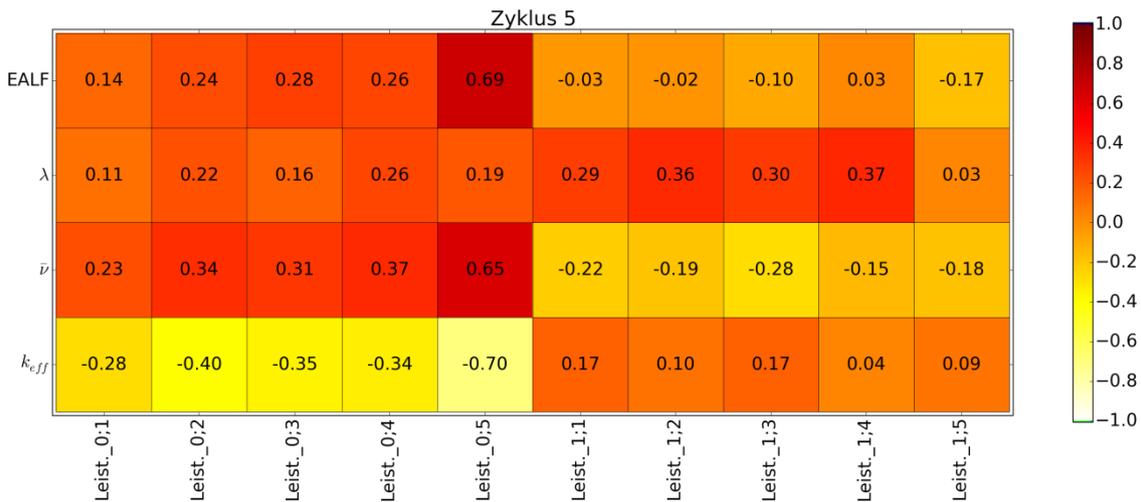
Die anderen betrachteten Größen EALF,  $\lambda$  und  $\bar{v}$  folgen weitgehend dem Verlauf der  $k_{\text{eff}}$  Entwicklung. Ebenso liefern die Sensitivitätsanalyse für die generische Lageranordnung bis auf numerische Abweichungen innerhalb der Unsicherheiten der Korrelationsfaktoren die gleichen Abhängigkeiten und Ergebnisse. Abschließend zeigt Tab. 7.2 die  $k_{\text{eff}}$  Werte jeweils zum Ende jedes Zyklus für den generischen Transportbehälter und die generische Lageranordnung.

**Tab. 7.2**  $k_{\text{eff}}$  Werte nach jedem Zyklus

Zyklus	Abbrand	Generischer Transportbehälter		Generische Lageranordnung	
		$k_{\text{eff}}$	$\Delta k_{\text{eff}}$	$k_{\text{eff}}$	$\Delta k_{\text{eff}}$
1	9,2	0,8242	0,0023	0,7931	0,0021
2	18,4	0,7929	0,0027	0,7597	0,0024
3	27,6	0,7510	0,0056	0,7238	0,0053
4	36,8	0,7204	0,0073	0,6985	0,0064
5	46,0	0,6829	0,0094	0,6655	0,0083

#### 7.4.7 Variation des konsistenten Modells

Das in Kapitel 7.2 vorgestellte konsistente SWR-Bestrahlungsmodell wurde auf die Inventar- und Kritikalitätsberechnung des generischen SVEA-Brennelements angewendet. Wie erwähnt bleiben bei fünf Zyklen insgesamt zehn freie Parameter für die Erstellung der axialen Profile von Leistung, Abbrand und Moderatorichte, die entsprechend der Verteilungen des Modells gewürfelt werden: für jeden Zyklus (1-5) jeweils die Faktoren vor den konstanten (Leist.\_0) und linearen (Leist.\_1) Termen der Polynome, die die Leistungsverteilung beschreiben. Wie bei den Berechnungen im vorangegangenen Kapitel 7.4.6 können nach Abbrandrechnung aller Samples aller Axialzonen und nachfolgenden Kritikalitätsrechnungen EALF,  $\lambda$ ,  $\bar{v}$  und  $k_{\text{eff}}$  aus den Ergebnisdateien extrahiert und mit den 10 variierten Eingangsparametern korreliert werden. Die Ergebnisse dieser Sensitivitätsanalyse sind in Abb. 7.13 gezeigt.



**Abb. 7.13** Korrelation von  $k_{eff}$  mit dem konsistenten Modell nach fünf Zyklen Abbrand

$k_{eff}$  weist hauptsächlich eine negative Korrelation mit dem konstanten Term der Leistung auf, der durch das SWR-Bestrahlungsmodell direkten Einfluss auf den Abbrand hat. Weitere Rechnungen in denen Leistung und Abbrand separat voneinander variiert wurden zeigen, dass  $k_{eff}$  in der Tat nur auf den Abbrand sensitiv ist und nicht auf die Leistung direkt. Der Abbrand im letzten Zyklus hat größeren Einfluss auf  $k_{eff}$  als der in den vorherigen Zyklen erreichte Abbrand. Generell sind alle Korrelationen negativ, was bei einem Gesamtabbrand von etwa 40 GWd/tSM zu erwarten ist. Deutlich nach dem Gadolinium-Peak bedingt ein höherer Abbrand weniger zur Verfügung stehenden Spaltstoff und damit eine geringere Reaktivität (vergl. Kap. 7.4.6).

$k_{eff}$  weist mit den linearen Termen der Leistung leicht positive Korrelationen auf, die aber nur knapp außerhalb deren Unsicherheiten liegen. (Pearson-Korrelationsfaktoren um 0 haben bei 250 Samples eine Unsicherheit von etwa 0,1, die hin zu Werten von -1 oder 1 aufgrund ihrer Beschränktheit auf Werte innerhalb des Intervalls [-1,1] gegen 0 geht.) Je Größer dieser lineare Term ist, desto stärker weisen die Leistung und der Abbrand im unteren Bereich des Brennelements ein Maximum auf. Im Umkehrschluss ist dann der Abbrand im oberen Teil geringer, was zu einem geringeren Verbrauch an spaltbarem Material und zu einer höheren Reaktivität führt.

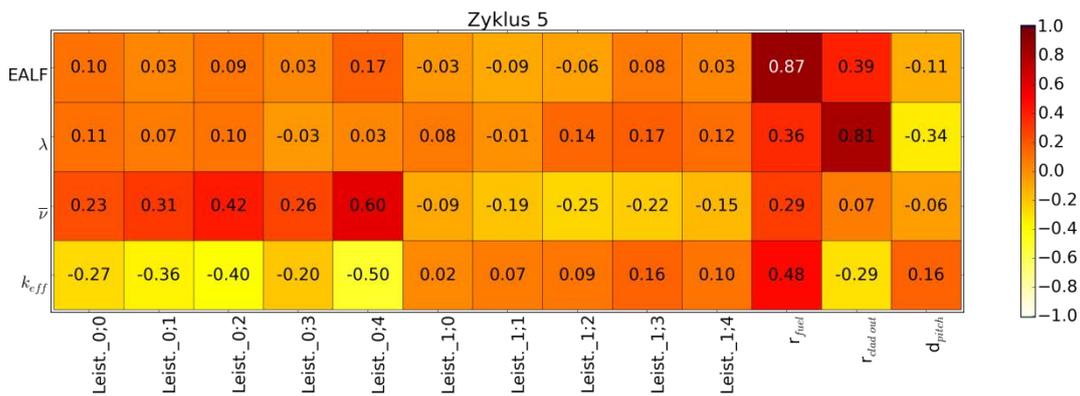
Bei der Bewertung der Sensitivitäten muss allerdings beachtet werden, dass nicht nur die zwei Parameter der Leistung variiert werden, sondern damit linear gekoppelt auch die zwei freien Parameter des Abbrandes und der freie Parameter der Moderatorerdichte. Rechnungen, in denen nicht das komplette konsistente Modell angewendet wird, sondern alle fünf freien Parameter (zwei der Leistung, zwei des Abbrandes, einer der

Moderatordichte) individuell und nicht voneinander abhängig variiert werden, zeigen, dass  $k_{\text{eff}}$  fast ausschließlich auf den konstanten Term des Abbrands sensitiv ist. Dies liegt auf gleicher Linie wie die Beobachtungen aus Kapitel 7.4.6, in dem der Abbrand als einziger relevanter Parameter für  $k_{\text{eff}}$  ermittelt wurde.

#### **7.4.8 Kombinierte Variation des konsistenten Modells mit Variationen der Systemparameter**

In einem weiteren Schritt wurde die Anwendung des konsistenten SWR-Bestrahlungsmodells inklusive seinen Variationen mit typischen Variationen der Systemparameter von SWR-Reaktoren kombiniert. Dabei werden die gleichen Unsicherheiten aus Referenz /OEC 14/ verwendet, die in Kapitel 6.5.1.2 und 6.5.2.2 für die Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalysen der Fukushima- und Forsmark-PIE-Proben verwendet wurden und in Tab. 6.13 wiedergegeben sind. Bei der technischen Umsetzung stellt sich die Herausforderung, dass die geometrischen Variationen nicht nur im Bestrahlungsmodell bzw. in den Abbrandrechnungen verwendet werden, sondern auch in den anschließenden Kritikalitätsrechnungen beachtet werden müssen. Diese gleichzeitige Verwendung von Parametervariationen und das Übertragen der Nuklidvektoren aller abgebrannter Brennstäbe aus den Ergebnisdateien der Abbrandrechnungen in die Inputdateien der Kritikalitätsrechnungen wurde entsprechend in den Eingabedaten für SUnCISTT hinterlegt.

Abb. 7.14 zeigt die Ergebnisse der Sensitivitätsanalyse dieses kombinierten Modells. Dabei werden nur die variierten Systemparameter gezeigt, die einen signifikanten Einfluss auf die berechneten Größen haben. Die Korrelationen zwischen den restlichen variierten Parametern – Brennstoffdichten, Anreicherungen der verschiedenen Brennstäbe und der Temperatur – mit den Ergebnisgrößen liegen innerhalb der statistischen Unsicherheit der Korrelationsfaktoren um Null. Es zeigt sich, dass der Brennstoffradius ( $r_{\text{fuel}}$ ) und der Hüllrohräußendurchmesser ( $r_{\text{clad,out}}$ ) neben dem konstanten Term der Leistung einen relevanten Einfluss auf  $k_{\text{eff}}$  besitzen. Dabei zeigt sich ein ähnliches Bild wie in Kapitel 6, dass neben dem Abbrand als dominierende Größe für die Unsicherheit von  $k_{\text{eff}}$  auch spektralverändernde Größen einen gewissen Einfluss haben können. Dabei spielt wieder die Wahl der Unsicherheiten und deren Höhe eine entscheidende Rolle.



**Abb. 7.14** Korrelation von  $k_{eff}$  mit dem konsistenten Modell in Kombination mit geometrischen Variationen aus Ref. /OEC 14/ nach fünf Zyklen

### 7.4.9 Schlussfolgerungen

Die Methodik der stochastischen Unsicherheitsanalyse bietet die Möglichkeit einer konsistenten Analyse des Einflusses der relevanten Eingangsgrößen auf die Kritikalitätsrechnung einer zu untersuchenden Anordnung. Im Idealfall ist dabei ein Rechenmodell zu verwenden, das die Abhängigkeiten zwischen den ergebnisrelevanten Eingangsgrößen, wie hier z. B. Leistung und Dampfblasengehalt, physikalisch korrekt abbildet. Für das vorliegende Problem würde dies den Einsatz eines gekoppelten neutronenphysikalischen und thermohydraulischen Rechenverfahrens bedeuten. Eine solche Rechnung ist mit einem erheblichen Aufwand verbunden, der außerhalb des Rahmens des vorliegenden Vorhabens liegt. Hier wurden daher verschiedene vereinfachende Modellannahmen verwendet. Zunächst wurde eine unabhängige Variation der Eingangsgrößen in den einzelnen Axialzonen vorgenommen. Als nächster Schritt wurde die Variation der Eingangsgrößen anhand eines im Rahmen des Vorhabens entwickelten konsistenten Modells der Reaktorparameter durchgeführt.

