

**Quantifizierung der
Rechengenauigkeit von
Codesystemen zum
Abbrandkredit durch
Experimentnachrechnungen**

Quantifizierung der Rechengenauigkeit von Codesystemen zum Abbrandkredit durch Experimentnachrechnungen

Matthias Behler
Volker Hannstein
Robert Kilger
Franz-Eberhard Moser
Arndt Pfeiffer
Maik Stuke

Juni 2014

Anmerkung:

Das diesem Bericht zugrunde liegende FE-Vorhaben 3611R03330 wurde im Auftrag des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (BMUB) 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:

Kritikalitätscode, Abbrandcode, Abbrandkredit, Validierung, Bias, Rechengenauigkeit

Kurzfassung

Um in der Kritikalitätssicherheitsanalyse für Systeme mit bestrahlten Kernbrennstoffen die reaktivitätsmindernde Wirkung des Abbrands zu berücksichtigen („Abbrandkredit“), werden numerische Methoden zur Bestimmung des anreicherungs- und abbrandabhängigen Nuklidinventars („Abbrandcode“) sowie des Neutronenmultiplikationsfaktors k_{eff} („Kritikalitätscode“) eingesetzt. Um belastbare Aussagen zu treffen, wird für beide Rechenverfahren die systematische Abweichung der Rechenergebnisse vom wahren Wert, der Bias und seine Unsicherheit, durch Nachrechnung und Auswertung hinreichend vieler geeigneter Experimente quantifiziert. Diese Quantifizierung ist spezifisch für den jeweiligen Anwendungsfall und wird auch als Validierung bezeichnet.

Die GRS hat eine Methodik entwickelt, um ein Rechensystem zur Abbrandberücksichtigung bei der Kritikalitätssicherheitsanalyse für bestrahlte Brennelemente aus Druckwasserreaktoren zu validieren. Diese Methodik wurde durch Anwendung des GRS-eigenen Inventarberechnungssystems KENOREST hinsichtlich Abbrand und der Kritikalitätssequenz CSAS5 aus dem Codepaket SCALE hinsichtlich Reaktivität demonstriert. Sie umfasst einen abdeckenden sowie alternativ einen stochastischen Ansatz, die beide exemplarisch anhand eines generischen Brennelement-Lagerbeckens sowie eines generischen Transport- und Lagerbehälters demonstriert wurden. Auf Basis der frei verfügbaren radiochemischen und kritischen Experimente können derzeit die Isotope der Elemente Uran und Plutonium berücksichtigt werden.

Abstract

In order to account for the reactivity-reducing effect of burn-up in the criticality safety analysis for systems with irradiated nuclear fuel (“burnup credit”), numerical methods to determine the enrichment and burnup dependent nuclide inventory (“burnup code”) and its resulting multiplication factor k_{eff} (“criticality code”) are applied. To allow for reliable conclusions, for both calculation systems the systematic deviations of the calculation results from the respective true values, the bias and its uncertainty, are being quantified by calculation and analysis of a sufficient number of suitable experiments. This quantification is specific for the application case under scope and is also called validation.

GRS has developed a methodology to validate a calculation system for the application of burnup credit in the criticality safety analysis for irradiated fuel assemblies from pressurized water reactors. This methodology was demonstrated by applying the GRS home-built KENOREST burnup code and the criticality calculation sequence CSAS5 from SCALE code package. It comprises a bounding approach and alternatively a stochastic, which both have been exemplarily demonstrated by use of a generic spent fuel pool rack and a generic dry storage cask, respectively. Based on publicly available post irradiation examination and criticality experiments, currently the isotopes of uranium and plutonium elements can be regarded for.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Stand von Wissenschaft und Technik.....	5
2.1	Begriffsbestimmungen	6
2.1.1	Validierung.....	6
2.1.2	Bias	8
2.2	Formale Anforderungen an die Code-Validierung	10
2.2.1	Internationale Regelwerke, Richtlinien und Normen.....	11
2.2.2	Deutsche Regelwerke und Normen	12
2.2.2.1	KTA 3101.2 und DIN 25403-1	12
2.2.2.2	DIN 25478	14
2.2.2.3	DIN 25471, DIN 25472 und DIN 25712.....	15
2.2.3	US-amerikanische Regelwerke und Normen	17
2.3	Allgemeine Validierungsansätze	20
2.3.1	Vergleich errechneter und experimentell gemessener Resultate	21
2.3.2	Bias-Bestimmung durch Toleranzlimitberechnung	23
2.3.3	Trendanalysen.....	25
2.3.4	Validierung mithilfe anderer Rechenverfahren bzw. Codes	26
2.3.5	Ansatz der TSUNAMI/TSURFFER-Methode.....	28
2.4	Aktuelle Validierungsansätze zum Abbrandkredit am ORNL.....	29
2.4.1	Validierung des Inventarberechnungssystems.....	29
2.4.1.1	Monte Carlo Uncertainty Sampling Method.....	30
2.4.1.2	Direct Difference Method	33
2.4.2	Validierung des Kritikalitätsrechensystems	34
3	Validierung eines Inventarberechnungssystems	37
3.1	Nachrechnung von Nachbestrahlungsanalysen: KENOREST v1.1	37
3.1.1	Verwendete Datenbasis radiochemischer Analyseproben	37
3.1.2	Ergebnisse und Auswertung der Experimentnachrechnungen.....	39

3.2	Anwendungsbeispiele in Kritikalitätsanalysen	52
3.2.1	Generisches DWR Brennelement-Lagerbecken	52
3.2.1.1	Anwendung konservativer Isotopenkorrekturfaktoren	55
3.2.1.2	Monte Carlo Sampling Verfahren.....	59
3.2.1.3	Vergleich der unterschiedlichen Verfahren	69
3.2.2	Generischer Transport- und Zwischenlagerbehälter	71
3.3	Nachrechnung von Nachbestrahlungsanalysen: SERPENT 1.1.19.....	75
3.4	Schlussfolgerungen	78
4	Validierung eines Kritikalitätsrechensystems	83
4.1	Kritische Experimente.....	83
4.1.1	Experimentnachrechnungen	84
4.1.2	Analyse der verfügbaren Experimentnachrechnungen.....	85
4.2	Anwendungsfall Generisches DWR-Brennelement-Lagerbecken	90
4.2.1	Validierung für die Anwendungsfälle mit unbestrahltem Brennstoff.....	93
4.2.2	Validierung für die Anwendungsfälle mit bestrahltem Brennstoff und hohem Abbrand	110
4.2.3	Validierung für die Anwendungsfälle mit bestrahltem Brennstoff und niedrigem Abbrand	124
4.2.4	Bias-Bestimmung der gesamten Rechenkette	127
5	Zusammenfassung	129
	Literaturverzeichnis.....	133
	Abbildungsverzeichnis.....	143
	Tabellenverzeichnis.....	148
A	In den Kritikalitätsrechnungen verwendete Kernzahldichten.....	151
B	Exemplarische SCALE Eingabedatei für das generische Brennelement-Lagerbecken.....	155

C	Parameter und Resultate der nachgerechneten Experimente.....	157
D	Vergleich des Bias für Anwendungen mit und ohne Absorberplatten.....	193

1 Einleitung

Technische Rechenmethoden oder Rechencodes dienen typischerweise dazu, die Realität auf der Basis eines mathematischen bzw. physikalischen Modells abzubilden, um Lösungen für bestimmte Klassen von Problemen oder Fragestellungen zu errechnen. Die Genauigkeit bzw. Aussagekraft der errechneten Lösungen hängt allerdings von der Güte des verwendeten Modells, die Realität hinreichend genau abzubilden, ab. Zudem beinhalten die in Rechencodes implementierten Umsetzungen der zugrundeliegenden Modelle oft vereinfachende Annahmen, Approximationen oder Einschränkungen, um komplexe physikalische Vorgänge mit einem akzeptablen Aufwand an Ressourcen (Arbeitszeit, Rechenzeit, Speicherbedarf, etc.) nachzubilden. Sowohl durch das zugrundeliegende mathematische bzw. physikalische Modell als auch durch die Implementierung können Diskrepanzen zwischen der errechneten und der „wahren“ Lösung eines gegebenen Problems auftreten. Daher sind Rechenmethoden und Codes generell – und insbesondere bei denen Anwendung in Sicherheitsanalysen – zu validieren. D. h. es ist die Gültigkeit der errechneten Resultate nachzuweisen, bzw. deren Güte im Vergleich zu den „wahren“ Lösungen und die ggf. beobachteten Diskrepanzen zu quantifizieren.

Bezogen auf die in diesem Bericht betrachteten Kritikalitätssicherheitsanalysen von Spaltmaterialanordnungen bedeuten die obigen Ausführungen insbesondere, dass die Güte des errechneten Neutronenmultiplikationsfaktors k_{eff} , welcher typischerweise zur Beurteilung der Kritikalitätssicherheit herangezogen wird, für die jeweils zu untersuchende Anordnung zu bestimmen ist. Speziell ist dabei eine mögliche Abweichung des errechneten Werts von dessen wahren Wert, der sogenannte Bias, zu ermitteln. Wird in einer Kritikalitätssicherheitsanalyse eine Spaltmaterialanordnung mit bestrahlten Kernbrennstoffen untersucht, so ist in die Bestimmung des Bias sowohl die numerische Berechnung des Nuklidinventars als auch die Berechnung des darauf basierenden Neutronenmultiplikationsfaktors k_{eff} einzubeziehen.

In Abb. 1.1 sind die Reaktionskanäle, welche das Nuklidinventar von Kernbrennstoffen bezüglich der relevanten Aktinoiden während der Bestrahlung verändern, schematisch zusammengefasst. Insbesondere ist hier die sukzessive Entstehung der Plutoniumisotope durch Neutronenresonanzabsorption von ^{238}U wichtig. Sie enthalten mit ^{239}Pu und ^{241}Pu die reaktivsten Einzelnuclide im bestrahlten Kernbrennstoff, sowie mit ^{240}Pu den stärksten Einzelabsorber. Entsprechend beeinflussen diese Nuclide durch ihre Spalt-

und Absorptionseigenschaften die Kritikalitätssicherheit einer Anordnung mit bestrahltem Krenbrennstoff. Somit sollte der Aufbau dieser höheren Aktinoiden von einem Inventarberechnungssystem, v. a. bei entsprechend guter Kenntnis der Bestrahlungshistorie, möglichst akkurat erfasst und nachgebildet werden können. Mögliche Abweichungen in errechneten Nuklidkonzentrationen führen zwangsläufig zu entsprechenden Über- oder Unterschätzung des mit einen so bestimmten Nuklidinventars errechneten Neutronenmultiplikationsfaktors, wodurch die Beurteilung der Kritikalitätssicherheit der untersuchten Anordnung beeinflusst wird. Daher ist für die Betrachtung der Güte des errechneten Neutronenmultiplikationsfaktors die Berücksichtigung möglicher Abweichungen in den errechneten Nuklidkonzentrationen unerlässlich.

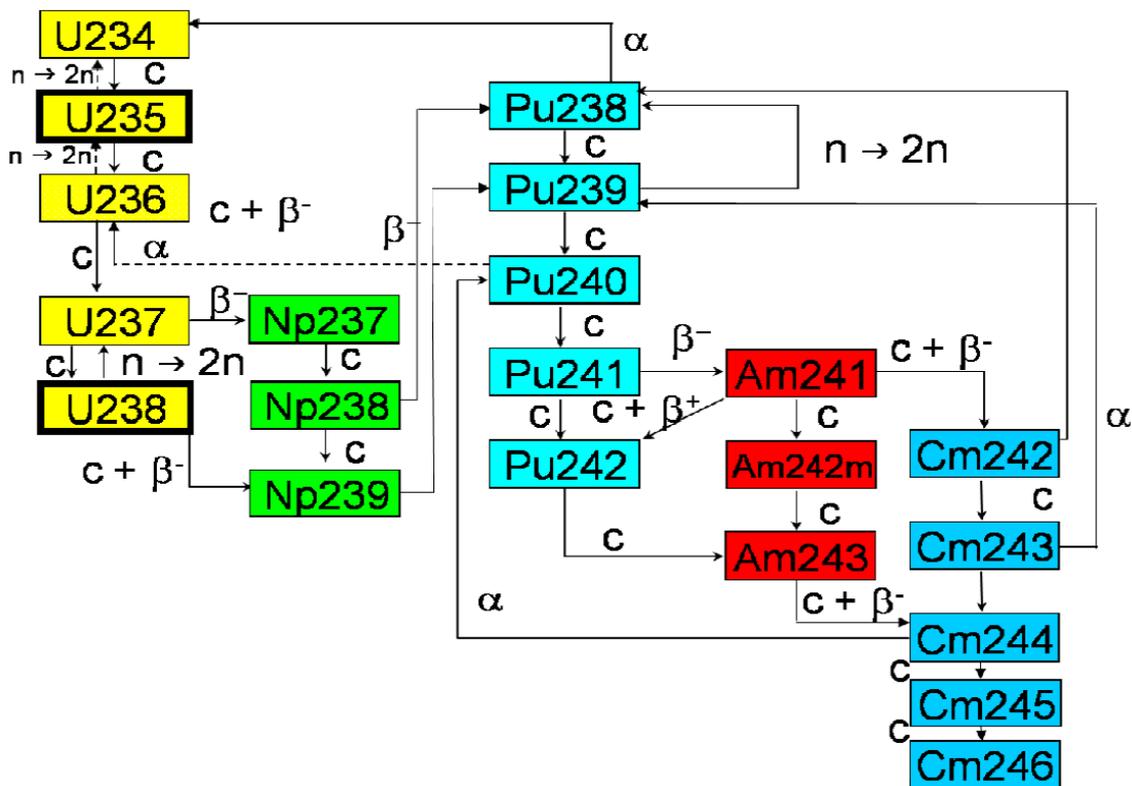


Abb. 1.1 Schema zur Transmutation und zum Aufbau höherer Aktinoide bei der Bestrahlung von Kernbrennstoff im Leichtwasserreaktor

Informationen zu möglichen Abweichungen errechneter Resultate von ihren wahren Werten können in der Regel durch Nachrechnungen experimenteller Anordnungen, deren Messdaten hinreichend genau sind, gewonnen werden. Alternativ können dazu auch theoretische Fragestellungen, deren wahre Lösungen auf unabhängigem theoretischem Weg abgeleitet werden können, betrachtet werden. Im Fall von Kritikalitätssicherheitsanalysen bieten sich für die Validierung der verwendeten Rechenmethoden

insbesondere Nachrechnungen von experimentellen kritischen Anordnungen, sogenannten kritischen Benchmark-Experimenten, an, für die der Neutronenmultiplikationsfaktor hinreichend präzise bekannt ist. Um zusätzlich die Güte von rechneten Nuklidinventaren für bestrahlte Kernbrennstoffe zu beurteilen, bieten sich vor allem Vergleichsrechnungen zu radiochemischen Analysen vom Proben abgebrannter Brennelemente oder einzelnen Brennstäben an. Aber auch andere experimentelle Daten oder Messungen aus dem Betrieb von Leistungs- oder Forschungsreaktoren können zur Validierung der in Kritikalitätssicherheitsanalysen eingesetzten Rechenmethoden herangezogen werden.

Die typischen Vorgehensweisen und Methoden zur Validierung sowie die formalen Anforderungen, die sich aus den einschlägigen Regelwerken in Bezug auf die Beurteilung von Kritikalitätssicherheit ergeben, werden in dem vorliegenden Bericht diskutiert. Am Beispiel typischer Anwendungen wird ferner Methodik und Durchführung einer Validierung für ein Inventarberechnungssystem sowie für ein Kritikalitätsrechensystem demonstriert.

2 Stand von Wissenschaft und Technik

Die Validierung von technischen bzw. wissenschaftlichen Rechensystemen erfolgt in der Regel durch Nachrechnungen von experimentellen Messungen und dem Vergleich der errechneten und gemessenen Resultate. Anstelle von experimentellen Messungen, z. B. wenn diese nicht zur Verfügung stehen, werden ggf. auch Vergleiche zu anderen Rechensystemen oder Problemstellungen, deren Lösungen auf theoretischem Weg bekannt sind, herangezogen. Eine einheitliche Methodik, wie eine Validierung konkret durchzuführen ist, gibt es allerdings nicht. Dies ergibt sich aus den folgenden Schwierigkeiten.

Zunächst beruhen die in der Validierung zu betrachtenden möglichen systematischen Abweichungen zwischen den errechneten und „wahren“ Lösungen, der sogenannte Bias, auf codespezifische Eigenschaften, d. h. auf Näherungen, Vereinfachungen oder Einschränkungen im verwendeten Rechencode. Damit ist der Bias generell abhängig vom jeweils genutzten Rechensystem und kann von Code zu Code unterschiedliche Abhängigkeiten von verschiedenen Faktoren, also z. B. von verschiedenen (technischen) Parametern der zu betrachtenden Fragestellungen, aufweisen. Solche Abhängigkeiten des Bias können u. a. dadurch entstehen, dass die im jeweiligen Code verwendeten Näherungen das „wahre“ Resultat für bestimmte Parameterbereiche sehr genau wiedergeben, für andere Parameterbereiche aber größere Abweichungen zum „wahren“ Resultat aufweisen. Somit lassen sich die Erkenntnisse, die für ein Rechensystem erzielt wurden, nicht oder nur sehr bedingt auf andere Systeme oder Codes übertragen. Auch Vorhersagen, welche Abhängigkeiten zu erwarten sind, lassen sich in der Regel nur auf Code-zu-Code-Basis treffen.

Des Weiteren weisen die Experimente, die zur Bias-Bestimmung zur Verfügung stehen, in der Regel eine gegenüber der realen Fragestellung deutlich vereinfachte Konfiguration auf und beinhalten zudem meist nur einzelne relevante Komponenten der realen Probleme. Beides zielt darauf ab, die Nachrechnung der Experimente und deren Interpretation zu vereinfachen. Andererseits ergibt sich dadurch die Schwierigkeit, dass so nur die Bias-Werte für vereinfachte Anordnungen direkt bekannt sind und aus diesen der Bias für reale komplexere Anordnungen abzuleiten ist. Durch die mögliche Abhängigkeit des Bias von verschiedenen Faktoren bzw. (technischen) Parametern, die in den verschiedenen Experimenten in unterschiedlicher Weise auftreten können, ist eine Vorschrift, in welcher Weise die Bias-Werte der Experimentnachrechnungen zu kombinieren sind, um den Bias für die komplexe reale Anordnung zu erhalten, notwen-

dig. Anders formuliert, es bedarf einer Parametrisierung des Bias als Funktion der relevanten (technischen) Parameter oder zumindest eines Modells für die zu erwartenden Abhängigkeiten des Bias. Eine allgemein gültige, codeunabhängige Parametrisierung des Bias lässt sich, wie bereits oben angedeutet, nicht angeben. Allenfalls ist eine Parametrisierung auf Code-zu-Code-Basis möglich, welche aber eine genaue Kenntnis und Analyse der im Code enthaltenen Näherungen, Vereinfachungen oder Einschränkungen erfordert. Eine solche Analyse ist bei dem Umfang des Quellcodes und der Komplexität der heutigen Rechensysteme allerdings kaum zu leisten, dies gilt insbesondere für Code-Anwender.

Letztlich besteht somit die eigentliche Schwierigkeit bei der Validierung im Übertragen der Bias-Werte der einfach gehaltenen experimentellen Konfigurationen auf die realen, komplexeren zu untersuchenden Fragestellungen, ohne die Abhängigkeiten des Bias von den verschiedenen beeinflussenden Faktoren bzw. ohne alle den Bias beeinflussenden Faktoren selbst zu kennen. Diese Problematik spiegelt sich in der Literatur dergestalt wider, dass über die Jahre verschiedene Validierungsansätze entwickelt wurden, die sich letztlich in der Art, wie der Bias für die realen komplexen Fragestellungen abzuleiten ist, unterscheiden.

2.1 Begriffsbestimmungen

Zunächst werden die bereits erwähnten und für diese Arbeit grundlegenden Begriffe „Validierung“ und „Bias“ in ihrer Bedeutung und in ihrer typischen Verwendung im Rahmen der Kritikalitätssicherheit beleuchtet.

2.1.1 Validierung

In der Softwareentwicklung wird der Begriff „Validierung“ allgemein als die Überprüfung des Rechensystems auf korrekte und vollständige Umsetzung und Implementierung aller Anforderungen des Kunden oder Anwenders verstanden. D. h. bei der Validierung wird der Frage nachgegangen, ob das betreffende Programm alle von ihm zu erfüllenden Aufgaben korrekt und vollständig bearbeitet. Bei technischen oder wissenschaftlichen Rechensystemen besteht die Anforderung des Anwenders im Lösen von technischen oder wissenschaftlichen Fragestellungen und dem damit in der Regel verbundenen Berechnen von Parametern, die für die jeweilige Fragestellung relevant sind. Die korrekte Arbeitsweise des Rechensystems schließt in diesem Fall auch die „korrekte“ Be-

rechnung der relevanten Parameter ein. In diesem Zusammenhang ist „korrekt“ aber nicht notwendigerweise so zu verstehen, dass die vom Rechensystem ermittelte Lösung der „wahren“ Lösung möglichst nahe kommen muss. Bei sehr komplexen Rechensystemen kann es, z. B. zur Einsparung von Rechenzeit, sinnvoll sein, auf Näherungen zurückzugreifen und dabei bewusst auf eine möglichst genaue Übereinstimmung mit der „wahren“ Lösung zu verzichten. Eine „korrekte“ Berechnung ist somit als eine Berechnung mit einer gegenüber der „wahren“ Lösung spezifizierten Genauigkeit aufzufassen. Daher schließt die Validierung von technischen oder wissenschaftlichen Rechensystemen auch die Überprüfung bzw. Bestimmung der Genauigkeit der errechneten Lösungen in Bezug auf die wahren Lösungen ein.

Dieses Verständnis vom Begriff „Validierung“ spiegelt sich auch in den Begriffsdefinitionen der für die Durchführung von Kritikalitätssicherheitsanalysen relevanten Regelwerke und Normen wieder (vgl. Kap. 2.2). So versteht z. B. der IAEA Specific Safety Guide SSG-27 „Criticality Safety in the Handling of Fissile Materials“ /IAE 14/ als „process of determining whether the overall calculation method adequately reflects the real system being modelled and enables the quantification of any calculation/code bias and uncertainty“. In den Sicherheitstechnischen Regeln des Kerntechnischen Ausschusses KTA 3101.2 „Auslegung der Reaktorkerne von Druck- und Siedewasserreaktoren, Teil 2: Neutronenphysikalische Anforderungen an Auslegung und Betrieb des Reaktorkerns und der angrenzenden Systeme“ wird in der Fassung 1987-12 /KTA 87/ Validierung als „Überprüfung der Gültigkeit und Genauigkeit der erzielbaren Ergebnisse durch Beispiele mit exakten analytischen Lösungen oder durch Experimente oder durch andere überprüfte Rechenprogramme“ definiert. In der Fassung 2012-11 /KTA 12/ ist der Begriff „Validierung“ etwas allgemeiner als „Prozess des Nachweises, dass die Eigenschaften eines Modells die abzubildenden realen Gegebenheiten (z. B. physikalische oder chemische Zustände / Vorgänge) im Hinblick auf die beabsichtigte Nutzung des Modells ausreichend genau reproduzieren“ festgelegt. Ferner beschreibt die DIN 25478 „Einsatz von Berechnungssystemen beim Nachweis der Kritikalitätssicherheit“ /DIN14/ Validierung als „Prozess der Bestimmung des Grades an Genauigkeit, mit dem ein Berechnungssystem unter dem Blickwinkel der beabsichtigten Anwendung dieses Systems die Realität beschreibt oder ihr genügt“. Auch in anderen internationalen Normen findet man ähnliche Definitionen. So legt z. B. die US-amerikanische Norm ANSI/ANS-8.1-2014 „Nuclear Criticality Safety in Operations with Fissionable Materials Outside Reactors“ /ANS 14/ den Begriff Validierung als “the process of quantifying (establishing the appropriate bias and bias uncertainty) the suitability of a calculational method for use in nuclear criticality safety analyses” aus. Zwar wird keine im

Wortlaut einheitliche Begriffsdefinition genutzt, alle aufgeführten Beispiele betonen aber inhaltlich die Notwendigkeit der Prüfung der Eignung des Rechensystems und der Genauigkeit der Resultate.

Neben der Validierung eines Rechensystems wird in der Regel auch die „Verifizierung“ des Systems gefordert. Unter Verifizierung wird in diesem Zusammenhang die Überprüfung des Systems auf korrekte Implementierung der vorgesehenen (mathematischen) Methoden verstanden. D. h. die Verifizierung betrachtet die Frage, ob das Rechensystem die Lösung im Rahmen des vorgesehenen Rechenmodells mathematisch formal korrekt erstellt. Inwiefern die Lösung mit der Realität übereinstimmt, spielt dabei keine Rolle.

2.1.2 Bias

Wie vorangehend diskutiert, ist im Prozess der Validierung eines Rechensystems auch die Genauigkeit der errechneten Resultate gegenüber deren wahren Resultaten zu ermitteln. Mögliche Abweichungen zwischen errechneten und wahren Resultaten können z.B. durch Näherungen im Rechenverfahren, Vernachlässigung nicht relevanter Effekte, Unsicherheiten in codeinternen Daten, begrenzte numerische Genauigkeit des Rechencodes, begrenzte Möglichkeiten zur Modellierung eines Teilproblems, oder ähnliches hervorgerufen werden. Diese systematischen Abweichungen der errechneten Resultate gegenüber den wahren Resultaten werden allgemein als „Bias“ oder „Codebias“¹ bezeichnet. D. h. ein Ziel der Validierung ist somit die Quantifizierung des Bias.

Der Begriff „Bias“ wird in dieser Bedeutung als „die systematische Abweichung des errechneten Resultats eines gegebenen Problems von dessen wahren Wert“ auch in der Literatur zur Kritikalitätssicherheit sowie in den relevanten Regelwerken verwendet, z. B. /DEH 96/, /DIN 14/, /ANS 07/. Wie im Fall des Begriffs Validierung (Kap. 2.1.1) sind auch für den Begriff „Bias“ unterschiedliche Definitionen zu finden, die aber letztlich in der praktischen Umsetzung zu analogen Vorgehensweisen führen.

¹ Mit dem Begriff „Codebias“ soll hervorgehoben werden, dass der hier betrachteten Bias durch Eigenschaft des Rechencodes hervorgerufen wird. In dieser Arbeit wird im Weiteren nur der Begriff „Bias“ verwendet.

So gibt z. B. die US-amerikanischen Norm ANSI/ANS-8.24-2007 2007 „Validation of Neutron Transport Methods for Nuclear Criticality Safety Calculations“ /ANS 07/ eine vereinfachte, sehr praxisorientierte Definition, indem der Bias als „the systematic difference between calculated results and experimental data“ beschrieben wird. Anstelle des wahren Resultats wird dabei der Bias direkt auf die experimentelle Messung bezogen. Dies erfolgt auf dem Hintergrund, dass das wahre Resultat (hier der Neutronenmultiplikationsfaktor eines Spaltstoffsystems) in der Regel nur durch experimentelle Messungen zu bestimmen ist, so dass implizit das wahre Resultat mit der experimentellen Messung gleichgesetzt wird. ANSI/ANS-8.24-2007 enthält zusätzlich die Definition der Unsicherheit des Bias als „the uncertainty that accounts for the combined effects of the uncertainties in the benchmarks, the calculational models of the benchmarks, and the calculational method“. Aus dieser Definition folgt, dass Unsicherheiten in den errechneten und gemessenen Werten sowie Unsicherheiten oder Vereinfachungen in der Modellierung der experimentellen Anordnungen nicht als Bestandteil des eigentlichen Bias zu interpretieren sind. Da sie aber zu einer Unsicherheit in der Bias-Bestimmung führen, sind sie entsprechend als Unsicherheit des Bias oder ggf. durch eine Korrektur zu berücksichtigen.

Dagegen wird in der aktuellen Fassung der deutschen Norm DIN 25478:2014-06 /DIN 14/ eine formal-mathematische Definition des Begriffs „Bias“ verwendet. Hier wird der Bias als „Abweichung des Erwartungswerts einer auf einer Anzahl von Beobachtungen basierenden Schätzfunktion eines Parameters von dessen wahren Wert“ definiert. Da im Allgemeinen der Erwartungswert der Schätzfunktion sowie der wahre Wert des Parameters nicht bekannt sind, wird zusätzlich zum Bias der Begriff des „empirischen Bias“ eingeführt. Dieser ist eine Abschätzung des Bias, welche nach DIN 25478 „durch Anwendung eines statistischen Verfahrens auf die beobachteten Differenzen zwischen den für den Parameter in einer Anzahl von Referenzmessungen oder Benchmarks durchgeführten vergleichenden Analyse erhaltenen Resultate und den für diese Referenzmessungen bzw. Benchmarks angegebenen Referenzlösungen“ ermittelt wird. D. h. der empirische Bias beschreibt die Größe, die letztlich in der Praxis ermittelt wird.

Die durchgeführte Literaturrecherche zeigt, dass in der weiterführenden Literatur in der Regel die Formulierung der US-amerikanischen Norm ANSI/ANS-8.24-2007 bzw. die Formulierung „systematische Abweichung des errechneten Resultats von dessen wahren Wert“ die allgemein gebräuchliche Beschreibung des Begriffs „Bias“ ist. Dabei ist zu beobachten, dass die beiden Formulierungen „systematische Abweichung [...] vom

wahren Wert“ und „systematische Abweichung [...] vom experimentell gemessenen Wert“ synonym verwendet werden. Dies ist auf die implizite Gleichsetzung des wahren Resultats mit dem experimentell gemessenen Wert zurückzuführen. Die sehr formale Begriffsdefinition und die Unterscheidung zwischen Bias und empirischen Bias der DIN 25478 (seit Juni 2014) werden dagegen kaum wiedergegeben. Vergleicht man aber die in der Literatur beschriebenen bzw. verwendeten Methoden zur Bias-Bestimmung, so werden grundsätzlich eine Reihe von Experimentnachrechnungen durchgeführt, deren Resultate mit den Messergebnissen verglichen und die Abweichungen mittels eines statistischen Verfahrens (im einfachsten Fall z. B. durch Bildung von Mittelwert und Standardabweichung) analysiert. Diese Herangehensweise zur Bias-Bestimmungen entspricht somit dem, was die DIN 25478 als empirischen Bias beschreibt. D. h. trotz unterschiedlicher Begriffsdefinitionen ist in der Praxis kein genereller Unterschied im Verständnis der Bedeutung des Begriffs „Bias“ zu erkennen. Die verschiedenen Begriffsdefinitionen können somit eher als Entwicklung in der Präzisierung der Begriffsbeschreibung verstanden werden.

Einflüsse durch Vereinfachungen oder Unsicherheiten in der Modellierung der realen Fragestellung auf das Resultat sind vom eigentlichen Bias zu trennen. Andererseits gibt ANSI/ANS-8.24-2007 vor, dass z. B. Varianzreduktionstechniken, codeinterne Daten (Wirkungsquerschnitte) u. ä. in identischer Weise in den Nachrechnungen der Experimente und des zu untersuchenden Problems anzuwenden sind. Gleiches gilt nach DIN 25478 durch die Definition des zu validierenden Berechnungssystems als Kombination aus Rechenmethode und Datensatz (z. B. Wirkungsquerschnitte). Dies wiederum erlaubt es, Einflüsse codeinterner Daten auf die Resultate, wie z. B. durch die Unsicherheiten der Wirkungsquerschnitte, in den Bias zu integrieren.

2.2 Formale Anforderungen an die Code-Validierung

Wie bereits im Kap. 2.1.1 diskutiert, ist eine Validierung zunächst als regulärer Bestandteil der Codeentwicklung zu sehen. Zudem ergibt sich die Notwendigkeit einer Validierung aber auch aus allgemeiner wissenschaftlicher Sichtweise, nach der die Resultate eines Rechenmodells oder eines Rechensystems nur dann eine entsprechend große Aussagekraft besitzen, wenn nachgewiesen werden kann, dass die zugrundeliegenden Rechenmethoden die Realität hinreichend genau widerspiegeln. Diese Sichtweise geben auch die für die Kritikalitätssicherheit relevanten Regelwerke wieder, indem sie grundsätzlich die Validierung der genutzten Codes fordern. Dies gilt

sowohl für die internationalen als auch die jeweiligen nationalen Regelwerke, Richtlinien oder Normen.

2.2.1 Internationale Regelwerke, Richtlinien und Normen

An Regelwerken, Richtlinien und Normen auf internationaler Ebene sind in erster Linie die Safety Standard der IAEA zu nennen. In den sehr allgemein gehaltenen General Safety Requirements bzw. Safety Requirements wird zunächst nur erwähnt, dass in Sicherheitsanalysen verwendet Codes zu verifizieren und validieren sind, z. B /IAE 08/, /IAE 09/. Dazu sind deren Resultate mit experimentellen Daten zu vergleichen sowie Unsicherheiten, Näherungen und Einschränkungen der zugrundeliegenden Methoden und Datenbasis zu bestimmen bzw. zu untersuchen sowie zu spezifizieren, wie diese in der Sicherheitsanalyse berücksichtigt werden. Es wird allerdings nicht näher ausgeführt in welcher Weise dies zu geschehen hat.

Nähere Angaben dazu machen vor allem die Safety Guides. Für diese Arbeit ist insbesondere der IAEA Specific Safety Guide SSG-27 (ehemals DS407) „Criticality Safety in the Handling of Fissile Material“ relevant /IAE 14/. Dieser gibt vor, dass die in Kritikalitätssicherheitsanalysen verwendeten Rechenmethoden zu verifizieren und zu validieren sind. Dabei wird Validierung als „process of determining whether the overall calculation method adequately reflects the real system being modelled and enables the quantification of any calculation/code bias und uncertainty“ verstanden. Zur Validierung sollen nach Möglichkeit Vergleiche von Experimentnachrechnungen mit deren experimentellen Resultaten herangezogen und dazu Experimente verwendet werden, die repräsentativ für den zu untersuchenden Anwendungsfall sind. Die Ähnlichkeit zwischen Experimenten und Anwendungsfall kann dazu anhand der physikalischen bzw. neutronenphysikalischen, geometrischen, und chemischen Charakteristika der Experimente und des Anwendungsfalls beurteilt werden. Liegen keine repräsentativen Experimente vor, so lässt SSG-27 für die Bestimmung des Bias für den zu beurteilenden Anwendungsfall die Inter- oder Extrapolation der mit anderen verfügbaren Experimenten gefundenen systematischen Abweichungen zu.

Im Rahmen der internationalen Normen ist für diese Arbeit z. B. ISO 1709 „Nuclear energy – Fissile materials – Principles of criticality safety in storing, handling and processing“ /ISO 95/ relevant. Sie enthält mit der Anforderung „the results of calculations are acceptable, provided they are shown to compare favourably with experimental da-

ta“ die Vorgabe, dass die Resultate der verwendeten Rechenmethoden anhand von Experimenten zu überprüfen sind, woraus die Forderung nach der Durchführung einer Validierung abzuleiten ist. Weitere Anforderungen bzw. Angaben zur Art und Weise der Durchführung einer Validierung sind in ISO 1709 allerdings nicht enthalten.

2.2.2 Deutsche Regelwerke und Normen

In den deutschen Regelwerken und Normen ergibt sich die Forderung zur Durchführung einer Validierung zunächst aus KTA 3101.2 „Auslegung der Reaktorkerne von Druck- und Siedewasserreaktoren, Teil 2: Neutronenphysikalische Anforderungen an Auslegung und Betrieb des Reaktorkerns und der angrenzenden Systeme“ /KTA 87/, /KTA 12/ und aus DIN 25403-1 „Kritikalitätssicherheit bei der Verarbeitung und Handhabung von Kernbrennstoffen – Teil 1: Grundsätze“ /DIN 13/. Detailliertere Angaben zur Durchführung einer Validierung geben DIN 25478 „Einsatz von Berechnungssystemen beim Nachweis der Kritikalitätssicherheit“ /DIN 14/ sowie dessen Beiblatt 1.

Da die aktuelle Version der KTA-Richtlinie 3101.2 im November 2012 veröffentlicht wurde, die im Folgenden diskutierten Normen aber explizit auf die Fassung vom Dezember 1987 verweisen, wird im nachfolgenden Kap. 2.2.2.1 auf beide Fassungen eingegangen. Zwar geht KTA 3101.2 auf Berechnungssysteme zur Reaktorauslegung ein, der hier relevante Abschnitt 6 (Fassung 1987-12 /KTA 87/) bzw. Abschnitt 7 (Fassung 2012-11 /KTA 12/) ist aber inhaltlich auch auf Berechnungsmethoden zur Nuklidinventarbestimmung von abgebranntem Brennstoff übertragbar (vgl. DIN 25471 und DIN 25712), wohingegen DIN 25403-1 in erster Linie Berechnungssysteme zur Kritikalitätsanalyse betrachten.

2.2.2.1 KTA 3101.2 und DIN 25403-1

Sowohl KTA 3101.2 als auch DIN 25403-1 legen fest, dass bei Verwendung eines Rechenverfahrens zur Berechnung des Nuklidinventars bzw. zum Nachweis der Kritikalitätssicherheit dessen Eignung anhand einer Validierung nachzuweisen ist.

KTA 3101.2 führt die Forderung nach einer Validierung in allgemeiner Form weiter aus. Als Validierung wird in der Fassung 1987-12 „die Überprüfung der Gültigkeit und Genauigkeit der erzielbaren Ergebnisse durch Beispiele mit exakten analytischen Lösungen oder durch Experimente oder durch andere überprüfte Rechenprogramme“ defi-

niert. In der Fassung 2012-11 wird Validierung in etwas allgemeinerer Form als „Prozess des Nachweises, dass die Eigenschaften eines Modells die abzubildenden realen Gegebenheiten (z. B. physikalische oder chemische Zustände / Vorgänge) im Hinblick auf die beabsichtigte Nutzung des Modells ausreichend genau reproduzieren“ verstanden. Zur Beurteilung der Ergebnisse bzw. (Rechen-)Modelle sehen beide Fassungen die Verwendung von experimentellen Resultaten oder Vergleiche mit anderen validierten Rechensystemen oder mit (theoretischen) Referenzlösungen, die mit realistischen Rechenmodellen erzielt wurden, vor. In der Fassung 2012-11 wird aber explizit hervorgehoben, dass die Verwendung experimenteller Resultate oder Messdaten aus dem Reaktorbetrieb gegenüber dem Vergleich mit anderen Rechensystemen oder sonstigen Referenzlösungen zu bevorzugen ist. Die Fassung 1987-12 enthält dagegen keine vergleichbare Bevorzugung von experimentellen Daten. In beiden Fassungen hat die Auswahl der Daten im Hinblick auf ihre Qualität und ihre Übertragbarkeit auf die zu untersuchende Fragestellung zu erfolgen. Falls keine geeigneten Daten zugänglich sind, sind auch Extrapolationen aus einem nicht-relevanten Parameterraum, für den aber Daten oder Referenzlösungen vorliegen, zulässig. Als Vorgehensweise bei der Validierung sind nach Möglichkeit sowohl eine integrale Validierung des gesamten Rechensystems (Validierung des abschließenden Resultats der gesamten Rechenkette), als auch partielle Validierungen einzelner Teilschritte des Rechensystems (getrennte Validierung einzelner Teilschritte) vorzunehmen. Beide Ansätze sollen sich dabei ergänzen, um zum einen die Genauigkeit des abschließenden Resultats beurteilen und zum anderen (zufällige) Kompensationen von Fehlern in einzelnen Teilschritten identifizieren zu können. Letzteres ist relevant, da eine solche Kompensation den Parameterraum, in dem die Validierung bzw. die ermittelte systematische Abweichung zwischen errechneten und „wahren“ Resultaten gültig ist, einschränken kann. Die im Validierungsprozess nachgewiesenen systematischen Abweichungen zwischen errechneten und „wahren“ Resultaten können nach beiden Fassungen der KTA 3101.2 auch in Form von Anpassungskorrekturen an die errechneten Werte genutzt werden, um für die betrachtete Fragestellung möglichst realistische Resultate zu erhalten.

Im Gegensatz dazu ist in DIN 25403-1 Abschnitt 5.1.2 lediglich die Forderung enthalten, dass „der Nachweis der Kritikalitätssicherheit auf Grund experimenteller Ergebnisse oder mit nach DIN 25478 validierten Rechenverfahren zu führen“ ist. Weitere Angaben zur Durchführung einer Validierung werden in DIN 25403-1 nicht gemacht.

2.2.2.2 DIN 25478

Weitergehende Angaben zur Durchführung einer Validierung machen die DIN 25478 „Einsatz von Berechnungssystemen beim Nachweis der Kritikalitätssicherheit“ /DIN14/. Teile von ihr wurden 2012/2013 grundlegend überarbeitet. Dazu gehört auch der Abschnitt 8, der sich explizit mit dem Thema Validierung befasst. Zudem wurde die Norm 2012 um ein Beiblatt /DIN 12a/ ergänzt, welches u. a. ausführliche Erläuterungen zu der Behandlung von Unsicherheiten, der Bestimmung von Toleranzlimits, der Repräsentativität von Experimenten (Benchmarks), dem Bayes-Theorem, usw., und zur Bias-Bestimmung insgesamt enthält.

Die aktuelle Version der DIN 25478 beschreibt eine Validierung als „Prozess der Bestimmung des Grades an Genauigkeit, mit dem ein Berechnungssystem unter dem Blickwinkel der beabsichtigten Anwendung dieses Systems die Realität beschreibt oder ihr genügt“. Der Grad der Genauigkeit wird dabei durch den Bias bzw. durch den empirischen Bias wiedergegeben. In DIN 25478 wird unter dem Bias die Abweichung des Erwartungswertes (der Schätzfunktion) eines Parameters von dessen wahren Wert verstanden. Da in der Regel weder der Erwartungswert noch der wahre Wert des betrachteten Parameters bekannt ist, wird zusätzlich der empirische Bias eingeführt, welcher eine praxisnahe Abschätzung des Bias darstellt. Seine eigentliche Definition ist in DIN 25478, wie die es Bias, sehr allgemein gehalten. Übertragen auf die Validierung eines Rechensystems folgt der empirische Bias mittels eines statistischen Verfahrens aus den in einem geeigneten Satz von experimentellen Messungen oder Benchmarks beobachteten Differenzen im relevanten Parameter zwischen den errechneten Lösungen und den Referenzergebnissen der Messungen bzw. Benchmarks. Da die Referenzergebnisse ihrerseits nur Schätzwerte der „wahren“ Lösungen sind, sind deren Unsicherheiten bei der Bestimmung des empirischen Bias zu berücksichtigen.