Mit den Analysen dieses Kapitels konnte die grundlegende Anwendbarkeit der Methode demonstriert werden. Weiterhin konnten einige generelle Aussagen abgeleitet werden. So zeigt die axialzonenweise unabhängige Variation der Eingangsgrößen, dass der Haupteinfluss auf die Kritikalitätsanalyse vom Wert des Abbrands einzelner Axialzonen herrührt. Für hochabgebrannten Brennstoff handelt es sich dabei, analog zu Druckwasserreaktorbrennstoff, um den Abbrand in den obersten Axialzonen. Dies ist der bekannte Endeffekt, der daher rührt, dass in diesen Zonen der Abbrand am geringsten ist und der Brennstoff somit am reaktivsten. Bei Brennelementen mit einem Abbrand im Bereich vor dem Gadolinium-Peak ist ein Einfluss des Abbrands des unter-

ren Drittels gegeben. Dies liegt am Gadoliniumausbrand, der im unteren Bereich des Brennelements aufgrund der höheren Leistung und des weicheren Neutronenspektrums schneller erfolgt als im Rest des Brennelements. Der Einflussbereich wandert im Laufe des Abbrands immer weiter nach oben. Andere Einflussgrößen wie Moderator-dichte und Leistung spielen demgegenüber eine untergeordnete Rolle.

Bei der Variation unter Verwendung des konsistenten Modells zeigt sich im Wesentlichen eine Korrelation mit dem konstanten Term der Leistung und dort insbesondere der Leistung des letzten Zyklus. Dies lässt sich letztlich wieder zurückführen auf eine Abhängigkeit vom Abbrand in den obersten Axialzonen des Brennelements. Diese Information ist allerdings innerhalb des konsistenten Modells nicht direkt zugänglich und muss indirekt erschlossen werden. Der lineare Term der Leistung zeigt dagegen innerhalb der statistischen Schwankungen keine Korrelationen. Dies lässt darauf schließen, dass eine Änderung des Abbrandprofils innerhalb der durch die Reaktor-fahrweise und die reaktorphysikalischen Randbedingungen vorgegebenen Grenzen wenig Einfluss auf die Reaktivität des Brennstoffs hat. Die Form des Profils und insbesondere die Reaktivität am oberen Ende des Brennelements ändert sich nur wenig bei Variationen der Profilform und wird stärker von Änderungen des Gesamtabbrands beeinflusst. Eine Änderung der Leistung bewirkt im konsistenten Modell gleichzeitig eine Änderung des Dampfblasengehalts. Daher könnte die beobachtete Korrelation auch von dieser Änderung ausgelöst werden. Allerdings hat die unabhängige Variation der Parameter gezeigt, dass der Dampfblasengehalt gegenüber dem Abbrand nur eine sehr geringe Rolle spielt.

Grundsätzlich haben die hier durchgeführten Rechnungen auch einige Grenzen des entwickelten konsistenten Bestrahlungsmodells aufgezeigt. Die Modellierung der Abhängigkeiten wurde über lineare Korrelationen realisiert. Die Einführung dieser Korrelationen führt zu einer gewollten Reduktion der freien Parameter im Modell. Diese Reduktion führt aber auch zu einem Informationsverlust bei der Unsicherheitsanalyse, da nur noch Korrelationen zu einigen wenigen globalen Parametern ermittelt werden können, deren Interpretation schwierig sein kann. Beispielsweise ist die Abhängigkeit der Reaktivität des Brennelements von den obersten Axialzonen in der Unsicherheitsanalyse nicht direkt zu sehen, sondern muss indirekt erschlossen werden. Ein Ausweg aus diesem Problem wäre eine Korrelation von  $k_{\text{eff}}$  mit den zonenweisen Größen. Im vorliegenden Modell lässt sich allerdings aufgrund der hier angenommenen linearen Abhängigkeiten kaum zusätzliche Information erzielen. Für eine tatsächliche Kritikalitätssicherheitsbetrachtung wäre zusätzlich nachzuweisen, dass die im Modell verwen-

deten Axialprofile den realen Axialprofilen in der Hinsicht entsprechen, dass sie auch die realen Einflüsse auf die Kritikalität korrekt wiedergeben.

Aus der angesprochenen Problematik sind zwei mögliche Auswege denkbar. Bei entsprechender Verfügbarkeit ist eine Möglichkeit die direkte Verwendung realistischer Axialprofile. Diese können zum Beispiel aus Kernverfolgungsrechnungen gewonnen werden. Mit der im Vorhaben entwickelten Erweiterung von SUnCISTT könnten solche Profile ohne großen Zusatzaufwand analysiert werden. Zusätzlich zu den Ergebnissen einer solchen Unsicherheitsanalyse kann dabei auch das konservativste Profil direkt ermittelt werden.

Die zweite mögliche Variante zur Überwindung der angesprochenen Schwierigkeiten liegt in der Integration einer gekoppelten Neutronik-Thermohydraulik-Rechnung in SUnCISTT. Entsprechende Rechencodes sind in der GRS vorhanden. Die Implementierung einer entsprechenden Kopplung ist allerdings mit erheblichem Aufwand verbunden. Eine solche Kopplung würde dann eine Korrelation des Multiplikationsfaktors sowohl mit globalen Einflussgrößen wie z.B. des Massenstroms als auch mit axial-zonenweisen Größen ermöglichen und gleichzeitig eine Übertragbarkeit auf reale Profile sicherstellen.

## **7.5 Studien unter Einbeziehung eines vereinfachten Steuerstabkreuzmodells**

### **7.5.1 Erweiterung des Bestrahlungsmodells um den Einsatz von Steuerstabkreuzen**

Bei Siedewasserreaktoren wird die Leistung während des Betriebs weitgehend über eine Variation der Kühlmitteldurchflussmenge und dem damit variierenden Dampfblasengehalt geregelt. Neben dem Einsatz von Steuerstabkreuzen in Siedewasserreaktoren zum An- und Abfahren und zur Schnellabschaltung kommen sie auch zur Regelung der Leistung auf längeren Zeitskalen zum Einsatz und sind dabei teils weit in den Reaktorkern gefahren. Die meist aus Cadmium- oder Borverbindungen bestehenden, Neutronen absorbierenden Steuerstäbe sind in SWRs in einem kreuzförmigen Steuerelement zusammengefasst, dem Steuerstabkreuz, das von unten zwischen jeweils vier Brennelemente eingefahren wird.

In dem hier verwendeten Rechenmodell bestehen die Steuerstäbe aus Borcarbid ( $B_4C$ ) mit 78,28 Gew.-% Bor und einer Dichte von  $1,8 \text{ g/cm}^3$ . Diese Stäbe sind in ein Steuerstabkreuz aus Edelstahl 304 eingebettet. Im Rechenmodell, das nur ein Brennelement umfasst, ist jeweils nur ein Viertel des Steuerstabkreuzes mit halben Steuerstäben modelliert, das an zwei Seiten des BE grenzt. Abb. 7.6 und Abb. 7.7 zeigen die Geometrie des 2D-HELIOS-Modells unter Verwendung der Steuerstabkreuze.

Eine vollständig konsistente Berücksichtigung der Steuerstabkreuze und deren lokalen und zeitlichen Einfluss auf Leistung, Abbrand und Dampfblasengehalt ist unter Einbeziehung des hier verwendeten parametrischen SWR-Bestrahlungsmodells nicht möglich. Um dies zu ermöglichen müssten Ganzkernrechnungen mit einem gekoppelten Neutronik-Thermohydraulik-Code durchgeführt werden, der die vier Größen Leistung, Abbrand, Moderatordichte und Steuerstabkreuzeinsatz gekoppelt und konsistent simulieren kann.

Der Einsatz eines Steuerstabkreuzes wird dagegen im verwendeten Modell wie folgt berücksichtigt und in einer Parameterstudie auf die zonenweisen 2D-Abbrandrechnungen angewendet:

- Das Steuerstabkreuz wird von unten eingefahren, d. h. alle axialen Zonen von unten bis zu einer definierten Zone enthalten dann das Steuerstabkreuz.
- Daraus ergeben sich bei 24 Axialzonen 25 Fälle, vom komplett ausgefahrenen bis zum komplett eingefahrenen Steuerstabkreuz.
- In den entsprechenden Zonen werden im HELIOS-Rechenmodell die Materialien an der Stelle des Steuerstabkreuzes von Wasser zu Edelstahl und Borcarbid getauscht.
- Zusätzlich werden in den entsprechenden Zonen die Leistung und damit auch der Abbrand um 35 % verringert. Ein typischer Wert, der aus der Analyse von bestehenden Ganzkernrechnungen abgeleitet wurde.
- Die Berücksichtigung des Einflusses des Steuerstabkreuzes auf den Dampfblasengehalt ist im Rahmen dieses Vorhabens nicht möglich.

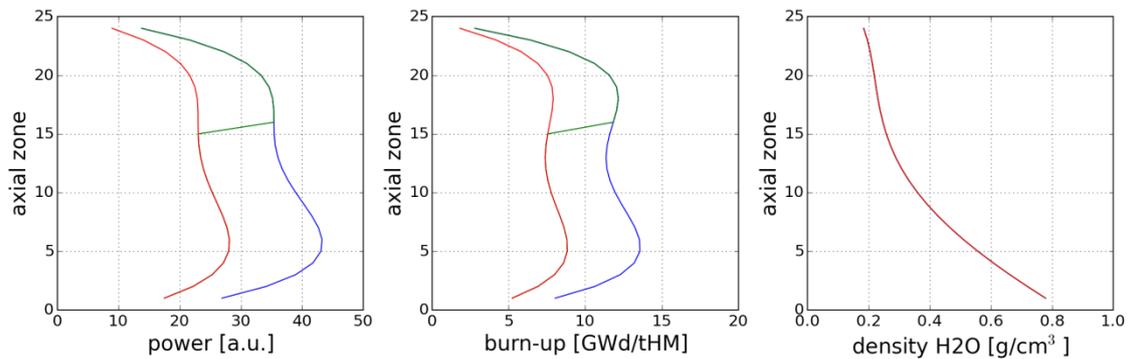
Abb. 7.15 zeigt die Verläufe von Leistung, Abbrand und Dampfblasengehalt beispielhaft für drei der oben genannten Fälle. Von den oberen Zonen kommend, springen Leistung und Abbrand bei der ersten Zone mit Steuerstabkreuz vom höheren Nominalprofil auf das Profil mit 35 % niedrigeren Werten.

Zusätzlich zu dieser hier möglichst realitätsnahen Implementierung der Verwendung eines Steuerstabkreuzes wurden die Rechnungen wiederholt ohne Leistung und Abbrand in den entsprechenden Zonen zu ändern. Damit lässt sich der direkte Einfluss der Steuerstabkreuze, z. B. auf den Neutronenfluss und -spektrum, vom indirekten Einfluss durch die Verringerung von Leistung und Dichte trennen.

Der Einfluss des Steuerstabkreuz-Einsatzes wurde zu verschiedenen Abbrandzeitpunkten untersucht. Als Extremfälle der möglichen Verwendungsdauer wurde das Einfahren der Steuerstabkreuze jeweils für einen kompletten Zyklus angenommen. Aufgrund der im Allgemeinen deutlich kürzeren Einsatzdauer von Steuerstabkreuzen in realen Reaktorkernen werden die tatsächlich auftretenden Effekte deutlich geringer ausfallen als die, die hier im Folgenden zu beobachten sind. Allerdings liegen keine öffentlich zugänglichen Daten zum Einsatz von Steuerstabkreuzen vor.

Es wurden folgende Fälle untersucht, die in Kapitel 7.5.2 bis 7.5.5 näher betrachtet werden:

- Ein Zyklus unter dem Einsatz eines Steuerstabkreuzes.
- Ein Zyklus mit 30 % höherer Leistung und Abbrand unter dem Einsatz eines Steuerstabkreuzes. Der Abbrand des gesamten BE hat damit ohne Steuerstabkreuzeinsatz bereits den Gadolinium-Peak deutlich überschritten.
- Ein Zyklus normaler Abbrand gefolgt von einem Zyklus unter dem Einsatz eines Steuerstabkreuzes.
- Zwei Zyklen normaler Abbrand gefolgt von einem Zyklus unter dem Einsatz eines Steuerstabkreuzes.
- Drei Zyklen normaler Abbrand gefolgt von einem Zyklus unter dem Einsatz eines Steuerstabkreuzes.
- Vier Zyklen normaler Abbrand gefolgt von einem Zyklus unter dem Einsatz eines Steuerstabkreuzes.



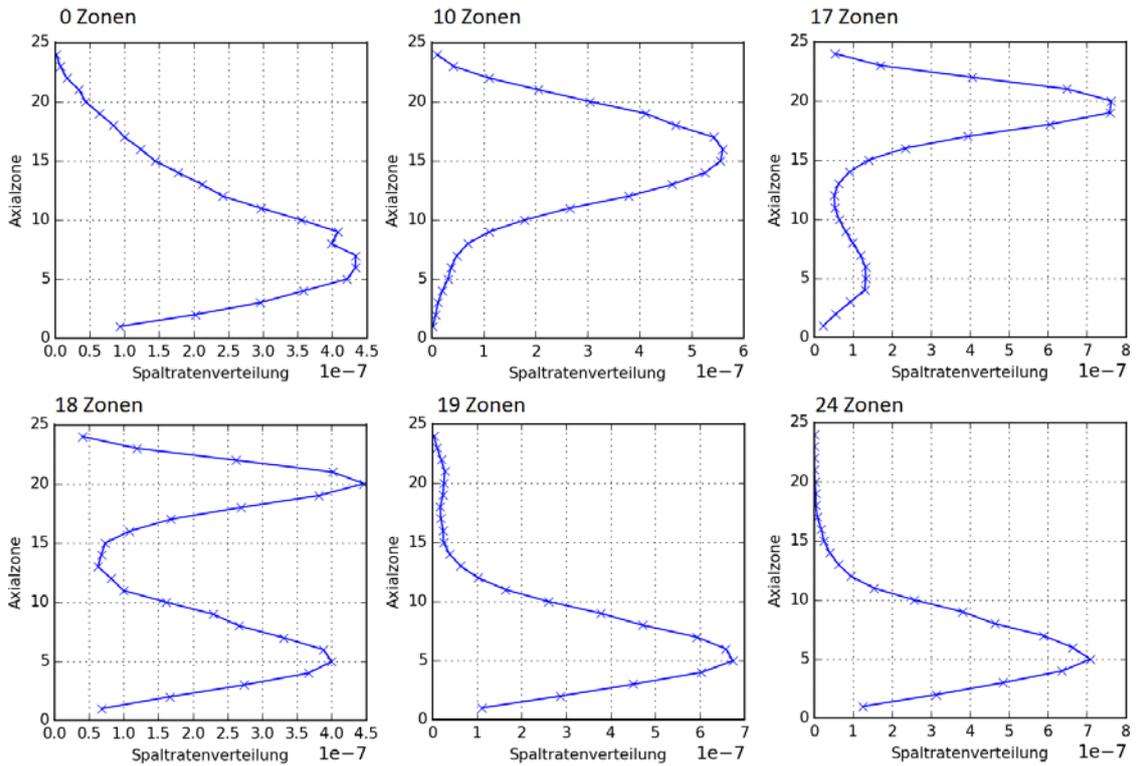
**Abb. 7.15** Leistung Abbrand und Dampfblasengehalt für ein bis zur Axialzone15 eingefahrenes Steuerkreuz (grün) und die beiden Grenzfälle voll eingefahrenes Steuerkreuz (rot) und voll ausgefahrenes Steuerkreuz (blau)

### 7.5.2 Ein Zyklus unter Einsatz eines Steuerstabkreuzes

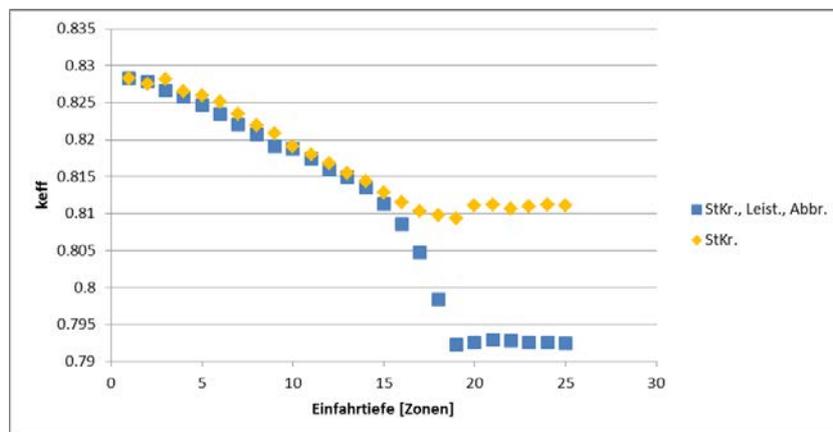
Die blaue Kurve in Abb. 7.16 zeigt den Verlauf des Multiplikationsfaktors des mit Brennelementen befüllten Transportbehälters für einen Zyklus unter Verwendung des Steuerstabkreuzes und Reduzierung von Leistung und Abbrand.  $K_{\text{eff}}$  ist dabei gegen den über das gesamte Brennelement gemittelten Abbrand aufgetragen. Wird das Steuerstabkreuz von unten in das Brennelement eingefahren, verringert sich nach und nach der mittlere Abbrand. Damit liegt der Nominalfall ohne Steuerstabkreuz in Abb. 7.16 beim höchsten angegebenen Abbrand und die Datenpunkte mit zunehmend eingefahrenem Steuerstabkreuz reihen sich in Richtung geringerer Abbrände auf.

Durch das Einfahren des Steuerstabkreuzes verringert sich  $k_{\text{eff}}$  aufgrund zweier Effekte: Zum einen liegt der Abbrand nach einem Zyklus ohne Steuerstabkreuz nur knapp über dem Gadolinium-Peak, sodass in dieser Situation aufgrund der etwas höheren Moderation und dem dadurch etwas höheren Gd-Ausbrand im unteren Teil des Brennelements auch der reaktivste Brennstoff zu finden ist (vergl. Abb. 7.17). Zum anderen führt der Einsatz des Steuerstabkreuzes in den betroffenen unteren Zonen zu einem deutlich reduzierten Gd-Ausbrand und damit zu einer deutlich geringeren Reaktivität des Brennstoffes. Somit wandert mit zunehmend eingefahrenem Steuerstabkreuz das Reaktivitätsmaximum des Brennelements in der Kritikalitätsrechnung in höhere Zonen, welche ihrerseits aber zunehmend eine geringere Reaktivität aufweisen (siehe Abb. 7.17). Ab einer Einfahrtiefe von 19 Zonen dominieren dann wieder die unteren Zonen  $k_{\text{eff}}$ . Somit verschiebt sich die Spaltratenverteilung wieder in den unteren Teil des BE, sodass für die letzten sechs Zonen ein weiteres Einfahren keine Veränderung





**Abb. 7.17** Spaltratenverteilung nach einem Zyklus unter Einsatz eines Steuerstabkreuzes und Verringerung von Leistung und Abbrand bei Einfahrtiefen der Steuerstabkreuze von 0, 10, 17, 18, 19, und 24 Zonen



**Abb. 7.18**  $k_{eff}$  Verlauf für einen Zyklus unter Einsatz eines Steuerstabkreuzes, mit (blau) und ohne (gelb) Verringerung von Leistung und Abbrand

Abb. 7.18 zeigt den Vergleich der Multiplikationsfaktoren für einen Zyklus unter Einsatz von Steuerstabkreuzen mit Verringerung von Leistung und Abbrand in Blau (gleiche Kurve wie in Abb. 7.16) und ohne Verringerung dieser zwei Abbrandparameter in Gelb gegen die Einfahrtiefe des Steuerstabkreuzes in Zonen.

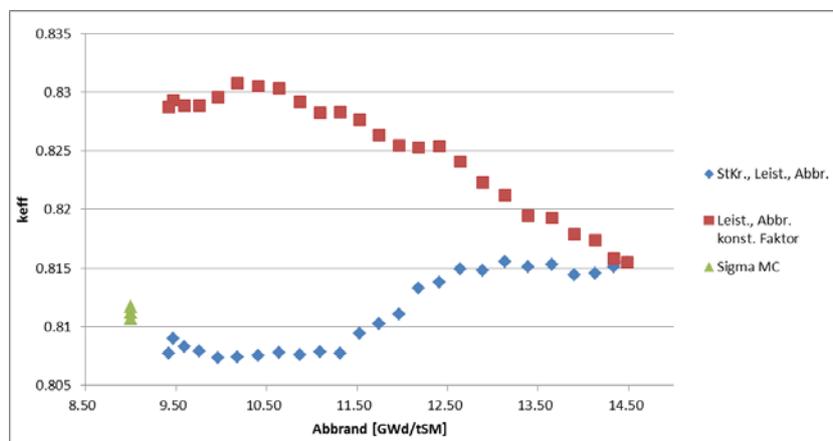
Bis zu einer Einfahrtiefe bis Zone 15 macht es für  $k_{\text{eff}}$  kaum einen Unterschied, ob die Leistung und der Abbrand in den vom Steuerstabkreuz beeinflussten Zonen verringert wird oder nicht. Zu erklären ist dies folgendermaßen: Bei nicht verringerter Leistung und Abbrand wird einerseits deutlich mehr Gadolinium ausgebrannt, als wenn dort noch zusätzlich Leistung und Abbrand reduziert würde. Andererseits ist bereits der spektralverändernde Einfluss der Steuerstabkreuze ausreichend, um den Gadoliniumausbrand gegenüber dem Betrachtungsfall ohne Steuerstabkreuz merklich zu reduzieren. Damit wird zwar durch den spektralen Einfluss des Steuerstabkreuzes die Reaktivität im unteren Teil des Brennelements nicht soweit reduzieren, als wenn zusätzlich Leistung und Abbrand verringert werden würden, aber dennoch genug, so dass das Reaktivitätsmaximum zunächst in den oberen Teil des Brennelements wandert. Folglich liegt bis zu einer Einfahrtiefe bis Zone 15 die gleiche Situation wie in der vorherigen Untersuchung mit reduzierter Leistung und Abbrand vor. Da allerdings der untere Teil des Brennelements eine insgesamt höhere Reaktivität als in der vorherigen Untersuchung aufweist, wechselt hier das Reaktivitätsmaximum bereits bei einer etwas geringeren Einfahrtiefe des Steuerstabkreuzes (Zone 15 statt Zone 19) in den unteren Teil des Brennelements und führt ebenfalls zu einem höheren  $k_{\text{eff}}$ .