Bei der Definition des Begriffs „Validierung“ nach DIN 25478 ist zu beachten, dass dort explizit von der „Genauigkeit ... unter dem Blickwinkel der beabsichtigten Anwendung“ die Rede ist. Zudem fordert sie im Abschnitt 8.2, dass das betrachtete Berechnungssystem für jeden Anwendungsfall zu validieren ist. Damit betont die DIN 25478 die Tatsache, dass im Allgemeinen die Genauigkeit eines Rechensystems von der jeweiligen Fragestellung bzw. dem jeweiligen Anwendungsfall abhängt. Dementsprechend fordert sie die Gültigkeit der Validierung bzw. die Genauigkeit des Rechensystems für jeden Anwendungsfall separat nachzuweisen bzw. zu bestimmen. Ein solcher konkreter Be-

zug der Validierung auf den einzelnen Anwendungsfall ist in den meisten anderen Regelwerken oder Normen nicht oder nur in impliziter Form zu finden.

Wie im Fall der KTA 3101.2:2012-11 ist auch eine Validierung nach DIN 25478 bevorzugt durch Vergleich mit experimentellen Messungen vorzunehmen. Die zu berücksichtigenden Experimente bzw. Benchmarks sind dabei möglichst so auszuwählen, dass sie für die betrachtete Fragestellung (Anwendungsfall) repräsentativ sind, d. h. eine hinreichende Ähnlichkeit in den neutronenphysikalischen Eigenschaften des zu untersuchenden Systems aufweisen. Dabei ist darauf zu achten, dass alle relevanten neutronenphysikalischen Eigenschaften des zu untersuchenden Systems durch die ausgewählten Experimente abgedeckt werden. Hierfür kann es zweckmäßig sein und ist nach DIN 25478 auch erlaubt, Experimente einzubeziehen, die nur Teilaspekte der neutronenphysikalischen Eigenschaften der betrachteten Fragestellung beinhalten. Sind keine oder nicht genügend geeigneten Experimente verfügbar, erlaubt DIN 25478 auch Vergleiche mit anderen validierten Rechensystemen anhand theoretischer Benchmarks. In einem solchen Fall sind für die betrachteten Benchmarks Sensitivitätsanalysen unter Berücksichtigung derjenigen Kenngrößen, die den betrachteten Parameter signifikant beeinflussen, vorzunehmen und ggf. die erhöhte Sicherheitsmargen zu berücksichtigen.

Die aktuelle Version der DIN 25478 geht im Vergleich zur Fassung 1994-07 detaillierter auf die Auswahl geeigneter Experimente bzw. Benchmarks zur Validierung ein. Entfallen ist dagegen die explizite Unterscheidung zwischen einer integralen Validierung, d. h. für das gesamte Berechnungssystem als eine Einheit, und einer partiellen Validierung, d. h. durch Betrachten separater Einheiten des Berechnungssystems (vgl. auch Kap. 2.2.2.1).

2.2.2.3 DIN 25471, DIN 25472 und DIN 25712

In den weiterführenden Normen DIN 25471 „Kritikalitätssicherheit unter Anrechnung des Brennelementabbrands bei der Lagerung und Handhabung von Brennelementen in Brennelementlagerbecken von Kernkraftwerken mit Leichtwasserreaktoren“ /DIN 09/, DIN 25742 „Kritikalitätssicherheit bei der Endlagerung ausgedienter Kernbrennstoffe“ /DIN 12/ und DIN 25712 „Kritikalitätssicherheit unter Anrechnung des Brennstoffabbrands bei Transport und Lagerung bestrahlter Leichtwasserreaktor-Brennelemente in Behältern“ /DIN 07/ geht die Forderung nach der Durchführung einer Validierung

über Verweise auf KTA 3101.2:1987-12 und DIN 25478 ein. Dies geschieht konkret in der Form, dass für eingesetzte Berechnungssysteme zur Nuklidinventarbestimmung und Kritikalitätsberechnung auf die in KTA 3101.2:1987-12 und DIN 25478 festgelegten Anforderungen an solche Berechnungssysteme verwiesen werden, welche auch die Validierung der Rechencodes einschließen².

Die Norm DIN 25472 spezifiziert ferner explizit, dass für die Bestimmung des Bias der Berechnungssysteme statistische Methoden zu verwenden und alle eingehenden Unsicherheiten, insbesondere die Unsicherheiten aus den Nachrechnungen der Experimente, zu berücksichtigen sind. Letzteres ergibt sich auch aus den übrigen Normen. Sie geben zusätzlich vor, dass im Fall einer nicht hinreichenden Übereinstimmung der experimentellen Randbedingung mit den Randbedingungen der betrachteten Anwendungsfälle dem möglichen Bias eine weitere Unsicherheit hinzuzufügen ist, um die Unsicherheiten durch die Extrapolation der experimentellen Randbedingungen auf die Randbedingungen der Anwendung berücksichtigt. D. h. diese Normen schließen damit die Verwendung eines Rechenverfahrens für Parameterbereiche, die nicht vollständig durch Experimente abgedeckt werden können, nicht explizit aus. Weitere Vorgaben zur Durchführung einer Validierung sind in den weiterführenden Normen nicht enthalten.

Die Formulierungen in den Normen DIN 25471 und DIN 25712 legen eine getrennte Validierung der zu verwendenden Inventar- und Kritikalitätsrechen-systeme nahe, schließen aber eine kombinierte Validierung beider Systeme wie z. B. nach /LAN 13/ nicht explizit aus. Hierzu wäre dann aber im Einzelfall die konkret angewandten kombinierte Validierungsmethoden dahingehend zu prüfen, inwiefern sie alle Anforderungen der Normen an die Berücksichtigung eines möglichen Bias in den Resultaten der Berechnungssysteme erfüllt.

Ferner geben die weiterführenden Normen vor, dass die Auswirkungen auf den zu betrachtenden Parameter aufgrund eines möglichen Bias des Berechnungssystems inklusive dessen Unsicherheit (Kap. 2.1.2) in abdeckender Form bzw. als 95%/95%-Toleranzlimit zu berücksichtigen sind. Im Fall einer Kritikalitätssicherheitsanalyse mit Abbrandberücksichtigung ist die Berücksichtigung der Nuklide mit negativem Reaktivi-

² Neben den erwähnten allgemeinen Angaben zur Validierung enthalten KTA 3101.2:1987-12 und DIN 25478 auch weitere spezifische Anforderungen an die verwendeten Berechnungssysteme, wobei KTA 3101.2:1987-12 vor allem auf die Nuklidinventarberechnung eingeht. So sind auch diese Anforderungen in den weiterführenden Normen zu beachten.

tätsbeitrag nur zulässig, wenn deren Reaktivitätsbeitrag verifiziert, d.h. deren Unsicherheit im Reaktivitätsbeitrag quantifiziert werden kann. Folglich sind alle im Rechenmodell berücksichtigten Nuklide auch in der Validierung abzudecken, um die vollständige Erfassung aller Unsicherheiten gewährleisten zu können.

2.2.3 US-amerikanische Regelwerke und Normen

Ein großer Teil der internationalen Literatur zum Thema Codevalidierung im Bereich der Kritikalitätssicherheit stammt von US-amerikanischen Gruppen, deren Arbeiten sich dementsprechend am US-amerikanischen Regelwerk orientieren. Zudem haben die Arbeiten dieser Gruppen sowie das US-amerikanische Regelwerk auch die Regelwerke anderer Länder beeinflusst, sodass an dieser Stelle auch die regulatorischen Vorgaben der USA zusammengefasst werden.

Im US-amerikanischen Regelwerkssystem ergibt sich die generelle Forderung nach einer Validierung der in Kritikalitätssicherheitsanalysen angewandten Berechnungsmethoden aus den U.S. Nuclear Regulatory Commission Regulations: Title 10, Code of Federal Regulations /NRC 12/. Diese geben allerdings nur allgemein die Anforderung, dass bei der Beurteilung der Kritikalitätssicherheit mögliche systematische Abweichungen (Bias) und Unsicherheiten in den Resultaten der verwendeten Berechnungssysteme zu berücksichtigen sind (z. B. 10 CFR §60.131, 10 CFR §72.124 /NRC 12/).

Weitere allgemeine Angaben zu einer möglichen praktischen Umsetzung der Anforderungen des Code of Federal Regulations geben u.a. die sogenannten Regulatory Guides und Interim Staff Guidance der US-amerikanischen Nuclear Regulatory Commission (NRC). So verweist der Regulatory Guide 3.71 „Nuclear Criticality Safety Standards for Fuels and Material Facilities“ /NRC 10/ auf die Serie der US-amerikanischen Normen ANSI/ANS-8 und stellt fest, dass aus Sicht der NRC eine Vorgehensweise entsprechend dieser Normen, mit Ausnahme weniger, im einzelnen spezifizierter Punkte, die entsprechenden Anforderungen des Code of Federal Regulations erfüllen. Im Fall der Validierung verwendeter Berechnungssysteme kann dementsprechend die Norm ANSI/ANS-8.24-2007 „Validation of Neutron Transport Methods for Nuclear Criticality Safety Calculations“ /ANS 07/ angewendet werden. Allerdings schließt der Regulatory Guide 3.71 im Gegensatz zur Norm ANSI/ANS-8.24-2007 eine Korrektur eines überschätzten Neutronenmultiplikationsfaktors (positiver Bias) sowie das Verwerfen experimenteller Daten aufgrund statistischer Überlegungen aus.

Weitere, ebenfalls allgemein gehaltene Hinweise zur Validierung sind z. B. in den Interim Staff Guidance SFST-ISG-8 „Burnup Credit in the Criticality Safety Analyses of PWR Spent Fuel in Transport and Storage Casks“ /NRC 12a/ oder FCSS-ISG-10 „Justification for Minimum Margin of Subcriticality for Safety“ /NRC 06/ enthalten. Sie geben u.a. an, dass die Validierung der Berechnungsmethoden anhand von geeigneten, dem Anwendungsfall ähnlichen Experimenten erfolgen sollte und im Fall der Abbrandberücksichtigung nur Nuklide (Aktinoiden oder Spaltprodukte) in die Kritikalitätssicherheitsanalyse einfließen sollten, deren Beiträge mit entsprechenden experimentellen Daten validiert werden können. (Sofern genügend andere Absorber, z. B. Bor im Kühlmittel eines DWR-Abklingbeckens, garantiert und überprüfbar vorhanden sind, kann in USA auf die Verifikation einzelner Reaktivitätsbeiträge verzichtet werden /IAE 03/, /DIN 09/.) Ferner gibt insbesondere der Guide FCSS-ISG-10 eine Reihe von Hinweisen zur Auswahl und Beurteilung geeigneter Experimente zur Validierung sowie zur Beurteilung der Validierungsmethode. So werden u.a. Vorgehensweisen zur Beurteilung der Ähnlichkeit von Anwendungsfall und Experimenten anhand von klassischen Trendparametern (z. B. Anreicherung, Moderationsverhältnis oder neutronenphysikalischen Parametern) oder Sensitivitätsanalysen (z. B. TSUNAMI /SCA 11/) sowie die Verwendung statistischer Methoden und Inter- und Extrapolation der beobachteten Trends in den Experimentnachrechnungen angesprochen. Zwar ist der Guide FCSS-ISG-10 als Leitfaden für die Beurteilung eingereicherter Unterlagen in einem Genehmigungsverfahren konzipiert, die entsprechenden Hinweise lassen sich aber auch analog auf die Durchführung einer Validierung übertragen. Allerdings sind sowohl die Regulatory Guides als auch die Interim Staff Guidance kein Bestandteil des eigentlichen Regelwerks. Sie geben lediglich Hinweise in welcher Form die Anforderungen des Code of Federal Regulations erfüllen werden können.

In der Serie der US-amerikanischen Normen zur Kritikalitätssicherheit behandelt ANSI/ANS-8.1-2014 „Nuclear Criticality Safety in Operations with Fissionable Materials Outside Reactors“ /ANS 14/ allgemeine Sicherheitshinweise zum Umgang mit spaltbarem Material. Sie entspricht damit ihren Charakter nach der DIN 25403-1. In puncto Validierung fordert ANSI/ANS-8.1-2014 lediglich, dass eine solche für jedes verwendete Berechnungssystem anhand von Vergleichen mit Experimenten durchzuführen und die Anwendbarkeit der verwendeten Berechnungsmethoden für die betrachteten Fragestellungen zu belegen ist. Für weitere Details wird nur auf die Norm ANSI/ANS-8.24-2007 „Validation of Neutron Transport Methods for Nuclear Criticality Safety Calculations“ /ANS 07/ verwiesen.

In der Norm ANSI/ANS-8.24-2007 werden speziell Anforderungen für die Validierung von Neutronentransport- bzw. Kritikalitätsrechnungen spezifiziert. Die Begriffe „Validierung“ und „Bias“ werden als „the process of quantifying (establishing the appropriate bias and bias uncertainty) the suitability of a calculational method for use in nuclear criticality safety analyses“ bzw. „The systematic difference between calculated results and experimental data.“ definiert. Generell kann das Vorzeichen des Bias beliebig festgelegt werden, ANSI/ANS-8.24-2007 sieht hierzu vor, dass der Bias positiv zu werten ist, wenn ist das errechnete Resultate den Messwert übersteigt. Im Einzelnen sind in ANSI/ANS-8.24-2007 generelle Vorgaben zur Auswahl und Modellierung der Experimente, zur Auswahl der Validierungsmethode, zur Extrapolation des Bias in nicht von Experimenten abgedeckte Bereiche und zur Berücksichtigung von Trends im Vergleich der errechneten und erwarteten Resultaten enthalten. Insbesondere erlaubt ANSI/ANS-8.24-2007 dabei explizit die Berücksichtigung eines positiven Bias (d. h. die Korrektur errechneter Resultate, die die Messergebnisse überschätzen) und das Verwerfen von Daten („Ausreißer“) aufgrund statistischer Verfahren. Beide Punkte widersprechen allerdings den Vorgaben der US-NRC, wie bereits oben erwähnt. Im Anhang gibt ANSI/ANS-8.24-2007 zudem ein vereinfachtes Beispiel für die Durchführung einer Validierung wieder.

Die weiterführende Norm ANSI/ANS-8.27-2008 „burnup credit for LWR fuel“ /ANS 08/ geht speziell auf die Anwendung von Abbrandberücksichtigung ein und gibt zusätzlich zur Norm ANSI/ANS-8.24-2007 Vorgaben bzw. Möglichkeiten zur Validierung im Fall der Abbrandberücksichtigung an. So legt sie fest, dass der errechnete Neutronenmultiplikationsfaktor der zu untersuchenden Anwendung $k_{eff,p}$ die Ungleichung

$$k_{eff,p} + \Delta k_{eff,p} + \Delta k_{eff,i} + \Delta k_{eff,b} \leq k_{eff,c} - \Delta k_{eff,c} - \Delta k_{eff,x} - \Delta k_{eff,m} \quad (2.1)$$

zu erfüllen hat. Dabei beschreiben $\Delta k_{eff,p}$ die Unsicherheit in der Berechnung von $k_{eff,p}$, $\Delta k_{eff,i}$ den möglichen Bias und dessen Unsicherheit in $k_{eff,p}$ aufgrund von Unsicherheiten in der Abbrandrechnung, $\Delta k_{eff,b}$ die Unsicherheit in $k_{eff,p}$ aufgrund von Unsicherheiten in der Zuordnung des Abbrandwertes, $k_{eff,c}$ den für die Benchmark-Modelle der kritischen Experimente errechneten Multiplikationsfaktor, $\Delta k_{eff,c}$ die Unsicherheit in der Berechnung von $k_{eff,c}$, $\Delta k_{eff,x}$ ein Abschlag von $k_{eff,c}$ aufgrund nicht berücksichtigter Wirkungsquerschnitte in den kritischen Experimenten und $\Delta k_{eff,m}$ den administrativen Sicherheitsabschlag. Generell ist die Ungleichung (2.1) in analoger Form auch in den Vorgaben anderer Normen für das errechnete k_{eff} zu finden. Auffällig ist hier aber der Bezug

auf den errechneten mittleren Multiplikationsfaktor $k_{\text{eff},c}$ der Benchmark-Modelle anstelle des sonst üblicherweise zu berücksichtigenden Bias. D. h. hier wird so auf eine explizite Bias-Bestimmung für die Kritikalitätsrechnung verzichtet. Der Bezug auf $k_{\text{eff},c}$ in Ungleichung (2.1) führt aber bei einer systematischen Überschätzung der Neutronenmultiplikationsfaktoren der Experimentnachrechnungen zu einer entsprechenden höheren Grenze für $k_{\text{eff},p}$, d. h. zur bereits erwähnten Berücksichtigung eines positiven Bias.

Zudem erlaubt ANSI/ANS-8.27-2008 bei nicht hinreichend ähnlichen Experimenten eine Extrapolation in den Parameterbereich der zu untersuchenden Anwendungen unter Berücksichtigung adäquater Unsicherheiten zu. Neben den bereits in ANSI/ANS-8.24-2007 enthaltenen Vorgaben, lässt ANSI/ANS-8.27-2008 auch anstelle der gängigen getrennten Validierung explizit die Möglichkeit einer kombinierten Validierung von Abbrand- und Kritikalitätscode zu, bei der allerdings die Berücksichtigung aller Einflüsse und Unsicherheiten sicherzustellen ist, ohne dass diese aber separat bestimmt werden müssen. Dazu können neben experimentellen Daten auch weitere geeignete Messdaten, z.B. Daten aus dem Reaktorbetrieb, herangezogen werden.

Auch in anderen US-amerikanischen Normen, wie z.B. ANSI/ANS-8.17-2004(R2009) „Criticality Safety Criteria for the Handling, Storage, and Transport of LWR Fuel outside Reactors“ /ANS 09/, werden zu Ungleichung (2.1) analoge Formulierungen verwendet. D. h. eine Korrektur eines positiven Bias ist nach verschiedenen US-amerikanischen Normen grundsätzlich möglich. Ansonsten wird den in den weiterführenden Normen, wie ANSI/ANS-8.17-2004(R2009) oder ANSI/ANS-8.14-2004 „Use of Soluble Neutron Absorbers in Nuclear Facilities outside Reactors“ /ANS 04/, zwar eine Validierung der verwendeten Rechencodes gefordert, dazu aber lediglich auf die Norm ANSI/ANS-8.1-2014 bzw. auf dessen frühere Versionen verwiesen.

2.3 Allgemeine Validierungsansätze

Aus den Begriffsdefinitionen (Kap. 2.1) bzw. den formalen Anforderungen (Kap. 2.2) ergeben sich bereits einige grundsätzliche Vorgehensweise zur Validierung bzw. Bias-Bestimmung. Zudem zeigt die durchgeführte Literaturrecherche, dass einzelne grundlegende Methoden sehr häufig verwendet und, teils in abgewandelter Form, sowohl zur Validierung von Kritikalitätsberechnungssystemen als auch von Inventarberechnungssystemen genutzt werden. Diese Vorgehensweisen und Methoden werden in diesem Kapitel in weitgehend allgemeiner Form zusammengefasst.

2.3.1 Vergleich errechneter und experimentell gemessener Resultate

Wie in dem vorangehenden Kap. 2.1.2 bereits diskutiert, beschreibt der Bias die systematische Abweichung der errechneten Resultate von ihren wahren Werten. Eine der Situationen, in denen der wahre Werte in der Praxis bekannt ist bzw. abgeschätzt werden kann, liegt bei der Nachrechnung experimenteller Resultate vor. Der wahre Wert wird in diesen Fällen durch das experimentelle Resultat approximiert. Bereits in Kap. 2.1.2 wurde angesprochen, dass sowohl das errechnete Resultat wie auch die experimentelle Messung mit Unsicherheiten behaftet sind. Zudem sind auch der experimentelle Aufbau und die experimentellen Randbedingungen in der Regel nur im Rahmen gewisser Unsicherheiten bekannt, so dass das errechnete Resultat aufgrund dieser Unsicherheiten eine zusätzliche Abweichung vom experimentellen Wert aufweisen kann. Weitere Abweichungen können durch Vereinfachungen im Rechenmodell gegenüber den tatsächlichen Begebenheiten des Experiments entstehen. Insbesondere die letzten beiden Aspekte führen dazu, dass Rechenmodell und Experiment voneinander abweichen und der experimentelle Messwert im Allgemeinen nicht mehr den wahren Wert des Rechenmodells widerspiegelt. D. h. es treten zusätzliche systematische Abweichungen zwischen dem errechneten und gemessenen Resultat auf, die nicht durch das Rechensystem als solches bedingt sind und damit die Bias-Bestimmung verfälschen können. Somit kann der Bias der Experimentnachrechnung nur im Rahmen dieser genannten Unsicherheiten bestimmt werden, bzw. ist dieser entsprechenden Unsicherheit behaftet.

Sind die Auswirkungen einer Vereinfachung im Rechenmodell auf das errechnete Resultat bekannt, so kann eine entsprechende Korrektur für den Messwert vorgenommen werden, um eine zusätzliche systematische Abweichung zwischen errechnetem und gemessenem Resultat zu vermeiden. Die Korrektur des Messwerts ergibt anschaulich das zu erwartende Resultat für das vereinfachte Rechenmodell, auf welches dann der rechnerische Wert bezogen werden kann. Dieses Vorgehen wird z. B. im International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments (ICSBEP) /NEA 12/ genutzt, um aus den verfügbaren Experimenten vereinfachte Rechenmodell, sogenannte Benchmark-Modelle, abzuleiten und für diese entsprechende zu erwartende Resultate zu bestimmen. Die Auswirkungen der Modellvereinfachungen werden im ICSBEP durch Vergleich eines detaillierten Modells mit dem vereinfachten Modell ermittelt.

In der Praxis ergibt sich somit der Bias β einer Experimentnachrechnung aus dem errechneten Resultat C , dem gemessenen Resultat E , einer möglichen Korrektur E_K des gemessenen Resultats aufgrund Vereinfachungen im Rechenmodell gegenüber dem Experiment zu

$$\beta = C - (E + E_K) \quad \text{mit} \quad \sigma_\beta = \sqrt{\sigma_C^2 + \sigma_E^2 + \sigma_{E_K}^2}, \quad (2.2)$$

wobei σ_i die entsprechenden Unsicherheiten der Größen wiedergeben. Die Wahl des Vorzeichens des Bias ist reine Konvention und in der früheren Literatur nicht einheitlich. In der neueren Literatur wird in der Regel die in Gleichung (2.2) verwendete Konvention genutzt. Diese wird z. B. auch in ANSI/ANS-8.24-2007 /ANS 07/ (Kap. 2.2.3) vorgegeben.

Neben einem absoluten Bias wird auch häufig ein relativer Bias β_{rel} in der Form

$$\beta_{rel} = \frac{C}{E + E_K} - 1 \quad \text{mit} \quad \sigma_{\beta_{rel}} = \frac{C}{E + E_K} \sqrt{\left(\frac{\sigma_C}{C}\right)^2 + \frac{\sigma_E^2 + \sigma_{E_K}^2}{(E + E_K)^2}} \quad (2.3)$$

verwendet. Alternativ zur Gleichung (2.3) findet man auch die Definition des relativen Bias mit Berücksichtigung eines Anfangswertes I_0 für die betrachtete Größe gemäß

$$\beta_{rel} = \frac{C - I_0}{(E + E_K) - I_0} - 1 \quad (2.4)$$

/NEU 11/. Im Bereich der Kritikalitätssicherheit wird die Gleichung (2.2) typischerweise zur Bias-Bestimmung mittels Nachrechnung kritischer Experimente im Rahmen der Validierung von Kritikalitätsberechnungssystemen genutzt. Die Gleichung (2.3) findet dagegen zumeist bei dem Vergleich von rechneten Nuklidkonzentrationen bei der Nachrechnung radiochemischer Analysen im Rahmen der Validierung von Inventarberechnungssystemen Anwendung. In diesen Zusammenhang wird auch Gleichung (2.4) genutzt, bei der dann die Größe I_0 die jeweilige Nuklidkonzentration der Probe zu Beginn der Bestrahlung des Brennstoffs repräsentiert. Somit werden die Änderungen der Nuklidkonzentrationen und nicht die direkt errechneten und gemessenen Werte verglichen /NEU 11/. Für Spaltprodukte und höhere Aktinoiden sind die Definitionen (2.3) und (2.4) identisch, da diese zu Beginn der Bestrahlung in der Regel nicht vorliegen. Lediglich für die Uranisotope und zusätzlich im Fall von MOX-Brennstoff für die Pluto-

niemisotope ergibt sich ein Unterschied zur Definition (2.3). Vor allem in älteren Arbeiten, z.B. /DEH 96/, findet man den Bias auch als Kehrwert von Gleichung (2.3) in der Form

$$\beta_{rel} = \frac{E + E_K}{C} - 1 \quad (2.5)$$

definiert. Generell sind die Definitionen (2.3) bis (2.5) gleichwertig, lediglich die weiteren Anwendungen der Bias-Werte, z. B. zur Korrektur der errechneten Werte, sind entsprechend anzupassen.

Die Gleichungen (2.2) bis (2.5) geben die entsprechenden Bias-Werte für eine Experimentnachrechnung wieder, welche für die weiteren Untersuchungen genutzt werden können. Alternativ zu diesen Bias-Werten werden in der Literatur für die weiterführenden Untersuchungen auch oft direkt die errechneten Resultate (z. B. k_{eff} im Fall von kritischen Experimenten unter Berücksichtigung der Korrektur E_K) oder direkt die Verhältnissen der errechneten und gemessenen Resultate (z. B. $C/(E+E_K)$ bei Nachrechnungen radiochemischer Analysen) betrachtet. In diesen Fällen werden nicht die Bias-Werte bezüglich des Werts Null sondern die errechneten Resultate bzw. deren Verhältnisses zu den gemessenen Resultaten bezüglich des Werts 1,0 beurteilt. Die Aussagen, die mit beiden Varianten getroffen werden können, sind aber äquivalent. In beiden Fällen bilden die Daten den Ausgangspunkt für die Abschätzung des Bias des eigentlich zu betrachtenden Anwendungsfalls. Einige grundlegende Vorgehensweisen zur Abschätzung des Bias des Anwendungsfalls werden in den nachfolgenden Kapiteln diskutiert.

2.3.2 Bias-Bestimmung durch Toleranzlimitberechnung

Eine einfache Vorgehensweise zur Abschätzung eines Bias des zu betrachtenden Anwendungsfalls besteht in der direkten Übertragung des Bias der Experimente auf den Anwendungsfall. Dazu bedarf es eines Satzes an Experimenten, die eine hinreichend große Ähnlichkeit zum Anwendungsfall aufweisen, so dass angenommen werden kann, dass der Bias der Experimente in guter Näherung dem Bias des Anwendungsfalls entspricht. Ferner dürfen für diese Experimente keine Abhängigkeiten des Bias von einem für die Experimente und dem Anwendungsfall charakteristischen, technischen oder neutronenphysikalischen Parameter vorliegen (vgl. Kap. 2.3.3). Sind diese Voraussetzungen gegeben, so kann unterstellt werden, dass der Bias des Anwen-

dungsfalls innerhalb der Verteilung der Bias-Werte der Experimente liegt. In diesem Fall kann der Bias des Anwendungsfalls direkt durch den Mittelwert der Bias-Verteilung der Experimente unter Berücksichtigung einer auf der Streuung der Bias-Werte basierenden Unsicherheit abgeschätzt werden.

Wird die Berücksichtigung des Bias mittels eines einseitigen 95 %/95 %-Toleranzlimits gefordert (vgl. Kap. 2.2.2), so kann dieses ebenfalls anhand der Bias-Verteilung der Experimente abgeschätzt werden. Entspricht die Bias-Verteilung einer Normalverteilung, so kann aus dem Mittelwert $\bar{\beta}_E$ und der Standardabweichung σ_{β_E} der Verteilung eine Abschätzung für das obere bzw. untere einseitige 95 %/95 %-Toleranzlimit $\beta_A^{95\%/95\%}$ für den Anwendungsfall mittels des Toleranzfaktors $T_{95\%/95\%}$ gemäß

$$\beta_A^{95\%/95\%} = \bar{\beta}_E \pm T_{95\%/95\%} \sigma_{\beta_E} \quad (2.6)$$

erfolgen. Der Toleranzfaktor $T_{95\%/95\%}$ gibt dabei den Abstand des oberen bzw. unteren Toleranzlimits vom Mittelwert in Vielfachen der Standardabweichungen an. Um die Güte der mit Hilfe der Standardabweichung abgeschätzten Breite der angenommenen Normalverteilung in Abhängigkeit der Anzahl der Experimentnachrechnungen zu berücksichtigen, ist $T_{95\%/95\%}$, eine Funktion der Anzahl der Experimentnachrechnungen und kann z. B. aus entsprechenden Tabellenwerken entnommen werden, z. B. /OWE 63/.

Liegt dagegen für die Bias-Werte der Experimente keine Normalverteilung vor, so können zur Bestimmung eines Toleranzlimits auch nicht-parametrische Ansätze genutzt werden. So basiert ein Ansatz nach Wilks auf einer geordneten Stichprobe /WIL 41/. In einem solchen Fall kann gezeigt werden, dass bei einer Stichprobengröße von 59 Werten, der kleinste bzw. der größte Wert als Schätzwert für das untere bzw. obere einseitige 95 %/95 %-Toleranzlimit genutzt werden kann. Bei zunehmender Größe der Stichproben ergeben dann die Werte an zweiter, dritter oder entsprechend höherer Stelle der geordneten Reihenfolge einen entsprechenden Schätzwert für das genannte Toleranzlimit. D. h. liegen mindestens 59 Experimentnachrechnungen vor, so kann der geringste Bias-Wert (bzw. negativste Wert) als Schätzwert des unteren einseitigen 95 %/95 %-Toleranzlimits für den Bias-Wert des zu betrachtenden Anwendungsfalls genutzt werden.

In der Literatur findet vor allem die erstgenannte Methode bei der Validierung von Inventarberechnungssystemen zur Bias-Bestimmung für die errechneten Nuklidkonzentrationen bzw. zur Bestimmung von Isotopenkorrekturfaktoren Anwendung /DEH 96/, /BEH 11/. Für die Validierung von Kritikalitätsrechnungen kam diese Methode vermehrt in älteren Arbeiten bei geringen Anzahlen verfügbarer Experimente zum Einsatz.

2.3.3 Trendanalysen

Im Allgemeinen wird der Bias eines Rechensystems von der jeweils zu untersuchenden Fragestellung (Anwendungsfall) abhängen. Die Ursache dieser Abhängigkeit wird aber in der Regel nicht bekannt sein, so dass auch a priori keine Parametrisierung zur Beschreibung dieser Abhängigkeit angegeben werden kann. Die Kenntnis solcher Abhängigkeiten ist aber für eine korrekte Ableitung des Bias des Anwendungsfalls wichtig.

Eine einfache Methode einen Datensatz auf mögliche Abhängigkeiten zu untersuchen, bieten sog. Trendanalysen. Dabei werden geeignete Funktionen an die vorliegenden Daten angepasst, um entsprechende Abhängigkeiten von ausgewählten, die Fragestellung charakterisierenden Parametern zu überprüfen. Die einfachste und auch gebräuchlichste Variante ist die Anpassung einer Geraden an die Daten in Abhängigkeit eines charakteristischen Parameters. Die Güte der Anpassung und die Signifikanz der angepassten Funktionsparameter (z. B. Geradensteigung) erlauben dann Aussagen zum tatsächlichen Vorliegen der unterstellten Abhängigkeit bzw. zum Vorliegen von Trends in den Daten zu treffen.

In der Literatur zur Validierung von Kritikalitäts- oder Inventarberechnungssystemen sind Trendanalysen eine sehr häufig verwendete Methode um mögliche Abhängigkeiten des Bias der ausgewählten Experimente zu untersuchen. Betrachtet werden dazu die für die Experimentnachrechnungen abgeschätzten Bias-Werte (bzw. die errechneten Resultate oder ihre Verhältnisse zu den jeweils gemessenen Werten, vgl. Kap. 2.3.1) als Funktion von relevanten technischen oder neutronenphysikalischen Parametern. Dies sind insbesondere die Parameter, die die nachgerechneten Experimente und den zu untersuchenden Anwendungsfall charakterisieren und aufgrund der physikalischen Eigenschaften der betrachteten Systeme das Resultat bestimmen bzw. einen Einfluss auf das Resultat haben. Im Fall von Kritikalitätsrechnungen sind dies typischerweise die Isotopenzusammensetzung des Brennstoffs, Parameter, die das Verhältnis von Moderator und Spaltmaterial oder das Neutronenspektrum beschreiben,

Art und Konzentration von Absorbern, usw. /ANS 07/. Bei Inventarberechnungen kommen zudem Parameter hinzu, die die Bestrahlungsbedingungen (Abbrand, Leistung, Absorber, etc.) wiedergeben.

Die genannte Auswahl der in den Trendanalysen betrachteten Parametern basiert zum einen auf Expertenerfahrungen, zum anderen auf bekannte Näherungen in den verwendeten Rechenmethoden. So beruhen z. B. die in Kritikalitäts- und Inventarrechnungen verwendeten Wirkungsquerschnitte auf gemessenen Werten, welche durch theoretische Modelle ergänzt werden. Sowohl die Messungen als auch die theoretischen Modelle weisen Unsicherheiten auf, so dass die genutzten Wirkungsquerschnittswerte in der Regel nicht mit ihren wahren Werten identisch sein werden. Zwar werden sich ein Teil dieser Diskrepanzen zwischen genutzten und wahren Werten in den Rechnungen kompensieren, von einer generellen Kompensation aller Diskrepanzen kann aber nicht ausgegangen werden. Damit ist ein Bias in den Rechnungen zu erwarten. Da der relevante Satz an Wirkungsquerschnitten bzw. der für die Rechnungen relevante Energiebereich der Wirkungsquerschnitte eines gegebenen Problems (Anwendungsfalls) durch dessen Materialzusammensetzung und (Neutronen-)Spektrum bestimmt werden, ist es plausibel, mögliche Abhängigkeiten des Bias von Parametern, die die Materialzusammensetzung oder das (Neutronen-)Spektrum beschreiben bzw. bestimmen, zu vermuten. Dementsprechend sollten, wie oben bereits genannt, diese Parameter in Trendanalysen bezüglich eines möglichen Einflusses auf den Bias betrachtet werden.

Untersucht wird in der Regel eine mögliche lineare Abhängigkeit der für die Experimente abgeschätzten Bias-Werte von den als relevant identifizierten Parametern durch Anpassung entsprechender linearer Funktionen. Typischerweise erfolgt dabei die Anpassung in Form einer linearen Regression oder eines sog. χ^2 -Fits. Die angepassten Geraden spiegeln dann den jeweils mittleren Bias der Experimentnachrechnungen als Funktion des betrachteten Parameters wieder, und die Streuungen der Datenpunkte um die Geraden repräsentieren die jeweilige Breite der Verteilungen entlang der Geraden. Ein Beispiel für einen Rechencode, der dies umsetzt, ist das in Kap. 4.2.1 verwendete Programm USLSTATS aus dem SCALE-Paket.

2.3.4 Validierung mithilfe anderer Rechenverfahren bzw. Codes

Neben der direkten Nutzung experimenteller Messungen erlaubt z. B. KTA 3101.2 /KTA 87/, /KTA 12/, oder DIN 25478 /DIN 14/ auch die Hinzunahme sog. theoretischer

Benchmarks zur Validierung. Dabei werden anstelle der experimentellen Messwerte die errechneten Resultate anderer, bereits validierter Rechensysteme zum Vergleich herangezogen. Aus dem Vergleich der Resultate und dem bekannten Bias des bereits validierten Referenzrechensystems kann der Bias für das zu untersuchende Rechen-system abgeschätzt werden.

Bei einer Validierung, die auf dem Vergleich mit Ergebnissen einer anderen validierten Rechenmethode basiert, ist zu beachten, dass eine Validierung nur für Anwendungsbereiche möglich ist, für die die Vergleichsmethode validiert wurde. Ebenso ist bei der Bestimmung des Bias zu berücksichtigen, dass die Vergleichsmethode gegebenenfalls selbst einen Bias und in aller Regel eine Unsicherheit in der Bias-Bestimmung besitzt. Beide Größen (Bias und dessen Unsicherheit) der Vergleichsmethode sind entsprechend bei der Bias-Bestimmung des eigentlich zu validierenden Codes mit zu berücksichtigen. Ist die Vergleichsmethode selbst mithilfe einer Vergleichsmethode validiert, so ist auch deren gegebenenfalls vorhandener Bias und dessen Unsicherheit zu berücksichtigen. Insgesamt ist so bei einer Validierung mittels der Resultate einer Vergleichsmethode eine größere Unsicherheit in der Bestimmung des Bias zu erwarten.

In einzelnen Fällen kann eine solche Vorgehensweise aber auch den Vergleich, wenn auch nur indirekt, mit nicht (vollständig) veröffentlichten experimentellen Daten ermöglichen, wie z.B. in /FIN 98/ vorgenommen. Dort wurden Messungen des CERES-Programms betrachtet, deren Daten zum damaligen Zeitpunkt nur als Verhältnisse $(C/E)_{JEF-2.2}$ aus mit der Wirkungsquerschnittsbibliothek JEF-2.2 nachgerechneten und gemessenen Werten veröffentlicht vorlagen. In /FIN 98/ sollten die experimentellen Daten mit Nachrechnungen mit der Wirkungsquerschnittsbibliothek ENDF/B-VI verglichen werden. Dazu wurden die Nachrechnungen mit der Bibliothek JEF-2.2 nachvollzogen und analoge Rechnungen mit der Bibliothek ENDF/B-VI vorgenommen. Der gesuchte Vergleich $(C/E)_{ENDF/B-VI}$ wurde dann (hier vereinfacht dargestellt) über die Verhältnisse

$$\left(\frac{C}{E}\right)_{JEF-2.2} \cdot \frac{C_{ENDF/B-VI}}{C_{JEF-2.2}} = \left(\frac{C}{E}\right)_{ENDF/B-VI} \quad (2.7)$$

realisiert. Diese Vorgehensweise war allerdings nur möglich, da hinreichend viele Informationen zur Modellierung der Experimentserie verfügbar waren.

Zwar wird in /FIN 98/ betont, dass der dort beschriebene Vergleich keine Validierung im eigentlichen Sinn darstellt, was im Wesentlichen dem US-amerikanischen Standard ANSI/ANS-8.24 der ein solches Vorgehen nicht zulässt, und einer fehlenden Berücksichtigung aller Unsicherheiten, geschuldet ist. Dagegen ist nach der deutschen Norm DIN 25478 ein analog Gleichung (2.7) verallgemeinertes Vorgehen gemäß

$$\left(\frac{C}{E}\right)_A \cdot \frac{C_B}{C_A} = \left(\frac{C}{E}\right)_B \quad (2.8)$$

prinzipiell möglich, bei dem das Verhältnis C_B/C_A als Vergleich der zu validierenden Rechenmethode B mit der Referenzmethode A, der veröffentlichte Wert $(C/E)_A$ als ein Schätzwert des Bias der Methode A und dementsprechend der resultierende Wert $(C/E)_B$ als ein Schätzwert des Bias der Methode B zu interpretieren sind.

2.3.5 Ansatz der TSUNAMI/TSURFFER-Methode

Neben dem rein empirischen Ansatz der Trendanalysen wurde am ORNL ein weiterer Ansatz zur Validierung von Kritikalitätsrechnungen entwickelt. Dieser Ansatz beruht auf der Annahme, dass ein möglicher Bias in einer Kritikalitätsrechnung ausschließlich oder zumindest hauptsächlich durch die Unsicherheiten in den genutzten Wirkungsquerschnitten bedingt wird.

Als mögliche Ursache für einen Bias sind die Wirkungsquerschnitte unbestritten (vgl. Kap. 2.3.3). Dieser Tatsache wird auch bereits bei den klassischen Trendanalysen Rechnung getragen, da z. B. die Auswahl der Experimenten auch anhand der im Anwendungsfall auftretenden Materialien erfolgen und mögliche Trends der Resultate bezüglich spektraler Parameter, wie z. B. EALF (energy of average lethargy causing fission), untersucht werden sollten /LIC 97/. Die klassischen Trendanalysen unterstellen aber nicht, dass die Wirkungsquerschnitte die einzige Ursache eines möglichen Bias sind, wie dies dagegen bei der TSUNAMI/TSURFFER-Methode angenommen wird /BRO 04/, /REA 07/. Alle anderen möglichen Unsicherheiten oder Einflüsse auf den Bias werden dementsprechend in der TSUNAMI/TSURFFER-Methode vernachlässigt. Inwiefern diese Annahme, dass die Unsicherheiten in den Wirkungsquerschnitten die Hauptquelle für Unsicherheiten im berechneten Multiplikationsfaktor k_{eff} ist, ist aber nur schwer zu verifizieren.