### **7.5.3 Ein Zyklus mit 30 % höherer Leistung und Abbrand unter dem Einsatz eines Steuerstabkreuzes**

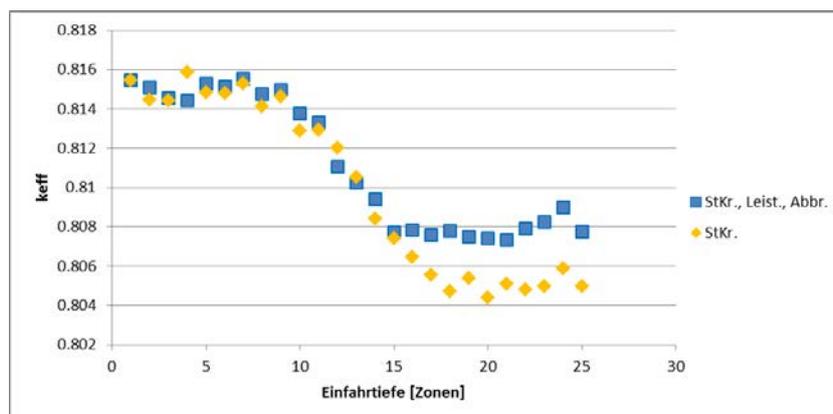
Die Analysen aus Kapitel 7.5.2 wurden mit einer um 30 % erhöhten Leistung und Gesamtbrand wiederholt, die Ergebnisse sind in Abb. 7.19 dargestellt. Damit befindet sich dieser Fall mit anfangs knapp 15 GWd/tSM deutlich nach dem Gadolinium-Peak und erreicht diesen von höheren Abbränden kommend. Auch dieser Fall besteht aus einem Zyklus und das Steuerstabkreuz wird für die Abbrand-Rechnung von unten in das BE eingefahren (blaue Kurve). Wie im letzten Kapitel ist wiederum in Rot die Kurve angetragen, die sich bei Skalierung von Leistungs- und Abbrand-Profilen mit einem konstanten Faktor ergibt. Der Anstieg und der Sättigung von  $k_{\text{eff}}$  mit kontinuierlich verringertem Abbrand dieser Kurve zeigt die Position nach dem Gadolinium-Peak. Auch in dieser Abbildung ist in Grün das  $1\sigma$ -Intervall der Kritikalitätsrechnung gezeigt. Zunächst zeigt der Einschub des Steuerstabkreuzes bis acht Zonen keinen Einfluss auf  $k_{\text{eff}}$ , da sich das Reaktivitätsmaximum etwa auf mittlerer Höhe des BE befindet und so nicht von Änderungen in den unteren Zonen beeinflusst wird. Im weiteren Verlauf kommt es auch in diesem Fall zu dem gleichen Effekt wie in Abb. 7.16, nämlich zu einer Erniedrigung von  $k_{\text{eff}}$  mit einer maximalen Abweichung von 2,15 %  $k_{\text{eff}}$  etwa bei

einem Einschub bis Zone 18. Auch für diesen Fall ergibt sich eine konservative Berechnung bei Vernachlässigung des Effekts des Steuerstabkreuzes.

Abb. 7.20 zeigt erneut den Vergleich mit (blaue Kurve) und ohne (gelbe Kurve) Erniedrigung von Leistung und Abbrand. In diesem Fall würden sich bei reiner Betrachtung des Einsatzes des Steuerstabkreuzes ohne Änderung von Leistung und Abbrand ab einer Einfahrtiefe des Steuerstabkreuzes von 15 Zonen ein niedrigeres  $k_{\text{eff}}$  und damit ein größerer Effekt einstellen. Dieser Fall befindet sich deutlich nach dem Gadolinium-Peak, somit sinkt  $k_{\text{eff}}$  mit Erhöhung des Abbrands. Damit erniedrigt ein Vernachlässigen des Abbrands durch den Einsatz des Steuerstabkreuzes  $k_{\text{eff}}$  weiter.



**Abb. 7.19**  $k_{\text{eff}}$  Verlauf für 1 Zyklus mit 30 % mehr Leistung und Abbrand unter Einsatz eines Steuerstabkreuzes (blau). Zum Vergleich in Rot Rechnungen mit gleichmäßig verringerter Leistung und Abbrand

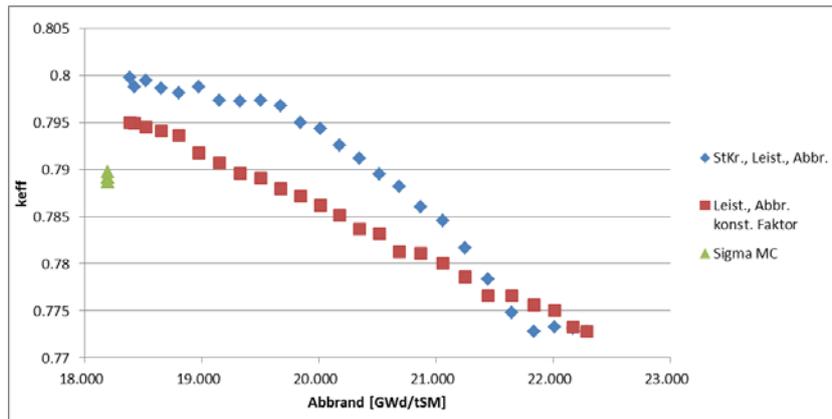


**Abb. 7.20**  $k_{\text{eff}}$  Verlauf für einen Zyklus mit 30 % mehr Leistung und Abbrand unter Einsatz eines Steuerstabkreuzes, mit (blau) und ohne (gelb) Verringerung von Leistung und Abbrand

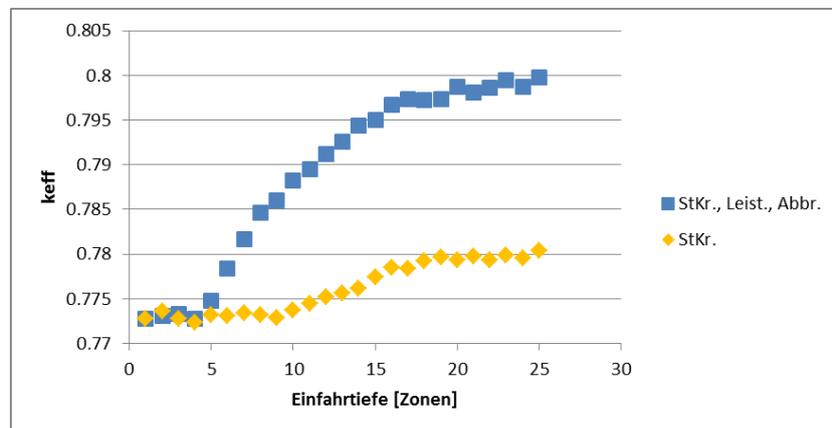
#### 7.5.4 Ein Zyklus normaler Abbrand und 1 Zyklus unter dem Einsatz eines Steuerstabkreuzes

Abb. 7.21 zeigt die Ergebnisse nach dem normalen Abbrand über einen Zyklus ohne den Einsatz eines Steuerstabkreuzes und der anschließenden Verwendung eines Steuerstabkreuzes über einen weiteren Zyklus (blaue Kurve). Zusätzlich ist eine Rechnung dargestellt, in der im zweiten Zyklus die Leistungs- und Abbrandprofile mit einem konstanten Faktor skaliert sind (rote Kurve). Auch in dieser Abbildung ist in Grün das  $1-\sigma$  Intervall der Monte Carlo-Rechnung gezeigt. Dieser Fall befindet sich über den gesamten betrachteten Abbrandbereich nach dem Gadolinium-Peak, was auch durch den Anstieg von  $k_{\text{eff}}$  mit kontinuierlich verringertem Abbrand deutlich zu erkennen ist (rote Kurve). In diesem Fall kommt es ab einer Einfahrtshöhe des Steuerstabkreuzes von fünf Zonen zu einer Erhöhung der  $k_{\text{eff}}$ -Werte aufgrund des verringerten Abbrandes in den unteren Brennelementzonen. Die so erzielten  $k_{\text{eff}}$ -Werte liegen nur geringfügig über den Werten der roten Kurve. Die maximale Abweichung liegt bei etwa 1,0 %  $k_{\text{eff}}$  bei einer Einfahrtshöhe von etwa 15 Zonen. In diesem Fall ergibt sich eine nicht-konservative Berechnung bei Vernachlässigung des Effekts des Steuerstabkreuzes.

Vergleicht man in Abb. 7.22 den Fall, in dem beim Steuerstabkreuzeinsatz auch die Leistung und der Abbrand verringert werden (blaue Kurve) mit dem Fall, in dem nur das Steuerstabkreuz zum Einsatz kommt ohne Leistung und Abbrand zu reduzieren (gelbe Kurve), so zeigt sich eine deutlich geringere Erhöhung von  $k_{\text{eff}}$  unter Vernachlässigung der Reduzierung von Leistung und Abbrand. In diesem Fall ist die Erhöhung von  $k_{\text{eff}}$  im Wesentlichen durch die Verhärtung des Neutronenspektrums aufgrund des Steuerstabkreuzes und deren Einfluss auf das Nuklidinventar, wie z. B. des in diesem Fall leicht erhöhten Plutoniumaufbaus, bedingt.



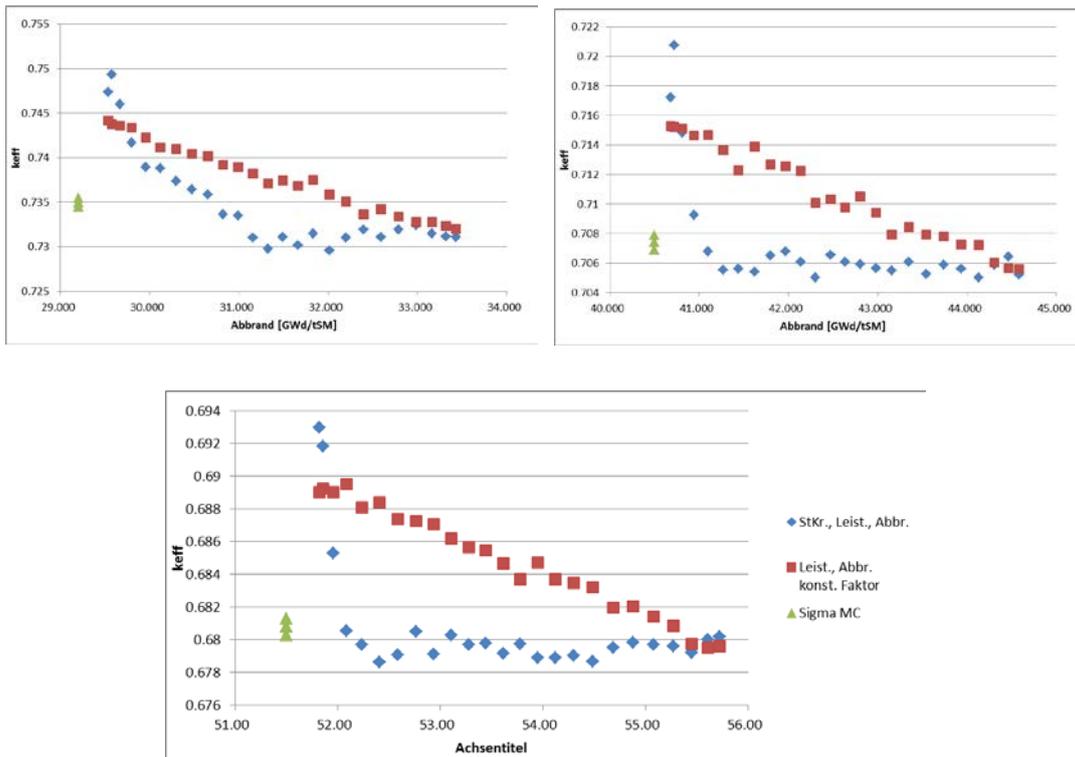
**Abb. 7.21**  $k_{eff}$  Verlauf für ein Zyklus normalen Abbrand und ein Zyklus unter Einsatz eines Steuerstabkreuzes (blau). Zum Vergleich in Rot Rechnungen mit gleichmäßig verringerter Leistung und Abbrand



**Abb. 7.22**  $k_{eff}$  Verlauf für 1 Zyklus normalen Abbrand und 1 Zyklus unter Einsatz eines Steuerstabkreuzes, mit (blau) und ohne (gelb) Verringerung von Leistung und Abbrand

### 7.5.5 2 bis 4 Zyklen normaler Abbrand und 1 Zyklus unter dem Einsatz eines Steuerstabkreuzes

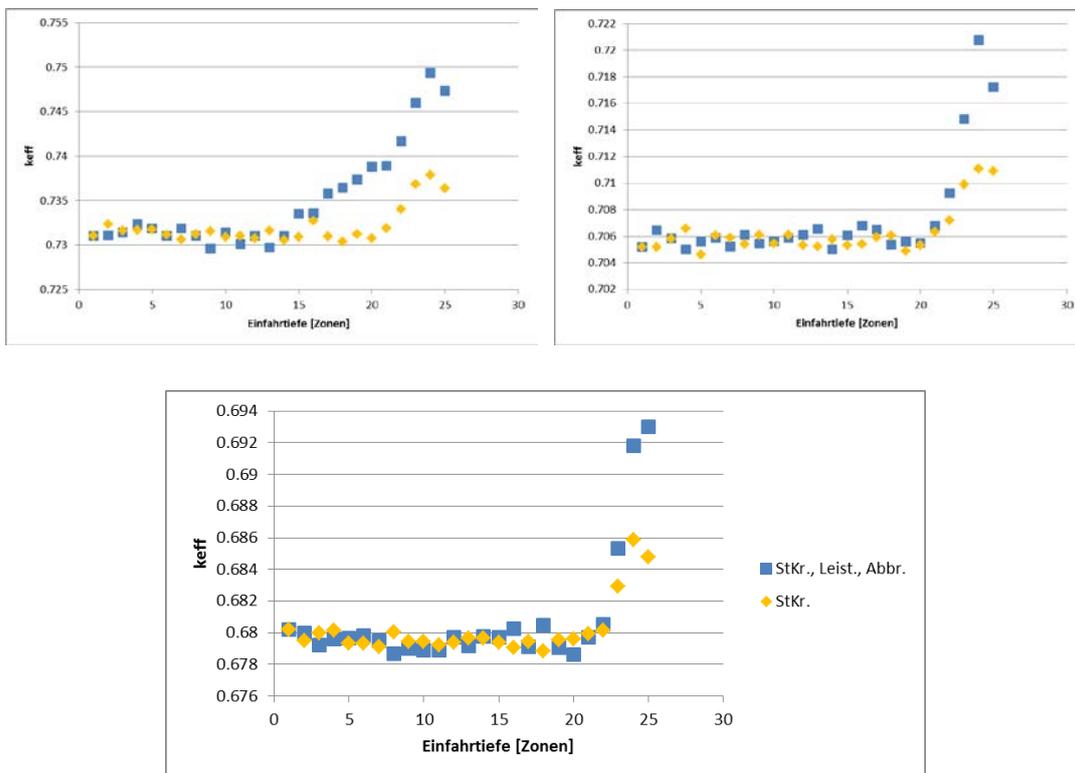
Die drei weiteren untersuchten Fälle, in denen zwei bis vier Zyklen normal abgebrannt werden und erst im jeweils letzten darauffolgenden Zyklus das Steuerstabkreuz zum Einsatz kommt, zeigen untereinander ein sehr ähnliches Verhalten. Die Verläufe von  $k_{eff}$  sind in Abb. 7.23. in Blau gezeigt.



**Abb. 7.23**  $k_{\text{eff}}$  Verlauf für 2, 3, und 4 Zyklen normalen Abbrand und 1 Zyklus unter Einsatz eines Steuerstabkreuzes (blau). Zum Vergleich in Rot die jeweiligen Rechnungen mit gleichmäßig verringerter Leistung und Abbrand

Beim Einfahren des Steuerstabkreuzes von unten im letzten Zyklus ergibt sich bei zwei vorhergehenden normalen Abbrandzyklen bis Axialzone 14, bei drei normalen Abbrandzyklen bis Axialzone 21 und bei vier normalen Abbrandzyklen bis Axialzone 22 keine Veränderung des Multiplikationsfaktors, obwohl sich der über das Brennelement gemittelte Abbrand zwischen 2 und 4 GWd/tSM verringert. Ist das Steuerstabkreuz weit genug eingefahren, steigt  $k_{\text{eff}}$  stark an (für zwei normale Zyklen etwas flacher) und übersteigt für die letzten Zonen den Fall einer axial gleichmäßigen Leistungs- und Abbrandverringering (rote Kurven). Bei den beiden letzten Fällen erfolgt diese Änderung erst für die obersten vier, bzw. drei Zonen. Erklärbar ist dies durch die Tatsache, dass zum einen bereits aufgrund der hier betrachteten hohen Abbrände das Reaktivitätsmaximum des Brennelements in den oberen Zonen liegt, zum anderen durch den verringerten Abbrand aufgrund des Steuerstabkreuzes die Reaktivität in den unteren Zonen nicht ausreichend erhöht wird, um die Reaktivitätsverteilung im Brennelement wesentlich zu ändern. Dementsprechend ist erst dann ein Effekt zu beobachten, wenn das Steuerstabkreuz den Bereich des Reaktivitätsmaximums erreicht und dort durch Verringerung des Abbrands die Brennstoffreaktivität zusätzlich erhöht.

Diese Ergebnisse sind konsistent mit der Unsicherheitsanalyse aus Kapitel 7.4.6. Diese hat gezeigt, dass die Sensitivität von  $k_{\text{eff}}$  auf Abbrandparameter für steigenden Abbrand immer weiter zu den oberen drei Zonen wandert. So ist  $k_{\text{eff}}$  im Fall von vier und fünf Zyklen nur noch auf Veränderungen der obersten drei Zonen sensitiv. Die Änderungen im Abbrand durch das Steuerstabkreuz in den unteren Axialzonen haben daher keinen Einfluss auf das finale  $k_{\text{eff}}$  im generischen Transportbehälter. Die Verringerung der über das Brennelement gemittelten Leistung und des über des Brennelement gemittelten Abbrands, ohne dass sich  $k_{\text{eff}}$  ändert, liegt für diese drei Fälle im Bereich von 7 %.



**Abb. 7.24**  $k_{\text{eff}}$  Verlauf für zwei bis vier Zyklen normalen Abbrand und 1 Zyklus unter Einsatz eines Steuerstabkreuzes, mit (blau) und ohne (gelb) Verringerung von Leistung und Abbrand

In Abb. 7.24 werden diese Rechnungen (blaue Kurven) verglichen mit den Fällen, dass Leistung und Abbrand nicht verändert werden und nur der direkte Einfluss der Steuerstabkreuze betrachtet wird (gelbe Kurven). Für den Fall von zwei normalen Zyklen fängt der Anstieg von  $k_{\text{eff}}$  ohne Verringerung von Leistung und Abbrand etwas später an als mit, die Kurve liegt damit in der zweiten Hälfte niedriger. Für die anderen beiden Fälle liegen beide Kurven bis auf die letzten paar Zonen übereinander. Für alle drei Fälle fällt die resultierende Erhöhung von  $k_{\text{eff}}$  in etwa halb so groß aus, wie bei gleich-

zeitiger Verringerung von Leistung und Abbrand. Somit ist auch in diesem Fall, wie zuvor, nur ein Effekt in den obersten Axialzonen zu beobachten und der spektrale Einfluss des Steuerstabkreuzes fällt auch hier im Vergleich zur Reduktion der Leistung und Abbrand deutlich geringer aus (vergl. Kap. 7.5.4).

### **7.5.6 Schlussfolgerungen**

Aus den Analysen lassen sich folgende Schlussfolgerungen ableiten: Bei Abbränden unterhalb des Gadolinium-Peaks und knapp darüber liefern die Rechnungen unter Vernachlässigung des Einsatzes eines Steuerstabkreuzes höhere  $k_{\text{eff}}$ -Werte als mit Berücksichtigung des Kreuzes. Somit ist deren Berücksichtigung bei niedrigen Abbränden für eine konservative Berechnung nicht unbedingt erforderlich.

Ab einem gewissen Abbrand, der zwischen 15 und 23 GWd/tSM liegt und mit dem Design der Brennelemente variieren kann, muss die Verwendung von Steuerstabkreuzen unter Umständen betrachtet werden, um weiterhin konservative Ergebnisse zu gewährleisten. Dies wird allerdings vom konkret untersuchten Brennelementtyp abhängen.

Weitere Untersuchungen sind notwendig, um genau zu ermitteln, ab welchem Abbrand die Betrachtung des Einflusses eines Steuerstabkreuzes notwendig ist. Auch ist zu ermitteln, ob die hier getroffenen Analysen und Schlussfolgerungen generell auf reale Brennelemente, andere Brennelement-Designs und reale Steuerstabkreuzfahrweisen übertragbar und anwendbar sind. Darüber hinaus ist zu prüfen, ob die hier verwendeten Annahmen und Näherungen hinreichend genau sind, oder ob eventuell Modifikationen notwendig sind.



## 8 Zusammenfassung

Zur Beurteilung der Machbarkeit einer Validierung von Rechencodes zur Anwendung von Abbrandkredit auf Siedewasserreaktorbrennelemente wurden im Rahmen dieser Arbeit verschiedene Arbeitsschritte durchgeführt. Als erster Schritt wurde eine Analyse der frei verfügbaren Nachbestrahlungsanalysedaten für Siedewasserreaktor-Brennelemente durchgeführt. Es hat sich gezeigt, dass die Anzahl der für eine Validierung geeigneten Experimente und Proben deutlich eingeschränkter als für Druckwasserreaktor-Brennelemente ist. Aus den verfügbaren Daten wurden die Proben von Fukushima-Daini-2 und Forsmark-3 für weitere Untersuchungen ausgewählt. Die beiden Probensätze wurden zunächst anhand der Nominalwerte nachgerechnet. Für die Nachrechnung wurde dabei das Abbrandprogramm HELIOS verwendet, da dieses auch bei den anschließenden Analysen eingesetzt werden sollte. Die Probennachrechnungen ergaben für die Daten aus Fukushima-Daini-2 eine mit entsprechenden Nachrechnungen für DWR-Proben vergleichbare Übereinstimmung der berechneten Nuklidinventare mit den experimentell bestimmten Werten. Für Forsmark-3 wurden teilweise größere Abweichungen beobachtet. Diese Abweichungen konnten auf möglicherweise nicht hinreichend genau bestimmte Werte für den Probenabbrand und Unsicherheiten im Verlauf der Moderatorichte zurückgeführt werden.