Die Basis zur Bias-Bestimmung der TSUNAMI/TSURFER-Methode bildet die Berechnung der Sensitivität der Neutronenmultiplikationsfaktoren k_{eff} der herangezogenen Experimentnachrechnungen und der zu untersuchenden Anwendungsfälle auf die Wirkungsquerschnitte der enthaltenen Nuklide. Aus den Sensitivitäten auf die Wirkungsquerschnitte und deren Unsicherheiten eines betrachteten Systems kann zunächst die daraus folgende Unsicherheit auf k_{eff} abgeschätzt werden, die im Rahmen dieses Ansatzes eine obere Grenze für den Bias bildet. Ferner kann mit Hilfe der Sensitivitäten die Korrelationen c_k zwischen den errechneten k_{eff} -Werten der Experimente und des zu untersuchenden Anwendungsfalls aufgrund der identischen Unsicherheiten der Wirkungsquerschnitte bestimmt werden. Der Wert der Korrelation c_k wird im Rahmen dieses Ansatzes als Maß für die Ähnlichkeit zweier zu vergleichender Systeme (Experiment und Anwendungsfall) genutzt und kann entsprechend als Trendparameter zur Bias-Bestimmung verwendet werden. Neben der Trendanalyse über c_k wurde auch eine Methode entwickelt, die auf Basis der Sensitivitäten der k_{eff} -Werte der Experimente eine Anpassung der Wirkungsquerschnitte vornimmt, welche eine Abschätzung der systematischen Abweichungen der Wirkungsquerschnitte von ihren wahren Werten entspricht. Anhand dieser Anpassung erfolgt dann eine Abschätzung des Bias für den Anwendungsfall. Die zur Durchführung der Bias-Bestimmung nach diesem Ansatz notwendigen Werkzeuge wurden von ORNL für das SCALE-Softwarepaket entwickelt und stehen dem Anwender in Form der Module TSUNAMI, TSUNAMI-IP, TSURFER, etc. zur Verfügung /BRO 04/, /REA 07/, /REA 10/, /SCA 11/. Einige Annahmen dieses Ansatzes und der entwickelten Methoden werden allerdings in der Literatur kontrovers diskutiert, da sie ggf. zu nicht konservativen Resultaten führen können /HOE 11/.

2.4 Aktuelle Validierungsansätze zum Abbrandkredit am ORNL

2.4.1 Validierung des Inventarberechnungssystems

Das Oak Ridge National Laboratory (ORNL) in den USA beschreibt in einer aktuellen Veröffentlichung /RAD 12/ zwei unterschiedliche Ansätze, um ein Inventarberechnungssystem für die Anwendung im Rahmen des sog. Abbrandkredits zu qualifizieren. Die beschriebenen Methoden werden an exemplarischen Abbrandrechnungen mit einem generischen Druckwasserreaktor-Brennelement sowie mit einem generischen Siedewasserreaktor-Brennelement demonstriert. Im letzteren Fall wird allerdings nur ein Abbrand von 11 GWd/tSM betrachtet, welcher zum reaktivsten Inventar für das untersuchte Brennelement führt („peak reactivity“). Dagegen wird für das Druckwasser-

reaktor-Brennelement ein deutlich höherer Abbrand von 44,3 GWd/tSM unterstellt, der in der Größe eines typischen Entladeabbrands liegt. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit sind insbesondere die von ORNL durchgeführten Untersuchungen mit dem generischen Druckwasserreaktor-Brennelement interessant, weshalb diese im Weiteren näher diskutiert werden.

Beide von ORNL untersuchten Validierungsansätze basieren im Fall von Abbrandrechnungen mit Druckwasserreaktor-Brennelementen auf einer Gesamtheit von einhundert z. T. proprietären radiochemischen Analyseproben, die mit dem Inventarberechnungssystem TRITON /SCA 11/ nachgerechnet wurden. Alle Proben entstammten Brennelementen aus verschiedenen Druckwasserreaktoren und bestanden aus bestrahltem Urandioxid-Brennstoff, von denen einige im frischen Zustand Gadolinium als abbrennbaren Absorber enthielten. Proben aus Mischoxid-Brennstoff (MOX) sowie aus Siedewasserreaktoren wurden nicht in diesen Analysenteil einbezogen.

Die unterschiedlichen Ansätze zur Auswertung der Rechenergebnisse sind im Folgenden beschrieben. Anschließend wird kurz auf eventuelle Probleme des jeweiligen Ansatzes hingewiesen.

2.4.1.1 Monte Carlo Uncertainty Sampling Method

Der erste betrachtete Ansatz basiert auf einer Monte Carlo-Sampling-Methode. Dazu werden zunächst aus den Probennachrechnungen die Verteilungen der nuklidweisen Abweichungen der Nachrechnungen von den experimentellen Messungen bestimmt. Die Auswirkungen dieser Abweichungen auf anschließende Kritikalitätsrechnungen werden dann im Monte Carlo-Sampling-Verfahren ermittelt. Dafür werden entsprechend den gewonnenen Verteilungen Isotopenkorrekturfaktoren stochastisch ermittelt, mit denen das Nuklidinventar der Abbrandrechnungen versehen wird, und die Variation des Neutronenmultiplikationsfaktors k_{eff} analysiert.

Im Einzelnen wird dazu wie folgt vorgegangen. Zunächst sind nuklidabhängiger Bias und dessen Unsicherheit für das mit dem verwendeten Inventarberechnungsverfahren ermittelte Nuklidinventar zu bestimmen. Dazu werden nuklidweise die Mittelwerte der Verhältnisse (E/C) der experimentellen (E; in /RAD 12/ als „M“, measured, bezeichnet) zu den errechneten (C) Massenwerte der relevanten Nuklide sowie die Standardabweichungen über alle nachgerechneten Proben gebildet. Dies beinhaltet alle für die

Abbrandberücksichtigung in Kritikalitätsanalysen wichtigen Aktinoide und Spaltprodukte. Die Differenz des errechneten Mittelwertes der E/C-Verteilung zum Wert 1,0 ergibt dann direkt den Bias für die jeweilige errechnete Nuklidkonzentration. Die Unsicherheit des Bias wird im Ansatz von ORNL nicht direkt durch die Standardabweichung sondern konservativ durch das zweiseitige bzw. obere einseitige Toleranzlimit der ermittelten Standardabweichung der E/C-Verhältnisse abgeschätzt. Die Toleranzlimits werden dabei unter der Annahme vorliegender Normalverteilungen aus den Standardabweichungen durch Multiplizieren mit Probenanzahl-abhängigen Toleranzlimitfaktoren errechnet. Für die Nuklide, die in mehr als 10 radiochemischen Analyseproben auftreten, wird dazu der Faktor für das zweiseitige 68,3 %/95 %-Toleranzlimit (mit 95 % Wahrscheinlichkeit 68,3 % der Verteilung innerhalb des Limits) und für die übrigen Nuklide der Faktor für das obere einseitige 95 %/95 %-Toleranzlimit herangezogen. Die so bestimmten Unsicherheiten werden im Weiteren als abdeckende 1σ Standardabweichung des jeweiligen Bias angenommen. Bias und dessen Unsicherheiten werden anschließend im Monte Carlo-Sampling-Ansatz zur Beschreibung der Wahrscheinlichkeitsverteilungen der Nuklidkonzentrationen bzw. zur Beschreibung der Verteilung der anzuwendenden Korrekturfaktoren, für den Anwendungsfall genutzt.

Wie im Kap. 2.3.3 beschrieben, sind für den Bias auch dessen Unsicherheit und ggf. vorhandene Abhängigkeiten von Proben-charakteristischen Parametern zu ermitteln. Auf Basis von Trendanalysen der E/C-Werte über dem Abbrand war in den von ORNL durchgeführten Nachrechnungen eine Abhängigkeit des Bias sowie dessen Unsicherheit vom Abbrand für die Nuklide ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U , ^{239}Pu , ^{240}Pu und ^{241}Pu , also derjenigen die in jeder der radiochemischen Analyse vorkommen, zu erkennen. Daher wurde in /RAD 12/ eine Einteilung des durch die radiochemischen Proben abgedeckten Abbrandbereichs von etwa 5 bis 60 GWd/tSM in zwei bzw. drei Abbrandintervalle vorgenommen, so dass in keinem dieser Intervalle ein weiterer Trend erkennbar war. Auf diese Weise konnte die Abhängigkeit der Bias und dessen Unsicherheit vom Abbrand als Stufenfunktion ausgedrückt werden. Anschließend wurde ein Shapiro-Wilk Test auf Normalität für jedes Nuklid und Abbrandintervall durchgeführt. Im Fall der in /RAD 12/ vorgestellten Probennachrechnungen mit TRITON zeigte das Nuklid ^{235}U im Intervall von 15 bis 40 GWd/tSM keine Normalverteilung. Allerdings konnte durch weiterführende Untersuchungen gezeigt werden dass die Annahme einer Normalverteilung in diesem Fall konservativ ist.

Die Unabhängigkeit der Unsicherheiten in den Nukliden untereinander wurde untersucht. Eine eingehende Analyse mittels Pearson Korrelationskoeffizienten ähnlich wie in

/NEU 07a/, /NEU 07b/ beschrieben zeigte, dass dies eine gute Näherung ist. Als einziger geringfügiger Beitrag zeigte sich die positive lineare Korrelation der Unsicherheiten in ^{239}Pu und ^{241}Pu evtl. als signifikant, etwa im Bereich von $\approx 1\%$ in der Unsicherheit im späteren k_{eff} , je nach betrachtetem System.

Zur Bestimmung des isotonen- und intervallweisen Bias und dessen Unsicherheit wurde anschließend die Monte Carlo-Sampling-Methode auf den Nuklidkonzentrationen auf Basis der oben definierten Intervalle und Verteilungen zum Übertrag der Nuklidmassen in konkrete Kritikalitätsrechenmodelle durchgeführt. Zur Überprüfung der Konvergenz der Sampling-Prozedur wurden kontinuierlich zusätzliche Stichprobennahmen durchgeführt, bis diese den Mittelwert von k_{eff} sowie dessen Standardabweichung nur noch innerhalb $\pm 0,0005$ veränderten. Dies war in /RAD 12/ typischerweise nach 250 bis 500 Stichproben erreicht, durchgeführt wurden bis zu 2500. Die folgende Überprüfung der erzielten k_{eff} -Werte auf Normalverteilung mittels Shapiro-Wilk-Test war in den untersuchten Kritikalitätsrechenmodellen erfolgreich. Die Bestimmung des oberen 95 %/95 % Toleranzlimits zusammen mit dem Mittelwert der k_{eff} -Werte ergab somit Bias und Unsicherheit $\beta + \Delta k_i$. Eine vertiefte Analyse zeigte dabei, dass Unsicherheiten in den berechneten Massen von ^{235}U und ^{239}Pu in den betrachteten Systemen etwa 90 % bis 95 % der Unsicherheit des Bias von k_{eff} bewirkten.

Mögliche Probleme der beschriebenen Methode

In der diskutierten Arbeit wurde keine explizite Berücksichtigung der Messunsicherheiten von Abbrandwert und Nuklidmassen durchgeführt. Außerdem ist die Zulässigkeit der Methode für Nuklide mit bekannten großen messtechnischen Problemen, insbes. metallischer Spaltprodukte wie ^{109}Ag , unklar. Als weiterer Punkt ist anzuführen, dass keine Berücksichtigung der Korrelationen von Proben aus gleichen Stäben, Brennelementen, Messreihen, Laboratorien stattfand. Es ist unklar, ob dies ggf. durch die Unterstellung der Normalverteilung abgedeckt werden kann. Auch die Berücksichtigung der Zerfallskorrekturen der gemessenen Nuklide in der Abklingphase und Übertragung auf den Anwendungsfall ist teilweise unklar.

Eine weitere offene Frage bieten die durchgeführten Kritikalitätsrechnungen. Es wurden axiale Abbrandprofile berücksichtigt, doch die Behandlung der einzelnen Axialabschnitte hinsichtlich ihrem Partialabbrand und intervallabhängigen Isotopenbias ist unklar. So wurde nicht ersichtlich, ob für ein Brennelement eine einheitliche Isotopenkor-

rektur durchgeführt wurde oder für jeden Axialabschnitt individuell anhand des lokalen Abbrands.

2.4.1.2 Direct Difference Method

Die zweite in /RAD 12/ beschriebene Methode zur Validierung eines Inventarberechnungssystems, die sog. „Direct Difference Method“, basiert auf einer früheren, prinzipiell ähnlichen Arbeit /GAU 03/, ist jedoch zusätzlich ergänzt um die Verwendung von Surrogatdaten (s. u.). Zunächst erfolgt die Auswahl eines einheitlichen Nuklidsatzes für die Anwendung des Abbrandkredit, hier der typische Satz der 28 Aktinoiden und Spaltprodukte /BRA 96/, /WAG 01/. Es erfolgt eine unkorrigierte Best estimate Abbrandrechnung für jede berücksichtigte Messprobe und anschließend der Übertrag a) der gemessenen Nuklidkonzentrationen und b) der berechneten Nuklidkonzentrationen in das untersuchte Kritikalitätsrechenmodell. Die Differenz $\Delta k_{\text{eff}} = k^{\text{calc}} - k^{\text{measure}}$ dient hier als Maß für Bias und Unsicherheit. Dies erfordert die Verwendung von sog. „Surrogatdaten“ für diejenigen Nuklide aus dem verwendeten Satz, die in einzelnen Proben nicht vorkommen. Dies erfolgt durch die Bestimmung des nuklidweisen Bias aus den vorhandenen Messdaten und dann die rekursive Vorab-Anwendung des nuklidweisen mittleren Bias auf diejenigen Nuklidmassen in den Messproben, in denen das jeweilige Nuklid nicht gemessen wurde. Es folgt eine problemabhängige Trendanalyse der ermittelten Δk -Werte über dem jeweiligen Probenabbrand, wobei die Anfangsanreicherung hier nicht signifikant zu sein scheint. Über eine lineare Regression und Bestimmung des 95 %/95 %-Toleranzlimit ergibt sich anschließend der abbrandabhängige Bias mit Unsicherheit.

Mögliche Probleme der beschriebenen Methode

Die Verwendung von Surrogatdaten v. a. bei Nukliden mit wenigen Messungen erscheint etwas zweifelhaft und erfordert ggf. nuklidabhängig zusätzliche Sicherheitsfaktoren. Zudem erscheint eine konsistente problemabhängige Abklingzeit für alle Nuklide erforderlich, d. h. problemspezifische Zerfallskorrekturen sind notwendig. Zusätzliche statistische Analysen der Δk -Verteilungen sowie S/U-Analysen erscheinen angeraten, v. a. wenn Unsicherheiten aus Proben mit hohem Abbrand auf Anwendungsfälle mit geringem Abbrand übertragen werden sollen, d. h. wenn die „range of applicability“ durch Extrapolationen verlassen werden muss. Insgesamt erscheint diese Methode wie

sie in /RAD 12/ beschrieben ist, für Abbrandkredit-Anwendungen deutlich weniger entwickelt und analysiert als die Sampling-Methode, die in Kap. 2.4.1.1 beschrieben ist.

2.4.2 Validierung des Kritikalitätsrechensystems

In einer zweiten aktuellen Arbeit von ORNL /SCA 12/ wird die Validierung eines Kritikalitätsrechensystems für die Anwendung im Rahmen des Abbrandkredits beschrieben. Die Analyse berücksichtigt die Aktinoide sowie die relevanten Spaltprodukte, insgesamt 28 Nuklide (plus Sauerstoff) /BRA 96/, /WAG 01/.

Majore Aktinoide /SCA 12/

Die in /SCA 12/ beschriebenen Untersuchungen zeigen, dass die Reaktivitätsbeiträge der majoren Aktinoiden auf Basis der MOX-Experimente aus dem „International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments“ (ICSBEP) /OEC 12/ kombiniert mit den proprietären französischen „Haut Taux de Combustion“ (HTC)-Experimenten /FER 06/ in Kritikalitätsanalysen grundsätzlich geeignet validierbar sind. So liegen im ICSBEP Experimente mit TSUNAMI-IP Werten von $c_k > 0,8$ gegenüber den relevanten Lageranordnungen für die majoren Aktinoiden in ausreichender Menge und Qualität vor. Mit den Informationen aus dem ICSBEP alleine, d. h. ohne die HTC-Experimente, reicht die Datenbasis nur unter bestimmten Umständen je nach Anwendungsfall aus, und insbesondere nur für hohe bzw. sehr hohe Abbrände, d. h. hohen Plutonium- und niedrigen ^{235}U -Anteil. Die UO_2 -Experimente im ICSBEP sind für die Anwendung im Rahmen des Abbrandkredit nach herkömmlicher Vorgehensweise auch bei niedrigen Abbränden ungeeignet, da die Plutoniumisotope selbst in geringer Konzentration einen signifikanten Beitrag zur Unsicherheit des Bias leisten.

Minore Aktinoide, Spaltprodukte und Strukturmaterialien /SCA 12/

Dagegen sind die minoren Aktinoiden auf rein experimenteller Basis bei der bestehenden frei verfügbaren Datengrundlage nicht validierbar. Ebenso sind die Beiträge der Spaltprodukte auf Basis der frei verfügbaren Datenbasis nicht validierbar. TSUNAMI-Sensitivitäten können zur Ableitung von Unsicherheiten des Bias verwendet werden, doch es fehlt dennoch die experimentelle Datenbasis.

Entsprechende S/U-Analysen mit dem TSUNAMI-Werkzeugsatz sowie Untersuchungen an proprietären Daten zu Spaltprodukten zeigen, dass für diese Nuklide 1,5 %

ihres Reaktivitätswerts als Abschätzung für Δk_x hinreichend konservativ für UO_2 der Anfangsanreicherung $< 5,0\%$ und Abbrände < 70 GWd/tSM ist. Diese Information muss mit dem ermittelten Bias und Unsicherheiten durch die majoren Aktinoide geeignet kombiniert werden, was aber in /SCA 12/ nicht dezidiert beschrieben ist.

Strukturmaterialien, insbesondere Absorber und auch nahe stehende Reflektoren, liefern zur Unsicherheit des Bias u. U. einen erheblich höheren Beitrag als die Spaltprodukte, und müssen ebenfalls geeignet validiert werden. Dies sollte anhand des ICSBEP Handbuchs aber in den meisten Fällen möglich sein.

3 Validierung eines Inventarberechnungssystems

3.1 Nachrechnung von Nachbestrahlungsanalysen: KENOREST v1.1

3.1.1 Verwendete Datenbasis radiochemischer Analyseproben

Die in der GRS vorhandene Datenbasis an Experimentnachrechnungen radiochemischer Analyseproben aus Druckwasserreaktoren mit dem GRS-eigenen Inventarberechnungssystem KENOREST /KIL 05/, /KIL 08/ wurde zusammengestellt und auf durchgängige Konsistenz mit der aktuellen Codeversion v1.1 /BEH 12/ überprüft. Vereinzelte Nachrechnungen die auf einer älteren Version basierten, wurden mit der Version v1.1 wiederholt. In der verwendeten Datenbasis befinden sich Messproben aus den Messprogrammen bzw. Kernreaktoren ARIANE /PRI 03/, Takahama-3 /NAK 02/, Calvert Cliffs-1 /GUE 91/, TMI-1 (Messungen am Argonne National Laboratory, ANL) /SCA 02/, Ohi-1 und Ohi-2 /SUY 11/. Daraus wurden Proben von bestrahltem Uran-dioxid mit und ohne Gadolinium im Brennstoff aus Druckwasserreaktor-Brennelementen herangezogen. Potentielle weitere in Frage kommende Proben wie z. B. zusätzliche ARIANE Proben oder auch die REBUS Probe /GYS 06/ wurden zunächst aufgrund großer Unsicherheiten in der Modellierung der Bestrahlungsgeschichten und anderer Randbedingungen nicht berücksichtigt, ebenso wenig Proben von bestrahltem MOX-Brennstoff. Tab. 3.1 fasst die einzelnen Proben der verwendeten Datenbasis mit ihren jeweils erreichten (lokalen) Abbrandwerten zusammen.

Tab. 3.1 Übersicht der mit KENOREST v1.1 nachgerechneten radiochemischen Analyseproben

Messprogramm	Probe	Abbrand [GWd/tSM]
ARIANE	GU1	60,39
Takahama-3		
	SF 95-1	14,30
	SF 95-2	24,36
	SF 95-3	35,43
	SF 95-4	36,69
	SF 95-5	30,41
	SF 96-2	18,05
	SF 96-3	30,04

Messprogramm	Probe	Abbrand [GWd/tSM]
	SF 96-4	30,74
	SF 97-2	30,73
	SF 97-3	42,17
	SF 97-4	47,03
	SF 97-5	47,25
	SF 97-6	40,79
Calvert Cliffs-1		
	87-81	27,35
	87-72	37,12
	87-63	44,34
	103-MLA098-JJ	18,68
	103-MLA098-BB	26,62
	103-MLA098-P	33,17
	106-NBD107-MM	31,40
	106-NBD107-GG	37,27
	106-NBD107-Q	46,46
Ohi-1/2		
	91E07	51,87
	89G01	22,60
	89G05	26,27
	89G03	29,91
	89G08	29,56
	89G10	37,75
TMI-1		
	A1B	44,8
	D2	44,8
	B2	50,1
	C1	50,2
	D1A4	50,5
	A2	50,6
	C3	51,3
	C2B	52,6
	B3J	53,0
	B1B	54,5
	D1A2	55,7

Damit stehen gegenwärtig insgesamt 40 einzelne Probennachrechnungen aus fünf Messprogrammen zur Verfügung. Der minimale erreichte Abbrand unter den nachgerechneten radiochemischen Analyseproben beträgt 14,30 GWd/tSM (Takahama-3 SF 95–1), der maximale Abbrand beträgt 60,39 GWd/tSM (ARIANE GU1), bei einem Mittelwert über alle Proben von 38,67 GWd/tSM. In der verwendeten Datenbasis befinden sich Messwerte für insgesamt 64 unterschiedliche Nuklide, bei einer Gesamtzahl von 1259 Einzelmesswerten. Der integrale Mittelwert von C/E über alle Einzelmessungen beträgt 0,99640, bei einer Standardabweichung von $1\sigma = 0,14058$.

3.1.2 Ergebnisse und Auswertung der Experimentnachrechnungen

In Tab. 3.2 ist eine Übersicht über die nuklidweisen Ergebnisse der Probennachrechnungen zusammengefasst. In der Spalte der Anzahl der Messproben sind diejenigen Werte unterhalb zehn mit rot markiert, Werte gleich oder größer als zwanzig sind grün hinterlegt. In der Spalte der Mittelwerte der errechneten C/E-Werte sind diejenigen Werte, die mehr als 0,1 vom Wert C/E = 1,00 abweichen, rot markiert. In der Spalte der Standardabweichung σ ist eine Farbskala von grün (geringes σ , unter 0,1) bis rot (hohes σ , über 0,1) eingetragen.

Tab. 3.2 Auswertung der errechneten C/E Werte aller verfügbaren Nuklide

Nuklid	Anzahl Messproben	Mittelwert der C/E-Werte	Standardabweichung σ C/E
¹⁰⁹ Ag	12	1,94859	0,45914
^{110m} Ag	5	1,71211	0,34103
²⁴¹ Am	40	1,05465	0,19434
^{242m} Am	31	0,72990	0,35384
²⁴³ Am	31	0,91926	0,14360
¹⁴⁴ Ce	20	1,02943	0,07728
²⁴² Cm	20	0,84050	0,17023
²⁴³ Cm	17	0,86185	0,53325
²⁴⁴ Cm	20	0,71340	0,05044
²⁴⁵ Cm	17	0,56300	0,05808
²⁴⁶ Cm	17	0,51224	0,13004
²⁴⁷ Cm	10	0,40342	0,05305
¹³³ Cs	4	1,00181	0,01326

Nuklid	Anzahl Messproben	Mittelwert der C/E-Werte	Standardabweichung σ C/E
¹³⁴ Cs	20	1,03909	0,04275
¹³⁵ Cs	10	1,02905	0,01937
¹³⁷ Cs	40	0,98136	0,05123
¹⁵¹ Eu	16	0,72898	0,17587
¹⁵² Eu	4	0,04650	0,02831
¹⁵³ Eu	16	1,08162	0,04614
¹⁵⁴ Eu	24	0,88335	0,04788
¹⁵⁵ Eu	16	0,76142	0,23254
¹⁵⁴ Gd	4	1,18555	0,31052
¹⁵⁵ Gd	16	1,01494	0,24422
¹⁵⁶ Gd	4	1,40755	0,39892
¹⁵⁷ Gd	3	0,03628	0,00825
¹⁵⁸ Gd	4	1,35471	0,32942
¹⁶⁰ Gd	2	1,71698	1,20432
⁹⁵ Mo	12	1,01357	0,04227
¹⁴² Nd	12	0,90234	0,10219
¹⁴³ Nd	35	1,02301	0,04429
¹⁴⁴ Nd	24	0,98095	0,03265
¹⁴⁵ Nd	35	1,01308	0,02273
¹⁴⁶ Nd	24	1,00742	0,00779
¹⁴⁸ Nd	35	1,00400	0,00412
¹⁵⁰ Nd	23	0,99876	0,01111
²³⁷ Np	34	1,11262	0,15504
¹⁴⁷ Pm	1	1,30750	
²³⁶ Pu	6	1,01307	0,07521
²³⁸ Pu	40	0,95567	0,10771
²³⁹ Pu	40	1,00158	0,03819
²⁴⁰ Pu	40	1,02368	0,04964
²⁴¹ Pu	40	0,96504	0,03992
²⁴² Pu	40	0,96617	0,05793
²⁴⁴ Pu	1	0,58618	
¹⁰³ Rh	13	1,08747	0,09560
¹⁰¹ Ru	12	1,02819	0,06270
¹⁰⁶ Ru	20	1,14162	0,24012

Nuklid	Anzahl Messproben	Mittelwert der C/E-Werte	Standardabweichung σ C/E
¹²⁵ Sb	20	1,66567	0,41672
⁷⁹ Se	9	1,22446	0,11211
¹⁴⁷ Sm	21	1,03328	0,20014
¹⁴⁸ Sm	10	0,93566	0,04559
¹⁴⁹ Sm	21	0,96375	0,16747
¹⁵⁰ Sm	21	1,05669	0,05395
¹⁵¹ Sm	21	1,07988	0,06116
¹⁵² Sm	21	1,29602	0,05597
¹⁵⁴ Sm	10	0,97740	0,04780
¹²⁶ Sn	9	1,33777	0,13423
⁹⁰ Sr	10	0,98990	0,06733
⁹⁹ Tc	21	1,08692	0,17843
²³² U	6	0,46513	0,36473
²³⁴ U	40	1,01817	0,09969
²³⁵ U	40	0,99740	0,05957
²³⁶ U	40	0,95390	0,02050
²³⁸ U	29	0,99815	0,00488

Die farbliche Gestaltung sollen dabei einen Eindruck bezüglich der Güte der Nachrechnungen der einzelnen Nuklidkonzentrationen im Hinblick auf Anzahl der vorhandenen Messproben (möglichst hoch), der integralen Qualität der Nachrechnungen (C/E möglichst nahe 1,00) sowie der Streuung der errechneten C/E Wertevermitteln und die Auswahl der Nuklide, die aufgrund der Güte der rechnerischen Reproduzierbarkeit (geringes σ) sinnvoll in einer Validierung betrachtet werden können, unterstützen. Zusätzlich ist die Relevanz der in Frage kommenden Nuklide für die Kritikalitätssicherheitsanalyse aufgrund ihres thermischen Neutroneneinfangquerschnitts sowie anderer Aspekte zu berücksichtigen. Dies umfasst hier v. a. die Nuklide ¹⁴³Nd, ¹⁴⁵Nd, ²³⁷Np, ²³⁸⁻²⁴²Pu, ¹⁰³Rh, ¹⁴⁹⁻¹⁵²Sm, sowie ^{234-236,238}U.

Auf Grund der Tatsache dass ein Kritikalitätsrechenverfahren mit Hilfe der frei zugänglichen Datenbasis an kritischen Benchmarkexperimenten nicht hinsichtlich der Spaltprodukte validiert werden kann, wird die Auswahl an betrachteten Nukliden im Weiteren auf die wichtigen Isotope des Uran und des Plutonium beschränkt. Diese sind in der linken Spalte von Tab. 3.2 blau hinterlegt. Auf Grundlage der derzeitigen Datenbasis von Nachrechnungen radiochemischer Analyseproben könnte zwar auch die Re-

chengenauigkeit hinsichtlich einiger Spaltprodukte wie z. B. $^{134,137}\text{Cs}$, $^{143-148,150}\text{Nd}$, $^{148-152}\text{Sm}$ und ^{154}Eu oder weiterer Aktinoide wie ^{237}Np oder das radiologisch wichtige ^{244}Cm durchgeführt werden; dies wird aber im Rahmen dieses Vorhabens nicht weiter verfolgt. Die dafür anzuwendende Methodik entspricht grundsätzlich der im Folgenden beschriebenen Vorgehensweise für U und Pu.

Die experimentellen Unsicherheiten der Messungen der Nuklidmassen sind zumeist als sehr gering von den Experimentatoren angegeben (Ausnahme: TMI-1, siehe unten) und werden hier nicht explizit berücksichtigt. Auch ist deren Belastbarkeit oft schwer einzuschätzen, wie z. B. Erfahrungen aus dem ARIANE Programm aufzeigen: Hier wurden für zahlreiche Nuklide Messungen anhand einer einzigen Probe in zwei unterschiedlichen Laboratorien durchgeführt; Messergebnisse aus beiden Laboratorien für manche dieser Nuklide liegen jedoch signifikant auseinander und decken nicht sich innerhalb der – als jeweils sehr niedrig – angegebenen Messgenauigkeiten. Die Qualität der Messungen der Labore einerseits sowie die Belastbarkeit der Genauigkeitsabschätzungen andererseits kann an dieser Stelle nicht bewertet werden. Derartige Fragestellungen sind auch innerhalb der OECD/NEA EGADSNF /OEC 11/ ein wichtiger Diskussionspunkt.

Aufgrund von Experteneinschätzung anhand der in Tab. 3.2 aufgeführten Informationen zu Mittelwert und Standardabweichung der C/E-Werte, die eine wichtige Basis für die Auswahl der validierbaren Nuklide darstellt, ist dennoch eine Bewertung der experimentellen Unsicherheiten implizit möglich. So können z. B. Nuklide, deren C/E-Werte eine hohe Standardabweichung und somit eine große Streuung aufweisen, auf dieser Basis als nicht validierbar eingestuft werden. Dagegen kann bei einer niedrigen Standardabweichung eine systematische Abweichung des errechneten vom experimentellen Wert vergleichsweise gut quantifiziert werden, was einen wichtigen Kernpunkt einer belastbaren Validierung ausmacht.

Der Anwendungsbereich der hier dargestellten Methodik zur Abbrandberücksichtigung erstreckt sich somit auf bestrahlten Urandioxid-Brennstoff aus Druckwasserreaktoren mit Abbrand zwischen 14 und 60 GWd/tSM (vgl. Datenbasis), unter Berücksichtigung der Isotope ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U , sowie ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu und ^{242}Pu (sowie Sauerstoff ^{16}O).

In einem ersten Ansatz zur Ableitung von Isotopenkorrekturfaktoren (IKF) werden für jedes betrachtete Nuklid der Mittelwert aller verfügbaren C/E-Werte sowie die jeweils

zugehörige Standardabweichung betrachtet. Die Mittelwerte bilden die beste Schätzung, um welchen Faktor die durch KENOREST v1.1 berechneten Nuklidmassen korrigiert werden müssen; dies wird in den Anwendungsbeispielen in Kap. 3.2 als Nominalkorrektur „nom“ bezeichnet. Um eine konservative bzw. sehr konservative Abschätzung zu erhalten, die in einer Kritikalitätssicherheitsanalyse verwendet werden kann, werden für reaktivitätserhöhende Nuklide zwei (2σ) bzw. drei (3σ) Standardabweichungen hinzuaddiert, und für reaktivitätsverringende Nuklide entsprechend subtrahiert.

Die daraus resultierenden Sätze von Nominal- („nom“) bzw. „ 2σ “- oder „ 3σ “-Korrekturfaktoren für die Rechenergebnisse des Inventarberechnungssystems KENOREST v1.1 sind in Tab. 3.3 zusammengefasst, wobei zum Mittelwert („nom“) auch die Standardabweichung Sigma angegeben ist. Reaktivitätserhöhende Nuklide sind fett und rot gekennzeichnet, reaktivitätsverringende Nuklide kursiv und grün.

Tab. 3.3 Aus den nachgerechneten radiochemischen Analyseproben abgeleitete Isotopenkorrekturfaktoren für KENOREST v1.1

Nuklid	C/E Mittel „nom“	Sigma σ	$M \pm 2\sigma$ „(2 σ)“	$M \pm 3\sigma$ „(3 σ)“
<i>²³⁸Pu</i>	0,95567	0,10771	0,74026	0,63255
²³⁹Pu	1,00158	0,03819	1,07795	1,11613
<i>²⁴⁰Pu</i>	1,02368	0,04964	0,92440	0,87476
²⁴¹Pu	0,96504	0,03992	1,04487	1,08479
<i>²⁴²Pu</i>	0,96617	0,05793	0,85031	0,79239
<i>²³⁴U</i>	1,01817	0,09969	0,81879	0,71910
²³⁵U	0,99740	0,05957	1,11655	1,17612
<i>²³⁶U</i>	0,95390	0,02050	0,91290	0,89239
<i>²³⁸U</i>	0,99815	0,00488	0,98838	0,98350

Es ist zu anmerken dass verringende Korrekturfaktoren ($< 1,0$) für reaktivitätserhöhende Nuklide sowie vermehrende Korrekturfaktoren ($> 1,0$) für reaktivitätsvermindernde Nuklide nicht konservativ wären und deshalb nach national und international gängigen Regelwerken nicht zulässig sind. Jedoch trifft dieser Fall, wie aus Tab. 3.3 ersichtlich, für keines der hier betrachteten Nuklide bei der Probennachrechnung mit KENOREST v1.1 bei Berücksichtigung der 2σ - oder 3σ -Korrekturen zu. Einzig der C/E Mittelwert für ²⁴¹Pu ohne konservative Berücksichtigung von mindestens einer Standardabweichung (nom) läge unterhalb von 1,0 und wäre deshalb im Sinne einer kon-

servativen Abschätzung der Zuverlässigkeit der Rechnung nicht zur Massenkorrektur anwendbar.

Statistische Verteilung

Der Shapiro-Wilk-Test /SHA 65/, /YAZ 07/ ist ein statistischer Signifikanztest, der die Hypothese überprüft, dass die zugrunde liegende Grundgesamtheit einer Stichprobe normalverteilt ist. Er basiert auf einer Varianzanalyse der Stichprobe. Die Nullhypothese nimmt an, dass eine Normalverteilung der Grundgesamtheit vorliegt. Demgegenüber unterstellt die Alternativhypothese, dass keine Normalverteilung gegeben ist. Wenn der Wert der Teststatistik W größer ist als der kritische Wert W_{krit} , wird die Nullhypothese nicht abgelehnt und es wird angenommen, dass eine Normalverteilung vorliegt. Der Test kann zum Überprüfen von univariaten Stichproben mit 3 bis 5000 Beobachtungen eingesetzt werden. Ein Vorteil dieses Tests ist, dass Mittelwert und Varianz der hypothetischen Normalverteilung vorher nicht bekannt sein müssen. Der Shapiro-Wilk-Test ist ein sog. Omnibus-Test, d. h. er ist lediglich in der Lage festzustellen, ob es eine signifikante Abweichung zur Normalverteilung gibt oder nicht. Er ist nicht im Stande zu beschreiben, in welcher Form die Abweichung auftritt. Er kann z. B. keine Aussage darüber treffen, ob die Verteilung links- oder rechtsschief ist oder ob es sich um eine endlastige Verteilung handelt. Ferner können ggf. einzelne Ausreißer das Verteilungsbild verzerren, so dass dadurch die Normalverteilungsannahme fälschlicherweise abgelehnt werden könnte.

Der Shapiro-Wilk-Test wurde in der vorliegenden Arbeit auf die jeweiligen Stichproben der nuklidweisen C/E-Werte für die neun betrachteten Nuklide angewandt. Der Stichprobenumfang N beträgt 40 für alle Nuklide außer ^{238}U , für das gegenwärtig 29 C/E-Werte vorliegen. Für einen Stichprobenumfang von $N = 40$ beträgt der kritische Testwert $W_{\text{krit}} = 0,940$, der mindestens erreicht werden muss, damit die Nullhypothese einer Normalverteilung bei einem Signifikanzniveau von $\alpha = 0,05$ gegeben ist, während er für $N = 29$ bei $W_{\text{krit}} = 0,926$ liegt /SHA 65/. In Tab. 3.4 sind die Testwerte für die neun betrachteten nachgerechneten Nuklide sowie die Entscheidung, ob bei einem Signifikanzniveau von $\alpha = 0,05$ eine Normalverteilung vorliegt, zusammengefasst.

Tab. 3.4 Shapiro-Wilk-Test auf Normalverteilung für die C/E-Werte aus der Nachrechnung radiochemischer Analyseproben mit KENOREST v1.1

Nuklid	Stichprobenumfang N	Testwert W der Teststatistik	Normalverteilt auf $\alpha = 0,05$ Ebene
^{234}U	40	0,95918	ja
^{235}U	40	0,81586	nein
^{236}U	40	0,89387	nein
^{238}U	29	0,76354	nein
^{238}Pu	40	0,87073	nein
^{239}Pu	40	0,97936	ja
^{240}Pu	40	0,92233	nein
^{241}Pu	40	0,97478	ja
^{242}Pu	40	0,89824	nein

Man erkennt in Tab. 3.4, dass nur für die Nuklide ^{234}U , ^{239}Pu und ^{241}Pu eine Normalverteilung auf der $\alpha = 0,05$ Ebene vorliegt. Während im Fall des Nuklids ^{240}Pu der kritische Testwert W_{krit} mit $W = 0,92233$ für die Annahme der Nullhypothese nur relativ knapp verfehlt wird, liegen diese Testwerte für die anderen Nuklide deutlich unterhalb des zugehörigen Werts W_{krit} , d. h. die Alternativhypothese dass keine Normalverteilung vorliegt wird angenommen.

Nähere Untersuchungen zeigen, dass im Fall des Nuklids ^{238}Pu ein einzelner Ausreißer mit $C/E = 1,4131$ die Testhypothese ablehnen lässt. Entnimmt man diesen Ausreißer aus dem Stichprobenumfang, werden auch die Ergebnisse für ^{238}Pu unter den vorliegenden Bedingungen als normalverteilt getestet. Da allerdings im Rahmen der hier durchzuführenden Validierung keine physikalischen Gründe vorliegen, den Ausreißer aus dem Datensatz zu entfernen, wird auch dieser Wert in der Validierungsdatenbasis belassen und in den folgenden Untersuchungen mit berücksichtigt. Da ^{238}Pu typischerweise einen sehr geringen Beitrag zur Gesamtreaktivität leistet, ist dies unproblematisch.

Trendanalysen

Neben den reinen Mittelwerten mit ihren Standardabweichungen wurden auch mögliche Trends der ermittelten C/E-Werte mit dem Probenabbrand untersucht. Diese

Trendanalysen sind, aufgeteilt nach Uran und Plutonium, in den folgenden beiden Abbildungen grafisch dargestellt. Jeweils mit eingezeichnet ist die nuklidweise lineare Regressionsgerade für alle Isotope (durchgezogen), ohne Berücksichtigung der individuellen experimentellen Unsicherheiten, sowie die jeweils konservativ um 2σ bzw. 3σ korrigierten Mittelwerte (gestrichelt: 2σ ; gepunktet: 3σ).

Die jeweils beobachtete Streuung der C/E-Werte und, soweit möglich, auch etwaige Trends werden anhand der spezifischen Eigenschaften der einzelnen Nuklide diskutiert und interpretiert. Abb. 3.1 beginnt mit den errechneten C/E-Werten für die Isotope des Uran in Abhängigkeit von dem erreichten Probenabbrand.

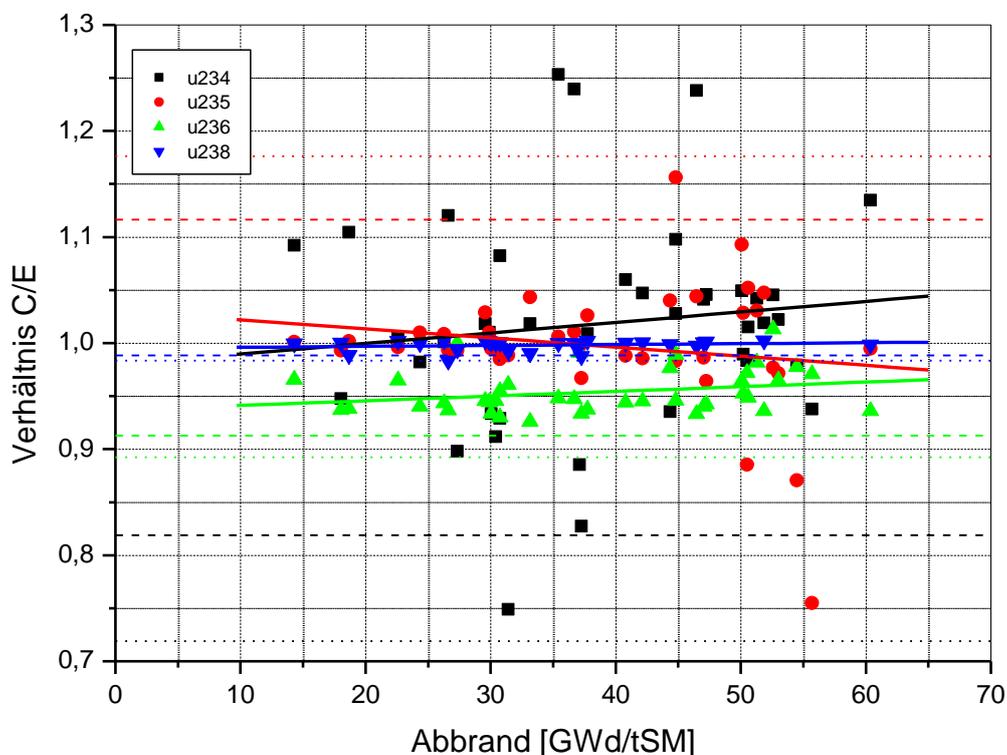


Abb. 3.1 Trendanalyse der mit KENOEST v1.1 berechneten C/E-Werte für die Isotope des Elements Uran

Man erkennt in Abb. 3.1 zunächst, dass insbesondere das häufigste Nuklid im Brennstoff, ^{238}U , nur eine geringe Steigung in den C/E-Werten und damit keinen signifikanten Trend mit dem Abbrand aufweist. Für die Abbrandrechnungen bedeutet dies u. a., dass die Neutronenspektren integral über die Bestrahlungszeit rechnerisch innerhalb der betrachteten Grenzen gut erfasst wurden.