Um die Untersuchung der Probennachrechnungen zu vertiefen wurden zusätzlich Unsicherheitsanalysen bezüglich der technischen Eingangsparameter mit dem GRS-eigenen Programm zur Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalyse SUnCISTT durchgeführt, das dazu zuvor um die Einbindung von HELIOS erweitert wurde. Die für die Probennachrechnungen verwendeten Verteilungen der unsicheren Eingangsgrößen wurden aus zwei in der Literatur verfügbaren Datensätzen bestimmt. Variiert wurden dabei unter anderem der Zielabbrand, die Anfangsanreicherung, der Dampfblasengehalt, die Brennstabgeometrie, Brennstoffdichte und Brennstofftemperatur. Aus diesen Rechnungen lässt sich zum einen ablesen, welche Nuklide auf welche Eingangsgrößen sensitiv sind. Dabei zeigt sich, dass in den untersuchten Fällen die Kernzahldichten der Uranisotope und vieler Spaltprodukte in erster Linie auf Änderungen im Zielabbrand sensitiv sind. Die meisten höheren Aktinoide und einige Spaltprodukte wie z. B.  $^{143}\text{Nd}$  und  $^{149}\text{Sm}$  reagieren auch auf neutronenspektrumsverändernde Größen. Die Wichtigkeit der verschiedenen Eingangsparameter hängt dabei stark von der Definition bzw. der Breite der Eingangsverteilungen ab. Es ist daher notwendig deren Bestimmung mit

großer Sorgfalt durchzuführen. Zum anderen lassen sich mit Hilfe der Unsicherheitsanalysen die aus den Abbrandrechnungen herrührenden Unsicherheiten quantifizieren. Dies ist für die nachgerechneten Probensätze durchgeführt worden. Auch hier zeigt sich, dass für die Fukushima-Daini-2-Proben die Rechenergebnisse besser mit dem Experiment übereinstimmen als für die Forsmark-3-Proben. Für Fukushima-Daini-2 liegen die meisten Abweichungen zwischen gemessenen und berechneten Nuklidkonzentrationen innerhalb von ein oder zwei Standardabweichungen. Größere Abweichungen treten nur für  $^{242,243}\text{Cm}$ ,  $^{106}\text{Ru}$  und  $^{148}\text{Sm}$  auf. Für Forsmark-3 sind häufiger Abweichungen im Bereich von zwei Standardabweichungen zu beobachten.  $^{241}\text{Am}$  und  $^{143}\text{Nd}$  liegen allerdings deutlich außerhalb dieses Intervalls. In jedem Fall stellen die errechneten Unsicherheiten einen wesentlichen Beitrag zur gesamten Unsicherheit bei der Kritikalitätsanalyse dar und sollten bei einer Validierung berücksichtigt werden.

Im nächsten Schritt wurde der Einfluss verschiedener SWR-Betriebsparameter wie Leistung, Dampfblasengehalt und Abbrand auf die Reaktivität des bestrahlten Brennstoffs und damit auf eine nachfolgende Kritikalitätsrechnung untersucht. Hierzu wurde das GRS-Programm zur Unsicherheitsanalyse SUnCISTT erweitert um die Möglichkeit einer kombinierten Rechenkette aus 2D-Abbrand- und 3D-Kritikalitätsrechnung. Dabei wurden automatisiert Abbrandrechnungen eines typischen SWR-Brennelements in axialen Scheiben mit dem 2D-Abbrandcode HELIOS 1.12 durchgeführt und die berechneten Nuklidinventare in ein Transportbehältermodell oder ein Nasslagermodell in 3D-Geometrie für den Monte Carlo-Code KENO-Va aus SCALE 6.1.2 übertragen. Es wurde ein vereinfachtes Bestrahlungsmodell entwickelt, das in dieser Analyse die axialen Profile von Leistung, Abbrand und Moderatorichte des Brennelements an 24 axialen Stellen verknüpft. In diesem Rahmen wurde auch der Einsatz eines Steuerstabkreuzes untersucht. Anhand der Ergebnisse der mit diesem Modell durchgeführten Unsicherheitsanalysen konnte gezeigt werden, dass der Effekt des Abbrands gegenüber dem Einfluss einer Spektrumsänderung dominieren. Für die Reaktivität eines hochabgebrannten Brennelements spielt dabei nur der Abbrand der obersten Axialzonen eine signifikante Rolle, für die Reaktivität eines Brennelements mit einem Abbrand im Bereich des Gadoliniumpeaks ist in erster Linie das untere Drittel des Brennelements entscheidend. Bezüglich des Bestrahlungsmodells hat sich gezeigt, dass für eine tiefere quantitative Analyse die Integration einer tatsächlichen gekoppelten Rechnung für Neutronik und Thermohydraulik in SUnCISTT notwendig ist. Eine Alternative hierzu wäre ein direktes Sampling auf realen Axialprofilen, die Verfügbarkeit solcher Profile vorausgesetzt.

Darüber hinaus wurden Studien unter Verwendung eines vereinfachten Modells zum Steuerstabkreuzeinsatz durchgeführt. Dabei hat sich gezeigt, dass signifikante Effekte auf den Multiplikationsfaktor vor allem für relativ extreme Einsatzszenarien zu beobachten sind. Daher wurde hier der Einsatz eines Steuerstabkreuzes für einen vollen Zyklus mit unterschiedlichen Einfahrtiefen untersucht. Dabei hat sich gezeigt, dass bei Abbränden unterhalb des Gadolinium-Peaks der Einsatz eines Steuerstabkreuzes geringere  $k_{\text{eff}}$ -Werte liefert als die entsprechende Rechnung ohne Steuerstabkreuzeinsatz. Bei Überschreiten des Gadoliniumpeaks, kann der durchgehende Einsatz eines Steuerstabkreuzes hingegen zu höheren Multiplikationsfaktoren führen. Bei einem Einsatz des Steuerstabkreuzes im letzten von mehreren Zyklen muss das Steuerstabkreuz fast vollständig eingefahren sein um einen wesentlichen Effekt zu erzielen. Dies führt dann allerdings auch zu einer Erhöhung des Multiplikationsfaktors. Die hier betrachteten Szenarien beruhen auf konservativen Annahmen, die auch aufgrund fehlender realer Steuerstabkreuzeinsatz-Historien gemacht wurden. Weiterführende Untersuchungen müssen zeigen, inwiefern reale Steuerstabkreuzfahrweisen eine Berücksichtigung in der Kritikalitätsanalyse notwendig machen.

Die im vorliegenden Bericht dargestellten Untersuchungen können als Ausgangspunkt für weitergehende Analysen dienen, die erforderlich sind um abschließende Aussagen über eine Anwendbarkeit von Abbrandkredit bei SWR-Brennelementen zu tätigen. Die im Vorhaben vorgenommenen Erweiterungen von SUnCISTT stellen die notwendigen Werkzeuge bereit, um solche Analysen vorzunehmen. Detailliertere Schlussfolgerungen sind in den einzelnen Hauptkapiteln des vorliegenden Berichts dargestellt.



## Quellenverzeichnis

- /BAR 71/ P. Barbero et.al. "Post Irradiation Analysis of The Gundremmingen BWR Spent Fuel.", EUR6301, 1971.
- /BEH 12/ M. Behler, L. Gallner, V. Hannstein, R. Kilger, M. Kirsch, M. Klein, B. Krzykacz-Hausmann, E.F. Moser, A. Pautz, Y. Perin, F. Puente-Espel, A. Seubert, A. Sureda, K. Velkov, M. Wagner, W. Zwermann, „Weiterentwicklung und Validierung von Rechenmethoden zu Hochabbrand, Aktivierung und Abschirmung“, Abschlussbericht zum Vorhaben RS 1189, GRS-A-3680, Garching, Juli 2012.
- /BEH 12/ Behler, M., Gallner, L., Hannstein, V., Kilger, R., Kirsch, M., Klein, M., Krzykacz-Hausmann, B., Moser, F.-E., Pautz, A., Perin, Y., Puente-Espel, F., Seubert, A., Sureda, A., Velkov, K., Wagner, M., Zwermann, W.: Weiterentwicklung und Validierung von Rechenmethoden zu Hochabbrand, Aktivierung und Abschirmung. Abschlussbericht. GRS-A-3680, 285 pp., Juli 2012.
- /BEH 14/ M. Behler, M. Bock, M. Stuke, M. Wagner, "Stochastische Methoden zur Quantifizierung von Sensitivitäten und Unsicherheiten in Kritikalitätsanalysen", GRS - 319, ISBN 978-3-939355-98-4, Juni 2014.
- /CAS 91/ J. J. Casal, R. J. J. Stamm'ler, E. A. Villarino, and A. A. Ferri, "HELIOS: Geometric Capabilities of a New Fuel-assembly Program", Proc. Int. Topl. Mtg. Advances in Mathematics, Computations, and Reactor Physics, Pittsburgh, Penn., Vol. II, Sect. 10.2.1, 1-13, April 28 – May 2 (1991).
- /DIN 13/ DIN 25478:2013-08 „Einsatz von Berechnungssystemen beim Nachweis der Kritikalitätssicherheit,“ Beuth Verlag, Berlin, 20.08.2013.
- /GUE 91/ R. J. Guenther et. al. "Characterization of LWR Spent Fuel MCC-Approved Testing Material ATM-105." PNL-5109-105, 1991.

- /HAN 15/ V. Hannstein, R. Kilger: "Rechenbenchmark zur Abbrandberechnung von Druckwasser- und Siedewasser-Brennelementen", GRS-386, technischer Bericht im Anhang.
- /HER 98/ O. W. Hermann, M. D. DeHart, B. D. Murphy, "Evaluation of Measured LWR Spent Fuel Composition Data for Use in Code Validation – End-User Manual", ORNL/M-6121, Oak Ridge TN, USA, February 1998.
- /HEL 01/ S. Helmersen: "Advances in BWR fuel development", Nuclear Europe Worldscan 3-4 (2001) 24-25.
- /HES 86/ Hesse U., Denk W., Deitenbeck H., „OREST – eine direkte Kopplung von HAMMER und ORIGEN zur Abbrandsimulation von LWR-Brennstoffen“, GRS-63, November 1986.
- /HUF 04/ J. Huffer, "BWR Axial Profile", CAL-DSU-NU-000005 REV 00A; Las Vegas, NV: Bechtel SAIC Company; ACC: DOC.20040927.0039, September 2004.
- /HUT 87/ Hutchings M.T., "High-Temperature Studies of UO<sub>2</sub> and ThO<sub>2</sub> Using Neutron Scattering Techniques, II J. Chem. Soc. Faraday Trans. II 83, 1083–1103 (1987).
- /IAE 03/ IAEA TECDOC-1378 "Practices and developments in spent fuel burnup credit applications – Proceedings of an Technical Committee meeting held in Madrid, 22–26 April 2002", Vienna, 2003.
- /JUT 09/ Jutier, L., Clergeau, M., Aguiar, L., Ortiz de Echevarria, I.: Investigation Of Burnup Credit Implementation For BWR Fuel. ANS NCSD 2009, NCSD: Richland, 9.-13. September, 2009.
- /JUT 13/ L. Jutier, S. Evo, G. Caplin, G. Grassi, "On the Assumption of the Maximum Void Fraction in Burnup Credit Implementation for BWR Fuel", Proceedings of ANS/NCSD 2013, 29. September – 3. Oktober, Wilmington (NC) USA, 2013.

- /JUT 13/ Jutier, L., Evo, S., Caplin, G., Grassi, G.: On The Assumption Of The Maximum Void Fraction In Burnup Credit Implementation For Bwr Fuel. ANS NCS D 2013, NCS D: Wilmington, NC, 29. September - 3. Oktober 2013.
- /KIL 08/ R. Kilger, U. Hesse, S. Langenbuch, „KENOREST Nach-rechnung der Nuklid-inventare von Nach-bestrahlungsproben aus dem ARIANE Programm“, Technischer Bericht, GRS-A-3426, Mai 2000.
- /KIL 11/ R. Kilger, F.-E. Moser, M. Wagner, B. Gmal, „Internationaler Wissensstand zu den 15 wichtigsten Spaltprodukten des Abbrandkredits“, GRS-A-3604, Garching, Juni 2011.
- /KIL 13/ R. Kilger, M. Bock, F. Rowold, V. Hannstein, M. Behler, E.-F. Moser, „Bereitstellung von Daten und Methoden zur Beurteilung der Sicherheit bei der nuklearen Ver- und Entsorgung sowie innovativer Kernbrennstoffkonzepte“, Abschlussbericht zum Vorhaben 3610R03350, GRS-A-3701, Garching, Juli 2013.
- /MAR 15/ Marshall, W.J., Ade, B.J., Bowman, S.M., Gauld, I.C., Ilas, G., Mertzyurek, U., Radulescu, G.: Technical Basis for Peak Reactivity Burnup Credit for BWR Spent Nuclear Fuel in Storage and Transportation Systems. NUREG/CR-7194, ORNL/TM-2014/240, Oak Ridge National Laboratory (ORNL), April 2015.
- /MAR 16/ Marshall, W.J., Ade, B.J., Bowman, S.M., Martinez-Gonzalez, J.S.: Axial Moderator Density Distributions, Control Blade Usage, and Axial Burnup Distributions for Extended BWR Burnup Credit. NUREG/CR-7224, ORNL/TM-2015/544, 125 pp., Oak Ridge National Laboratory (ORNL), August 2016.
- /MER 10/ Mertzyurek U., Francis M. W., Gauld I. C.: SCALE 5 Analysis of BWR Spent Nuclear Fuel Isotopic Compositions for Safety Studies, ORNL/TM-2010/286, Dezember 2010.