Das reaktive Uranisotop ^{235}U zeigt einen leicht fallenden Trend mit dem Abbrand, von geringfügiger rechnerischer Überschätzung bei niedrigen Abbränden zu einer geringfügigen rechnerischen Unterschätzung bei hohen Abbränden. Die drei C/E-Werte unter 0,9 bei Abbränden zwischen ca. 50 und 55 GWd/tSM, welche den fallenden Trend maßgeblich mitbestimmen, gehören zu Proben aus dem Messprogramm TMI-1 (ANL), welches für die Messung von ^{235}U eine relativ hohe Unsicherheit von $\pm 3,7\%$ aufweist /RAD 10/.

Das thermische Neutronen absorbierende Nuklid ^{236}U zeigt einen leicht steigenden Trend, bei einer geringen Streuung der C/E-Werte und Werten fast ausnahmslos kleiner als 1,0. Dies könnte durch einen geringfügig zu hohen Neutroneneinfangquerschnitt für (n,g) in ^{235}U in der von KENOEST v1.1 verwendeten Wirkungsquerschnittsbibliothek begründet sein.

Das Isotop ^{234}U , welches für Kritikalität eine im Vergleich untergeordnete Rolle spielt, zeigt eine deutlich höhere Streuung der C/E-Werte sowie einen leicht ansteigenden Trend mit dem Abbrand. Ein Unsicherheitsfaktor bei der Entstehung dieses Isotops während der Bestrahlung, welche durch relativ selten stattfindende (n,2n)-Reaktionen aus ^{235}U sowie durch α -Zerfall aus ^{238}Pu geschieht; ist insbesondere die sehr komplexe Entstehung der Zerfallsmutter und die damit verbundenen hohen Unsicherheiten, wie im folgenden Teilabschnitt zu den Plutoniumisotopen näher erläutert wird. Die Unsicherheiten bei ^{234}U in den Nachrechnungen können auch durch die oft ungenaue Kenntnis bzw. fehlende Angabe der Konzentration an ^{234}U im frischen Brennstoff begründet sein. ^{234}U selbst besitzt relativ geringe Neutronenwirkungsquerschnitte.

Abb. 3.2 schließlich zeigt die errechneten C/E-Werte der Plutoniumisotope über dem erreichten Probenabbrand auf, zusammen mit den isotopenweisen linearen Regressionsgeraden (durchgezogen) sowie den jeweils konservativ um 2σ bzw. 3σ korrigierten Mittelwerten (gestrichelt bzw. gepunktet).

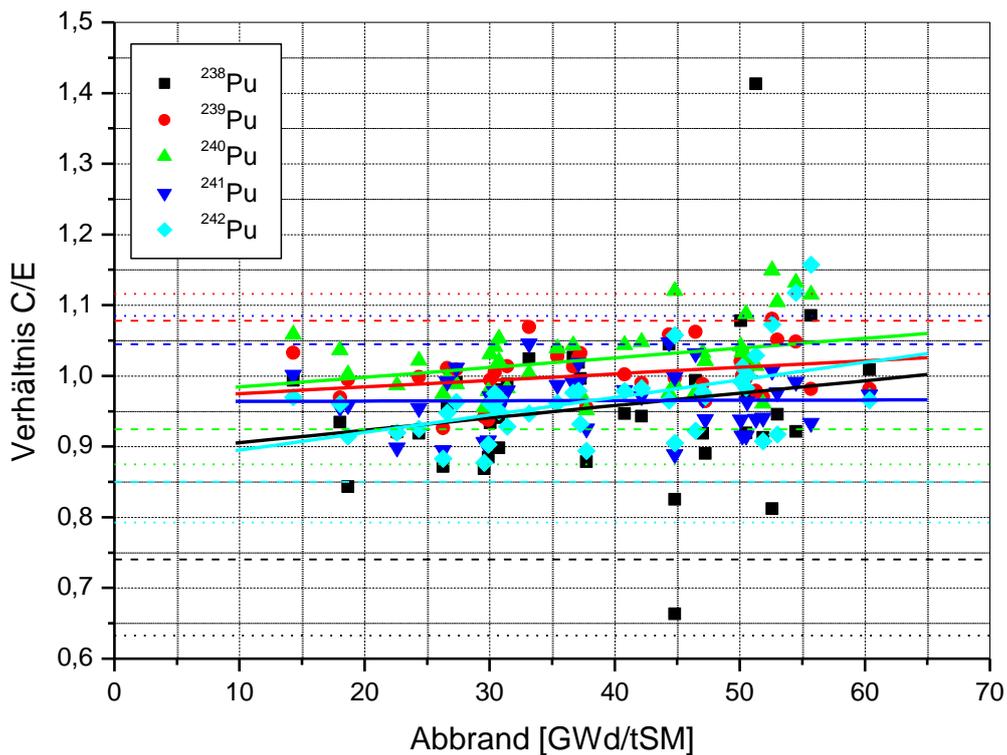


Abb. 3.2 Trendanalyse der mit KENOREST v1.1 berechneten C/E-Werte für die Isotope des Elements Plutonium

Man erkennt in Abb. 3.2, dass alle Plutoniumisotope mit Ausnahme des für Kritikalität vergleichsweise unbedeutenden Isotops ^{238}Pu eine relativ geringe Streuung in den errechneten C/E-Werten aufweisen. Die starke Streuung von ^{238}Pu dürfte durch dessen Entstehungsgeschichte während der Bestrahlung begründet sein, welche mit der Genese der übrigen Plutoniumisotope nicht in einfachem Zusammenhang steht: Es wird durch den α -Zerfall von ^{242}Cm gebildet, welches erst über komplexe Aufbauketten mit signifikanten Unsicherheiten in den involvierten, spektral teilweise sehr sensitiven Neutroneneinfangquerschnitten der zahlreichen Vorläuferelemente erzeugt wird (vgl. Abb. 1.1). Dieses Isotop sowie das hier ebenfalls wenig bedeutsame Nuklid ^{242}Pu weisen einen ansteigenden Trend auf. Beide liegen aber tendenziell unterhalb von $C/E = 1,0$ und deshalb in einem für absorbierende Nuklide konservativen Bereich. Beides könnte direkt (^{242}Pu) und indirekt (^{238}Pu über ^{242}Cm) mit einer bekannten Unterschätzung des Neutroneneinfangquerschnitts für (n,γ) von ^{241}Pu in der Querschnittsbibliothek JEF2.2 begründet sein /ROQ 03/, auf die KENOREST v1.1 für ^{241}Pu zurückgreift, was zunächst den Aufbau der höheren Aktinoiden rechnerisch reduziert.

Die ermittelten Werte C/E der reaktivitätserhöhenden Nuklide ^{239}Pu und ^{241}Pu zeigen nahezu keinen Trend über dem Abbrand, allerdings wird ^{241}Pu tendenziell eher unterschätzt, was für dieses Nuklid nichtkonservativ ist.

Das für Abbrandkredit bedeutsame, weil thermische Neutronen absorbierende Nuklid ^{240}Pu zeigt einen vergleichsweise stark ansteigenden Trend mit dem Abbrand, der zu berücksichtigen ist. Außerdem wird dessen Nuklidmasse hier tendenziell nichtkonservativ überschätzt. Eine genaue Begründung dafür kann an dieser Stelle nicht angegeben werden, beitragen könnte dazu aber ein zu niedriger (n,γ) -Einfangquerschnitt, welcher auch die oben erwähnten Unterschätzung von ^{241}Pu erklären würde. Eine Ursache für den beobachteten Trend ist möglicherweise in dem in einigen Energiebereichen spektral sehr sensitiven (n,γ) -Einfangquerschnitt von ^{239}Pu und der zunehmenden spektralen Verhärtung des Neutronenspektrums während des Abbrands begründet.

Im Folgenden wird auf dieses wichtige Isotop mit einer detaillierteren Analyse der Rechen- und Messergebnisse eingegangen, da es in dem betrachteten Nuklidsatz (außer dem die Schwermetallmasse dominierenden ^{238}U) als einziges signifikant zur Reduktion der Reaktivität beiträgt (vgl. auch Kap. 3.2.1.1). Zunächst sind in Abb. 3.3 die C/E-Werte für ^{240}Pu farblich nach den radiochemischen Analyseprogrammen aufgeschlüsselt. Die hier eingetragenen Fehlerbalken entsprechen den in der Literatur /RAD 10/, /SUY 11/ angegebenen relativen experimentellen Unsicherheiten.

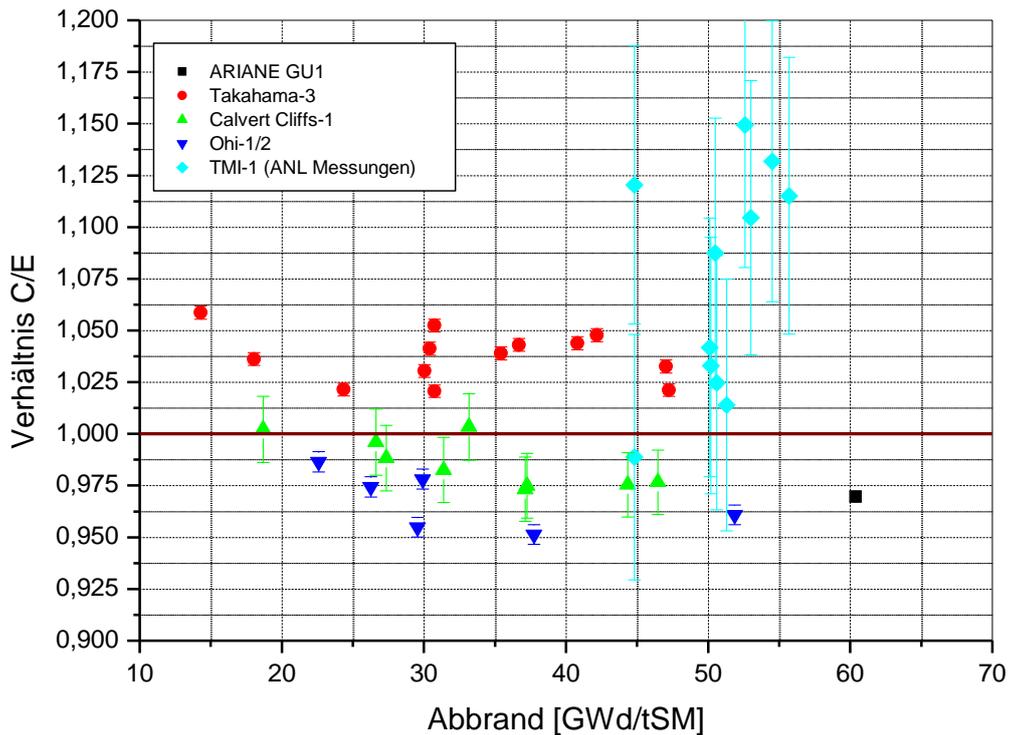


Abb. 3.3 Werte C/E für ^{240}Pu , aufgeschlüsselt nach radiochemischem Analyseprogramm

Man erkennt in Abb. 3.3 zunächst, dass insbesondere die Nachrechnungen der TMI-1 Proben zu einer deutlichen rechnerischen Überschätzung der experimentellen Werte führen. Sechs dieser Proben führen zu Werten von etwa $1,08 < C/E < 1,15$. Vier weitere sind im Bereich von etwa $1,01 < C/E < 1,04$, und ein Wert liegt bei etwa 0,98. Alle Proben aus TMI-1 liegen in einem Abbrandbereich von etwa 45 bis 55 GWd/tSM. Sie weisen mit bis zu $\pm 6\%$ eine deutlich höhere relative experimentelle Unsicherheit auf als alle übrigen hier dargestellten Messpunkte. Die anderen Plutonium-Isotope weisen bei TMI-1 eine ähnlich hohe Unsicherheit auf, jedoch sind dort eine geringere mittlere Abweichung sowie kein so ausgeprägter, von den Messpunkten aus diesem Programm

dominierter Trend erkennbar³. In die jeweiligen linearen Regressionen (vgl. Abb. 3.2) sind diese relativen experimentellen Unsicherheiten wie oben bereits erwähnt nicht eingegangen.

Die Werte für ²⁴⁰Pu aus den Nachrechnungen der Proben aus Takahama-3 liegen sämtlich im Bereich von etwa $1,02 < C/E < 1,06$ und zeigen somit eine geringfügige systematische Überschätzung der experimentellen Werte; deren experimentelle Messunsicherheit ist mit $< 0,3 \%$ sehr niedrig angegeben. Die Werte der Proben aus Calvert Cliffs-1 liegen etwa im Bereich von $0,973 < C/E < 1,003$ bei einer angegebenen Unsicherheit von $\pm 1,6 \%$, und zeigen tendenziell eine geringfügige Unterschätzung der experimentellen Werte. Eine etwas deutlichere Unterschätzung zeigen die Werte für die Proben aus Ohi-1 und -2 ($\pm 0,5 \%$) und von ARIANE GU1 ($\pm 0,26 \%$), die alle im Bereich von etwa $0,95 < C/E < 0,98$ liegen.

Mit Ausnahme der sechs eingangs erwähnten Proben aus TMI-1 oberhalb von $C/E > 1,08$ streuen die Werte insgesamt nach optischer Einschätzung etwa gleichverteilt im Bereich von $\pm 0,05$ um den Wert $C/E = 1,0$. Diese sechs Proben, die bei einem Stichprobenumfang von insgesamt 40 einen Anteil von 15% ausmachen und auf einen relativ schmalen Abbrandbereich konzentriert sind, bestimmen somit den ansteigenden Trend der Gesamtheit der C/E-Werte wesentlich mit. Bei der reinen Mittelwertbildung erhöhen diese aus der Gesamtheit herausstechenden Einzelwerte auch die Standardabweichung deutlich, so dass sie auch ohne explizite Trendberücksichtigung grundsätzlich in die Analyse und die Bildung der Korrekturfaktoren mit einfließen.

Auf Basis dieser Überlegungen wird eine Isotopenkorrektur auf Basis von 2σ und insbesondere 3σ für ²⁴⁰Pu letztlich dennoch als konservativ und belastbar für den gesamten Anwendungsbereich eingeschätzt.

³ Es ist anzumerken, dass in der in /RAD 10/ dokumentierten Probennachrechnung mit SCALE 5.1 (TRITON, NITAWL, V5-44 Multigruppenquerschnitte) für die Proben aus TMI-1 eine ähnlich hohe rechnerische Überschätzung von ²⁴⁰Pu gegenüber den experimentellen Daten beschrieben ist. Für die anderen Plutonium-Isotope sowie die Isotope des Uran ist ein solcher Effekt ebenfalls erkennbar, doch deutlich weniger ausgeprägt als für ²⁴⁰Pu. Der relevante Probenstab NJ05YU war bei der Bestrahlung neben einem Stab mit abbrennbarem Absorber im Brennelement positioniert, was in die Modellierung zusätzliche Unsicherheiten einbringt.

3.2 Anwendungsbeispiele in Kritikalitätsanalysen

Um die Verwendung und den Effekt der im vorigen Kapitel abgeleiteten, unterschiedlich konservativen Isotopenkorrekturfaktorsätze zu demonstrieren, werden im Folgenden drei unterschiedliche bestrahlte DWR-Brennstoffe jeweils in zwei verschiedenen generischen Lageranordnungen analysiert. Für die Betrachtung exemplarischer Anwendungsbeispiele werden drei Anreicherungs- und Abbrandkombinationen herangezogen: 3,65 % und 40 GWd/tSM sowie 4,45 % und 55 GWd/tSM als Beispiele für erreichte Zielabbrände, sowie 4,65 % und 12 GWd/tSM⁴ als Beispiel für einen in Deutschland für die Zwischenlagerung erforderlichen Mindestabbrand bei Anreicherungen über 4,05 % hinaus. Die betrachtete Abklingzeit der bestrahlten Brennstoffe beträgt jeweils fünf Jahre nach Bestrahlungsende. Die im Folgenden für diese Nuklidinventare verwendeten Nomenklaturen lauten selbsterklärend 365 – 40, 445 – 55 sowie 465 – 12. Die expliziten Kernzahldichten sind in Anhang A wiedergegeben.

Als generische Lageranordnungen werden ausführlich ein generisches Brennelement-Lagerbecken zur Nasslagerung (Kap. 3.2.1) sowie in geringerer Detailtiefe ein generischer Transport- und Zwischenlagerbehälter (Kap. 3.2.2) untersucht. Letzterer wird unter Störfallbedingungen, d. h. als mit reinem Wasser geflutet betrachtet. Als Kritikalitätsrechenverfahren kommen hier die Sequenzen CSAS5 (KENO-Va; Lagerbecken) bzw CSAS6 (KENO-VI; Behältermodell) aus dem Codepaket SCALE 6.1.2 /SCA 11/ unter Linux mit V7-238 Multigruppenquerschnitten zum Einsatz.

3.2.1 Generisches DWR Brennelement-Lagerbecken

Als erstes Anwendungsbeispiel wird ein generisches Brennelement-Lagerbecken untersucht. Es ist repräsentativ für Lagerbecken mit Lagergestell in Kompaktbauweise, und hier mit einem ebenfalls repräsentativem 16 x 16-20 DWR-Brennelement besetzt. Im Kühlmittel wird 0 ppm Bor unterstellt (vollständige Deborierung). Die Borstahlbleche des inneren Brennelement-Kastens enthalten 1,6 Gew.-% Bor, der äußere Kasten ist unboriert. Da in erster Linie die Auswirkung der Validierung des Inventarberechnungssystems auf den Multiplikationsfaktor demonstriert werden soll, ist die Berücksichtigung

⁴ Der Wert von 12 GWd/tSM liegt geringfügig außerhalb des in Kap. 3.1.2 definierten Anwendungsbereichs von 14 bis 60 GWd/tSM. Die dort gezeigten Trendanalysen und die 2 σ bzw. 3 σ basierten Korrekturfaktoren deuten aber an, dass diese geringe Extrapolation gerechtfertigt werden kann.

axialer Abbrandprofile in Z-Richtung an dieser Stelle nicht erforderlich. Zur Bestimmung von k_{eff} wurden jeweils 1 600 Generationen, von denen die ersten 100 Generationen nicht in die k_{eff} -Bestimmung einbezogen werden, mit jeweils 20 000 Neutronen verfolgt. Die dadurch erreichte Standardabweichung liegt typischerweise im Bereich von $(1 \sigma_{\text{CSAS}}) = 0,00014$. Eine exemplarische SCALE Eingabedatei für dieses Rechenmodell ist in Anhang B wiedergegeben. Abb. 3.4 zeigt einen Querschnitt durch die Einheitszelle des Rechenmodells, das durch reflektierende Randbedingungen ein unendlich ausgedehntes Gitter an Brennelement-Positionen repräsentiert.

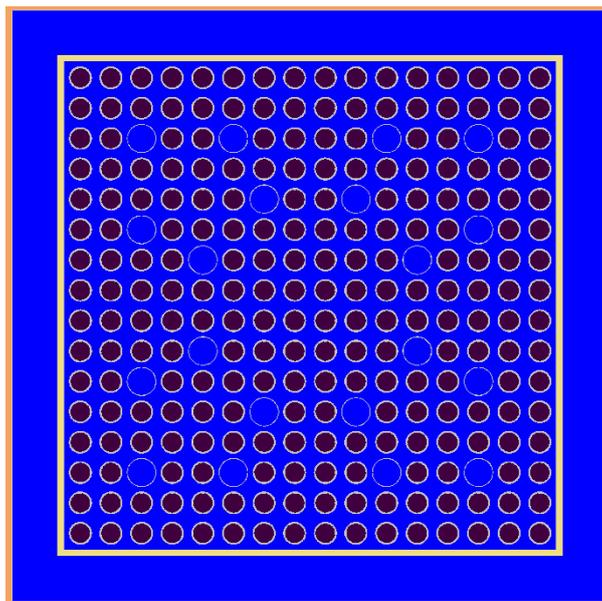


Abb. 3.4 Querschnitt durch das exemplarische Rechenmodell für ein generisches Lagerbecken für Druckwasserreaktor-Brennelemente

In Tab. 3.5 sind die berechneten Multiplikationsfaktoren k_{eff} für unbestrahlten Brennstoff mit den hier betrachteten Anreicherungen zusammengefasst, hier ohne Korrektur durch die Validierung des Kritikalitätscodes.

Tab. 3.5 Berechnete Multiplikationsfaktoren k_{eff} für das generische Brennelement-Lagerbecken, beladen mit unbestrahltem Brennstoff

Anreicherung % ^{235}U	Multiplikationsfaktor k_{eff}	Standardabweichung $1 \sigma_{\text{CSAS}}$
3,65	0,91598	0,00015
4,45	0,95335	0,00014
4,65	0,96154	0,00014

Man sieht in Tab. 3.5, dass die berechneten Multiplikationsfaktoren für die Anreicherungen 4,45 % und 4,65 % über dem zulässigen Grenzwert von 0,95 liegen. Hier kann also die Anwendung von Abbrandkredit eine Möglichkeit sein, die modellierten Brennelemente in dieses generische Lagerbecken einzubringen, wie im Folgenden demonstriert wird. Für 3,65 % Anreicherung liegt k_{eff} dieser Anordnung auch für unbestrahlten Brennstoff unterhalb von 0,95, dennoch wird dieser Fall hier ebenfalls mit analysiert um den Effekt der Reaktivitätsminderung aufzuzeigen.

Als Ausgangspunkt wurden mit dem zu Grunde liegenden Inventarberechnungssystem OREST/KENOREST Version 1.1 die Isotopenkonzentrationen der Nuklide ^{234,235,236,238}U und ²³⁸⁻²⁴²Pu für die Anreicherungs- und Abbrandkombinationen 365 – 40, 445 – 55 sowie 465 – 12 bestimmt. Die relevanten Abbrandparameter wie Brennstofftemperatur, Borgehalt im Kühlmittel, usw. wurden im Rahmen ihrer physikalisch-technisch sinnvollen Wertebereiche so gewählt, dass es konservativ zu einer maximalen Verhärtung des Neutronenspektrums kommt.

Die so erhaltenen Inventare, im Folgenden als „db“ (direkt berechnet) bezeichnet, werden mit den jeweiligen **Isotopenkorrekturfaktoren** „nom“ (Nominalkorrektur), „2 σ “ und „3 σ “ multipliziert, vgl. Tab. 3.3, so dass anschließend für jede Anreicherungs- und Abbrandkombination vier unterschiedliche Nuklidinventare vorliegen. Deren Anwendung und ihre Auswirkungen sind in Kap. 3.2.1.1 beschrieben und diskutiert.

Kann auch mit diesem abdeckenden Abbrandkredit-Verfahren der administrative Grenzwert $k = 0,95$ nicht eingehalten werden, ist es zulässig, übermäßige Konservativitäten zu reduzieren. Dazu wird über das genannte Verfahren der IKF hinaus als Alternative die Methode des **Monte Carlo Sampling** in drei Varianten demonstriert. Bei der ersten Variante werden die Konzentrationen aller Nuklide durch Sampling ermittelt, wobei eine Normalverteilung mit dem Erwartungswert „nom“ (also der Nominalkorrektur der jeweiligen Nuklidmasse) sowie der Standardabweichung dieses Mittelwerts als Standardabweichung der Verteilung unterstellt wird. Bei den anderen beiden Varianten wird eine Gleichverteilung unterstellt, mit $\text{nom} \pm 2 \sigma$ bzw. $\text{nom} \pm 3 \sigma$ als Intervallgrenzen. Die Anwendung dieser Verfahren und ihre Auswirkungen sind in Kap. 3.2.1.2 beschrieben und diskutiert.

In Kap. 3.2.1.3 alle erzielten Ergebnisse einander gegenüber gestellt.

3.2.1.1 Anwendung konservativer Isotopenkorrekturfaktoren

Die im vorhergehenden Kapitel beschriebenen Nuklidinventare der drei Anreicherungs- und Abbrandkombinationen sowie der vier Korrekturvarianten (unkorrigiert „db“, Nominalkorrektur „nom“ sowie „2 σ “ und „3 σ “) werden zusammen mit Sauerstoff ^{16}O als Brennstoff in das oben beschriebene Rechenmodell des generischen Brennelement-Lagerbeckens übertragen. Die damit berechneten Neutronenmultiplikationsfaktoren k_{eff} sind in der folgenden Tab. 3.6 zusammengefasst.

Tab. 3.6 Berechnete Multiplikationsfaktoren k_{eff} für das generische Brennelement-Lagerbecken unter abdeckenden Abbrandkredit-Annahmen

Inventar	k_{eff} „db“	k_{eff} „nom“	k_{eff} „2 σ “	k_{eff} „3 σ “
365 – 40	0,73724	0,73571	0,76186	0,77414
4455 – 5	0,73685	0,73479	0,76159	0,77385
4651 – 2	0,90671	0,90628	0,92808	0,93800

Die Standardabweichungen σ_{MC} der einzelnen Monte Carlo-Kritikalitätsrechnungen liegen zwischen 0,00012 (445 – 55, 2 σ) und 0,00015 (465 – 12, 3 σ). In einer konservativen Analyse wird zu den in Tab. 3.6 aufgeführten Werten von k_{eff} der Wert von drei Standardabweichungen σ_{CSAS} , hier also $3 \times \sigma_{\text{CSAS}} = 3 \times 0,00015 = 0,00045$, hinzuaddiert, um auch diese statistische Unsicherheit abdeckend zu berücksichtigen. Der höchste in der Tabelle aufgeführte Wert von k_{eff} für das Inventar 465 – 12 würde sich somit auf $k_{\text{eff}} = 0,93845$ erhöhen und läge damit – vorbehaltlich einer noch zu ergänzenden Validierung des Kritikalitätscodes, vgl. Kap. 4 – noch unter dem zulässigen Grenzwert von $k = 0,95$. Als Ergebnis sieht man, dass die Kreditierung eines Abbrands von 12 GWd/tSM bei einer Konservativität von „3 σ “ in den errechneten Nuklidkonzentrationen es erlaubt, auch diese Brennelemente bei entsprechend erreichtem (Mindest-) Abbrand in das Lagergestell einzubringen, was auf Basis der Reaktivität unbestrahlten Brennstoffs dieser Anreicherung unzulässig wäre.

Es ist bemerkenswert, dass der nominalkorrigierte Wert von k_{eff} sogar unterhalb des Werts auf Basis der direkt verwendeten Nuklidmassen liegt. Ursache dafür ist der nominalkorrigierte Wert der Masse des reaktiven Isotops ^{241}Pu , der ohne zusätzliche σ -Korrektur mit etwa 0,965 deutlich unterhalb 1,0 liegt (vgl. Tab. 3.3) und somit die Gesamtreaktivität, je nach Höhe des Abbrands, signifikant reduziert.

Reaktivitätsbeiträge der einzelnen Nuklide

Um abzuschätzen welchen Einfluss die einzelnen errechneten Nuklidkonzentrationen auf die Multiplikationsfaktoren ausüben, wurden die Reaktivitätsbeiträge der Nuklide auf k_{eff} bestimmt. Hierzu wurden die Kritikalitätsrechnungen unter Vernachlässigung der Kernzahldichte jeweils eines Nuklids wiederholt, und die Differenz zum Nominalfall mit allen Nukliden (nicht zu verwechseln mit der Nominalkorrektur) berechnet. Diese Analyse wurde auf die Inventare mit 2σ und 3σ Isotopenkorrektur beschränkt. Die errechneten Reaktivitätsbeiträge zum Multiplikationsfaktor sind als $\% \Delta k/k$ in Abb. 3.5 aufgetragen. Eine Vernachlässigung des Isotops ^{238}U , das über 95 % der gesamten Schwermetallmasse ausmacht, wurde hierbei nicht in Betracht gezogen.

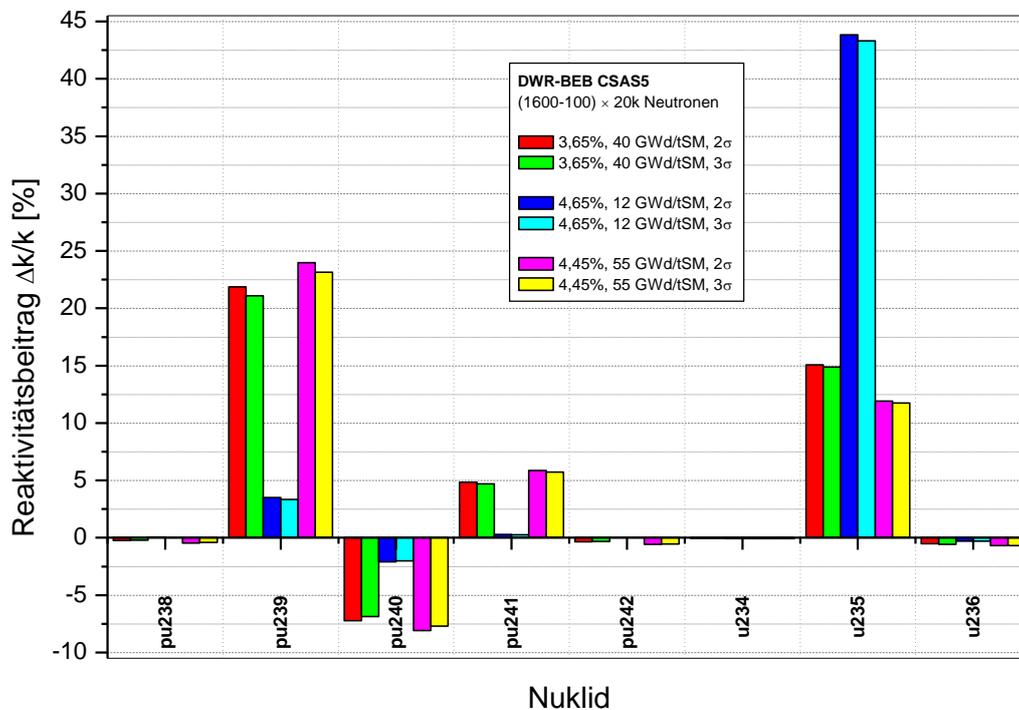


Abb. 3.5 Reaktivitätsbeiträge der betrachteten Nuklide zum Multiplikationsfaktor k_{eff} für das Anwendungsbeispiel „generisches Lagerbecken“

Man erkennt in Abb. 3.5, dass für alle betrachteten Anreicherungs- und Abbrandkombinationen die Nuklide ^{235}U , ^{239}Pu , ^{240}Pu und für die beiden höheren Abbrandwerte auch ^{241}Pu einen signifikanten (positiven oder negativen) Beitrag zur Reaktivität leisten. Dagegen liegen in allen Fällen die Beiträge von ^{234}U , ^{236}U , ^{238}Pu und ^{242}Pu , sowie von ^{241}Pu bei dem niedrigen Abbrandwert unterhalb von 1 % $\Delta k/k$. Der Beitrag der Plutoni-

umisotope ist umso größer je höher der Abbrand ist, während der bei dem niedrigen Abbrand noch fast alleiniger dominierender Beitrag des ^{235}U entsprechend sinkt. Dieses Verhalten ist durch den Aufbau höherer Aktinoide sowie den Verbrauch von ^{235}U während des Abbrandverlaufs bedingt.

Man erkennt ebenso, dass ^{240}Pu das einzige Isotop ist, dessen Effekt – neben dem abbrandbedingten Nettoverlust thermisch spaltbarer Nuklide – signifikant zur Verringerung des Multiplikationsfaktors im bestrahlten Brennstoff beiträgt.

Sensitivität von k_{eff} auf den Abbrandwert

Ein Bestandteil der Abschätzung von Unsicherheiten in Kritikalitätsanalysen mit Abbrandkredit ist die Berücksichtigung der Unsicherheit in der Angabe des angegebenen Abbrands. Um den Einfluss dieser Unsicherheit direkt in eine Unsicherheit von k_{eff} zu übersetzen, wurden für die Nuklidinventare 365 – 40, 445 – 55 und 465 – 12 die Abbrandrechnungen 2x wiederholt, je einmal mit einem um 2 % erhöhtem und einem um 2 % verringerten Abbrand. Die resultierenden Inventare wurden mit der Korrektur 3σ multipliziert und die sich ergebenden Multiplikationsfaktoren mit dem entsprechenden Nominalwert, also dem auf dem 3σ -korrigierten Inventar des jeweils mittleren Abbrands, verglichen. Um die mittlere Standardabweichung von $\sigma_{\text{CSAS}} = 0,00013$ in k_{eff} aus den hier zu Grunde liegenden Monte Carlo Rechnungen geeignet zu berücksichtigen, wurde die mittlere quadratische Summe von zwei Standardabweichungen, also entsprechend

$$\sqrt{(2\sigma_{\text{CSAS}})^2 + (2\sigma_{\text{CSAS}})^2} = \sqrt{8} \times 0,00013 \approx 0,00037 \quad (3.1)$$

konservativ zu der errechneten Differenz Δk der Multiplikationsfaktoren addiert. Die resultierenden Differenzen der Multiplikationsfaktoren sind in Tab. 3.7 als Δk , $\Delta k/\Delta(\text{GWd/tSM})$ bzw. $\Delta k/(\% \text{Abbrand})$ für das verwendete Codesystem (Inventarcode plus Kritikalitätscode) und das gewählte Modell des generischen Brennelement-Lagerbeckens zusammengefasst.

Tab. 3.7 Modellabhängige Sensitivität des errechneten Multiplikationsfaktors k_{eff} auf die Genauigkeit des erreichten Abbrands

Nuklidinventar	$\Delta k + 0,00037$	$\Delta k / \Delta(\text{GWd/tSM})$	$k / (\% \text{Abbrand})$
365 – (40+2 %)	-0,00242	0,00353	0,00141
365 – (40-2 %)	+0,00287		
445 – (55+2 %)	-0,00316	0,00304	0,00167
445 – (55-2 %)	+0,00333		
465 – (12+2 %)	-0,00108	0,00585	0,00070
465 – (12-2 %)	+0,00139		

Man erkennt in Tab. 3.7, dass die problemabhängige Sensitivität von k_{eff} auf die Genauigkeit der Angabe des Abbrands v. a. vom Absolutwert des Abbrands selbst, und deutlich weniger auch von der Anfangsanreicherung abhängt. Dies bedeutet dass das qualitativ entscheidende Kriterium der resultierende Restspaltstoffgehalt ist, zusammen mit der entstandenen Menge an Absorbern (v. a. ^{240}Pu). So ist die Sensitivität von k_{eff} auf die Abbrandgenauigkeit bei hoher Anreicherung und niedrigem Abbrand (vgl. 465 – 12) in diesem Anwendungsbeispiel etwa viermal so hoch wie bei vergleichbarer Anreicherung aber hohem Abbrand (vgl. 445 – 55). Bei anderen Kritikalitätsrechenmodellen dürften die Zahlenwerte deutlich variieren, qualitativ sind aber ähnliche Zusammenhänge zu erwarten.

Seed-Studie

Bei den Rechnungen mit der SCALE-Sequenz CSAS5 handelt es sich selbst um einen statistischen Prozess mit einer Standardabweichung in k_{eff} pro Einzelrechnung. Um die Gültigkeit der Verteilung der Stichproben zu überprüfen, ist es deshalb erforderlich, eine ansonsten identische Rechnung hinreichend oft mit unterschiedlichen Startzahlen (Seed) für den Zufallszahlengenerator durchzuführen.

Dies wurde hier exemplarisch anhand der drei betrachteten Anreicherungs- und Abbrandkombinationen mit der 3σ -Korrektur für jeweils einhundert unterschiedliche Seed-Zahlen durchgeführt. In Tab. 3.8 sind der Mittelwert der so berechneten Multiplikationsfaktoren k_{eff} , dessen Standardabweichung σ sowie der Mittelwert der Standardabweichungen σ_{CSAS} der einhundert einzelnen Monte Carlo Rechnungen zusammengefasst.

Tab. 3.8 Variation der Startzufallszahl für die drei betrachteten Anreicherungs- und Abbrandkombinationen mit der 3 σ -Isotopenkorrektur in dem generischen Lagerbecken

Anreicherungs-/ Abbrandkombination %-GWd/tSM	Mittelwert k_{eff}	Standardabweichung σ des Mittelwerts	Mittelwert der Standardabweichungen σ_{CSAS}
36 – 540	0,774040	0,000124	0,000128
445 – 55	0,773976	0,000126	0,000127
465 – 12	0,937773	0,000143	0,000137

Aus der Tabelle wird ersichtlich, dass die Standardabweichungen der Mittelwerte und die zugehörigen Mittelwerte der einzelnen Standardabweichungen gut übereinstimmen. Somit ist gewährleistet, dass die Standardabweichung der Einzelrechnungen hinreichend gut die Verteilung der einzelnen Stichproben repräsentiert.

3.2.1.2 Monte Carlo Sampling Verfahren

Aus der Validierung des Inventarberechnungssystems nach der in Kap. 3.1 beschriebenen Methode erhält man nuklidweise Isotopenkorrekturfaktoren (IKF) in Form von Mittelwerten der jeweiligen C/E Werte (IKF_{nom}) sowie der zugehörigen Standardabweichungen. Im vorhergehenden Abschnitt ist die Anwendung dieser IKF durch eine feste Korrektur des Mittelwerts um 2 σ oder 3 σ in die für das entsprechende Nuklid konservative Richtung beschrieben. Dies kann je nach Anwendungsfall zu übermäßig konservativen Ergebnissen in dem daraus resultierenden Multiplikationsfaktor k_{eff} führen.

Eine andere Möglichkeit, die Information aus IKF_{nom} und σ zu nutzen besteht darin, die dem Stichprobenumfang für jedes Nuklid zugrunde liegende Verteilungsdichtefunktion zu bestimmen. Dies kann z. B. eine Normalverteilung mit IKF_{nom} als Schätzwert und σ als zugehöriger Standardabweichung sein, oder eine Gleichverteilung mit IKF_{nom} als Mittelwert und $\pm 2 \sigma$ oder $\pm 3 \sigma$ als Intervallgrenzen. Die Wahl kann nuklidweise getroffen werden, je nach entsprechendem Stichprobenumfang und der z. B. mittels Shapiro-Wilk-Test ermittelten Information ob eine Normalverteilung vorliegt oder nicht /RAD 12/, vgl. auch Kap. 3.1.2.

Als nächster Schritt wird bei der Monte Carlo Sampling Methode ein hinreichend großer Stichprobenumfang auf Basis der nuklidweisen Verteilungsdichtefunktionen heran-

gezogen, d. h. „gewürfelt“, und die so stochastisch ermittelten Nuklidinventare werden in das Kritikalitätsrechensystem überführt. Je nach Modellkomplexität und Rechenzeitbedarf werden auf dieser Basis mehrere hundert (zur Ermittlung des empirischen, nichtparametrischen 95 %-Quantils mindestens 59 /WRI 99/, /SOL 04/) Einzelrechnungen mit dem Kritikalitätsrechensystem durchgeführt. Daraus ergibt sich der Mittelwert k_{MCS} und je nach resultierender Verteilungsfunktion z. B. eine Standardabweichung σ_{MCS} ⁵ für den Multiplikationsfaktor des betrachteten Kritikalitätsmodells sowie dessen aus der Inventarbestimmung resultierenden Unsicherheit.

Zu Demonstrationszwecken wurden mehrere Varianten dieser Methode auf Basis des oben beschriebenen und in Abb. 3.4 dargestellten Modells des generischen Brennelement-Lagerbeckens durchgeführt. Zum Vergleich wurden drei Varianten an Verteilungsdichtefunktionen für die betrachteten Isotope unterstellt:

- a) jeweils alle Isotope normalverteilt mit dem Mittelwert der C/E-Werte als Erwartungswert und dessen 1σ als Standardabweichung.
- b) jeweils alle Isotope gleichverteilt mit $\pm 2 \sigma$ Intervallgrenzen um den Mittelwert.
- c) jeweils alle Isotope gleichverteilt mit $\pm 3 \sigma$ Intervallgrenzen um den Mittelwert.

Da es sich hierbei lediglich um eine Darstellung der Methodik und – im Rahmen der vorliegenden Arbeit – nicht um den Versuch einer quantitativen Validierung auf dieser Basis handelt, wurde eine stochastische Variation der Nuklidmassen auf Basis der individuellen Verteilungsfunktionen zur Reduktion des Aufwands an dieser Stelle nicht durchgeführt. Um dadurch belastbare Ergebnisse zu erzielen, ist eine tiefgehende Analyse aller C/E-Werte, Verteilungsdichtefunktionen und einseitige als auch beidseitige Ausreißer erforderlich, die den Rahmen und die Zielsetzung der vorliegenden Arbeit übersteigen würde. Ziel der Analyse war es vielmehr, potentielle Differenzen in dem resultierenden Wert von k_{eff} aufgrund der unterstellten Annahmen qualitativ und soweit sinnvoll auch quantitativ zu erfassen. Letzteres ist wiederum von dem betrachteten Kritikalitätsmodell abhängig. Untersucht wurden wiederum die drei bereits zuvor analysierten Anreicherungs- und Abbrandkombinationen 365 – 40, 445 – 55 sowie 465 – 12.

⁵ Nicht zu verwechseln mit der Standardabweichung σ_{CSAS} einer einzelnen Kritikalitätsrechnung oder der Standardabweichung σ aus der Bestimmung der Isotopenmassen.

Die Ziehung der Stichproben für die Isotopenmassen in den drei Fällen, die Überführung der „gewürfelten“ Nuklidinventare in das Kritikalitätsmodell sowie die Auswertung und Analyse erfolgten geschlossen mit Hilfe des GRS-eigenen Werkzeugs SUnCISTT /BEH 14/ zur Durchführung von Unsicherheits- und Sensitivitätsanalysen im Anwendungsfeld des Abbrandkredits. In allen neun Analysen wurde ein Stichprobenumfang von fünfhundert in die Auswertung einbezogen. Ermittelt wurde jeweils der Mittelwert der auf den „gewürfelten“ Inventaren basierenden Multiplikationsfaktoren, k_{MCS} , sowie dessen Standardabweichung σ_{MCS} .