- /MIC 14/ F. Michel-Sendis, I. Gauld, M. Bossant, N. Soppera: "A New OECD/NEA Database of nuclide compositions of spent nuclear fuel", Proceedings of the PHYSOR 2014 International Conference, Kyoto, Japan, October 2014, <https://www.oecd-nea.org/sfcompo/Ver.2/Eng/Fukushima-Daini-2/index.html>
- /MUE 13/ Mueller, D.E., Scaglione, J.M., Wagner, J.C., Bowman, S.M.: Computational Benchmark for Estimated Reactivity Margin from Fission Products and Minor Actinides in BWR Burnup Credit. NUREG/CR-7157, ORNL/TM-2012/96, 113 pp., Oak Ridge National Laboratory (ORNL), February 2013.
- /MUE 13a/ D. E. Mueller, S. M. Bowman, W. J. Marshall, J. M. Scaglione, "Review and Prioritization of Technical Issues Related to Burnup Credit for BWR Fuel", NUREG/CR-7158, ORNL/TM-2012/261, Februar 2013.
- /MUE 13b/ D. E. Mueller, J. M. Scaglione, J. C. Wagner, S. M. Bowman, "Computational Benchmark for Estimated Reactivity Margin from Fission Products and Minor Actinides in BWR Burnup Credit", NUREG/CR-7157, ORNL/TM-2012/96, Februar 2013.
- /MUR 98/ B. D. Murphy, "Prediction of the Isotopic Composition of UO<sub>2</sub> Fuel from a BWR Analysis of the DU1 Sample from the Dodewaard Reactor", ORNL/TM-13687, Lockheed Martin Energy Research Corporation, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tenn., Oktober 1998.
- /NAK 02/ Y. Nakahara, K. Suyama and T. Suzuki, "Technical Development on Burn-up Credit for Spent Fuels[English Translation]," JAERI-Tech 2000-071 (ORNL/TR-2001/01), Oak Ridge National Laboratory, Januar 2002.
- /NEA 11/ OECD/NEA Nuclear Science Committee (NSC) Working Party on Nuclear Criticality Safety (WPNCS) Expert Group on Assay Data of Spent Nuclear Fuel (EGADSNF), "Spent Nuclear Fuel Assay Data for Isotopic Validation State-of-the-art Report", NEA/NSC/WPNCS/DOC(2011)5, Paris, 2011.
- /NEA 14a/ Internetauftritt der OECD/NEA WPNCS Expert Group on Assay Data of Spent Nuclear Fuel (EGADSNF), zuletzt besucht am 29.09.2014. <https://www.oecd-nea.org/science/wpncs/ADSNF/>.

- /NEA 14b/ Internetauftritt des OECD/NEA WPNCIS International Criticality Safety Benchmark Evaluation Project (ICSBEP), zuletzt besucht am 25.09.2014.  
<https://www.oecd-nea.org/science/wpncis/icsbep/>.
- /NEA 12/ OECD/NEA SFCOMPO – Spent Fuel Isotopic Composition Database. Developed by Fuel Cycle Safety Evaluation Laboratory at the JAERI Department of Fuel Cycle Safety Research. Operated by the NEA Nuclear Science Division under the supervision of the Working Party on Nuclear Criticality Safety. <http://www.oecd-nea.org/sfcompo/>.
- /NEU 98/ J. C. Neuber, “Burnup Credit Applications to PWR and BWR Fuel Assembly Wet Storage Systems“, Proceedings of the "1998 International Conference on the Physics of Nuclear Science and Technology“, Long Island, New York, October 5-8 (1998).
- /OEC 14/ OECD/NEA, WPNCIS, EGADSNF: Guide to the Evaluation of Spent Nuclear Fuel Assay Data, draft, (2014).
- /PRI 03/ Primm III. R.T., ARIANE International Programme Final Report, Fissile Materials Disposition Program, ORNL/SUB/97-XSV750-1, 2003.
- /RAD 03/ Radulescu H.R., “SAS2H/Radiochemical Assay Comparisons for Limerick BWR Spent Fuel Samples“, Trans. Am. Nuc. Soc. (2003).
- /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.
- /SMI 13/ H. J. Smith, I. C. Gauld, U. Mertyurek, “Analysis of Experimental Data for High Burnup BWR Spent Fuel Isotopic Validation – SVEA-96 and GE14 Assembly Designs“, ORNL/TM-2013/18, UT-Battelle, LLC, Oak Ridge National Laboratory, März 2013.
- /SOM 17/ F. Sommer, „Vergleichsrechnungen und Parameterstudien mit HELIOS und TRITON“, Technischer Bericht, Mai 2017.

- /SOM 17b/ F. Sommer, V. Hannstein „Ergebnisse des OECD/NEA WPNCs EGUNF Benchmark Phase II und erweiterte Untersuchungen“, Technischer Bericht, Mai 2017.
- /TAR 13/ M. Tardy, S. Kistos, L. Picard, L. Milet, M. Lein, G. Grassi, “Gadolinium Credit Application for Transport and Storage Casks loaded with BWR UO2 Spent Fuel Assemblies”, Proceedings PATRAM 2013, San Francisco, CA, USA, August 18-23, 2013.
- /TAR 13/ Tardy, M., Kitsos, S., Picard, L., Milet, L., Lein, M., Grassi, G.: Gadolinium Credit Application for Transport and Storage Casks loaded with BWR UO2 Spent Fuel Assemblies. PATRAM 2013, PATRAM: San Fransisco, 18.-23. August 2013.
- /TÖR 11/ Töre C., Ortego P., “SFCOMPO PROJECT EVALUATION OF FORSMARK F3F6 EXPERIMENTS – A contribution to Expert Group on Assay Data for Spent Nuclear Fuel”, Technical Report, SEA, Madrid, Spanien, September 2011.
- /TÖR 11/ Töre, C.: Evaluation of Forsmark F3F6 Experiments. A contribution to Expert Group on Assay Data for Spent Nuclear Fuel. Draft Version, SFCOMPO PROJECT, 62 pp., September 2011.
- /VER 05/ VerWerft M., Sannen L., “GERONIMO & TOPGUN: Research on Advanced MOX Fuels for BWR's”, SCK•CEN Scientific Report, Mol, Belgium, 2005.
- /WAG 03/ Wagner, J.C., DeHart, M.D., Parks, C.V.: Recommendations for Addressing Axial Burnup in the PWR Burnup Credit Analyses. NUREG/CR-6801, ORNL/TM-2001/273, DOI 10.2172/885754, Oak Ridge National Laboratory (ORNL), März 2003.

- /WES 16/ Westinghouse:  
<http://www.westinghousenuclear.com/About/News/Features/View/ArticleId/21/SVEA-96-Optima-3> (stand 23.03.2016)/YAM 09/ Yamamoto T., "Compilation of Measurement and Analysis Results of Isotopic Inventories of Spent BWR Fuels", Japan Nuclear Energy Safety Organization JNES, Report to EGADSNF, Tokyo, Japan, February 2009.
- /ZWI 08/ Zwicky H.-U., "Isotopic data of sample F3F6 from a rod irradiated in the Swedish Boiling Water Reactor Forsmark-3", Zwicky Consulting GmbH, Remigen (Switzerland), Report ZC-08/001, September 25, 2008.



## Abbildungsverzeichnis

Abb. 2.1	Schematische Darstellung des untersuchten Brennelements /JUT 13/ .....	8
Abb. 2.2	Nuklidichte der Gd-Isotope als Funktion von Abbrand und Blasengehalt im Moderator /JUT 13/ .....	8
Abb. 2.3	Multiplikationsfaktor $k_{\text{eff}}$ als Funktion des Abbrandes mit und ohne Gadolinium und verschiedenem Blasengehalt des Moderators /JUT 13/ .....	9
Abb. 2.4	Beispiele des Endeffektes auf $k_{\text{eff}}$ bei Vernachlässigung axialer Abbrandverteilungen in Abbrandrechnungen mit DWR-Brennstoffen /WAG 03/ .....	10
Abb. 2.5	Radialschnitt durch das in /MUE 13a/ betrachtete beladene Behältermodell GBC-86 /MUE 13a/ .....	11
Abb. 3.1	Benutzeroberfläche der SFCOMPO-2.0 am Beispiel des Brennelements CZ346 aus dem Kernkraftwerk Cooper-1 .....	17
Abb. 3.2	Abbrandgeschichte des Brennelements CZ346 aus dem Kernkraftwerk Cooper-1 in Darstellung der SFCOMPO-2.0 .....	18
Abb. 3.3	Axiale Positionen der Proben des Brennstabs ADD2966 aus dem Brennelement CZ346 des Kernkraftwerks Cooper-1 in Darstellung der SFCOMPO-2.0 .....	18
Abb. 3.4	Tabellarische Zusammenfassung der Messdaten der Probe K aus dem Brennstab ADD2966 des Brennelements CZ346 aus dem Kernkraftwerk Cooper-1 in Darstellung der SFCOMPO-2.0 .....	19
Abb. 3.5	Übersicht über die gemessenen Konzentrationen an $^{235}\text{U}$ in Abhängigkeit vom Probenabbrand für alle radiochemischen SWR-Analyseproben.....	22
Abb. 3.6	Übersicht über die gemessenen Konzentrationen an $^{236}\text{U}$ in Abhängigkeit vom Probenabbrand für alle radiochemischen SWR-Analyseproben.....	23

Abb. 3.7	Übersicht über die gemessenen Konzentrationen an $^{238}\text{U}$ in Abhängigkeit vom Probenabbrand für alle radiochemischen SWR- Analyseproben.....	23
Abb. 3.8	Übersicht über die gemessenen Konzentrationen an $^{238}\text{Pu}$ in Abhängigkeit vom Probenabbrand für alle radiochemischen SWR- Analyseproben.....	24
Abb. 3.9	Übersicht über die gemessenen Konzentrationen an $^{239}\text{Pu}$ in Abhängigkeit vom Probenabbrand für alle radiochemischen SWR- Analyseproben.....	24
Abb. 3.10	Übersicht über die gemessenen Konzentrationen an $^{240}\text{Pu}$ in Abhängigkeit vom Probenabbrand für alle radiochemischen SWR- Analyseproben.....	25
Abb. 3.11	Übersicht über die gemessenen Konzentrationen an $^{241}\text{Pu}$ in Abhängigkeit vom Probenabbrand für alle radiochemischen SWR- Analyseproben.....	25
Abb. 3.12	Übersicht über die gemessenen Konzentrationen an $^{242}\text{Pu}$ in Abhängigkeit vom Probenabbrand für alle radiochemischen SWR- Analyseproben.....	26
Abb. 3.13	Übersicht über die gemessenen Konzentrationen an $^{146}\text{Nd}$ in Abhängigkeit vom Probenabbrand für alle radiochemischen SWR- Analyseproben.....	27
Abb. 3.14	Übersicht über die gemessenen Konzentrationen an $^{148}\text{Nd}$ in Abhängigkeit vom Probenabbrand für alle radiochemischen SWR- Analyseproben.....	27
Abb. 3.15	Übersicht über die gemessenen Konzentrationen an $^{242}\text{Cm}$ in Abhängigkeit vom Probenabbrand für alle radiochemischen SWR- Analyseproben.....	28
Abb. 3.16	Übersicht über die gemessenen Konzentrationen an $^{244}\text{Cm}$ in Abhängigkeit vom Probenabbrand für alle radiochemischen SWR- Analyseproben.....	29
Abb. 3.17	Übersicht über die gemessenen Konzentrationen an $^{137}\text{Cs}$ in Abhängigkeit vom Probenabbrand für alle radiochemischen SWR- Analyseproben.....	30