In den folgenden Unterabschnitten Kap. 3.2.1.2.1 und Kap. 3.2.1.2.2 sind die Ergebnisse für die unterstellten Verteilungsdichtefunktionen dargestellt, und in Kap. 3.2.1.2.3 zusammengefasst und diskutiert. In den Abbildungen rot mit eingezeichnet ist, wo sinnvoll, die auf der Annahme einer Normalverteilung basierende Fitfunktion.

3.2.1.2.1 Normalverteilung für alle betrachteten Isotope

In den folgenden Abbildungen sind die Histogramme der errechneten k_{eff} -Werte der jeweils 500 Stichproben für die Nuklidinventare 365 – 40, 445 – 55 und 465 – 12 dargestellt, jeweils für eine Normalverteilung mit dem Mittelwert der C/E-Werte der eingehenden Nuklidmassen als Erwartungswert und deren Standardabweichung σ als Sigma stochastisch variiert („gewürfelt“) wurden.

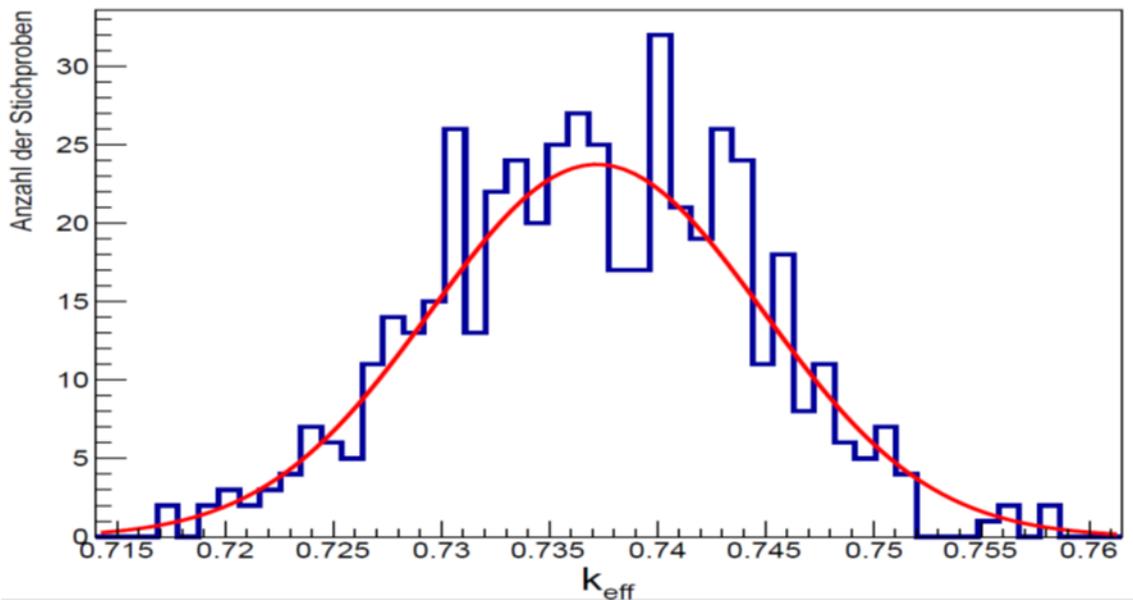


Abb. 3.6 Verteilung der errechneten Werte für k_{eff} für 500 Stichproben des Inventars 365 - 40 bei stochastischer Variation aller Nuklidmassen unter Annahme von Normalverteilungen

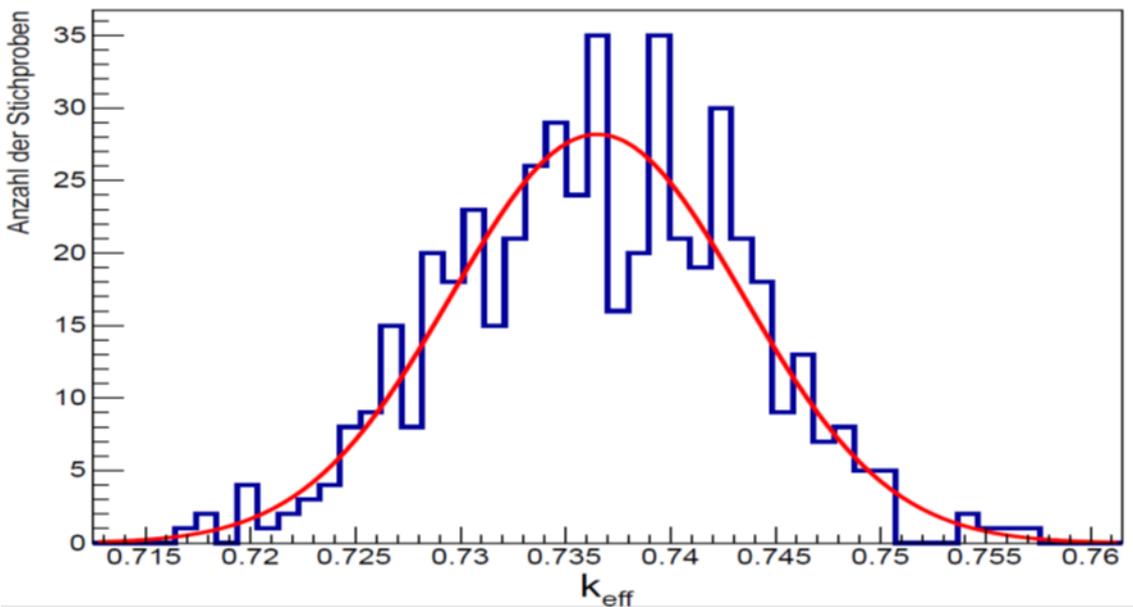


Abb. 3.7 Verteilung der errechneten Werte für k_{eff} für 500 Stichproben des Inventars 445 – 55 bei stochastischer Variation aller Nuklidmassen unter Annahme von Normalverteilungen

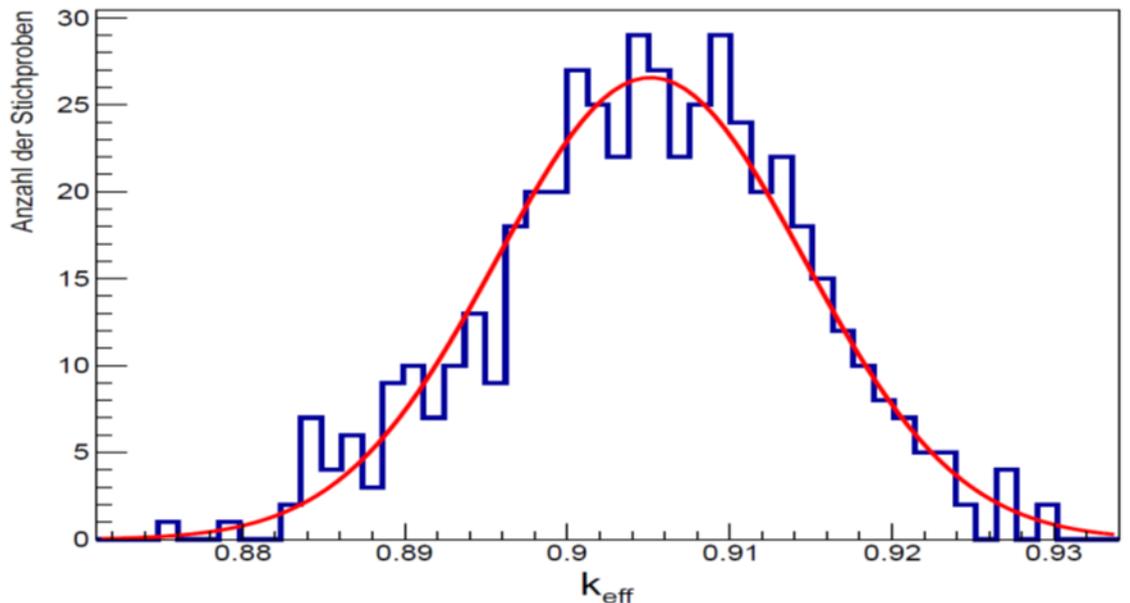


Abb. 3.8 Verteilung der errechneten Werte für k_{eff} für 500 Stichproben des Inventars 465 – 12 bei stochastischer Variation aller Nuklidmassen unter Annahme von Normalverteilungen

3.2.1.2.2 Gleichverteilung mit $\pm 2 \sigma$ bzw. $\pm 3 \sigma$ Intervallbreite für alle betrachteten Isotope

In den folgenden Abbildungen sind die Histogramme der errechneten k_{eff} -Werte der jeweils 500 Stichproben für die Nuklidinventare 365 – 40, 445 – 55 und 465 – 12 dargestellt, jeweils für eine Gleichverteilung der eingehenden Nuklidmassen, die stochastisch in einem $\pm 2 \sigma$ bzw. $\pm 3 \sigma$ Intervall um den Mittelwert der C/E-Werte variiert („gewürfelt“) wurden.

Es ist zu beachten, dass im Fall der $\pm 2 \sigma$ Intervallgrenzen eine ganze Reihe von C/E-Werten unterschiedlicher Nuklide der Experimentnachrechnungen außerhalb der Intervallgrenzen liegen. Das bedeutet dass die Annahme dieser Grenzen im Fall der vorliegenden Datenbasis mathematisch nicht geeignet ist und deshalb hier nicht zu einer belastbaren Validierung führt. Einzig zur Demonstration des prinzipiellen Vorgehens und zur quantitativen Abschätzung der Auswirkung auf den Mittelwert der errechneten Multiplikationsfaktoren wird diese Rechenserie durchgeführt. Erst bei Annahme der $\pm 3 \sigma$ Intervallgrenzen kommt es nur noch zu wenigen singulären Ausreißern von C/E-Werten, so dass diese Vorgehensweise als gangbar angesehen werden kann.

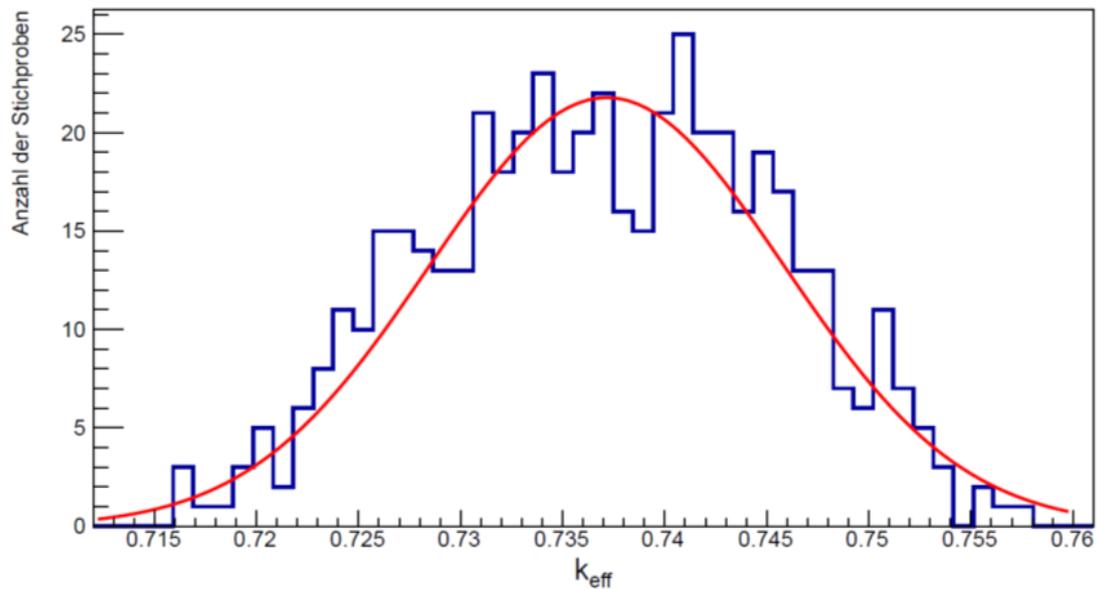


Abb. 3.9 Verteilung der errechneten Werte für k_{eff} für 500 Stichproben des Inventars 365 – 40 bei stochastischer Variation aller Nuklidmassen bei Gleichverteilung innerhalb eines $\pm 2 \sigma$ Intervalls

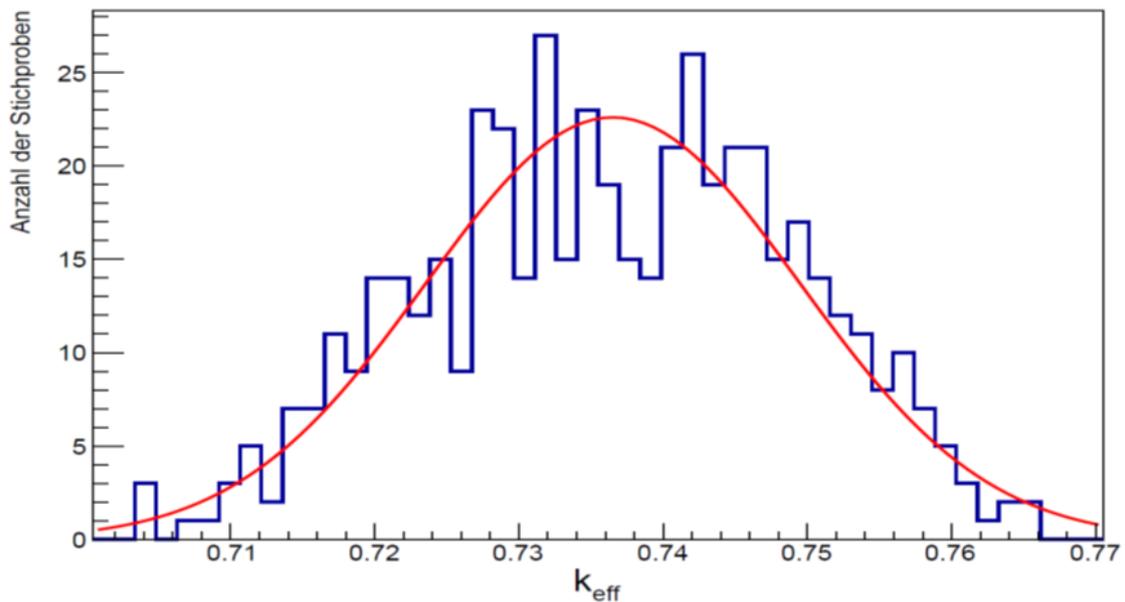


Abb. 3.10 Verteilung der errechneten Werte für k_{eff} für 500 Stichproben des Inventars 365 – 40 bei stochastischer Variation aller Nuklidmassen bei Gleichverteilung innerhalb eines $\pm 3 \sigma$ Intervalls

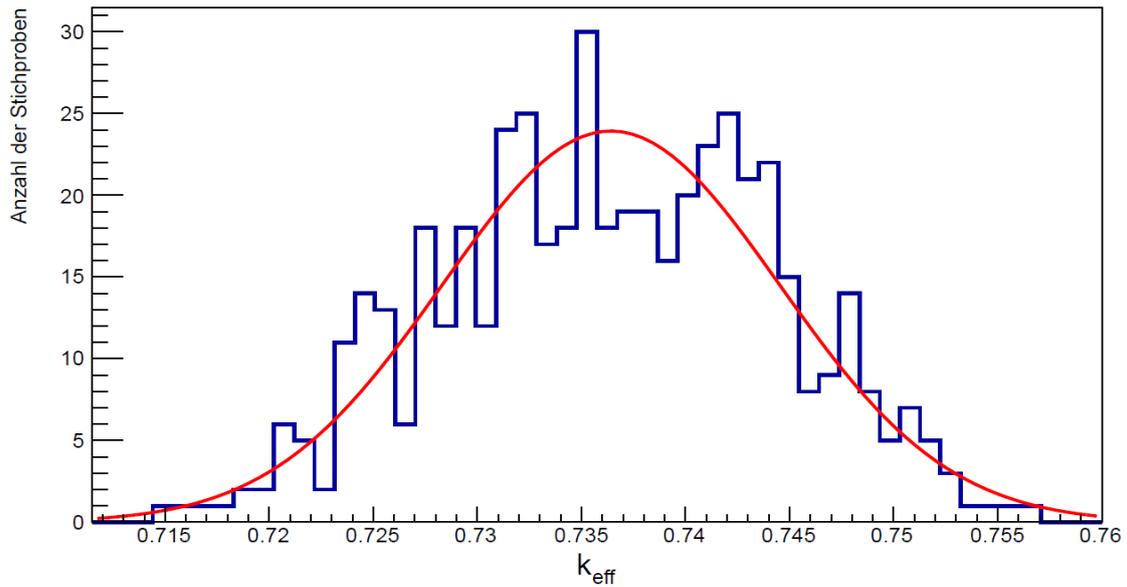


Abb. 3.11 Verteilung der errechneten Werte für k_{eff} für 500 Stichproben des Inventars 445 – 55 bei stochastischer Variation aller Nuklidmassen bei Gleichverteilung innerhalb eines $\pm 2 \sigma$ Intervalls

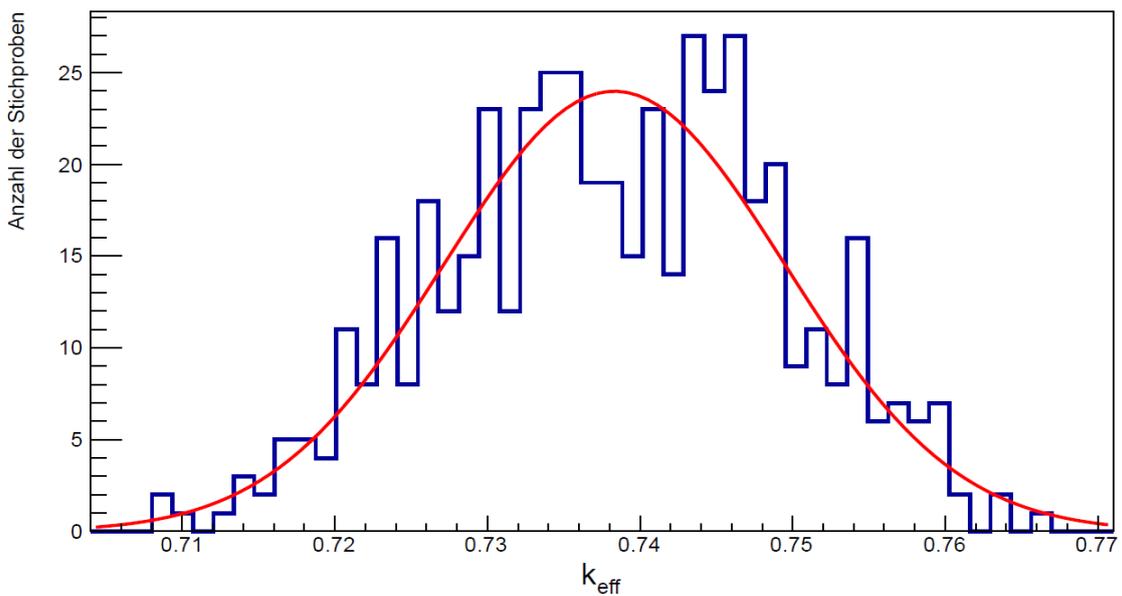


Abb. 3.12 Verteilung der errechneten Werte für k_{eff} für 500 Stichproben des Inventars 445 – 55 bei stochastischer Variation aller Nuklidmassen bei Gleichverteilung innerhalb eines $\pm 3 \sigma$ Intervalls

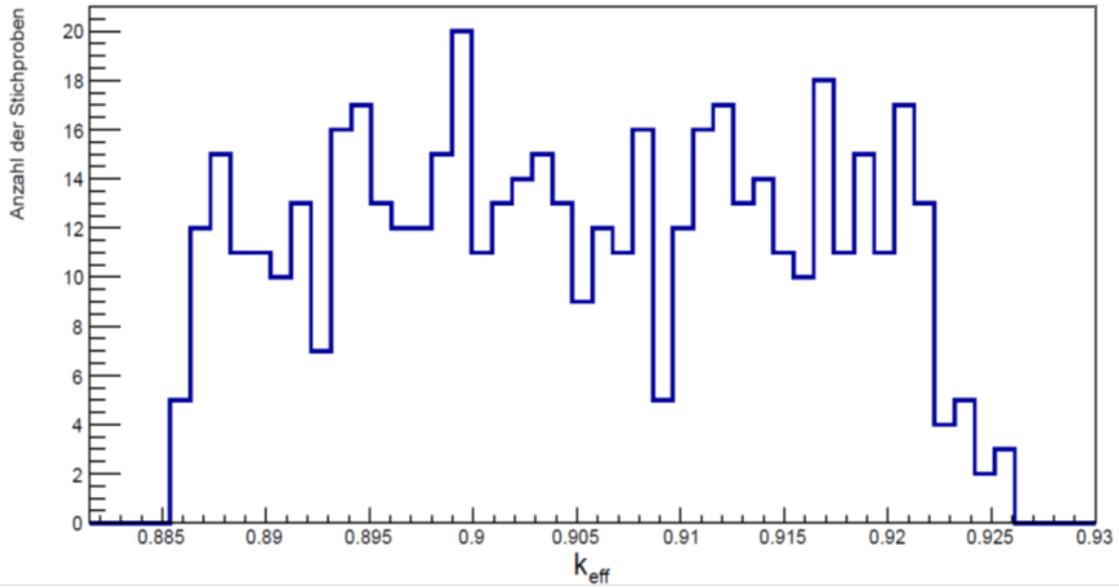


Abb. 3.13 Verteilung der errechneten Werte für k_{eff} für 500 Stichproben des Inventars 465 – 12 bei stochastischer Variation aller Nuklidmassen bei Gleichverteilung innerhalb eines $\pm 2 \sigma$ Intervalls

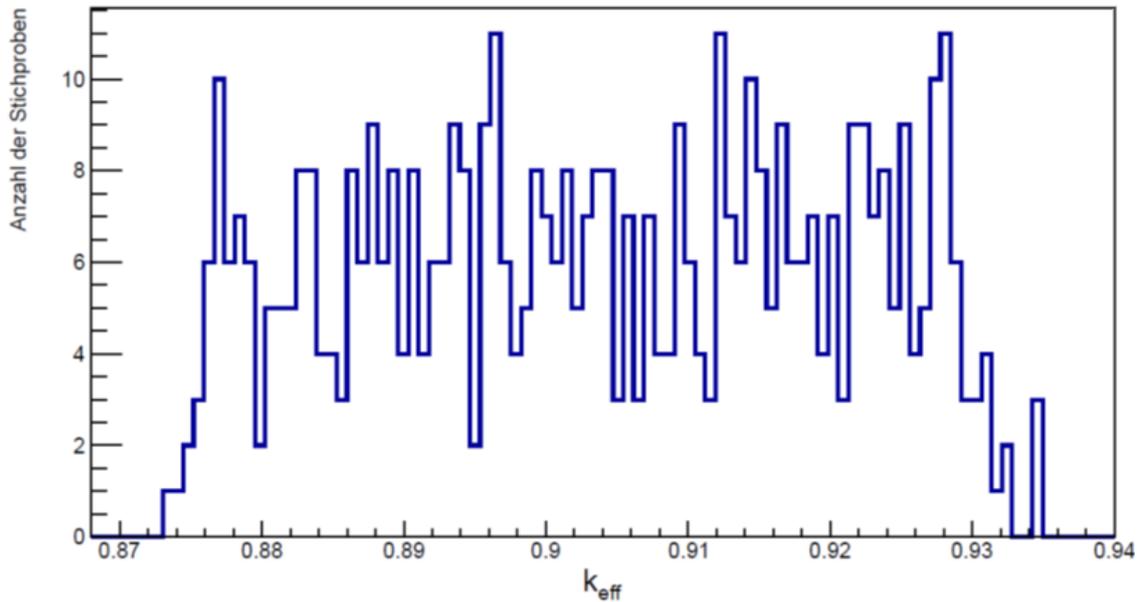


Abb. 3.14 Verteilung der errechneten Werte für k_{eff} für 500 Stichproben des Inventars 465 – 12 bei stochastischer Variation aller Nuklidmassen bei Gleichverteilung innerhalb eines $\pm 3 \sigma$ Intervalls

3.2.1.2.3 Diskussion der Ergebnisse für die unterschiedlichen Annahmen zu den Verteilungsdichtefunktionen

Aus allen Analysen, bei denen die stochastisch ausgewählten Eingangsparameter nach einer Normalverteilung ermittelt wurden, ergibt sich hier näherungsweise eine Normalverteilung für die resultierenden Multiplikationsfaktoren k_{MCS} . Auch in den Analysen zu den Nuklidinventaren 365 – 40 und 445 – 55, bei denen die Eingangsparameter entsprechend einer Gleichverteilung ermittelt wurden, können die Verteilungen der Multiplikationsfaktoren k_{MCS} durch eine Normalverteilung angenähert werden.

Ein davon abweichendes Verhalten zeigen die Monte Carlo Sampling Analysen auf Basis von gleichverteilten Nuklidmassen bei dem Inventar 465 – 12. Hier weisen die resultierenden Werte für k_{eff} annähernd eine Gleichverteilung mit leichten abflachenden Ausläufern an den beiden Flanken auf. Dieses Verhalten ist verständlich aufgrund von Abb. 3.5, die die Reaktivitätsbeiträge der einzelnen Nuklide zum Multiplikationsfaktor für das jeweilige Nuklidinventar aufzeigt. Im Fall der Zusammensetzung 465 – 12 wird k_{eff} überwiegend durch das Isotop ^{235}U dominiert, während alle anderen Isotope eine demgegenüber untergeordnete Rolle spielen. Folglich resultiert eine gleichverteilte stochastische Variation der Masse von ^{235}U nahezu direkt in eine Gleichverteilung der Stichproben für k_{eff} .

Das bedeutet letzten Endes, dass in diesem Fall die Wahl der Eingangsverteilung eines einzelnen Parameters nahezu direkt die Verteilung des Antwortparameters bestimmt. Folglich kann dann bereits durch eine einfache Variation dieses einen Parameters die Unsicherheit der resultierenden Ergebnisgröße k_{eff} näherungsweise abgeschätzt werden, so dass die Monte Carlo Sampling Technik in einer solchen Situation keine wesentlich weitergehenden Informationen über das Gesamtsystem liefert. Mit anderen Worten, der Aufwand dieser Methode liefert für dieses Nuklidinventar, namentlich diesen geringen Abbrand, gegenüber einer einfachen Parameterstudie keinen nennenswerten Mehrwert.

Für eine bessere Vergleichbarkeit der stochastischen Variationen auf den drei betrachteten Nuklidinventaren wurden zusätzlich zu den Standardabweichungen der k_{eff} -Werte auch für alle Fälle die empirischen, nichtparametrisierten 95%/95 % und 99%/99 % Toleranzlimits bestimmt. Letztere sind allgemeingültiger und für die weitergehende Analyse weniger von der vorliegenden Verteilung abhängig.

In Tab. 3.9 sind die errechneten Mittelwerte k_{MCS} und deren Standardabweichungen σ_{MCS} sowie die 95 %/95 % Toleranzlimits k_{95} und 99 %/99 % Toleranzlimits k_{99} zusammengefasst.

Tab. 3.9 Mittelwerte, Standardabweichungen σ_{MCS} der Multiplikationsfaktoren k_{MCS} sowie empirische 95 %/95 % und 99 %/99 % Toleranzlimits von k_{eff} für die betrachteten Nuklidinventare bei unterschiedlichen stochastischen Variationen der eingehenden Nuklidmassen

Nuklidinventar	Normalverteilung um Mittelwert, σ	Gleichverteilung im Intervall $\pm 2 \sigma$	Gleichverteilung im Intervall $\pm 3 \sigma$
365 – 40	k_{MCS} 0,7370 σ_{MCS} 0,007246 k_{95} 0,74837 k_{99} 0,75187	k_{MCS} 0,7369 σ_{MCS} 0,008374 k_{95} 0,75063 k_{99} 0,75351	k_{MCS} 0,7365 σ_{MCS} 0,01260 k_{95} 0,75694 k_{99} 0,76133
445 – 55	k_{MCS} 0,7365 σ_{MCS} 0,006915 k_{95} 0,74756 k_{99} 0,75058	k_{MCS} 0,7365 σ_{MCS} 0,007991 k_{95} 0,74888 k_{99} 0,75244	k_{MCS} 0,7383 σ_{MCS} 0,01098 k_{95} 0,75551 k_{99} 0,75983
465 – 12	k_{MCS} 0,9051 σ_{MCS} 0,009459 k_{95} 0,92007 k_{99} 0,92699	k_{MCS} 0,9049 σ_{MCS} 0,01081 k_{95} 0,92136 k_{99} 0,92385	k_{MCS} 0,9038 σ_{MCS} 0,01633 k_{95} 0,92800 k_{99} 0,93176

Die Tabelle zeigt zunächst, dass für jedes zu Grunde liegende Nuklidinventar der Mittelwert k_{MCS} unabhängig von der gewählten Verteilungsfunktion der Eingangsparameter im Rahmen der statistischen Signifikanz identisch ist. Dies ist zu erwarten, da alle betrachteten Verteilungsfunktionen für jeden Parameter symmetrisch um dessen Mittelwert sind.

Man erkennt, dass die Ergebnisgrößen $k_{MCS} + 2 \sigma_{MCS}$ etwas größer als die 95 %/95 % Toleranzlimits sind und damit qualitativ das zu erwartenden Verhalten bei einem Stichprobenumfang von 500 durchgeführten Rechnungen aufweisen. Weiterhin ist zu beobachten, dass die Standardabweichung σ_{MCS} bei allen Nuklidinventaren im Fall der normalverteilten Eingangsparameter am geringsten ist, gefolgt von derjenigen der $\pm 2 \sigma$ Intervall-Gleichverteilung und dann der $\pm 3 \sigma$ Intervall-Gleichverteilung. Auch dieses Verhalten ist aus mathematischen Gründen zu erwarten.

3.2.1.3 Vergleich der unterschiedlichen Verfahren

In Tab. 3.10 sind für die drei Anreicherungs- und Abbrandkombinationen mittels unterschiedlicher Monte Carlo Sampling Varianten auf den Eingangsparametern ermittelten Multiplikationsfaktoren den durch konservative konstante Isotopenkorrekturfaktoren (2σ und 3σ) bestimmten Werten $k_{\text{eff}} \pm 3\sigma_{\text{MC}}$ vergleichend gegenübergestellt.

Tab. 3.10 Vergleich der mittels Isotopenkorrekturfaktoren und Monte Carlo Sampling Techniken ermittelten Multiplikationsfaktoren k_{eff} für das generische Brennelement-Lagerbecken

Validierungsverfahren	365 – 40	445 – 55	465 – 12
MCS, Normalverteilung, $k_{\text{MCS}} + 2\sigma_{\text{MCS}}$	0,75149	0,75033	0,92402
MCS, Normalverteilung, Empirisches 95 % Toleranzlimit k_{95}	0,74837	0,74756	0,92007
MCS, Normalverteilung, Empirisches 99 % Toleranzlimit k_{99}	0,75187	0,75058	0,92699
MCS, Gleichverteilung Intervall $\pm 2\sigma_{\text{Isotop}}$, $k_{\text{MCS}} + 2\sigma_{\text{MCS}}$	0,75365	0,75238	0,92652
MCS, Gleichverteilung Intervall $\pm 2\sigma_{\text{Isotop}}$, Empirisches 95 % Toleranzlimit k_{95}	0,75063	0,74888	0,92136
MCS, Gleichverteilung Intervall $\pm 2\sigma_{\text{Isotop}}$, Empirisches 99 % Toleranzlimit k_{99}	0,75351	0,75244	0,92385
MCS, Gleichverteilung Intervall $\pm 3\sigma_{\text{Isotop}}$, $k_{\text{MCS}} + 2\sigma_{\text{MCS}}$	0,76170	0,76026	0,93646
MCS, Gleichverteilung Intervall $\pm 3\sigma_{\text{Isotop}}$, Empirisches 95 % Toleranzlimit k_{95}	0,75694	0,75551	0,92800
MCS, Gleichverteilung Intervall $\pm 3\sigma_{\text{Isotop}}$, Empirisches 99 % Toleranzlimit k_{99}	0,76133	0,75983	0,93176
Konstante Isotopenkorrekturfaktoren, Konservativität $2\sigma_{\text{Isotop}}$, $k_{\text{eff}} + 3\sigma_{\text{CSAS}}$	0,76231	0,76204	0,92853
Konstante Isotopenkorrekturfaktoren, Konservativität $3\sigma_{\text{Isotop}}$, $k_{\text{eff}} + 3\sigma_{\text{CSAS}}$	0,77459	0,77430	0,93845

Man erkennt, dass für die Anreicherungs- und Abbrandkombinationen 365 – 40 und 445 – 55 die konstanten Isotopenkorrekturfaktoren mit 3σ Konservativität zu den höchsten Multiplikationsfaktoren für das generische Brennelement-Lagerbeckenmodell

und somit zur höchsten Konservativität führen. Dagegen ergeben bei diesen beiden höheren Abbränden die Monte Carlo Sampling Technik auf Basis normalverteilter Eingangparameter die niedrigsten Multiplikationsfaktoren und führen somit zur stärksten Reduktion der Konservativität.

Auch der Vergleich der empirischen nichtparametrisierten Toleranzlimits 95 %/95 % k_{95} und insbesondere 99 %/99 % k_{99} bei stochastischer Variation der Nuklidmassen auf Basis von Gleichverteilungen in den Intervallen $\pm 3 \sigma_{\text{Isotop}}$ zeigt, dass durch dieses Verfahren ebenfalls noch Konservativitäten gegenüber den konstanten Isotopenkorrekturfaktoren reduziert werden können. Quantitativ ist dieser Befund jedoch in Abhängigkeit vom Abbrand unterschiedlich stark ausgeprägt. Bei dem Nuklidinventar 365 – 40 beträgt der in Unterschied in den k_{eff} -Werten $\Delta k = 0,01326$ und bei dem Nuklidinventar 445 – 55 $\Delta k = 0,01447$.

Im Fall des Nuklidinventars 465 – 12 zeigen der Wert k_{99} und der Multiplikationsfaktor auf Basis konstanter Isotopenkorrekturfaktoren mit $3 \sigma_{\text{Isotop}}$ Konservativität eine geringere Differenz von $\Delta k = 0,00669$. Dieses ist eine Folge des Samplings auf einem Parametersatz, in dem die Antwort, hier also den Multiplikationsfaktor k_{eff} , wesentlich durch einen einzelnen Parameter dominiert wird. In diesem Fall können sich die Auswirkungen der Variationen der verschiedenen Parameter auf den Multiplikationsfaktor k_{eff} in geringerem Maß kompensieren, was zu einer entsprechend geringeren Reduzierung der Konservativität führt.

Es wird an dieser Stelle noch einmal daran erinnert, dass das Vorgehen mittels der $\pm 2 \sigma$ Intervall-Gleichverteilung im vorliegenden Fall aufgrund der bestehenden Datenbasis nicht zu einer belastbaren Validierung führt. Auch wurden in dieser Studie die C/E-Werte der Nuklide nicht eingehend hinsichtlich ihrer wahren Verteilungsfunktionen untersucht, und dementsprechend nicht gemäß ihrer individuellen Verteilung stochastisch variiert. Deshalb sind die Analysen auf Basis der Monte Carlo Sampling Methode, vor allem bei Unterstellung einer Normalverteilung der C/E-Werte für alle Nuklide, an dieser Stelle lediglich als prinzipielle Demonstration der Methodik zu verstehen. Die Anwendung der konstanten Isotopenkorrekturfaktoren insbesondere mit der 3σ Konservativität ist dagegen bereits hier als belastbar anzusehen.

3.2.2 Generischer Transport- und Zwischenlagerbehälter

Als zweites Anwendungsbeispiel wird der Einfluss der Isotopenkorrekturfaktoren aufgrund der Validierung des Inventarberechnungssystems in geringerer Detailtiefe zusätzlich an dem Rechenmodell eines generischen Transport- und Zwischenlagerbehälters für Druckwasserreaktor-Brennelemente, als DBB19 bezeichnet, demonstriert. Beladen ist das Behältermodell mit 19 Brennelementen mit einem 18 x 18 – 24 Querschnitt. In Abb. 3.15 ist ein Querschnitt durch das Rechenmodell des Behälters für die Rechensequenz CSAS6 aus SCALE 6.1.2 dargestellt.

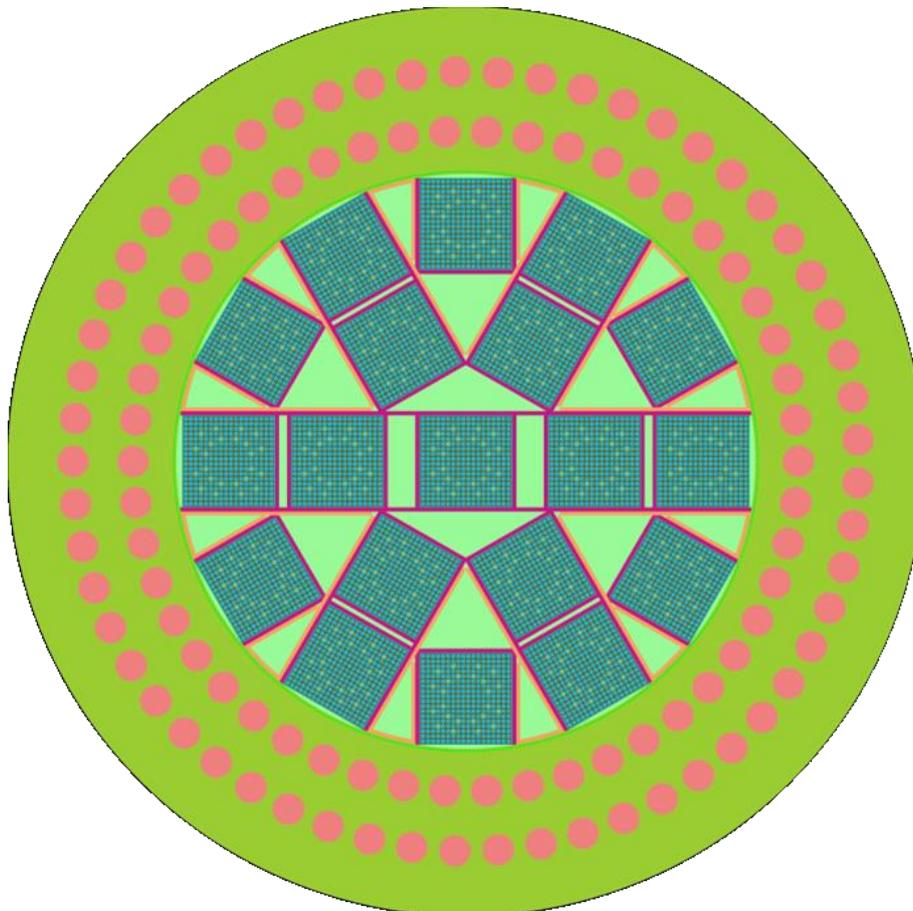


Abb. 3.15 Querschnitt durch das exemplarische Rechenmodell für einen generischen Transport- und Zwischenlagerbehälter DBB19 für Druckwasserreaktor-Brennelemente

In Bezug auf die betrachteten Nuklidinventare und Isotopenkorrekturen werden dieselben Definitionen, Nomenklaturen und Randbedingungen wie in Kap. 3.2.1 beschrieben verwendet. In diesem Anwendungsfall werden jedoch nur konservative Isotopenkorrekturfaktoren betrachtet, die Methode des Monte Carlo Sampling wird nicht angewandt.

Die Bezeichnung σ_{CSAS} bezieht sich auf die Standardabweichung von k_{eff} aus der CSAS6 Monte Carlo Rechnung. Zur Bestimmung von k_{eff} werden in diesem Modell 1 600 Generationen, von denen die ersten 100 Generationen für die k_{eff} -Bestimmung verworfen werden, mit je 50 000 Neutronen verfolgt. Die dadurch erreichte Standardabweichung von k_{eff} lag typischerweise im Bereich von $(1 \sigma_{CSAS}) = 0,00010$ und darunter.

In Tab. 3.11 sind die errechneten Neutronenmultiplikationsfaktoren k_{eff} für die Annahme unbestrahlten Brennstoffs der drei Anreicherungen sowie mit den oben definierten Abbränden und Isotopenkorrekturen zusammengefasst.

Tab. 3.11 Berechnete Multiplikationsfaktoren k_{eff} für das generische Transport- und Zwischenlagerbehältermodell bei unterschiedlichen Beladungen und Isotopenkorrekturen

Nuklidinventar	k_{eff}	σ_{CSAS}	$k_{eff} + 3\sigma_{CSAS}$
3,65 % unbestrahlt	0,917011	0,000099	0,917308
365 – 40 (db)	0,737759	0,000079	0,737996
365 – 40 (2s)	0,761841	0,000084	0,762093
365 – 40 (3s)	0,773944	0,000085	0,774199
365 – 40 (nom)	0,735974	0,000081	0,736217
4,45 % unbestrahlt	0,952610	0,000100	0,952910
445 – 55 (db)	0,736536	0,000083	0,736785
445 – 55 (2s)	0,760943	0,000080	0,761183
445 – 55 (3s)	0,773274	0,000078	0,773508
445 – 55 (nom)	0,734865	0,000086	0,735123
4,65 % unbestrahlt	0,960070	0,000100	0,960370
465 – 12 (db)	0,905432	0,000097	0,905723
465 – 12 (2s)	0,925530	0,000100	0,925830
465 – 12 (3s)	0,935001	0,000091	0,935274
465 – 12 (nom)	0,904911	0,000094	0,905193

Man erkennt in der Tabelle Tab. 3.11, dass der errechnete Multiplikationsfaktor für das generische Behältermodell bei Beladung mit unbestrahltem Brennstoff der Anreicherungen 4,45 % und darüber den administrativen Grenzwert von $k_{eff} = 0,95$ nicht einhalten kann (rot markierte Zahlenwerte). Dieses Kriterium wird dagegen bei 4,65 % Anreicherung und einem Abbrand von 12 GWd/tSM mit $k_{eff} + 3 \sigma_{CSAS} = 0,935274$ eingehalten.

ten (grün markierter Zahlenwert), selbst bei der Einschränkung des Nuklidinventars auf Uran- und den Plutoniumisotope und unter Anwendung der sehr konservativen 3σ -Isotopenkorrektur aus der Validierung des Inventarberechnungssystems. Letztere bewirkt gegenüber der Rechnung auf Basis des direkt ermittelten Nuklidinventars („db“) eine Erhöhung des berechneten Multiplikationsfaktors um etwa 3 % $\Delta k/k$.

Ähnlich wie bei dem generischen Lagerbecken liegen auch hier die auf nominalkorrigierten Inventaren basierenden Multiplikationsfaktoren geringfügig unterhalb den auf Basis der korrespondierenden unkorrigierten Inventare errechneten Multiplikationsfaktoren.

Reaktivitätsbeiträge der einzelnen Nuklide

Um auch für das generische Behältermodell DBB19 abzuschätzen, welchen Reaktivitätsbeitrag die einzelnen betrachteten Nuklide zum berechneten Multiplikationsfaktor leisten, wurde hier die gleiche Vorgehensweise wie in Kap. 3.2.1 für das Brennelement-Lagerbecken beschrieben angewandt. Die Ergebnisse sind in Abb. 3.16 grafisch dargestellt.

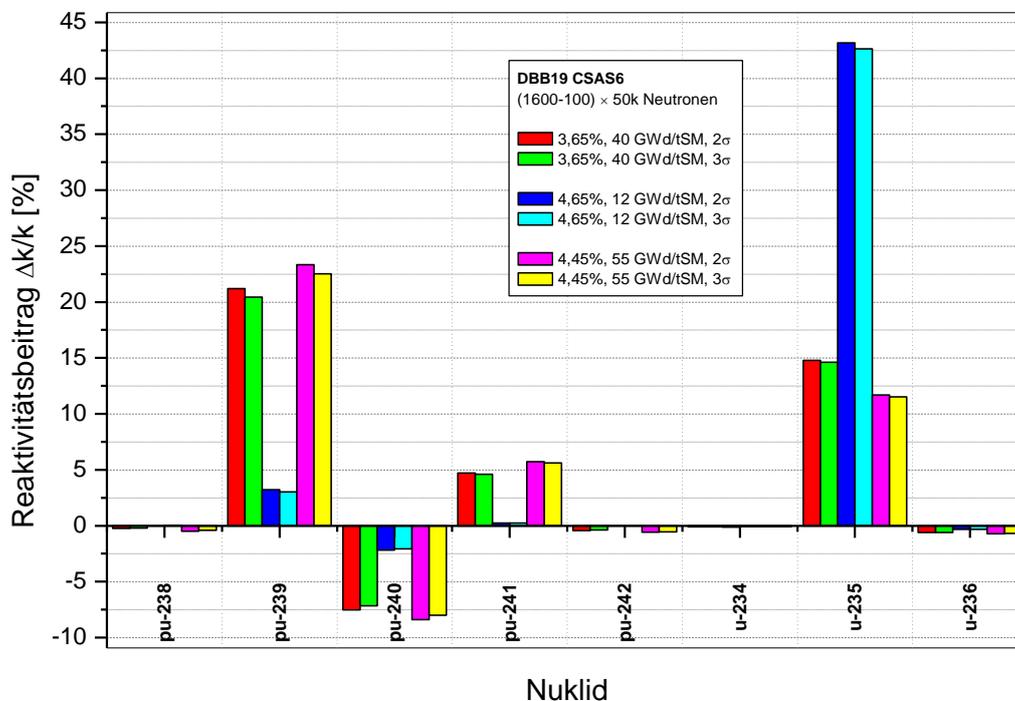


Abb. 3.16 Reaktivitätsbeiträge der betrachteten Nuklide zum Multiplikationsfaktor k_{eff} für das Anwendungsbeispiel „generisches Behältermodell DBB19“

Beim Vergleich von Abb. 3.16 mit Abb. 3.5, also der äquivalenten Studie für das generische Brennelement-Lagerbecken, erkennt man, dass die Reaktivitätsbeiträge der einzelnen Nuklide sowohl qualitativ als auch quantitativ für beide Rechenmodelle sehr ähnlich sind. Dies liegt neben den identischen Nuklidinventaren auch an den gemeinsamen, neutronenphysikalisch relevanten Merkmale der beiden Anordnungen wie intakter Brennelement-Struktur und der Positionierung einzelner Brennelemente in Borsahlkasten mit zusätzlicher Moderation außerhalb des Kastens, woraus sich vergleichbare Umgebungen der Brennelemente in den beiden Anordnungen ergeben. Dies führt zu entsprechend ähnlichen errechneten Multiplikationsfaktoren, sowohl bei Berücksichtigung des jeweils vollen Satzes der hier berücksichtigten Abbrandkredit-Nuklide als auch bei der Bestimmung der einzelnen Reaktivitätsbeiträge.

Seed-Studie

Bei den Rechnungen mit der SCALE-Sequenz CSAS6 handelt es sich wie im Fall der Sequenz CSAS5 um einen statistischen Prozess mit einer Standardabweichung σ_{CSAS} in k_{eff} . Um die Gültigkeit der Verteilung der Stichproben zu überprüfen, ist es deshalb auch hier erforderlich, eine ansonsten identische Rechnung hinreichend oft mit unterschiedlichen Startzahlen (Seed) für den Zufallszahlengenerator durchzuführen.

Dies wurde hier exemplarisch anhand der Anreicherungs- und Abbrandkombination 465 – 12 mit 3 σ -Korrektur für jeweils 75 unterschiedliche Seed-Zahlen durchgeführt. In Tab. 3.12 sind der Mittelwert der so berechneten Multiplikationsfaktoren k_{eff} , deren Standardabweichungen σ sowie der Mittelwert der individuellen Standardabweichungen σ_{CSAS} der einzelnen Monte Carlo Rechnungen zusammengefasst.

Tab. 3.12 Variation der Startzufallszahl für die Anreicherungs- und Abbrandkombination 465 – 12 mit 3 σ Isotopenkorrekturfaktor in dem generischen Behältermodell DBB19

Anreicherungs- / Abbrandkombination % ²³⁵ U - GWd/tSM	Mittelwert der Multiplikations- faktoren k_{eff}	Standard- abweichung σ des Mittelwerts der k_{eff}	Mittelwert der einzelnen Standardab- weichungen σ_{CSAS}
465 – 12	0,934868	0,000112	0,000095

Aus der Tabelle wird ersichtlich, dass auch bei diesem Rechenmodell die Standardabweichung des Mittelwerts für das betrachtete Nuklidinventar mit den Mittelwert der Standardabweichungen σ_{CSAS} der einzelnen Rechnungen vergleichbar ist.

3.3 Nachrechnung von Nachbestrahlungsanalysen: SERPENT 1.1.19

Neben der Validierung des GRS-eigenen Inventarberechnungssystems KENOREST wurden die Arbeiten zur Demonstration der Validierungsmethodik zusätzlich mit dem zweiten Inventarberechnungssystem, SERPENT 1.1.19 /LEP 09/, /LEP 13/, durchgeführt. Diese letzte stabile Codeversion 1.1.19 zeigte aber im Verlauf der Arbeiten das zunächst unterschätzte Defizit, eine experimentell vorgegebene Leistungsgeschichte nicht auf einen Probenstab sondern nur integral auf das ganze Brennelement aufprägen zu können. In der aktuellen Betaversion von SERPENT 2 ist diese Funktionalität eingeschränkt verfügbar, soll aber in der Zukunft ausgebaut werden. Zum gegenwärtigen Zeitpunkt ist sie nicht sinnvoll einsetzbar.

Dieses Problem führte dazu, dass der gemessene Abbrand der stabweisen radiochemischen Analyseprobe z. T. nur sehr schlecht reproduziert werden konnten. Referenzpunkt war hier die gemessene Nuklidmasse des Abbrandmarker-Isotops ^{148}Nd . Diese wurde bei Modellierung der Abbrandgeschichte auf das Brennelement, je nach Position des Probenstabs in der Nähe von Steuerstabführungsrohren, Gadolinium-haltigen Stäben o. ä., vom Rechenverfahren nur zu 2 % bis 10 % genau reproduziert. In manchen Fällen konnte Abhilfe durch geeignete Renormierung der Leistungsgeschichte um eben diese Prozentzahlen geschaffen werden. Dies funktionierte gut z. B. im Fall der gadoliniumfreien Proben aus Takahama-3. Bei anderen Proben, z. B. ARIANE GU1, gelang dies kaum oder nur durch sehr willkürliche Renormierungen. Genaue Ursachen dafür sind bislang nicht bekannt. Diese Prozedere entspricht allerdings nicht dem Charakter einer belastbaren Quantifizierung eines Rechenverfahrens hinsichtlich der Bestimmung von Nuklidinventaren.

Im Folgenden werden die mit SERPENT 1.1.19 und kontinuierlichen ENDF/B-VII Wirkungsquerschnitten auf Basis der Takahama-3 Probenreihen SF 95 und SF 97 erzielten Ergebnisse beschrieben und kurz diskutiert. Da die Anzahl der Proben mit insgesamt zehn sehr gering und zudem aus einem einzigen experimentellen Programm entnommen ist, darf das Ergebnis nicht als quantitative stringente Validierung verstanden

werden. Zur qualitativen Demonstration der entwickelten Methodik sind die Daten jedoch geeignet.

In Abb. 3.17 ist exemplarisch die Modellierung des Takahama-3 Brennelements für die Probenserie SF 97 mit SERPENT 1.1.19 dargestellt.

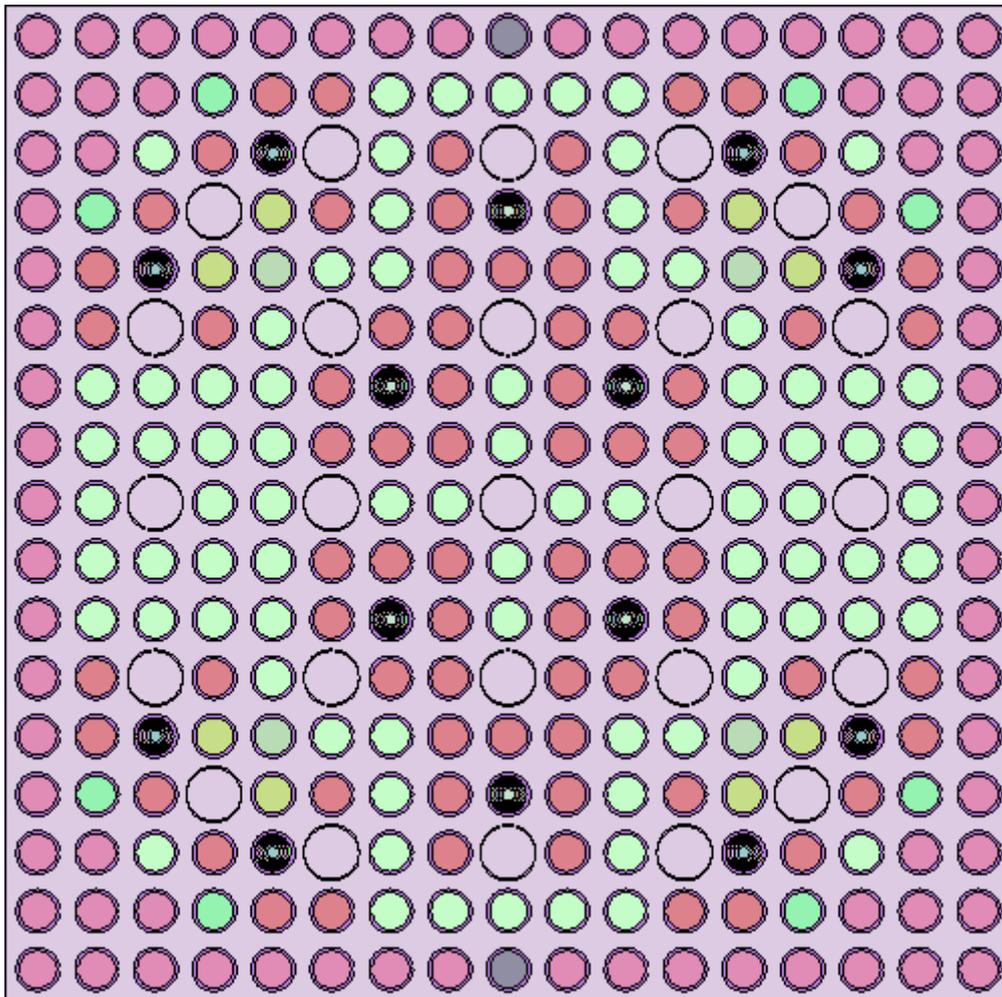


Abb. 3.17 SERPENT Modellierung der Takahama-3 Probenserie SF 97

In Tab. 3.13 sind die erzielten Rechenergebnisse in Form der Mittelwerte, Standardabweichungen und daraus abgeleiteter Isotopenkorrekturfaktoren zusammengefasst. Die reaktivitätserhöhenden Isotope von Uran und Plutonium sind orange hinterlegt, die reaktivitätsverringenden grün. Die Ergebnisse für das Abbrandmarker-Nuklid ^{148}Nd sind blau gekennzeichnet.

Tab. 3.13 Mittelwerte, Standardabweichungen und abgeleitete Isotopenkorrekturfaktoren der mit SERPENT 1.1.19 erzielten C/E-Werte der gadoliniumfreien radiochemischen Analyseproben aus dem Messprogramm Takahama-3

Nuklid	Mittelwert M der C/E-Werte	Standardabweichung σ	$M \pm 2\sigma$	$M \pm 3\sigma$
²⁴¹ Am	1,17481	0,18585	0,80312	0,61727
^{242m} Am	0,81402	0,06229	0,93861	1,00090
²⁴³ Am	1,02470	0,05548	0,91375	0,85827
¹⁴⁴ Ce	0,98073	0,05039	0,87996	0,82957
²⁴² Cm	0,89906	0,21814	0,46278	0,24464
²⁴³ Cm	0,65874	0,04622	0,56631	0,52009
²⁴⁴ Cm	0,92023	0,07610	0,76803	0,69193
²⁴⁵ Cm	0,98171	0,12359	1,22889	1,35248
²⁴⁶ Cm	0,85973	0,30418	0,25138	-0,05280
²⁴⁷ Cm	0,75769	0,07722	0,60325	0,52603
¹³⁴ Cs	0,92617	0,03019	0,86578	0,83559
¹³⁷ Cs	0,98826	0,00439	0,97947	0,97507
¹⁵⁴ Eu	1,01243	0,03745	0,93753	0,90009
¹⁴² Nd	0,84301	0,05185	0,73931	0,68746
¹⁴³ Nd	0,97200	0,00898	0,95404	0,94506
¹⁴⁴ Nd	0,97592	0,02644	0,92305	0,89661
¹⁴⁵ Nd	0,99391	0,00563	0,98264	0,97701
¹⁴⁶ Nd	1,00964	0,00778	0,99408	0,98630
¹⁴⁸ Nd	1,00130	0,00427	0,99276	0,98850
¹⁵⁰ Nd	0,99584	0,00962	0,97659	0,96697
²³⁷ Np	0,95440	0,01950	0,91541	0,89592
²³⁸ Pu	0,87289	0,05555	0,76178	0,70622
²³⁹ Pu	0,99993	0,03673	1,07340	1,11013
²⁴⁰ Pu	1,02717	0,02364	0,97989	0,95625
²⁴¹ Pu	0,95513	0,03862	1,03237	1,07098
²⁴² Pu	0,94802	0,02293	0,90215	0,87922
¹⁰⁶ Ru	1,13701	0,25239	0,63222	0,37983
¹²⁵ Sb	1,96008	0,42739	1,10530	0,67792
¹⁴⁷ Sm	1,02822	0,01397	1,00028	0,98630
¹⁴⁸ Sm	0,91216	0,02004	0,87209	0,85205
¹⁴⁹ Sm	0,93153	0,07088	0,78977	0,71888

Nuklid	Mittelwert M der C/E-Werte	Standardabweichung σ	$M \pm 2\sigma$	$M \pm 3\sigma$
¹⁵⁰ Sm	1,01117	0,01316	0,98484	0,97168
¹⁵¹ Sm	0,94314	0,04617	0,85080	0,80463
¹⁵² Sm	1,02350	0,01967	0,98415	0,96448
¹⁵⁴ Sm	1,00397	0,01347	0,97703	0,96356
²³⁴ U	1,10439	0,10147	0,90146	0,79999
²³⁵ U	1,01340	0,02287	1,05914	1,08201
²³⁶ U	0,98852	0,00700	0,97453	0,96753
²³⁸ U	1,00020	0,00071	0,99878	0,99807

Zunächst erkennt man in Tab. 3.13, dass die Messwerte für ¹⁴⁸Nd gut reproduziert werden, mit einem Mittelwert nahe 1,0 und sehr geringer Standardabweichung. Dies ist, wie oben erwähnt, methodisch bedingt, da in den Einzelrechnungen die Masse von ¹⁴⁸Nd als Zielwert bei den Inventarrechnungen verwendet wurde.

Zudem erkennt man, dass auch die den Multiplikationsfaktor k_{eff} dominierenden Nuklide ²³⁵U, ²³⁹Pu und ²⁴⁰Pu mit mittleren C/E-Werten von etwa 1,01, 1,00 und 1,03 bei Standardabweichungen von $\sigma \approx 0,02$ bis 0,04 gut getroffen werden.

Weiter führende Analysen wurden an dieser Stelle aus den oben genannten Gründen nicht durchgeführt. Allerdings lässt der SERPENT Code großes Potential bei der Berechnung von Nuklidinventaren erkennen. Zur Durchführung einer Validierung anhand von radiochemischen Analyseproben auf Basis kurzer Brennstabstücke erscheint jedoch die Implementierung einer Funktionalität zur stabweisen Leistungsdefinition in der Zukunft unerlässlich.

3.4 Schlussfolgerungen

Die Auswertung und Analyse der Nachrechnung einer hinreichenden Anzahl an radiochemischen Analyseproben hat gezeigt, dass es für eine Reihe von reaktivitätsbestimmenden Nukliden möglich ist, die systematischen Abweichungen des Rechensystems für Anwendungen bei Kritikalitätsanalysen zu bestrahlten Kernbrennstoffen genau genug zu quantifizieren. Dies gilt wesentlich für die Isotope des Uran und des Plutonium, doch mit der gleichen Methode kann auf Basis der verwendeten Datengrundlage auch die Rechengenauigkeit hinsichtlich einiger Spaltprodukte wie z. B. ^{134,137}Cs,

^{143-148,150}Nd, ¹⁴⁸⁻¹⁵²Sm und ¹⁵⁴Eu oder weiterer Aktinoide wie ²³⁷Np oder das radiologisch wichtige ²⁴⁴Cm durchgeführt werden.

Durch die nuklidweise Mittelwertbildung über alle ermittelten Verhältnisse von errechneten (C) zu experimentell ermittelten (E) Nuklidmassen sowie geeigneter Berücksichtigung der jeweiligen daraus resultierenden Standardabweichungen σ können Isotopenkorrekturfaktoren für das zu Grunde liegende Berechnungssystem ermittelt werden. Durch deren Anwendung auf die mit dem Berechnungssystem ermittelten Massenwerte können konservative Abschätzungen oberer bzw. unterer Grenzwerte der real entstandenen Nuklidmassen im bestrahlten Kernbrennstoff getroffen werden. Diese können in ein Kritikalitätsrechensystem übertragen werden, um eine entsprechend konservative Abschätzung des Neutronenmultiplikationsfaktors k_{eff} für neutronenphysikalisch ähnliche Anordnungen mit eben diesem Spaltstoffsystem zu ermöglichen. Wichtige Kriterien zur Auswahl der Nuklide, die auf diese Weise in Kritikalitätsrechnungen berücksichtigt werden können, sind neben der Anzahl der pro Nuklid zur Verfügung stehenden Experimentnachrechnungen die Abweichung des Mittelwerts der C/E-Werte von 1,0 sowie die Streubreite, welche durch die zugehörige Standardabweichung σ für diesen Mittelwert quantifiziert werden kann. Die genaue Festlegung, welche Werte minimal bzw. maximal zulässig sind, unterliegt dabei neben statistischen Kriterien vor allem der Experteneinschätzung. Dies ist insbesondere erforderlich, da sich die – stets vorhandenen – experimentellen Unsicherheiten häufig nur sehr schwer quantifizieren lassen. Die bisherigen Erfahrungen zeigen, dass die Massen der Isotope des Uran und des Plutonium in den Nachrechnungen der radiochemischen Analyseproben gut und zumeist innerhalb einer relativ geringen Streubreite reproduziert werden können. Je nach erforderlichem bzw. gewünschtem Grad an Konservativität können die Isotopenkorrekturfaktoren durch unterschiedliche Methoden aus den Datensätzen C/E und σ abgeleitet werden.

In der vorliegenden Arbeit wurde dieses Vorgehen durch Nachrechnung von vierzig radiochemischen Analyseproben mit dem GRS-eigenen Inventarberechnungssystem KENOREST v1.1 und exemplarischer Anwendung anhand eines generischen Brennelement-Lagerbeckens sowie eines generischen Transport- und Lagebehälters für ausgediente Brennelemente demonstriert. Dabei kamen neben abdeckenden auch stochastisch aus den C/E-Werten ermittelte Isotopenkorrekturfaktoren zum Einsatz. Die genaue Auswahl der in eine darauf basierende Kritikalitätsanalyse eingehenden Nuklide ist neben der Validierung des Inventarberechnungssystems auch abhängig von

deren Validierbarkeit innerhalb des eingesetzten Kritikalitätsberechnungssystems. Bei der derzeit frei zugänglichen Datenbasis an kritischen Benchmark-Experimenten bedeutet dies – je nach verfolgtem Ansatz – zumeist eine Beschränkung auf die Isotope des Uran und des Plutonium, vgl. auch Kap. 4.

Der quantitative Anwendungsbereich der hier dargestellten Methodik zur Abbrandberücksichtigung erstreckt sich aufgrund der verwendeten Datenbasis auf bestrahlten Urandioxid-Brennstoff aus Druckwasserreaktoren mit Abbrand zwischen 14 GWd/tSM und 60 GWd/tSM, unter Berücksichtigung der Isotope ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U , sowie ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu und ^{242}Pu (sowie Sauerstoff ^{16}O). Da die Rechenergebnisse im Wesentlichen keine signifikanten Trends aufweisen, sind geringe Extrapolationen aus dem Anwendungsbereich denkbar. Die Ergebnisse der Testrechnungen zeigen, dass die durchgeführte Quantifizierung der Isotopenkorrekturfaktoren zu einer plausiblen Verminderung der Neutronenmultiplikationsfaktoren für generische, realistische Anordnungen mit bestrahlten Kernbrennstoffen gegenüber der Annahme frischen Brennstoffs bzw. unkorrigierter errechneter Nuklidmassen führt.

Durch die Hinzunahme weiterer Nachrechnungen radiochemischer Analyseproben und der daraus resultierenden Verbreiterung der Datenbasis kann die Belastbarkeit der ermittelten Isotopenkorrekturfaktoren grundsätzlich weiter verbessert werden. Je nach Probenqualität (z. B. bei größeren Messunsicherheiten) könnte allerdings auch die Streuung der ermittelten C/E-Werte für einige Nuklide erhöht werden, wodurch sich die Standardabweichung der Datenpunkte dieser Nuklide erhöht und somit auch die Abweichung des resultierenden Isotopenkorrekturfaktoren vom Wert 1,0 bzw. die Unsicherheiten auf den Bias. Ein solcher Fall würde allerdings nicht bedeuten, dass der Bias des Rechensystems zuvor zu gering angegeben wurde, sondern, dass sich aufgrund der größeren Messunsicherheiten die Unsicherheit in der Bias-Bestimmung erhöht. Dennoch ist die Erweiterung der Datenbasis grundsätzlich zu bevorzugen, um zum einen den durch die Proben abgedeckten Parameterraum zu vergrößern und zum anderen möglicherweise zuvor nicht erkannte Abhängigkeiten der Nachrechnungen aufzudecken.

Die demonstrierte Methodik kann prinzipiell auf beliebige andere Inventarberechnungssysteme wie z. B. HELIOS /CAS 92/ oder TRITON /SCA 11/ übertragen werden. Die Erfahrungen bei der Nachrechnung radiochemischer Analyseproben mit dem Inventarberechnungssystem SERPENT 1.1.19 zeigen allerdings auch, dass codespezifische Probleme auftreten können, die eine stringente Codevalidierung anhand kleiner, lokaler

Brennstoffproben in der für KENOREST demonstrierten Form erschweren. Aufgrund der fehlenden Funktionalität, die lokalen Bestrahlungsbedingungen dieser Proben stabgenau zu modellieren (d. h. Anpassung der Stableistung), konnten für verschiedene Proben zunächst keine für eine weiterführende Validierung verwertbaren Nachrechnungen erzielt werden, weshalb hier auf die weiteren Validierungsschritte verzichtet wurden.

4 Validierung eines Kritikalitätsrechensystems

4.1 Kritische Experimente

Zur Validierung der SCALE-Sequenz CSAS5 wurden im Laufe mehrerer früherer Vorhaben für etwa 300 experimentelle Konfigurationen aus dem „International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments“ (ICSBEP) /NEA 12/ entsprechende Rechenmodelle für diese Sequenz erstellt /BEH 11/, /KIL 09/. Von diesen wurden 279 Konfigurationen in ein einheitliches Versionskontrollsystem zur zukünftigen zentralen Verwaltung übertragen. Für etwa 20 Konfigurationen wurde noch Aktualisierungsbedarf an den bestehenden Rechenmodellen identifiziert, welcher nicht mehr im Rahmen der vorliegenden Arbeit erfüllt konnte. Diese so bereits existierende Datenbasis wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit um 236 Konfigurationen von 18 Experimenten aus dem ICSBEP ergänzt, welche ebenfalls in das bestehende Versionskontrollsystem eingepflegt wurden. Eine Zusammenstellung der ergänzten Konfigurationen gibt Kap. 4.1.1 und eine Auflistung aller somit verfügbaren 53 Experimente mit den insgesamt 515 modellierten Konfigurationen ist in Tab. 4.1 enthalten.

Tab. 4.1 Zusammenstellung der mit CSAS5 modellierten experimentellen Konfigurationen aus dem ICSBEP

Experiment	Konfigurationen	Experiment	Konfigurationen
HEU-COMP-THERM-012	1	LEU-COMP-THERM-091	1 – 9
LEU-COMP-THERM-001	1 – 8	LEU-MISC-THERM-005	1 – 12
LEU-COMP-THERM-002	1 – 5	LEU-SOL-THERM-002	1 – 3
LEU-COMP-THERM-003	1 – 23	LEU-SOL-THERM-003	1 – 9
LEU-COMP-THERM-004	1 – 20	LEU-SOL-THERM-007	1 – 5
LEU-COMP-THERM-006	1 – 18	LEU-SOL-THERM-008	1 – 4
LEU-COMP-THERM-007	1 – 10	LEU-SOL-THERM-009	1 – 3
LEU-COMP-THERM-008	11 – 7	LEU-SOL-THERM-010	1 – 4
LEU-COMP-THERM-009	1 – 9, 26, 27	LEU-SOL-THERM-011	1 – 13
LEU-COMP-THERM-010	1 – 30	LEU-SOL-THERM-016	1 – 7
LEU-COMP-THERM-011	1 – 15	LEU-SOL-THERM-017	1 – 6
LEU-COMP-THERM-012	1 – 10	LEU-SOL-THERM-018	1 – 6
LEU-COMP-THERM-013	1 – 7	LEU-SOL-THERM-019	1 – 6

Experiment	Konfigurationen	Experiment	Konfigurationen
LEU-COMP-THERM-014	1, 2, 5 – 7	LEU-SOL-THERM-020	1 – 4
LEU-COMP-THERM-016	1 – 14, 31, 32	LEU-SOL-THERM-021	1 – 4
LEU-COMP-THERM-017	1 – 29	LEU-SOL-THERM-022	1 – 4
LEU-COMP-THERM-033	3, 13, 19, 22	LEU-SOL-THERM-023	1 – 9
LEU-COMP-THERM-034	1 – 8, 10 – 15, 17 – 26	LEU-SOL-THERM-024	1 – 7
LEU-COMP-THERM-035	1 – 3	LEU-SOL-THERM-025	1 – 7
LEU-COMP-THERM-039	1 – 17	MIX-COMP-THERM-004	1 – 11
LEU-COMP-THERM-043	1 – 9	MIX-COMP-THERM-005	1 – 7
LEU-COMP-THERM-049	1 – 18	MIX-COMP-THERM-006	1 – 6
LEU-COMP-THERM-050	9	MIX-COMP-THERM-007	1 – 5
LEU-COMP-THERM-052	1 – 6	MIX-COMP-THERM-008	1 – 6
LEU-COMP-THERM-062	1 – 15	MIX-COMP-THERM-009	1 – 6
LEU-COMP-THERM-065	1 – 17	MIX-MISC-THERM-004	1
LEU-COMP-THERM-070	1 – 12		

Die Nomenklatur wurde aus dem ICSBEP übernommen. Dabei gibt das erste Kürzel den im Experiment zum Einsatz gekommenen Spaltstoff an (LEU = niedrig angereichertes Uran, HEU = hoch angereichertes Uran, MIX = Plutonium-Uran-Brennstoff). Das zweite Kürzel gibt den Zustand des Brennstoffs an (COMP = fester Brennstoff, SOL = Brennstofflösung, MISC = sonstige oder gemischte Brennstoffzustände). Unter dem Kürzel „MISC“ werden u. a. auch Experimente mit Brennstäben in einer Brennstofflösung geführt, wie z. B. die in Tab. 4.1 aufgeführten Experimente LEU-MISC-THERM-005 und MIX-MISC-THERM-004. Das letzte Kürzel steht für das im Experiment vorliegende Neutronenspektrum (THERM = thermisches Spektrum).

4.1.1 Experimentnachrechnungen

Im Rahmen dieses Vorhabens wurde die bestehende Datenbasis um insgesamt 236 Konfigurationen aus 18 Experimenten des ICSBEP erweitert. Dabei wurden hauptsächlich Experimente mit niedrig angereichertem Urandioxid in Form von Brennstäben in einem Wassertank ausgewählt. Ein Teil der ausgewählten Experimente enthält zudem Neutronenabsorber (zumeist Bor) in fester oder gelöster Form. Damit entsprechend diese Experimente in ihren grundlegendem Aufbau typischen Anwendungsfällen in Kritikalitätsanalysen, wie z. B. Brennelemente im Lagerbecken oder in einem Trans-

port- oder Lagerbehälter. Eine weitergehende Diskussion der Experimente ist in /PFE 12/ gegeben. Im Einzelnen wurden folgenden Experimente nachgerechnet:

- LEU-COMP-THERM-004, Konfigurationen 1 – 20,
- LEU-COMP-THERM-006, Konfigurationen 11 – 8,
- LEU-COMP-THERM-007, Konfigurationen 1 – 10,
- LEU-COMP-THERM-009, Konfigurationen 26 und 27,
- LEU-COMP-THERM-010, Konfigurationen 1 – 30,
- LEU-COMP-THERM-011, Konfigurationen 1 – 15,
- LEU-COMP-THERM-012, Konfigurationen 1 – 10,
- LEU-COMP-THERM-017, Konfigurationen 1 – 29,
- LEU-COMP-THERM-034, Konfigurationen 1 – 8, 1015, 17 – 26,
- LEU-COMP-THERM-035, Konfigurationen 1 – 3,
- LEU-COMP-THERM-043, Konfigurationen 1 – 9,
- LEU-COMP-THERM-062, Konfigurationen 1 – 15,
- LEU-COMP-THERM-065, Konfigurationen 11 – 7,
- LEU-COMP-THERM-091, Konfigurationen 1 – 9,
- LEU-SOL-THERM-008, Konfigurationen 1 – 4,
- LEU-SOL-THERM-009, Konfigurationen 1 – 3,
- MIX-COMP-THERM-004, Konfigurationen 1 – 11,
- MIX-COMP-THERM-005, Konfigurationen 1 – 7.

4.1.2 Analyse der verfügbaren Experimentnachrechnungen

Die verfügbaren Rechenmodelle der experimentellen Konfigurationen wurden für die weiteren Arbeiten mit der Sequenz CSAS5 der SCALE Version 6.1.2 /SCA 11/ berechnet. Die Abb. D.1 und Abb. D.2 geben eine Zusammenstellung einiger charakteristischer Experimentparameter und der ermittelten Resultate, insbesondere der Neutronenmultiplikationsfaktoren k_{eff} , wieder, Grafische Darstellungen der Ergebnisse sind in Abb. 4.1 und Abb. 4.2 enthalten.

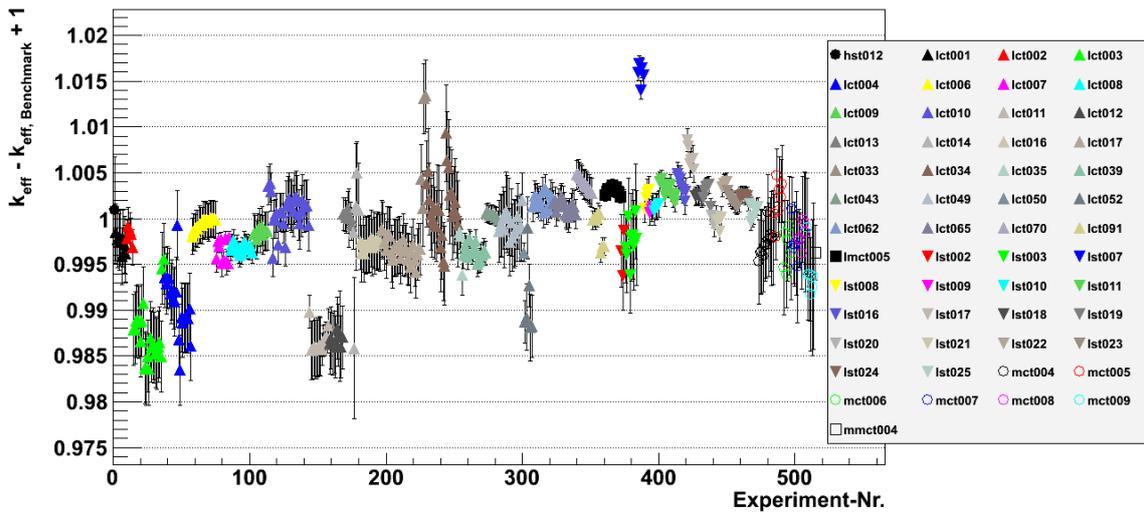


Abb. 4.1 Errechnete Neutronenmultiplikationsfaktoren k_{eff} der verfügbaren kritischen Experimente

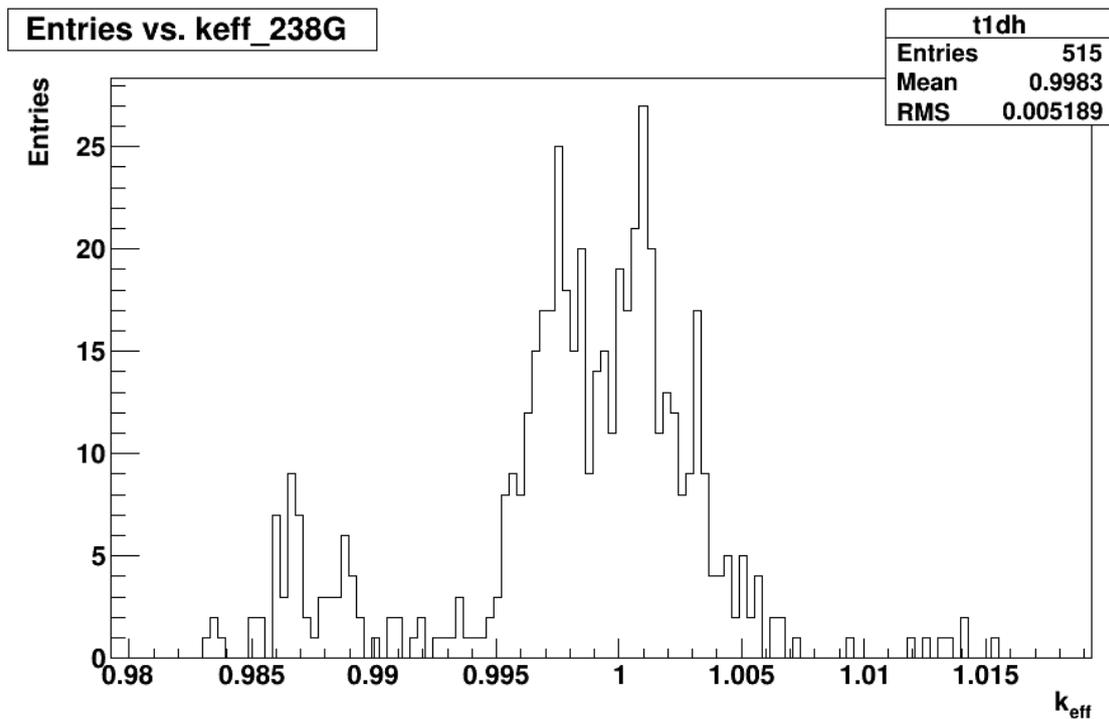


Abb. 4.2 Häufigkeitsverteilung der errechneten Multiplikationsfaktoren k_{eff}

Eine erste Auswertung der Experimentnachrechnungen mit der SCALE-Version 6.0 erfolgte bereits in /PFE 12/. Diese und auch andere Veröffentlichungen zeigen, dass verschiedene Klassen von Experimenten unterschiedliche Tendenzen in den errechneten k_{eff} -Werten aufweisen. Abb. 4.3 zeigt diesen Sachverhalt grafisch. So werden für Experimente mit festem Uran-Brennstoff (hier „LEU-COM-THERM“) vermehrt k_{eff} -Werte unterhalb von 1,0 berechnet. Dagegen werden für Experimente mit einer Uranlösung

als Spaltstoff (hier hauptsächlich „LEU-SOL-THERM“) vermehrt k_{eff} -Werte oberhalb von 1,0 bestimmt. Die Experimente mit Mischoxid-Brennstoff (hier „MIX-COMP-THERM“) zeigen ihrerseits für die errechneten k_{eff} -Werte eine in etwa symmetrische Verteilung um 1,0. Analoge Verteilungen ergeben sich für die Differenzen aus errechneten k_{eff} -Werten und den erwarteten k_{eff} -Werten der Benchmark-Modelle der Experimente (Abb. 4.4), da die erwarteten k_{eff} -Werten der Benchmark-Modelle den Wert 1,0 oder Werte sehr nah am 1,0 aufweisen. Einzig bei den Experimenten mit Mischoxid-Brennstoff verschiebt sich die Verteilung unter Einbeziehung der erwarteten k_{eff} -Werten der Benchmark-Modelle vermehrt in Richtung Werte kleiner 1,0 (Abb. 4.4). Damit zeigen die Abb. 4.3 und Abb. 4.4, dass für diese verschiedenen Experimentklassen unterschiedliche Bias-Werte zu erwarten sind.