Abb. 3.18	Zeitliche Entwicklung der lokalen Leistung und des lokalen Dampfblasengehalts an der Position der Probe „GdB“ aus dem Kernkraftwerk Fukushima Daini-1 .....	32
Abb. 4.1	Schematische Darstellung der HELIOS Rechenkette .....	39
Abb. 5.1	Schematischer Ablauf und Datenfluss der Unsicherheitsanalysen für Kritikalitätsrechnungen mit unsicherheitsbehafteten Nuklidinventaren .....	44
Abb. 6.1	Geometrie des Brennelements 2F2DN23 mit den zwei untersuchten Brennstäben SF98 (1) und SF99 (G) in orange /MIC 14/ .....	53
Abb. 6.2	Positionen der Probenentnahmen für Experiment SF98 und SF99 /MER 10/ .....	54
Abb. 6.3	Geometrie des Brennelements 2F2DN23 in HELIOS-Geometrie .....	55
Abb. 6.4	Leistungs- und Abbrandhistorien für alle Fälle .....	60
Abb. 6.5	Vergleich von berechneten und experimentellen Nuklidkonzentrationen für Stab SF-98.....	61
Abb. 6.6	Vergleich von berechneten und experimentellen Nuklidkonzentrationen für Stab SF-99.....	62
Abb. 6.7	Geometrie des Brennelements 14595 mit dem untersuchten Brennstab auf Position F6 in orange /TÖR 11/.....	64
Abb. 6.8	Position F6 des untersuchten Brennstabes (orange) /TÖR 11/ .....	64
Abb. 6.9	Einfache Geometrie des Forsmark-Brennelements 14595 in HELIOS .....	66
Abb. 6.10	komplexe Geometrie des Forsmark-Brennelements 14595 in HELIOS.....	68
Abb. 6.11	Detailliertere Abbrand-, Leistungs-, Temperatur-, und Void-Historie .....	71
Abb. 6.12	Vergleich von berechneten und experimentellen Nuklidkonzentrationen (C/E-1) für Experiment F6.....	72
Abb. 6.13	Vergleich von berechneten und experimentellen Nuklidkonzentrationen (Dimitrovgrad) für verschiedene Änderungen am Modell .....	73

Abb. 6.14	Vergleich von berechneten und experimentellen Nuklidkonzentrationen (Studsvik06) für verschiedene Änderungen am Modell .....	74
Abb. 6.15	Korrelation der Nukliddichten mit variierten Parametern mit Forsmark- Unsicherheiten.....	79
Abb. 6.16	Mittelwerte von C/E-1 mit kombinierten $1\sigma$ Unsicherheiten aufgrund des Samplings mit Forsmark-Unsicherheiten und den experimentellen Unsicherheiten der chemischen Analyse für die Experiment SF98-03, 05, und 07.....	80
Abb. 6.17	Korrelation der Nukliddichten mit variierten Parametern mit OECD/NEA Unsicherheiten .....	82
Abb. 6.18	Korrelation der Nukliddichten mit variierten Parametern nach Forsmark-Unsicherheiten.....	84
Abb. 6.19	Mittelwert von C/E-1 im Vergleich zur Unsicherheit von C/E-1 aufgrund des Samplings mit Forsmark Unsicherheiten für die Forsmark Probe .....	85
Abb. 6.20	Relative Unsicherheiten der experimentellen Messungen der Forsmark-Probe.....	86
Abb. 6.21	Korrelation der Nukliddichten der Forsmark-Probe mit den variierten Parametern nach OECD/NEA-Unsicherheiten .....	87
Abb. 6.22	Mittelwert von C/E-1 im Vergleich zur Unsicherheit von C/E-1 aufgrund des Samplings mit Forsmark-Unsicherheiten für die Forsmark-Probe.....	89
Abb. 7.1	Gewürfelte axiale Profile der Leistung, des Abbrands und der Moderatordichte zum Ende des ersten Zyklus .....	96
Abb. 7.2	Gewürfelte axiale Profile der Leistung, des Abbrands und der Moderatordichte zum Ende des vierten Zyklus .....	96
Abb. 7.3	Beispielhafte Abbildung des SVEA-96 Optima-2 Brennelements /WES 16/ zur Illustration der komplexen Geometrie von SWR-BE.....	97
Abb. 7.4	Belegungsplan des betrachteten generischen Brennelements für eine vollbesetzte Axialzone .....	99
Abb. 7.5	HELIOS-Modell des betrachteten generischen SWR-Brennelements ohne Steuerstabkreuz.....	100

Abb. 7.6	HELIOS-Modell des betrachteten generischen SWR-Brennelements mit Steuerstabkreuz.....	101
Abb. 7.7	HELIOS-Strukturelemente für UO <sub>2</sub> (links) und Gadolinium-haltige (rechts) Brennstäbe .....	101
Abb. 7.8	Geometrisches Modell des generischen Transportbehälters.....	105
Abb. 7.9	Geometrie des generischen Transportbehälters .....	106
Abb. 7.10	Verlauf der Multiplikationsfaktoren mit dem Gesamtabbrand des Brennelements im generischen Transportbehälter und der generischen Lageranordnung .....	108
Abb. 7.11	Korrelation von EALF, $\lambda$ , $\nu$ , und $k_{\text{eff}}$ mit der zonenweise variierten Leistung, Abbrand und Moderatorichte nach jeweils 1, 2, 3, 4 und 5 Zyklen Abbrand .....	110
Abb. 7.12	Axiales Profil der Spaltdichte zweier beliebig ausgewählter Samples nach 5 Zyklen .....	111
Abb. 7.13	Korrelation von $k_{\text{eff}}$ mit dem konsistenten Modell nach fünf Zyklen Abbrand.....	113
Abb. 7.14	Korrelation von $k_{\text{eff}}$ mit dem konsistenten Modell in Kombination mit geometrischen Variationen aus Ref. /OEC 14/ nach fünf Zyklen.....	115
Abb. 7.15	Leistung Abbrand und Dampfblasengehalt für ein bis zur Axialzone15 eingefahrenes Steuerkreuz (grün) und die beiden Grenzfälle voll eingefahrenes Steuerkreuz (rot) und voll ausgefahrenes Steuerkreuz (blau) .....	120
Abb. 7.16	$k_{\text{eff}}$ Verlauf für einen Zyklus unter Einsatz eines Steuerstabkreuzes (blau). Zum Vergleich in Rot Rechnungen mit gleichmäßig verringerter Leistung und Abbrand.....	121
Abb. 7.17	Spaltratenverteilung nach einem Zyklus unter Einsatz eines Steuerstabkreuzes und Verringerung von Leistung und Abbrand bei Einfahrtiefen der Steuerstabkreuze von 0, 10, 17, 18, 19, und 24 Zonen .....	122
Abb. 7.18	$k_{\text{eff}}$ Verlauf für einen Zyklus unter Einsatz eines Steuerstabkreuzes, mit (blau) und ohne (gelb) Verringerung von Leistung und Abbrand.....	122

Abb. 7.19	$k_{\text{eff}}$ Verlauf für 1 Zyklus mit 30 % mehr Leistung und Abbrand unter Einsatz eines Steuerstabkreuzes (blau). Zum Vergleich in Rot Rechnungen mit gleichmäßig verringerter Leistung und Abbrand.....	124
Abb. 7.20	$k_{\text{eff}}$ Verlauf für einen Zyklus mit 30 % mehr Leistung und Abbrand unter Einsatz eines Steuerstabkreuzes, mit (blau) und ohne (gelb) Verringerung von Leistung und Abbrand.....	124
Abb. 7.21	$k_{\text{eff}}$ Verlauf für ein Zyklus normalen Abbrand und ein Zyklus unter Einsatz eines Steuerstabkreuzes (blau). Zum Vergleich in Rot Rechnungen mit gleichmäßig verringerter Leistung und Abbrand.....	126
Abb. 7.22	$k_{\text{eff}}$ Verlauf für 1 Zyklus normalen Abbrand und 1 Zyklus unter Einsatz eines Steuerstabkreuzes, mit (blau) und ohne (gelb) Verringerung von Leistung und Abbrand.....	126
Abb. 7.23	$k_{\text{eff}}$ Verlauf für 2, 3, und 4 Zyklen normalen Abbrand und 1 Zyklus unter Einsatz eines Steuerstabkreuzes (blau). Zum Vergleich in Rot die jeweiligen Rechnungen mit gleichmäßig verringerter Leistung und Abbrand.....	127
Abb. 7.24	$k_{\text{eff}}$ Verlauf für zwei bis vier Zyklen normalen Abbrand und 1 Zyklus unter Einsatz eines Steuerstabkreuzes, mit (blau) und ohne (gelb) Verringerung von Leistung und Abbrand.....	128

## Tabellenverzeichnis

Tab. 2.1	Verwendete Nuklide in der Abbrandkredit-Rechenkette nach /MUE 13a/.....	11
Tab. 6.1	Anfangsanreicherungen aller Brennstäbe .....	54
Tab. 6.2	Verwendete geometrische Größen .....	56
Tab. 6.3	Zusätzlich verwendete Größen .....	57
Tab. 6.4	Anfangsanreicherungen aller Brennstäbe .....	58
Tab. 6.5	Korrekturfaktoren für Leistung und Abbrand .....	59
Tab. 6.6	Abklingzeiten für Samarium .....	61
Tab. 6.7	Anfangsanreicherungen der Brennstäbe in dem betrachteten Forsmark-3 Brennelement .....	65
Tab. 6.8	Verwendete geometrische Größen des Forsmark-Brennelements.....	66
Tab. 6.9	Zusätzlich verwendete Größen des Forsmark-Brennelements.....	68
Tab. 6.10	Anfangsanreicherungen aller Brennstäbe des Forsmark-Brennelements .....	69
Tab. 6.11	vereinfachte Abbrand Historie.....	70
Tab. 6.12	Unsicherheiten der Forsmark-3-Probe F3F6 nach /TÖR 11/.....	76
Tab. 6.13	Typische Unsicherheiten von Siedewasserreaktoren nach /OEC 14/.....	77
Tab. 6.14	Analysierte Proben des Reaktors Fukushima-Daini-2 .....	78
Tab. 7.1	Abbranddaten .....	103
Tab. 7.2	$k_{\text{eff}}$ Werte nach jedem Zyklus .....	112

## Abkürzungen/Stichwortverzeichnis

ARIANE	Actinide Research in a Nuclear Element
BE	Brennelement
BS	Brennstab
DM1	Dodewaard Mixed oxide sample 1
DU1	Dodewaard Uranium Dioxide sample 1
DWR	Druckwasserreaktor
GWd/tSM	Gigawatttage pro Tonne Schwermetall (Maß für Abbrand)
JPDR	Japan Power Demonstration Reactor
NEA	Nuclear Energy Agency
OECD	Organisation for Economic Co-operation and Development
PIE	Post Irradiation Examination, Nachbestrahlungsanalyse
SFCOMPO	Spent Fuel Composition Database
SWR	Siedewasserreaktor

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

Schwertnergasse 1  
**50667 Köln**

Telefon +49 221 2068-0

Telefax +49 221 2068-888

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](http://www.grs.de)