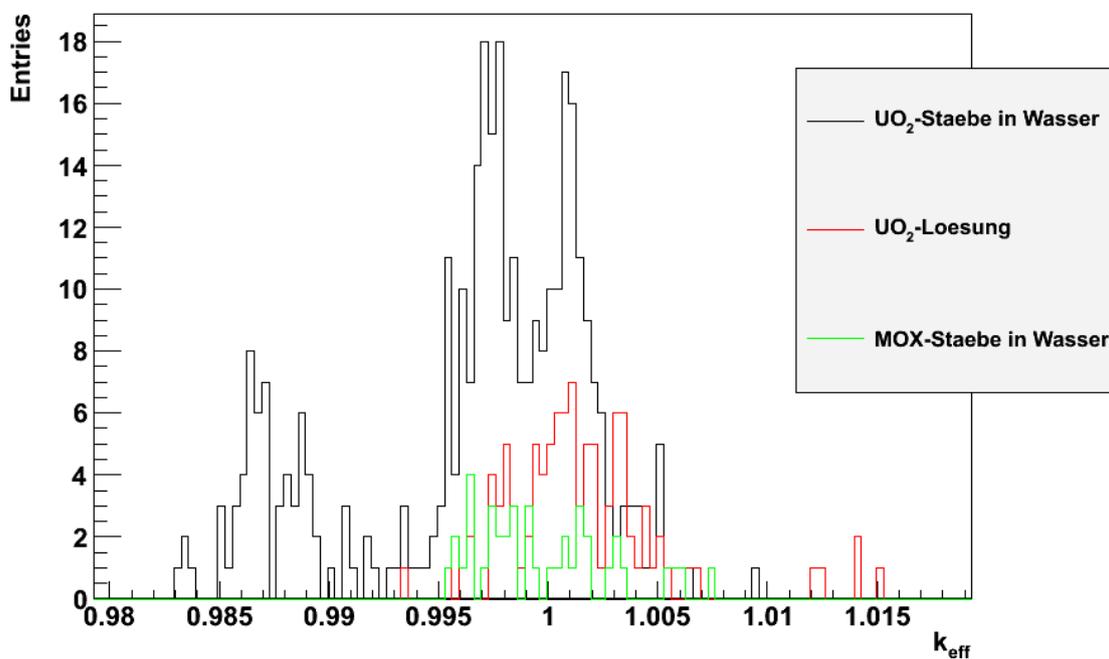


Abb. 4.3 Verteilungen der errechneten k_{eff} -Werte der betrachteten Experimentklassen

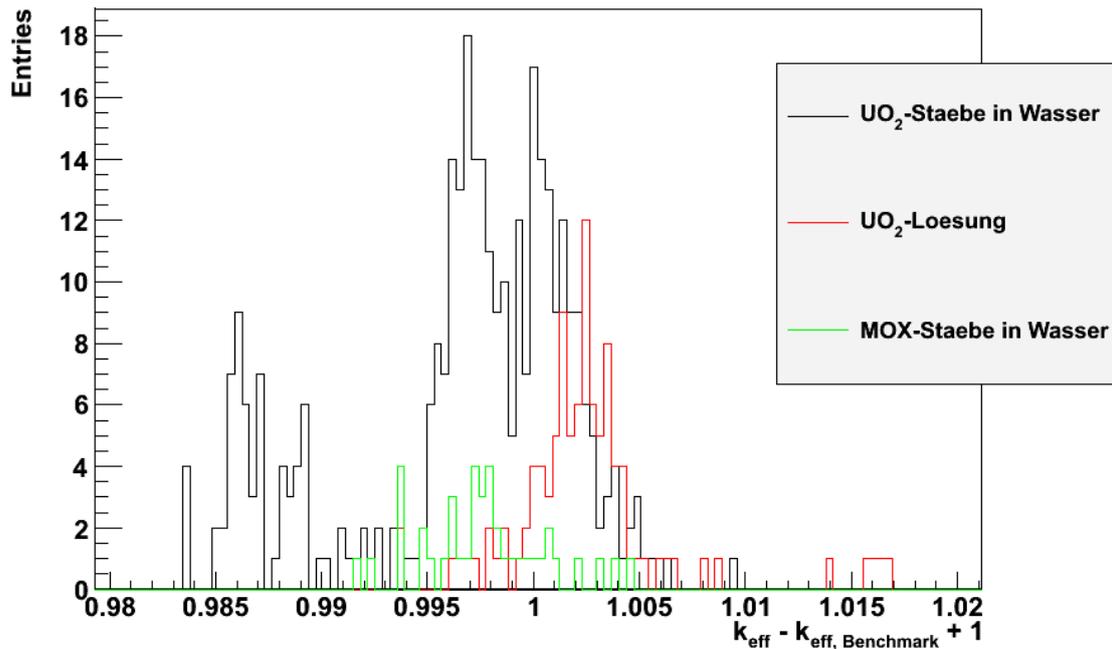


Abb. 4.4 Verteilungen der Differenzen der errechneten k_{eff} -Werte und den erwarteten k_{eff} -Werten der Benchmark-Modelle für die betrachteten Experimentklassen

Neben einem unterschiedlichen geometrischen Aufbau (z. B. Brennstäbe in Wasser gegenüber Spaltstofflösung) zeigen die Experimentklassen auch deutliche Unterschiede in neutronenphysikalischen Parametern, wie z. B. in dem Parameter EALF (energy of average lethargy causing fission, Abb. 4.5). Nach Abb. 4.5 zeigen die Experimente mit festem Brennstoff (UO_2 - oder MOX-Brennstäben in Wasser) EALF-Werte zwischen etwa 0,1 eV und 0,5 eV sowie vereinzelt Werte oberhalb von 0,5 eV. Dagegen weisen die Experimente mit einer Uranlösung ausschließlich EALF-Werte unterhalb von 0,05 eV auf. Weitere Unterschiede zwischen den betrachteten Experimentklassen liegen ferner in den Materialzusammensetzungen der Spaltstoffe (UO_2 , Uranlösung, MOX) und deren Anreicherungen (Abb. 4.6, und Tab. C.1), was zu unterschiedlichen relevanten Wirkungsquerschnitten führt.

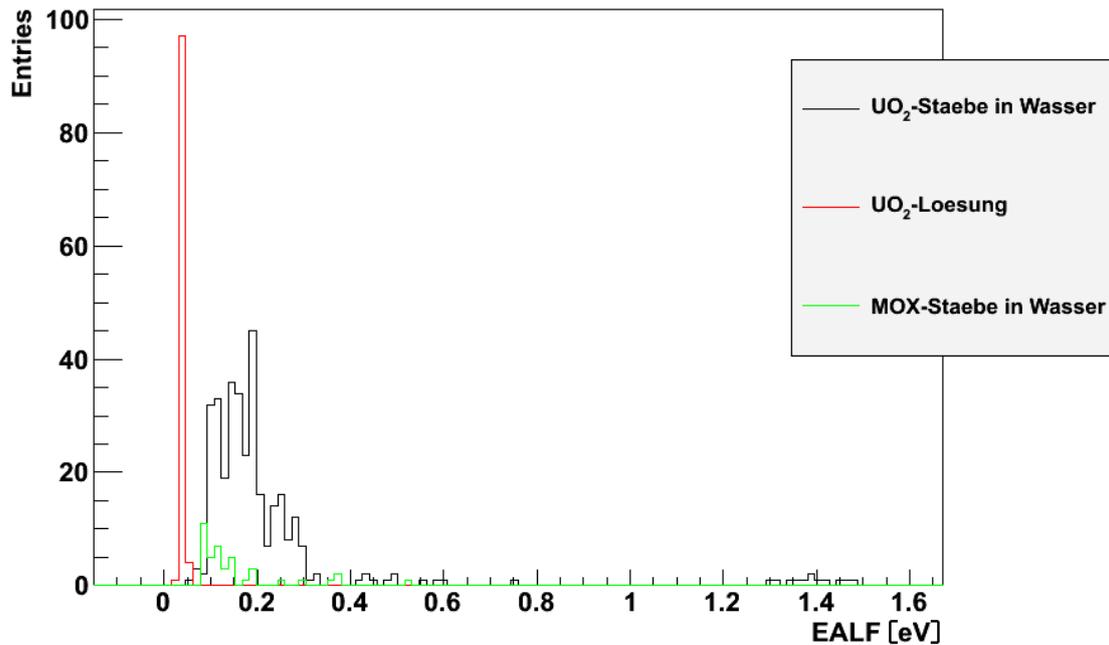


Abb. 4.5 Verteilungen des Parameters EALF der betrachteten Experimentklassen

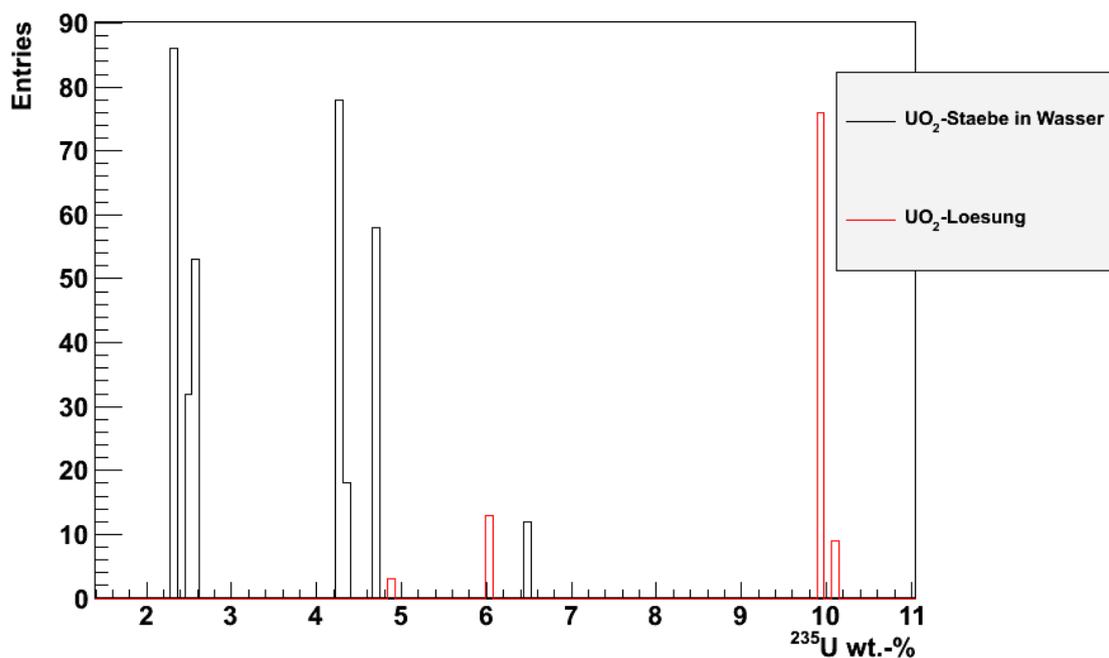


Abb. 4.6 Verteilung der ^{235}U -Anreicherung der betrachteten Experimentklassen

Damit ist an dieser Stelle anhand der vorliegenden Datenbasis nicht zu entscheiden, ob die zu beobachtenden Unterschiede in den Verteilungen der berechneten k_{eff} -Werte (Abb. 4.3 und Abb. 4.4) z. B. durch Unterschiede in den jeweiligen geometrischen Anordnungen oder durch unterschiedliche Materialzusammensetzungen bzw. Anreicherungen und damit unterschiedliche Zusammensetzungen der neutronenphysikalisch

relevanten Wirkungsquerschnitte bedingt sind (vgl. Kap. 2.3.3). Dementsprechend sollten für die weiteren Betrachtungen die verschiedenen Experimentklassen getrennt behandelt werden bzw. die Auswahl der Experimente zur Validierung in möglichst vielen Aspekten hinreichend nah am jeweiligen Anwendungsfall erfolgen, da keine eindeutige Parametrisierung ihrer offensichtlich unterschiedlichen Bias-Werte angegeben werden kann.

4.2 Anwendungsfall Generisches DWR-Brennelement-Lagerbecken

Für die exemplarische Validierung der SCALE-Sequenz CSAS5 wird das bereits für die Validierung des Inventarcodes KENOREST herangezogene generische DWR- Brennelement-Lagerbecken genutzt. Auf diese Weise erfolgt eine vollständige Validierung der kompletten Abbrandkredit-Rechenkette für einen Anwendungsfall.

Im Kap. 3.2.1 wurden für das generische DWR- Brennelement-Lagerbecken verschiedene Ansätze zur Bias-Bestimmung für die Inventarberechnung demonstriert. Für die Validierung der Kritikalitätsrechnung wird hier zur Vereinfachung nur der Fall mit dem konservativsten Nuklidinventar betrachtet, d. h. der Fall mit den konservativen Isotopenkorrekturfaktoren („3 σ “-Korrektur). Für die übrigen Fälle ist die Validierung in gleicher Weise durchzuführen. Lediglich bei der Übertragung des Bias der Inventarberechnung in einem k_{eff} -Wert mittels einer Monte Carlo-Sampling-Methode (Kap. 3.2.1.2), ist zusätzlich zu prüfen, ob der Bias der Kritikalitätsrechnung eine Abhängigkeit von einer in der Monte Carlo-Sampling-Methode variierten Nuklidkonzentration aufweist. Ist dies gegeben, so ist sicherzustellen, dass ein für den variierten Bereich der Nuklidkonzentrationen konservativer Bias für die Kritikalitätsrechnung ermittelt wird. Alternativ könnte auch der Bias der Kritikalitätsrechnung für jede Sample-Rechnung anhand der gefundenen Abhängigkeiten separat ermittelt werden und in der Auswertung der Sample-Rechnungen jeweils die Summe aus den errechneten k_{eff} - und Bias-Werten betrachtet werden. Dieser Fall wird hier aber nicht weiter diskutiert.

Um den Bias in den Berechnungen der Anwendungsfälle zu bestimmen, sind kritische Experimente auszuwählen, die dem jeweiligen Anwendungsfall möglichst ähnlich sind. Klassisch wird dabei die Ähnlichkeit anhand des geometrischen Aufbaus, des verwendeten Spaltmaterials, dessen chemische/physikalische Form, verschiedener neutronenphysikalischer Eigenschaften bzw. Parameter (z. B. das Verhältnis H/U, der integrale Spektralparameter EALF) u. ä. festgemacht. Eine weitere Möglichkeit zur Beurtei-

lung der Ähnlichkeit bietet der Parameter c_k des SCALE-Moduls TSUNAMI-IP /REA 07/, d. h. die Korrelationen zwischen den errechneten Neutronenmultiplikationsfaktoren der Experimente und des jeweiligen Anwendungsfalls. Beide Ansätze zur Beurteilung der Ähnlichkeit werden im Weiteren verwendet. Dazu sind in den folgenden Abschnitten die betreffenden Parameter und die damit als ähnlich beurteilten Experimente zusammengestellt.

Die Beschreibung des betrachteten Brennelement-Lagerbeckens ist in Kap. 3.2.1 zusammengestellt. Das Rechenmodell des Lagerbeckens besteht aus einem unendlich ausgedehnten Gitter an Brennelement-Positionen, welches durch reflektierende Randbedingungen an einer einzelnen Position erzeugt wird. Die einzelne Brennelement-Position wird durch einen äußeren Stahlkasten und einen inneren Bohrstaalkasten, welcher ein vereinfacht modelliertes 16 x 16 – 20 DWR-Brennelement enthält, gebildet. Das Brennelement selbst wird durch ein Gitter von 16x16 Brennstäben mit 20 Leerpositionen repräsentiert. Kopf- und Fußstück des Brennelements sowie die Abstandshalter zwischen den Brennstäben sind nicht im Modell enthalten. Dieses Modell wurde in Kap. 3.2.1 mit sechs verschiedenen Brennstoffvarianten (drei verschiedenen Anreicherungen in jeweils unbestrahltem und bestrahltem Zustand) betrachtet. Für diese sechs Varianten sind in Tab. 4.2 und Tab. 4.3 verschiedene Parameter zum Vergleich mit den verfügbaren Experimentnachrechnungen aufgelistet.

Tab. 4.2 Technische und neutronenphysikalische Parameter für das Modell des generischen DWR-Brennelement-Lagerbeckens mit unbestrahltem Brennstoff

Parameter	Modell		
	365	445	465
²³⁵ U-Anreicherung / wt.-%	3,65	4,45	4,65
Brennstababstand / cm	1,43	1,43	1,43
H/U	4,763	4,762	4,762
H/ ²³⁵ U	128,891	105,721	101,174
EALF / eV	0,27759	0,31817	0,32892

Tab. 4.3 Technische und neutronenphysikalische Parameter für das Modell des generischen DWR-Brennelement-Lagerbeckens mit bestrahltem Brennstoff

Parameter	Modell		
	365-40	445-55	465-12
Brennstoff			
UO ₂ / wt.-%	98.8645	98.6425	99.4989
PuO ₂ / wt.-% ⁶	1.1355	1.3575	0.5011
Uran_Vektor			
²³⁴ U / wt.-%	0.0128	0.0116	0.0191
²³⁵ U / wt.-%	1.0210	0.9058	4.0659
²³⁶ U / wt.-%	0.4264	0.5580	0.2129
²³⁸ U / wt.-%	98.5399	98.5245	95.7021
Plutonium_Vektor			
²³⁸ Pu / wt.-%	1.3085	2.1085	0.1076
²³⁹ Pu / wt.-%	61.3419	57.9048	85.8755
²⁴⁰ Pu / wt.-%	20.0356	20.3526	9.8637
²⁴¹ Pu / wt.-%	12.5019	13.3096	3.8983
²⁴² Pu / wt.-%	4.8122	6.3246	0.2548
Brennstababstand / cm	1,43	1,43	1,43
H/U	5,382	5,489	5,158
H/ ²³⁵ U	520,597	598,426	125,331
H/SM	5,321	5,415	5,133
H/SM _{fis}	286,629	290,069	112,976
EALF / eV	0,29815	0,30911	0,342828

Wie bereits in früheren Arbeiten gezeigt /BEH 11/, ist bei der Validierung zwischen Anwendungsfällen mit frischem und bestrahltem Brennstoff zu unterscheiden. Beim bestrahlten Brennstoff kommen insbesondere zusätzliche Nuklide hinzu, die im Validierungsprozess zu berücksichtigen sind und die Vergleichbarkeit zwischen Experiment und Anwendungsfall beeinflussen. Da die Konzentration dieser zusätzlichen Nuklide vom Abbrand abhängt, ist zudem zwischen bestrahltem Brennstoff mit niedrigem und hohem Abbrand zu unterscheiden. Daher werden im Weiteren die Anwendungsfälle mit unbestrahltem Brennstoff (Kap. 4.2.1), die Anwendungsfälle mit bestrahltem Brennstoff und hohem Abbrand (Kap. 4.2.2) sowie der Anwendungsfall mit bestrahltem Brennstoff und niedrigem Abbrand (Kap. 4.2.3) separat betrachtet.

⁶ An dieser Stelle wird zur Vergleichbarkeit mit Experimenten mit MOX-Brennstoff das vorliegende Plutonium als PuO₂ interpretiert.

4.2.1 Validierung für die Anwendungsfälle mit unbestrahltem Brennstoff

Aus Sicht des klassischen Ansatzes zur Beurteilung der Ähnlichkeit von Experiment und Anwendungsfall bieten sich von den verfügbaren Experimenten (Tab. 4.1) aufgrund des geometrischen Aufbaus für die Validierung in erster Linie die Experimente LEU-COMP-THERM-009, -012, -013, -016, -034, -062 und -065 an. Diese Experimente bestehen aus UO_2 -Brennstäben innerhalb eines Wassertanks mit dazwischen befindlichen Absorberplatten aus verschiedenen Materialien, unter anderem Stahl, boriertem Stahl, Boral und Boraflex. Allerdings weisen die meisten Experimente immer nur ein Absorbermaterial auf, d. h. es liegt entweder unborierten oder borierten Stahl vor, aber nicht beides. Lediglich im Experiment LEU-COMP-THERM-013 werden sowohl Absorberplatten mit Bor wie auch Reflektorwände aus Stahl gleichzeitig eingesetzt. Allerdings sind die Reflektorwände mit etwa 17,9 cm erheblich dicker als die in den Anwendungsfällen genutzten Stahlbleche. Zudem entsprechen die in einigen Experimenten verwendeten Bor-Aluminium-Bleche (Boral) oder borhaltigen Elastomere (Boraflex) nicht exakt den im Anwendungsfall genutzten borierten Stahlblechen, sie spiegeln aber deren Absorberwirkung aufgrund des eingesetzten Bors wieder. Trotz dieser Abweichungen zwischen den experimentellen Aufbauten und den Anwendungsfällen ist zu erwarten, dass diese Experimente die wesentlichen Bestandteile und Eigenschaften der Anwendungsfälle in ausreichender Form wiedergeben.

Die Experimente LEU-COMP-THERM-009, -012, -013, -016, -034, -062 und -065 enthalten insgesamt 77 Konfigurationen, die Absorberplatten aus Stahl, boriertem Stahl, Boral und Boraflex einbeziehen. In Abb. 4.7 (wie auch in allen weiteren Abbildungen) sind für diese 77 Konfigurationen die errechneten k_{eff} -Werte in Form von korrigierten errechneten k_{eff} -Werten

$$k_{\text{eff}} = k_{\text{eff},\text{Nachrechnung}} - (k_{\text{eff},\text{Benchmark}} - 1,0) \quad (4.1)$$

zum Vergleich mit dem dann zu erwartenden Wert von 1,0 aufgeführt.⁷ Hierbei zeigt sich, dass für die Konfigurationen mit Absorberplatten aus Stahl, boriertem Stahl und

⁷ Die Korrektur nach (4.1) des errechneten k_{eff} -Wertes berücksichtigt eine mögliche Abweichung der Benchmark-Modelle vom zu erwartenden Wert von 1,0, so dass für den korrigierten k_{eff} -Wert der zu erwartende Wert des Benchmark-Modells exakt 1,0 beträgt. Diese Korrekturen betragen hier in der Regel weniger als 10^{-3} . Im weiteren Verlauf ist mit der Bezeichnung „errechneter k_{eff} -Wert“ grundsätzlich der korrigierte errechnete k_{eff} -Wert gemeint.

Boral der Experimente LEU-COMP-THERM-009, -012, -013 und -016 bezüglich ihrer errechneten k_{eff} -Werte sehr ähnlich verhalten (Abb. 4.7, Experiment-Nummern 103 bis 194). Die Streuungen der in Abb. 4.7 gezeigten k_{eff} -Werten sind für diese Konfigurationen innerhalb der einzelnen Experimente jeweils deutlich geringer als die in ICSBEP abgeschätzten Gesamtunsicherheiten der Benchmark-Modelle. Zudem lässt sich auch keine eindeutige Tendenz, dass bei Verwendung eines bestimmten Absorbermaterials grundsätzlich größere oder kleinere Abweichungen ermittelt werden, erkennen. Lediglich für Boraflex, welches aber nur in insgesamt drei Konfigurationen der Experimente LEU-COMP-THERM-012 und -013 zum Einsatz kommt, werden in allen Fällen geringfügig höhere k_{eff} -Werte als in den jeweils übrigen Konfigurationen dieser Experimente errechnet. Allerdings ist der Unterschied zwischen den Konfigurationen mit Boraflex und den anderen Absorbermaterialien wiederum deutlich geringer als die abgeschätzten Gesamtunsicherheiten der Benchmark-Modelle. Daher ist aus den vorliegenden Daten nicht zu entscheiden, ob die geringfügig höheren k_{eff} -Werte der Konfigurationen mit Boraflex durch den Absorber bedingt oder zufällig sind.

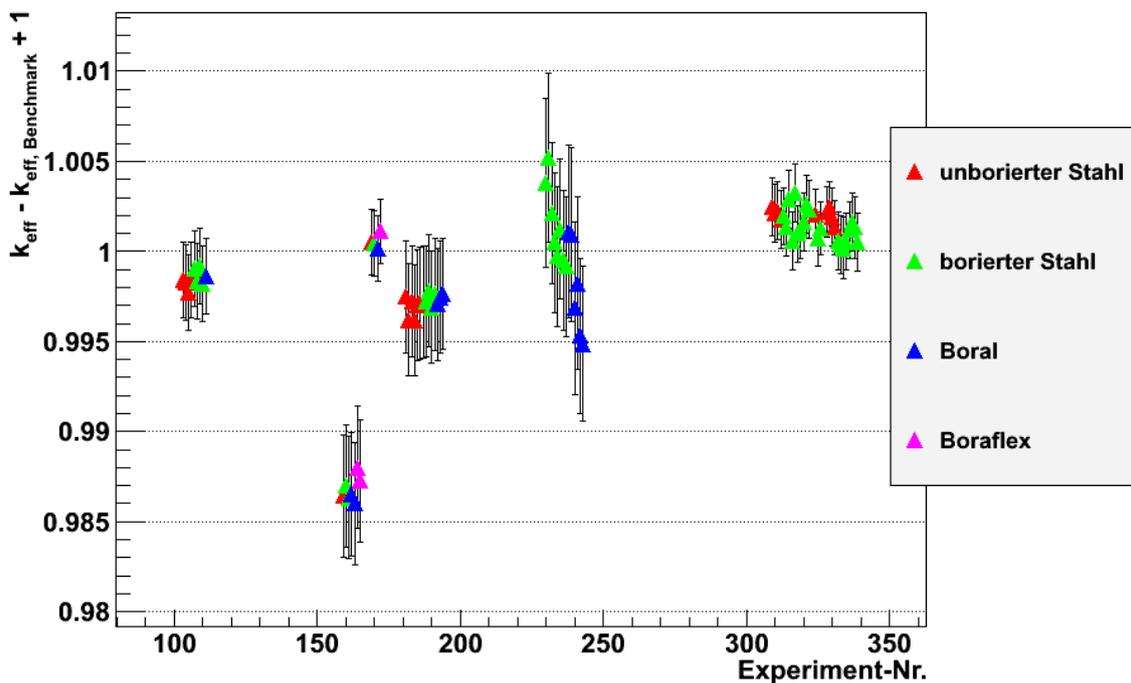


Abb. 4.7 Vergleich der errechneten k_{eff} -Werte für Konfigurationen mit verschiedenen Absorbieren

Die Konfigurationen der Experimente LEU-COMP-THERM-062 und -065 zeigen für die errechneten k_{eff} -Werte ebenfalls keinen eindeutig erkennbaren Unterschied zwischen der Verwendung von unboriertem und boriertem Stahl als Absorbermaterial (Abb. 4.7,

Experiment-Nummern 309 bis 339). Lediglich die Streuung der k_{eff} -Werten fällt hier im Vergleich zu den zuvor genannten Experimenten größer aus und liegt in der Größenordnung der im ICSBEP abgeschätzten Gesamtunsicherheiten.

Abweichend von den bisher diskutierten Experimenten zeigen die Konfigurationen des Experiment LEU-COMP-THERM-034 mit boriiertem Stahl als Absorber ein tendenziell höheres errechnetes k_{eff} als die Konfigurationen mit Boral als Absorber (Abb. 4.7, Experiment-Nummern 230 bis 243). Zudem weisen die errechneten k_{eff} -Werte der einzelnen Konfigurationen eine Streuung auf, die größer als die abgeschätzten Gesamtunsicherheiten ist. Ein solches Verhalten wird aber durch die anderen betrachteten Experimente nicht bestätigen. Zusätzlich zeigen die Konfigurationen mit gleichem Absorber untereinander ebenfalls eine vergleichsweise große Streuung in den errechneten k_{eff} -Werten auf. Damit ist an dieser Stelle nicht eindeutig zu klären, ob die unterschiedlichen Absorbermaterialien tatsächlich die Ursache der in LEU-COMP-THERM-034 zu beobachtenden Tendenz in den k_{eff} -Werten bezüglich der unterschiedlichen Absorbermaterialien ist. Ebenso könnte diese Tendenz z.B. durch den Experimentaufbau, d. h. durch die für die einzelnen Konfigurationen ausgewählten Abmessungen, und damit durch eine nicht erkannte Abhängigkeit von einem weiteren Experimentparameter begründet sein. Die augenscheinliche Abhängigkeit der k_{eff} -Werte von den verwendeten Absorbermaterialien wäre in einem solchen Fall nur zufällig, wobei eventuell noch Abhängigkeiten von der Menge des Absorbers, der Dichte etc. zu prüfen wären.

Insgesamt zeigen damit die errechneten k_{eff} -Werte im Vergleich zu ihren zu erwartenden Werten für die diskutierten Konfigurationen keine signifikante Abhängigkeit von den verwendeten Absorbermaterialien. D. h. es kann davon ausgegangen werden, dass der Bias der Nachrechnungen damit nicht von den hier verwendeten Absorbern abhängt. Eine Unterscheidung zwischen den Absorbern muss somit nicht vorgenommen werden und sowohl die Konfigurationen mit Boral als auch mit Boraflex können hier zu Validierung der Kritikalitätsrechnungen der betrachteten Anwendungsfälle herangezogen werden. Zusätzlich kann aufgrund der fehlenden Abhängigkeit der k_{eff} -Werte von den Absorbermaterialien angenommen werden, dass die Verwendung von unboriiertem und boriiertem Stahl in einem Rechenmodell zu keinem anderen Bias führt als die ausschließliche Verwendung eines der beiden Materialien. Unter dieser Voraussetzung entfällt hier die Notwendigkeit, Experimente, die sowohl unboriierten als auch boriierten Stahl als Absorber beinhalten, zur Validierung der betrachteten Anwendungsfälle heranziehen zu müssen. D. h. die hier betrachteten Experimente, die ausschließlich unboriierten oder boriierten Stahl beinhalten, sind bereits ausreichend.

Lediglich für das Experiment LEU-COMP-THERM-034 ist die Aussage der Unabhängigkeit von dem verwendeten Absorbermaterial nicht eindeutig zu belegen. Allerdings weisen hier die Konfigurationen mit Boral als Absorber die geringeren errechneten k_{eff} -Werte auf, woraus ein im Absolutbetrag größerer Bias folgt. Damit zeigen die Nachrechnungen dieser Konfigurationen gegenüber denen mit boriertem Stahl ein „konservativeres“ Verhalten, weshalb sie hier trotz des fehlenden eindeutigen Belegs zur Validierung der Anwendungsfälle genutzt werden.

Neben dem geometrischen Aufbau sollten die ausgewählten Experimente und die Anwendungsfälle auch in verschiedenen geometrischen und neutronenphysikalischen Parametern übereinstimmen. Dazu werden hier die folgenden typischerweise betrachteten Parameter herangezogen /LIC 97/:

- **^{235}U -Anreicherung:** Anreicherung des Isotops ^{235}U im Spaltmaterial in Gewichtsprozent,
- **Brennstababstand:** Nomineller Abstand der Brennstabmitten ohne spezielle Korrektur auf ggf. einzelne fehlende Brennstäbe innerhalb des Gitters,
- **H/U:** Verhältnis der Kernzahldichten von Wasserstoff und Uran in der Brennstab-Einheit zelle,
- **H/ ^{235}U :** Verhältnis der Kernzahldichten von Wasserstoff und dem Isotop ^{235}U in der Brennstab-Einheit zelle,
- **EALF:** „Energy of Average Lethargy causing Fission“, die Energie der mittleren Lethargie der Neutronen, die zu Spaltungen führen (Dieser Wert wird von der Sequenz CSAS5 berechnet.).

Für diese Parameter gibt Tab. 4.4 den jeweils durch die ausgewählten Experimente abgedeckten Bereich an. Der Vergleich mit den Parameterwerten der Anwendungsfälle mit unbestrahltem Brennstoff zeigt, dass sich diese Werte jeweils an den Rändern der abgedeckten Bereiche befinden. Für die ^{235}U -Anreicherung und das Moderationsverhältnis H/U liegen die Werte aller Anwendungsfälle im abgedeckten Bereich, für die übrigen Parameter liegen die Werte der Anwendungsfälle in einigen Fällen außerhalb des abgedeckten Bereichs. D. h. in den letzteren Fällen sind Extrapolationen des Bias aus dem jeweils abgedeckten Bereich zu den Werten der Anwendungsfälle notwendig. Daher ist es insbesondere in diesen Fällen wichtig, die aus den Experimenten abgeleitete Bias-Verteilung auf mögliche Abhängigkeiten von diesen Parametern zu überprüfen.

Tab. 4.4 Parameterbereich der zur Validierung der Anwendungsfälle mit unbestrahltem Brennstoff ausgewählten Experimente

Parameter	Abgedeckter Bereich
²³⁵ U-Anreicherung [wt.-%]	2,35 – 4,74
Brennstababstand [cm]	1,60 – 2,54
H/U	4,6 – 11,2
H/ ²³⁵ U	105,4 – 399,2
EALF [eV]	0,096 – 0,298

Wie erwähnt, sind die ausgewählten Experimente für eine konservative Bias-Bestimmung auf mögliche Abhängigkeiten von technischen oder neutronenphysikalischen Parametern zu testen. Zu diesem Zweck zeigen die Abb. 4.8 bis Abb. 4.12 Trendanalysen der k_{eff} -Werte bezüglich der genannten Parameter. Zur Veranschaulichung sind straffiert die 95 %-Konfidenzbänder für die angepassten Geraden eingezeichnet. Für die Parameter EALF, H/U und H/²³⁵U ergeben sich aus den Anpassungen jeweils Geradesteigungen, die deutlich größer als ihre abgeschätzten Unsicherheiten sind. Beide Parameter sind ein Maß für den Grad der Thermalisierung der Neutronen und weisen damit auf eine Abhängigkeit der errechneten k_{eff} -Werte von dem jeweiligen Grad der Moderation der Neutronen hin. In diesem Fall scheinen für Anordnungen mit einer geringeren Moderation die errechneten k_{eff} -Werten die erwarteten Werte eher zu überschätzen und für Anordnungen mit erhöhter Moderation die erwarteten Werte eher zu unterschätzen.

Für die Anreicherung und den Brennstababstand geben die Geradenanpassungen dagegen jeweils Steigungen, die in der Größe oder deutlich geringer als ihre abgeschätzten Unsicherheiten sind. Damit sind die Steigungen im Rahmen ihrer Unsicherheiten kompatibel mit dem Wert Null, d. h. die Steigungen sind nicht signifikant. Das Vorhandensein einer Abhängigkeit kann aber letztlich auch in diesen Fällen nicht vollständig ausgeschlossen werden. D. h. in diesem Fall können zwar die Steigungen selbst für die weiteren Betrachtungen vernachlässigt werden, die Unsicherheiten sind aber weiterhin zu berücksichtigen.

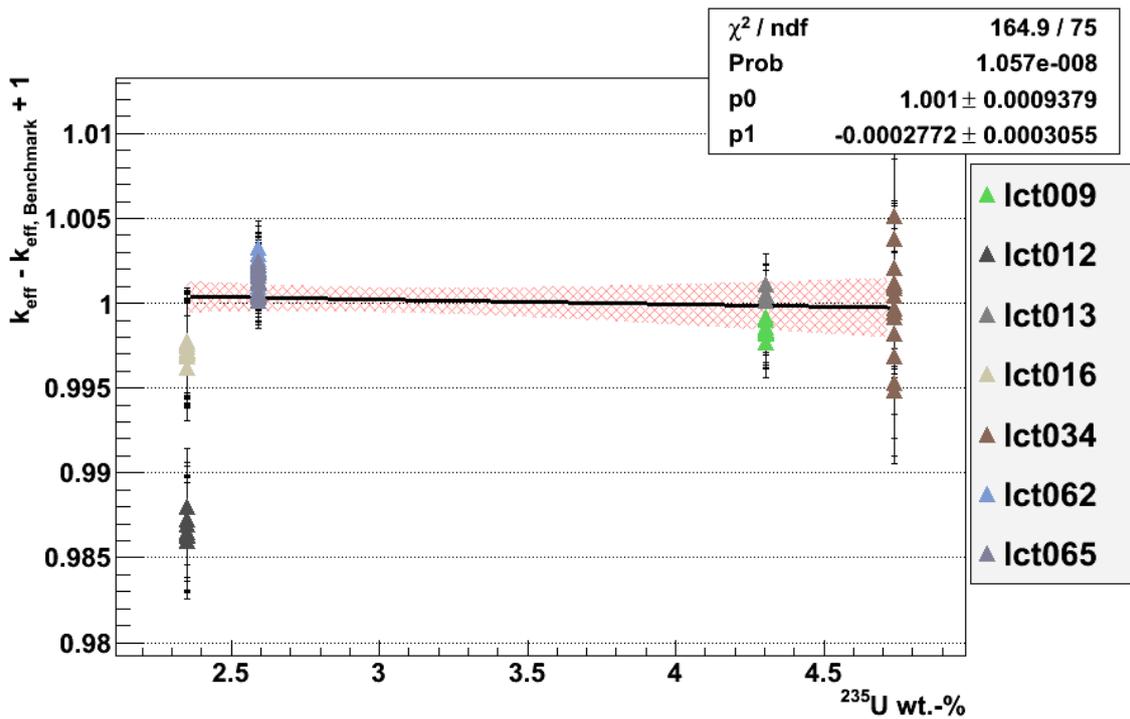


Abb. 4.8 Trendanalyse für k_{eff} bezüglich der ^{235}U -Anreicherung

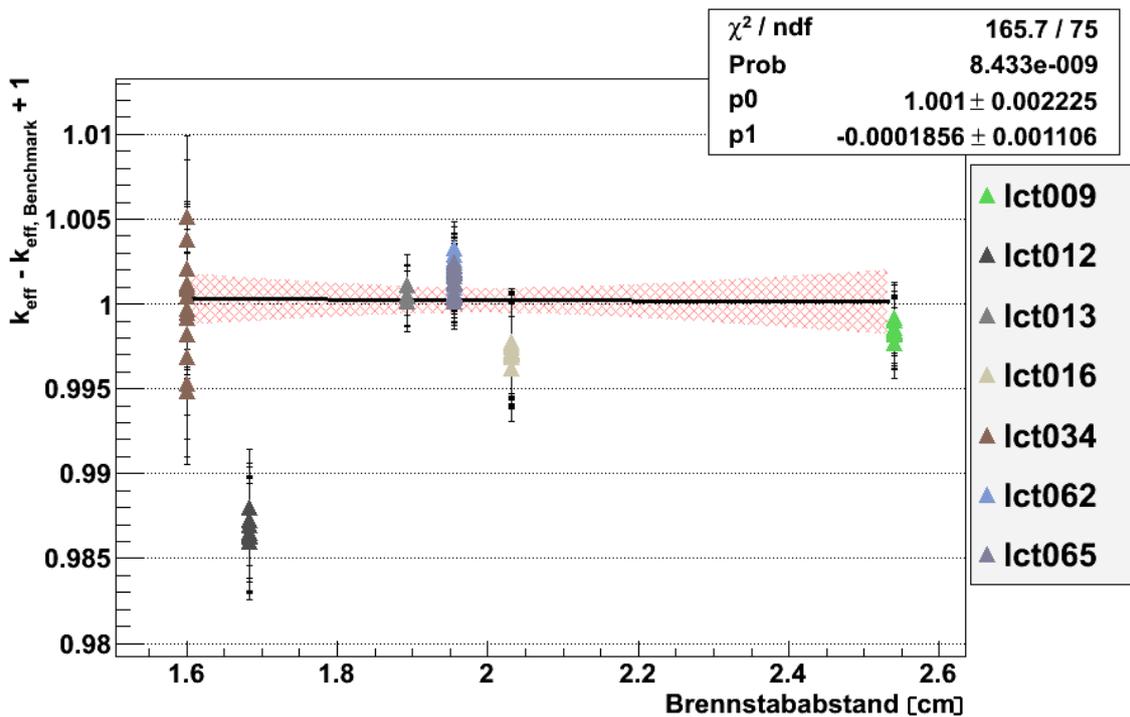


Abb. 4.9 Trendanalyse für k_{eff} bezüglich des Brennstababstandes

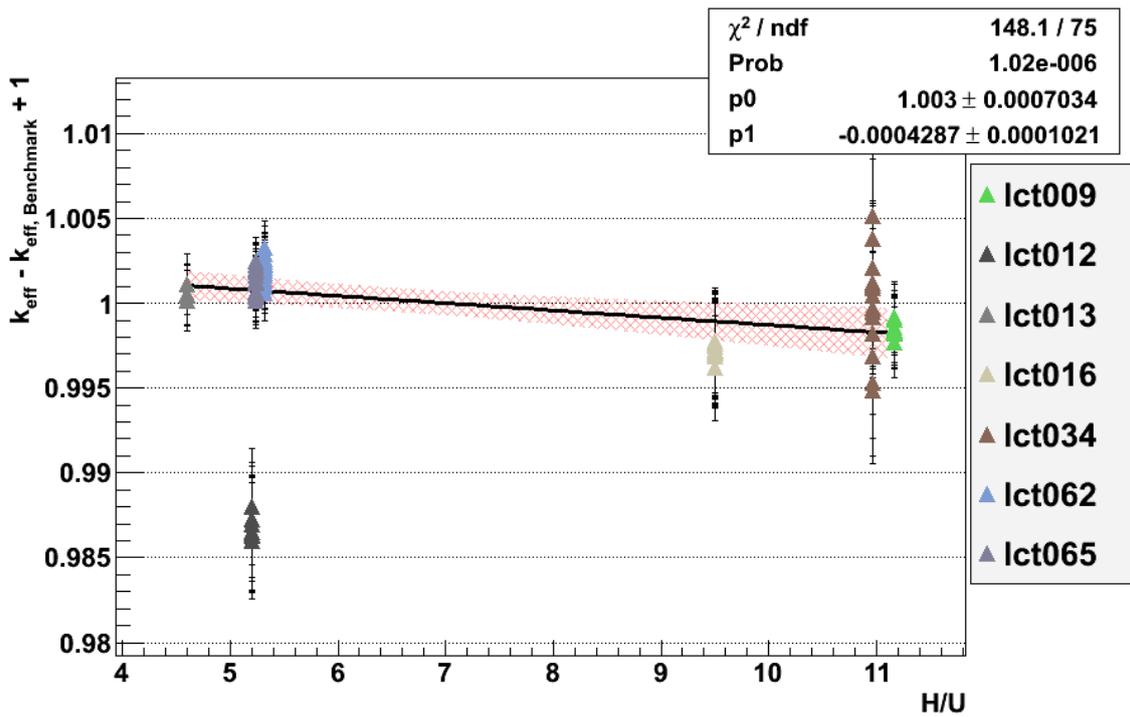


Abb. 4.10 Trendanalyse für k_{eff} bezüglich des Verhältnisses H/U

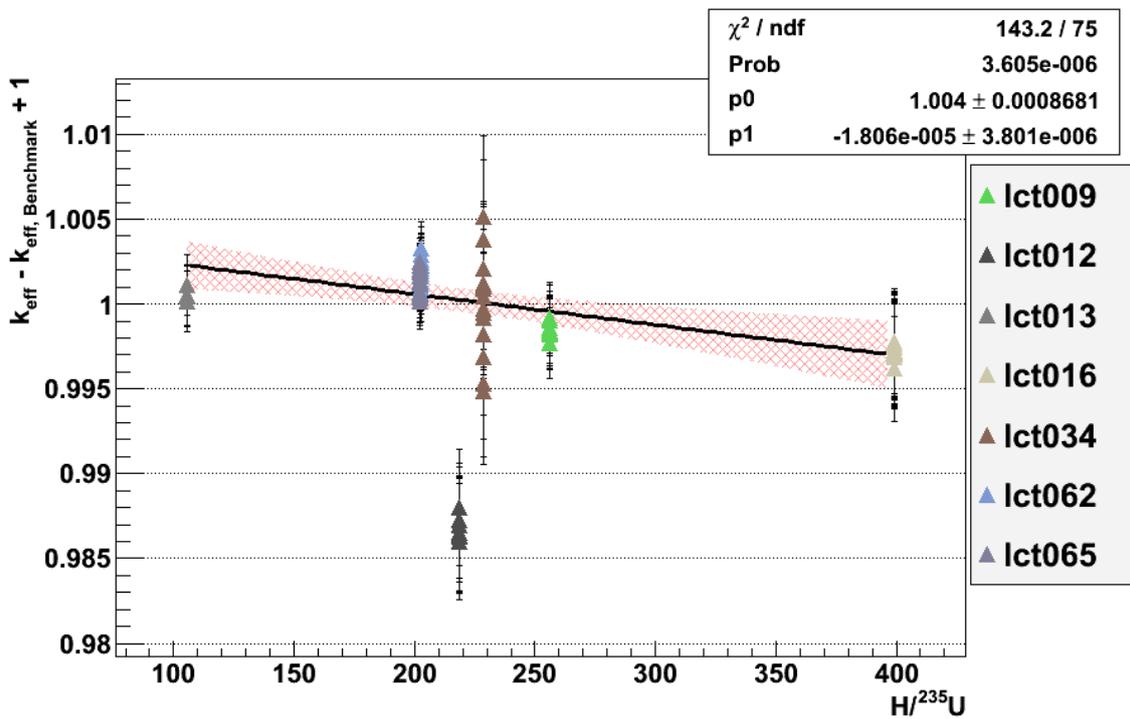


Abb. 4.11 Trendanalyse für k_{eff} bezüglich des Verhältnisses H/ ^{235}U

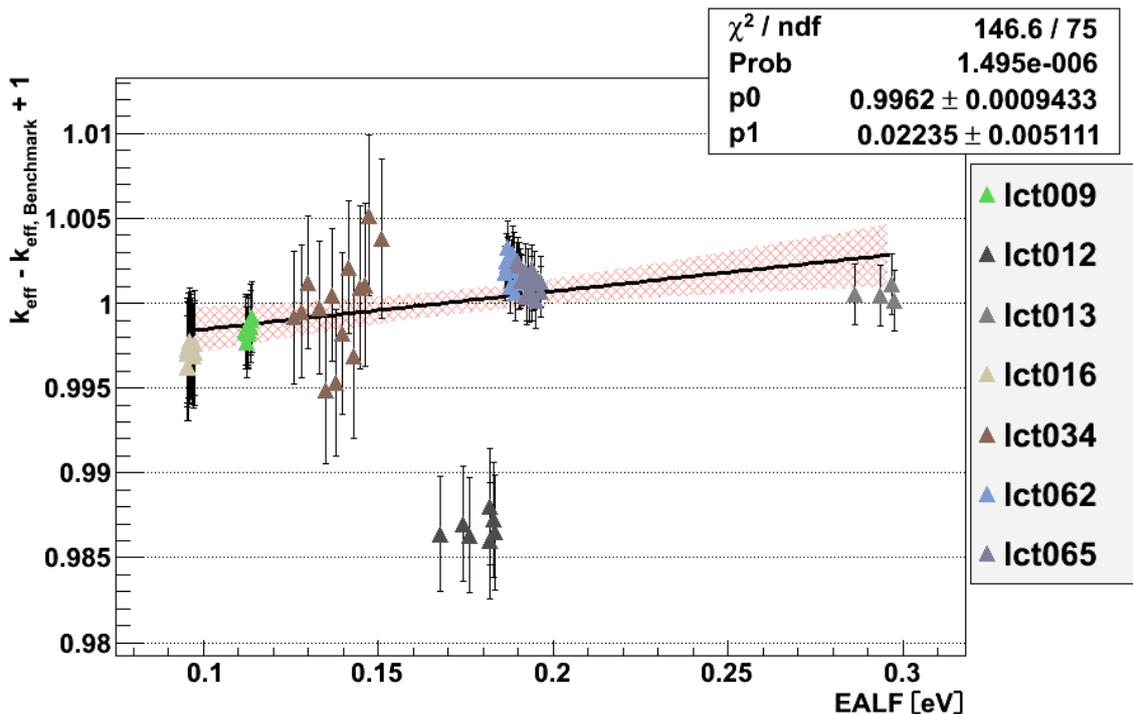


Abb. 4.12 Trendanalyse für k_{eff} bezüglich des Parameters EALF

Die Geradenanpassungen der Abb. 4.8 bis Abb. 4.9 zeigen ferner, dass sich die Verteilungen der Datenpunkte für die k_{eff} -Werte aller Experimente, ausgenommen das Experiment LEU-COMP-THERM-012, gut durch eine Gerade beschreiben lassen. Die Nachrechnungen für das Experiment LEU-COMP-THERM-012 weichen dagegen deutlich mehr von ihren zu erwartenden k_{eff} -Werten ab. Eine eindeutige Erklärung hierfür konnte nicht gefunden werden. Ein möglicher Erklärungsansatz sind die in der Evaluierung des Experiments im ICSBEP diskutierten Messungen von Gadolinium-Verunreinigungen im Wasser des experimentellen Aufbaus. Die Herkunft des Gadoliniums konnte im Rahmen der Evaluierung nicht eindeutig geklärt werden und es wird auch nur für einige, aber nicht für alle in diesem Tank durchgeführten Experimente eine solche oder vergleichbare Verunreinigung beschrieben. Da allerdings die Wasseranalysen für eine Verunreinigung sprechen, wird sie in der Evaluierung als wahrscheinlich angesehen und ist hier entsprechend im Benchmark-Modell berücksichtigt. Eine Überschätzung dieser Verunreinigung wäre aber eine mögliche Erklärung der für LEU-COMP-THERM-012 zu beobachtenden vergleichsweise großen Abweichungen der errechneten von den zu erwartenden k_{eff} -Werten, sie kann aber nicht belegt werden. Weitere Erklärungsansätze wurden nicht gefunden.

Wird nun die erwähnte Verunreinigung als tatsächlich vorhanden unterstellt und somit das verwendete Benchmark-Modell als korrekt angenommen, so ist zu schlussfolgern,

dass für das Experiment LEU-COMP-THERM-012 ein deutlich größerer Bias als für die übrigen Experimente vorliegt. Allerdings wird dieser größere Bias nicht durch die obigen Trendanalysen reproduziert (die Datenpunkte des Experiments LEU-COMP-THERM-012 sind nicht mit der angepassten Geraden kompatibel). Somit müssen zum Bias des Experiments LEU-COMP-THERM-012 Komponenten beitragen, die in den übrigen Experimenten nicht oder nur geringfügig auftreten. D. h. der Bias muss von einem oder mehreren weiteren Parametern als den oben diskutierten abhängen. Allerdings weist LEU-COMP-THERM-012 gegenüber den übrigen Experimenten keine Besonderheit auf, die eine weitere Abhängigkeit plausibel erscheinen lässt. Es konnte auch keine weitere Abhängigkeit identifiziert werden. Insgesamt gelingt mit dem gewählten Ansatz der Trendanalyse keine vollständig konsistente Beschreibung der ausgewählten Experimente, was bei der Ableitung des Bias für die Anwendungsfälle zu berücksichtigen ist.

Zur Ableitung des Bias der Anwendungsfälle wird hier das Programm USLSTATS aus dem SCALE-Paket herangezogen /LIC 97/, /SCA 11/. Dies erlaubt die Bestimmung von einseitigen unteren Konfidenz- und Toleranzlimits für die Nachrechnungen kritischer Experimente in Abhängigkeit eines vom Anwender vorzugebenden Parameters. Für die Ableitung der Limits unterstellt USLSTATS, dass die errechneten k_{eff} -Werte eine lineare Abhängigkeit vom angegebenen Parameter und eine normalverteilte Streuung um den parameterabhängigen Mittelwert aufweisen. D. h. zur Parametrisierung des mittleren errechneten k_{eff} führt USLSTATS eine lineare Regression durch und ermittelt Konfidenz- und Toleranzlimits bezüglich dieser Geraden unter Annahme einer Normalverteilung. Dabei berücksichtigt USLSTATS allerdings, dass nach nationalen wie internationalen Regelwerken eine Korrektur überschätzter k_{eff} -Werte in der Regel unzulässig ist. Dies geschieht, indem für den Bereich, in dem die angepasste Gerade einen Wert oberhalb von 1,0 annimmt, die zu errechnenden Grenzwerte nicht bezüglich der angepassten Gerade sondern bezüglich einem konstanten Werte von 1,0 ermittelt werden. Dies gilt auch für die von USLSTATS bestimmten Toleranzlimits.

Die so ermittelten Toleranzlimits beschreiben eine anhand der vorgegebenen Daten abgeleitete untere Grenze für die zu erwartenden Resultate weiterer Nachrechnungen kritischer Experimente. D. h. die Differenz des Limits zum Wert 1,0 entspricht einer unteren Grenze für den zu erwartenden Bias inklusive seiner Unsicherheit, bzw. die Differenz der angepassten Geraden $k(x)$ zum Wert 1,0 entspricht dem mittleren Bias und die Differenz des ermittelten Toleranzlimits zur Geraden $k(x)$ gibt eine Abschät-

zung für die Unsicherheit des Bias. Konventionsgemäß wird der mittlere Bias β meist in folgender Form definiert:

$$\beta(x) = k(x) - 1,0 \quad (4.2)$$

Allerdings erfüllen die hier ausgewählten Experimente aufgrund der im Vergleich größeren Abweichungen der k_{eff} -Werte des Experiments LEU-COMP-THERM-012 die in USLSTATS angenommenen Voraussetzungen nicht vollständig. Um dies zu kompensieren, wird mit USLSTATS nicht nur das üblicherweise genutzte 95%/95%-Toleranzlimit, sondern auch das 99%/99%-Toleranzlimit (unter den genannten Annahmen einer linearen Parametrisierung und normalverteilter Daten) ermittelt. Die Abb. 4.13 bis Abb. 4.17 geben die so errechneten Limits wieder.

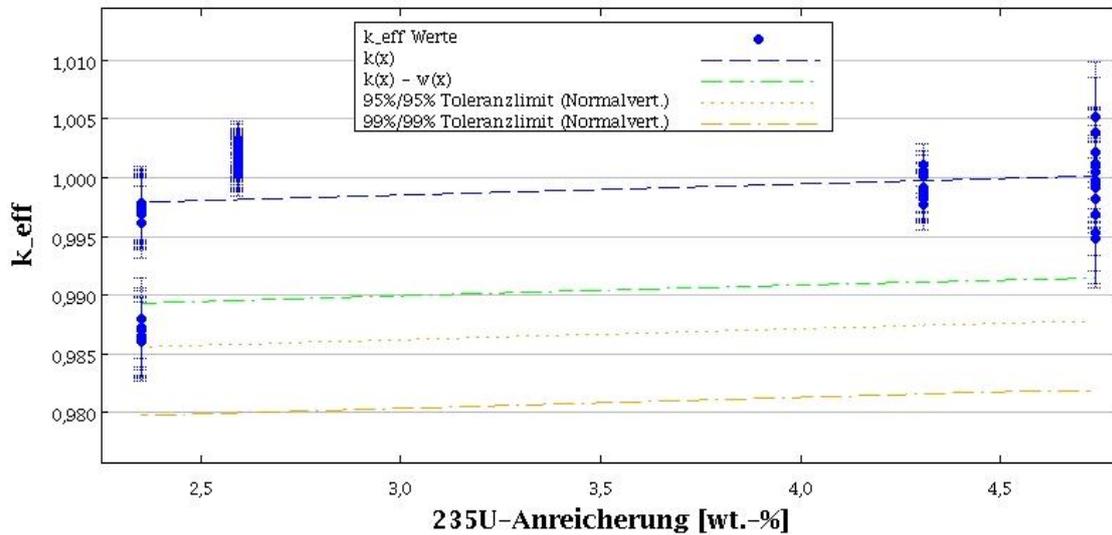


Abb. 4.13 Mit USLSTATS errechnete Toleranzlimits als Funktion der ^{235}U -Anreicherung für die Anwendungsfälle mit unbestrahltem Brennstoff

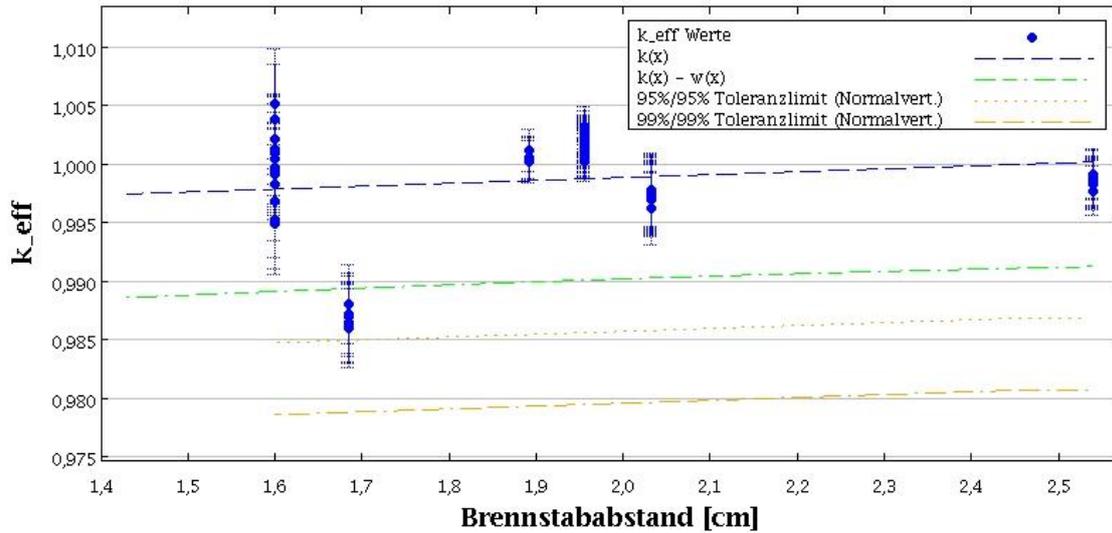


Abb. 4.14 Mit USLSTATS errechnete Toleranzlimits als Funktion des Brennstababstands für die Anwendungsfälle mit unbestrahltem Brennstoff

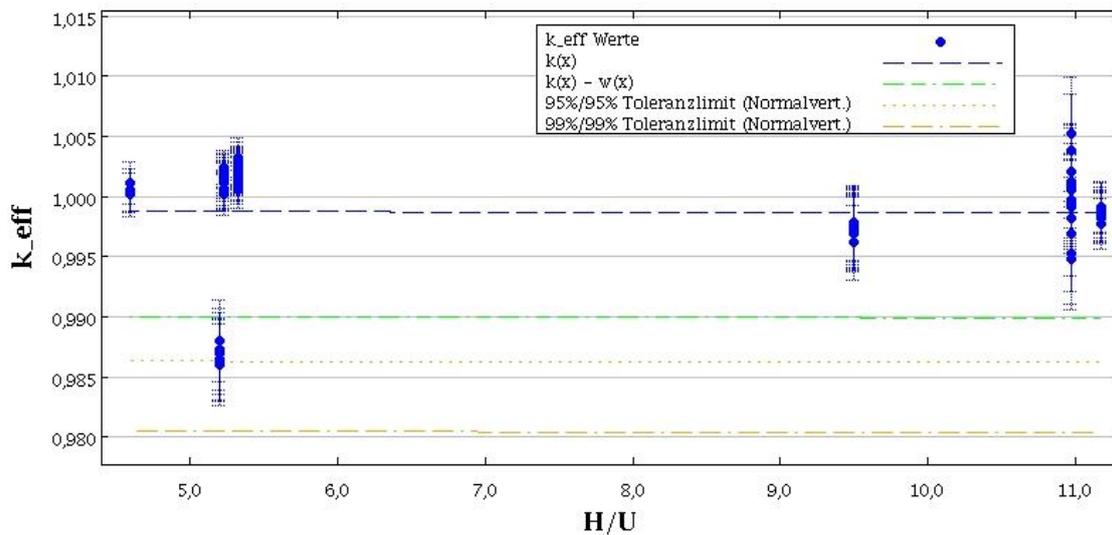


Abb. 4.15 Mit USLSTATS errechnete Toleranzlimits als Funktion des Moderationsverhältnisses H/U für die Anwendungsfälle mit unbestrahltem Brennstoff

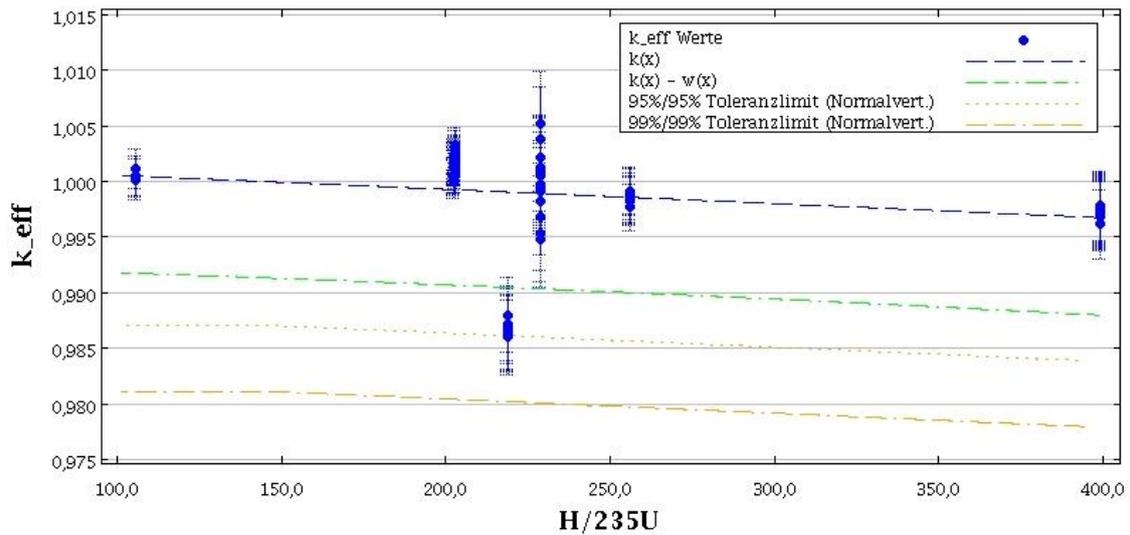


Abb. 4.16 Mit USLSTATS errechnete Toleranzlimits als Funktion des Moderationsverhältnisses $H/^{235}\text{U}$ für die Anwendungsfälle mit unbestrahltem Brennstoff

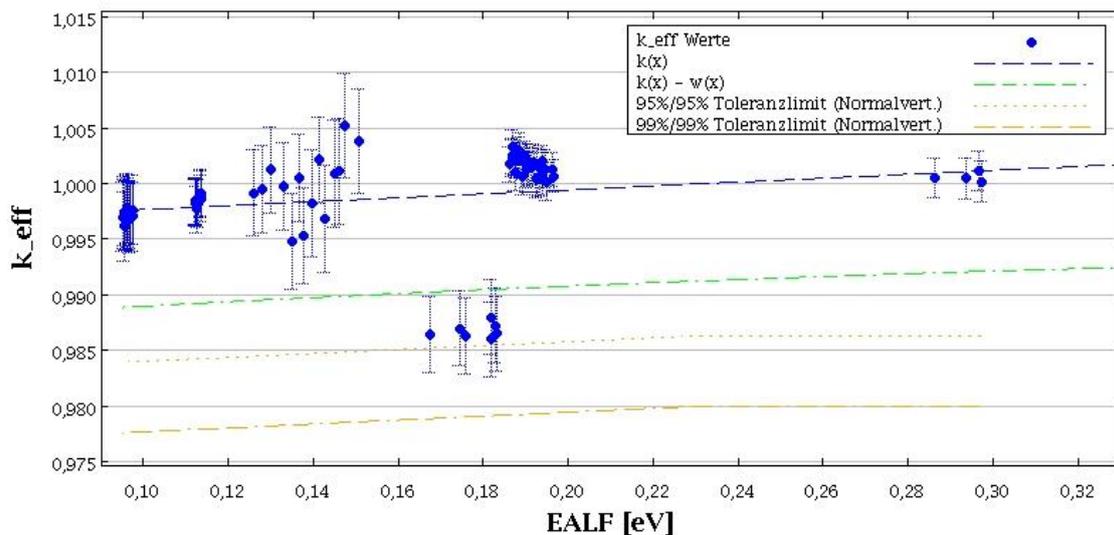


Abb. 4.17 Mit USLSTATS errechnete Toleranzlimits als Funktion des Parameters EALF für die Anwendungsfälle mit unbestrahltem Brennstoff

Der Vergleich mit den errechneten k_{eff} -Werten zeigt, dass die mit USLSTATS ermittelten 95 %/95 %-Toleranzlimits auf der Höhe der Datenpunkte des Experiments LEU-COMP-THERM-012 liegen, wohingegen die 99 %/99 %-Toleranzlimits deutlich unterhalb aller k_{eff} -Werte inklusive ihrer Unsicherheit verlaufen. Aufgrund der unbekannt wahren Verteilung der errechneten k_{eff} -Werte ist allerdings nicht zu entscheiden, ob hier die mit USLSTATS errechneten 95 %/95 %-Toleranzlimits eine ausreichend konservative Abschätzung für die untere Grenze des Bias inklusive seiner Unsicherheit ergeben. Um dennoch eine hinreichend konservative Bias-Bestimmung zu gewährleis-

ten, wird daher als Abschätzung nicht wie üblich auf das 95 %/95 %-Toleranzlimit sondern auf das 99 %/99 %-Toleranzlimit zurückgegriffen. Durch Ablesen des jeweiligen Limits an den Parameterwerten der Anwendungsfälle ergeben sich dann die konkreten Grenzen für Bias und dessen Unsicherheit der einzelnen Anwendungsfälle. Diese Werte sind in Abhängigkeit des jeweiligen Trendparameters in Tab. 4.5 zusammengefasst.

Tab. 4.5 Abschätzungen der unteren Grenze des Bias in k_{eff} für die Anwendungsfälle mit unbestrahltem Brennstoff

Trendanalyse mit Parameter	untere Grenze des Bias in k_{eff} für Anwendungsfall		
	365	445	465
^{235}U -Anreicherung [wt.-%]	-0,0191	-0,0183	-0,0182
Brennstababstand [cm]	-0,0218	-0,0218	-0,0218
H/U	-0,0195	-0,0195	-0,0195
H/ ^{235}U	-0,0188	-0,0188	-0,0188
EALF [eV]	-0,0200	-0,0200	-0,0200
c_k	-0,0290	-0,0294	-0,0297

Eine weitere Möglichkeit die Auswahl der Experimente zu treffen, die zur Validierung eines Anwendungsfalls heranzuziehen sind, bietet der Parameter c_k , der mit Hilfe der SCALE-Module TSUNAMI und TSUNAMI-IP /REA 03/, /REA 07/, /SCA 11/ berechnet werden kann (vgl. Kap. 2.3.5). Dabei wird, wie oben diskutiert, angenommen, dass ein möglicher Bias ausschließlich oder zumindest hauptsächlich durch die Unsicherheiten in den Wirkungsquerschnitten hervorgerufen wird. Anstelle des klassischen Ansatzes, der Auswahl der Experimente anhand von Ähnlichkeiten bezüglich des geometrischen Aufbaus, Materialien und neutronenphysikalischen Parametern, wird in diesem Fall alleinig die Ähnlichkeit in der Abhängigkeit des Neutronenmultiplikationsfaktors k_{eff} von den auftretenden Wirkungsquerschnitten berücksichtigt. D. h. mit dem Parameter c_k werden Experimente ausgewählt, bei denen im Vergleich zum Anwendungsfall k_{eff} sehr ähnliche Abhängigkeiten von bzw. Sensitivitäten auf die in den Rechenmodellen auftretenden Wirkungsquerschnitte besitzt. In diesen Experimenten ist dann zu erwarten, dass die Unsicherheiten in den Wirkungsquerschnitten entsprechend ähnliche Auswirkungen auf k_{eff} wie im Anwendungsfall haben.

Für die Berechnung von c_k wurden alle Modelle der in Tab. 4.1 aufgeführten Experimente neben der Sequenz CSAS5 auch mit der Sequenz TSUNAMI-3D-K5 des SCALE-Pakets berechnet. Die in der Sequenz TSUNAMI dafür herangezogenen Rechen-

modelle entsprechen dabei exakt denen, die zur Berechnung mit der Sequenz CSAS5 genutzt wurden. Anschließend wurden die mit TSUNAMI-3D-K5 ermittelten Sensitivitäten der Neutronenmultiplikationsfaktoren auf die genutzten Wirkungsquerschnitte im Modul TSUNAMI-IP genutzt, um jeweils den Parameter c_k zwischen den einzelnen Experimentnachrechnungen und den Anwendungsfällen zu bestimmen. Die Ergebnisse für den Parameter c_k sind in Abb. 4.18 zusammengefasst.

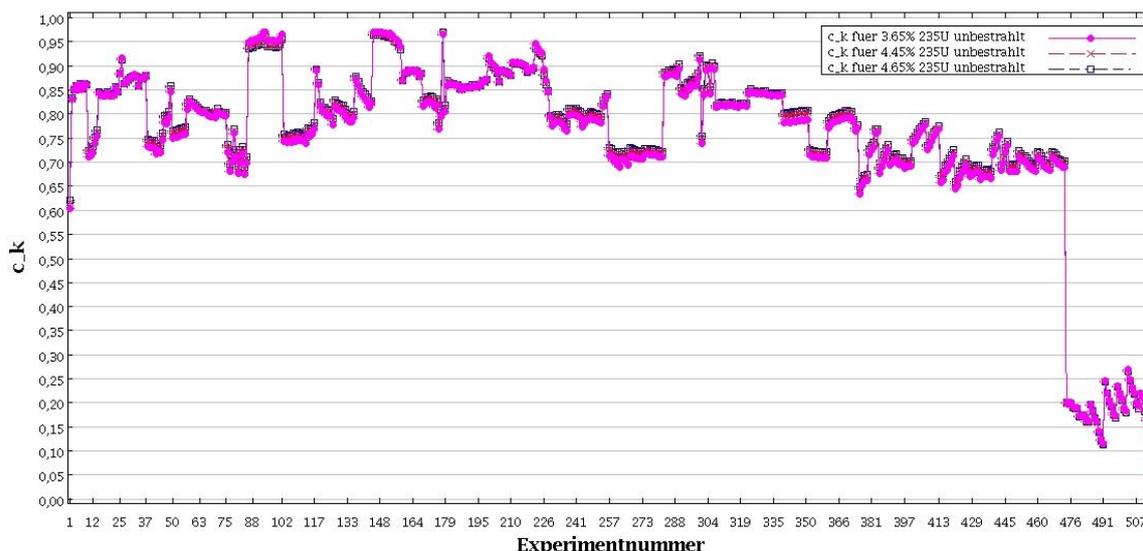


Abb. 4.18 Parameter c_k zwischen den Experimentnachrechnungen und Anwendungsfällen mit unbestrahltem Brennstoff

Aus Abb. 4.18 ergibt sich zunächst, dass sich die Parameter c_k der drei betrachteten Anwendungsfälle nicht wesentlich unterscheiden. Die unterschiedlichen Anreicherungen der Anwendungsfälle führen also zu keinen deutlichen Unterschieden in den berechneten c_k -Werten. Für das eine berücksichtigte Experiment mit hochangereichertem Uran (Experiment-Nr. 1) werden c_k -Werte um 0,6 ermittelt, für alle Experimente mit niedrigangereichertem Uran (Experiment-Nr. 2 bis 473) ergeben sich c_k -Werte oberhalb von etwa 0,65 und für die Experimente mit MOX-Brennstoff werden c_k -Werte unterhalb von 0,3 berechnet. Die Experimente mit MOX-Brennstoff (Experiment-Nr. ≥ 474) zeigen damit, wie nach früheren Arbeiten zu erwarten /BEH 11/, die geringste Ähnlichkeit zu den Anwendungsfällen mit unbetrahltem Brennstoff. Die nach dem obigen klassischen Ansatz ausgewählten Experimente mit verschiedenen, teils Borhaltigen Absorbern weisen c_k -Werte zwischen etwa 0,74 (LEU-COMP-THERM-009) und 0,89 (LEU-COMP-THERM-012) auf. Damit zeigen diese Experimente auch nach diesem Ansatz eine gewisse Ähnlichkeit zu den Anwendungsfällen, erreichen aber nicht die höchsten Werte bzw. keine Werte über 0,9. Die höchsten c_k -Werte ergeben

sich dagegen für die Experimente LEU-COMP-THERM-008 ($c_k \approx 0,94$), LEU-COMP-THERM-011 ($c_k \approx 0,96$) und LEU-COMP-THERM-014, Fall 5 ($c_k = 0,97$). Diese Experimente besitzen keine Absorberplatten, sondern weisen gelöstes Bor im Moderator auf. Damit bilden sie offensichtlich die Sensitivitäten der Multiplikationsfaktoren k_{eff} der Anwendungsfälle auf die Wirkungsquerschnitte deutlich besser nach als die Experimente mit Absorberplatten. Dies gibt aber nicht generell. So wurde z. B. auch in den Experimenten LEU-COMP-THERM-035 und LEU-COMP-THERM-014, Fall 2 Bor im Moderator gelöst, allerdings zeigen diese Experimente nur c_k -Werte um 0,82. Daher ist hier davon auszugehen, dass die Experimente LEU-COMP-THERM-008, LEU-COMP-THERM-011 und LEU-COMP-THERM-014, Fall 5 die Begebenheiten der Anwendungsfälle in puncto Materialzusammensetzung, Moderators, Absorption, etc. nur zufällig aufgrund ihrer individuellen Konstellationen besser wiedergeben als die Experimente mit Absorberplatten.

Zur Ableitung eines Bias wird in der Literatur typischerweise die Auswahl von Experimenten mit einem c_k -Werte von $c_k > 0,9$ empfohlen /BRO 04/. Sind solche Experimente nicht oder nur in geringer Zahl vorhanden, so können nach diesen Empfehlungen auch weitere Experimente mit $c_k > 0,8$ berücksichtigt werden. Mit diesen Experimente ist der Bias für $c_k = 1,0$ abzuleiten, was in der Regel mittels Trendanalyse erfolgt. Eine weitere Möglichkeit den Bias für den Anwendungsfall abzuleiten, stellt das SCALE-Modul TSURFER bereit. Allerdings bedarf es dazu die Kenntnis der Korrelationen zwischen den Experimentnachrechnungen aufgrund identischer Unsicherheiten durch die Verwendung derselben Komponenten in verschiedenen Experimenten. Diese Korrelationen sind aber für die meisten der hier genutzten Experimente nicht verfügbar, weshalb diese Option hier nicht weiter verfolgt wird.

Die Anzahl der Experimente mit c_k -Werten oberhalb von 0,8 gibt Tab. 4.6 wieder. Für alle drei Anwendungsfälle mit unbestrahltem Brennstoff zeigen etwa 50 Experimente c_k -Werte oberhalb von 0,9, c_k -Werte, oberhalb von 0,85 weisen insgesamt 133 bis 142 Experimente auf und c_k -Werte oberhalb von 0,8 ergeben sich für deutlich über 200 Experimente. Als Kompromiss zwischen einer großen Anzahl an Experimenten, die zur Bias-Bestimmung herangezogen werden können und einer möglichst großen Ähnlichkeit dieser Experimente zum jeweiligen Anwendungsfall, werden hier im Weiteren alle Experimente mit $c_k > 0,85$ genutzt. So können mehr als 100 Experimente zur Bias-Bestimmung genutzt werden.

Tab. 4.6 Zusammenstellung der Experimentanzahlen mit $c_k > 0,80$ für die Anwendungsfälle mit unbestrahltem Brennstoff

	Anzahl Experimente mit entsprechendem c_k für den Anwendungsfall		
	365	445	465
$c_k > 0,80$	220	249	265
$c_k > 0,85$	133	137	142
$c_k > 0,90$	48	48	50

Beispielhaft für die anderen Anwendungsfälle zeigt Abb. 4.19 die Verteilung der k_{eff} -Werte bezüglich c_k für die Experimente mit einem c_k -Wert von $c_k > 0,85$ zum Anwendungsfall 445. Die Mehrheit der Experimente weisen dabei k_{eff} -Werte zwischen 0,995 und 1,0 auf. Zusätzlich liegen aber auch Experimente mit k_{eff} -Werten im Bereich von etwa 0,985 bis 0,988 vor. In Abb. 4.19 erscheinen die Experimente daher zwei „Bänder“ um unterschiedliche k_{eff} -Werte zu bilden. Wie bereits zuvor für das Experiment LEU-COMP-THERM-012 diskutiert, kann auch hier kein eindeutiger Grund für die größeren Abweichungen zwischen errechneten und erwarteten k_{eff} -Werten einiger Experimente angegeben werden. Aufgrund der sehr ähnlichen c_k -Werte aller 3 betrachteten Anwendungsfälle (Abb. 4.18) ergeben sich für die beiden Anwendungsfälle 365 und 465 ein analoges Bild.

Für die weitere Bias-Bestimmung ist analog zu den zuvor durchgeführten Trendanalysen eine mögliche Abhängigkeit der errechneten k_{eff} -Werte vom Parameter c_k zu prüfen. Dazu wurde in Abb. 4.19 zusätzlich eine Gerade an die Datenpunkte angepasst. Diese weist im Rahmen der ermittelten Unsicherheit eine signifikante Steigung auf, d. h. es ist eine Abhängigkeit des durch die Experimente repräsentierten mittleren Bias von c_k zu beobachten, die entsprechend bei der Bestimmung des Bias für $c_k = 1,0$ zu berücksichtigen ist. Allerdings werden, wie auch zuvor, die Experimente mit größeren Abweichungen ihrer errechneten k_{eff} -Werten von den zu erwarteten Werten („unteres Band“ in Abb. 4.19) nicht durch die angepasste Gerade repräsentiert, d. h. die jeweiligen Datenpunkte sind statistisch nicht mit der angepassten Geraden kompatibel. Entsprechend weisen die k_{eff} -Werte in Abb. 4.19 keine Normalverteilung um die angepasste Gerade auf. Auch dieser Tatbestand ist wie zuvor bei der Bias-Bestimmung zu beachten.

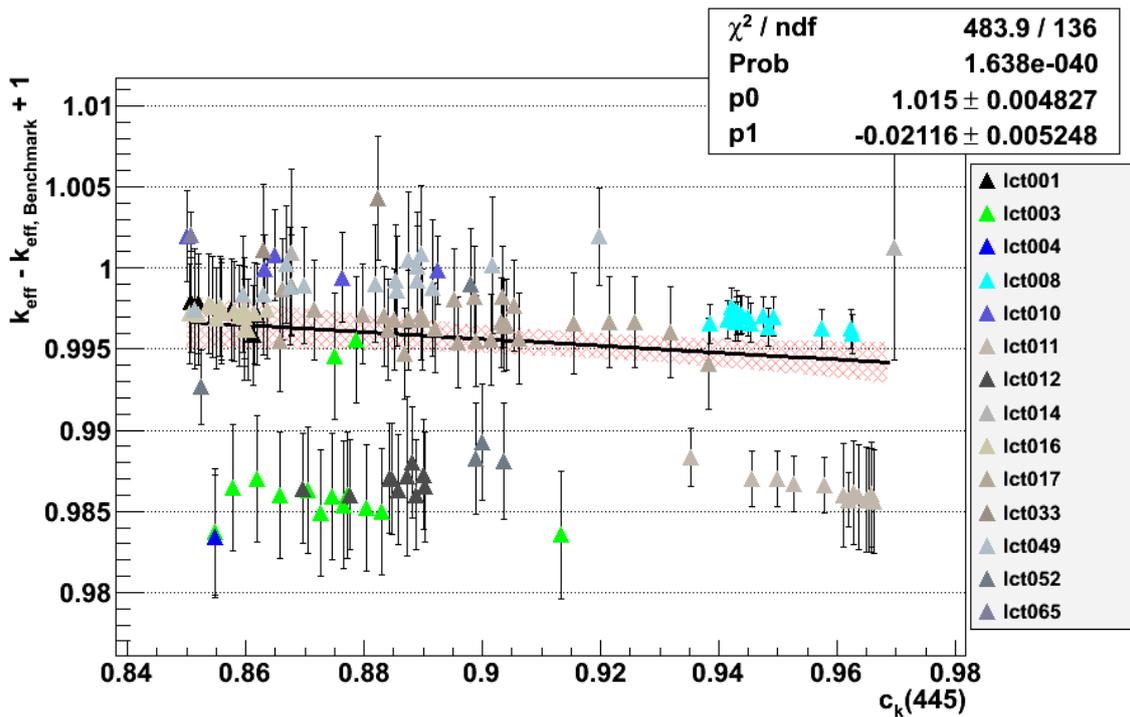


Abb. 4.19 Trendanalyse für Δk_{eff} bezüglich des Parameters c_k für den Anwendungsfall 445 mit unbestrahltem Brennstoff

Mit den anhand des Parameters c_k ausgewählten Experimenten wird wiederum mit Hilfe des Programms USLSTATS entsprechende Toleranzlimits errechnet. Diese sind exemplarisch für den Anwendungsfall 445 in Abb. 4.20 dargestellt. Aufgrund der von der Normalverteilung abweichenden Verteilung der Datenpunkte, wurde auch hier zusätzlich zum 95%/95%-Toleranzlimit das 99%/99%-Toleranzlimit mit USLSTATS ermittelt. Letzteres verläuft deutlich unterhalb aller Datenpunkte inklusive ihrer Unsicherheiten und wird daher als hinreichend konservative Abschätzung für die untere Grenze des Bias angenommen. Für die beiden anderen Anwendungsfälle mit unbestrahltem Brennstoff ergeben sich aufgrund der sehr ähnlichen c_k -Werte entsprechend ähnliche Toleranzlimits mit USLSTATS. Die Werte der 99%/99%-Toleranzlimits für $c_k = 1,0$ sind in Tab. 4.5 enthalten.

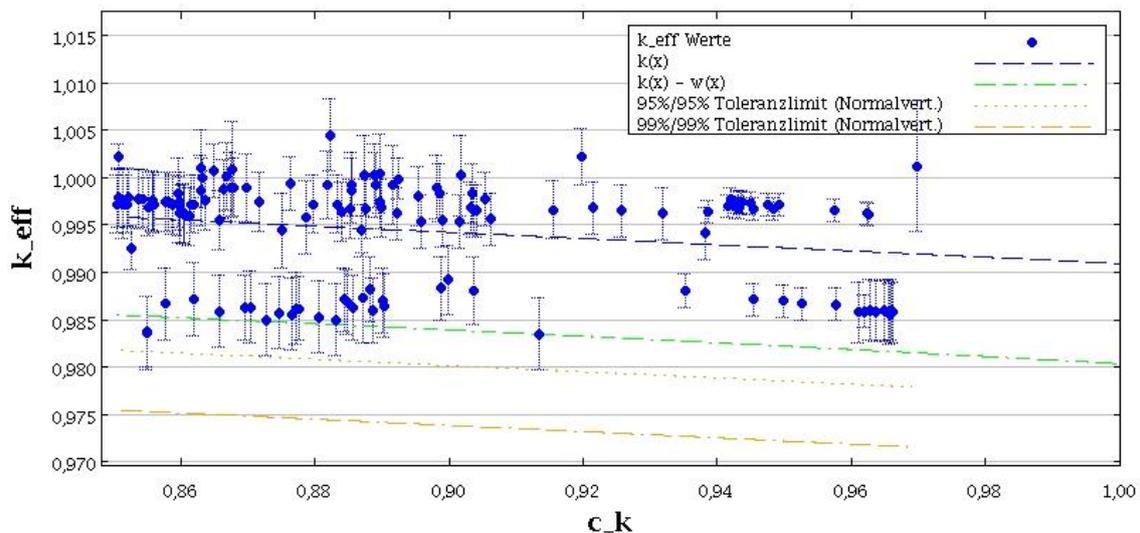


Abb. 4.20 Mit USLSTATS errechnete Toleranzlimits als Funktion des Parameters c_k für den Anwendungsfall 445 mit unbestrahltem Brennstoff

Nach Tab. 4.5 ergeben damit die Trendanalysen mit klassischen Trendparametern (EALF, ^{235}U -Anreicherung, Moderationsverhältnisse und Brennstababstand) Abschätzungen für die untere Grenze des Bias inklusive dessen Unsicherheit von etwa -0,018 bis -0,022 für alle drei betrachteten Anwendungsfälle. Dagegen liefert die Trendanalysen bezüglich des Parameters c_k Abschätzungen um etwa -0,0295, ebenfalls für alle drei betrachteten Anwendungsfälle. Letztere Werte sind damit die konservativeren Abschätzungen, welche dementsprechend im Weiteren genutzt werden.

4.2.2 Validierung für die Anwendungsfälle mit bestrahltem Brennstoff und hohem Abbrand

Die Validierung der Nachrechnungen für die Anwendungsfälle mit bestrahltem Brennstoff kann grundsätzlich auf demselben Weg erfolgen wie die Validierung für Anwendungsfälle mit frischem Brennstoff (Kap. 4.2.1). Lediglich die Auswahl der heranzuziehenden Experimente ist an die veränderte Brennstoffzusammensetzung anzupassen. Wie zu Beginn des Kap. 4.2 bereits angesprochen, hängt die Brennstoffzusammensetzung vom jeweiligen Abbrand der Anwendungsfälle ab (vergl. Tab. 4.3). Daher werden hier zunächst die Anwendungsfälle 365 – 40 und 445 – 55 betrachtet, die für die angenommenen Anfangsanreicherungen typische Zielabbrände aufweisen. Der Anwendungsfall 465 – 12 besitzt dagegen einen deutlich geringeren Abbrand und wird in Kap. 4.2.3 gesondert betrachtet.

Nach klassischem Ansatz bieten sich für die Validierung in Fall der Anwendungsfälle 365 – 40 und 445 – 55 Experimente mit MOX-Brennstoff an. Diese enthalten das beim Abbrand entstehende Plutonium und bilden damit näherungsweise den bestrahlten Brennstoff nach. Da die hier betrachteten Anwendungsfälle in konservativer Weise nur das Uran und Plutonium des bestrahlten realen Brennstoffs berücksichtigen, entfällt hier die Schwierigkeit auch die Spaltprodukte in der Validierung berücksichtigen zu müssen.

An Experimenten mit MOX-Brennstoff stehen im Rahmen dieser Arbeit die Experimente MIX-COMP-THERM-004 bis MIX-COMP-THERM-009 mit insgesamt 41 Konfigurationen aus dem ICSBEP zur Verfügung (Tab. 4.1). Sie wurden, wie schon zuvor erwähnt, sowohl mit der Sequenz CSAS5 also auch mit der Sequenz TSUAMI-3D-K5 der SCALE Version 6.1.2 nachgerechnet. Diese Experimente bestehen im Wesentlichen aus Brennstäben mit MOX-Brennstoff innerhalb eines Wassertanks. Zusätzliche Absorbermaterialien sind in den nachgerechneten Konfigurationen allerdings nicht enthalten. Daher kann hier ein möglicher Einfluss der Borstahlplatten der Anwendungsfälle auf den Bias nicht direkt untersucht werden. Ein Vergleich der in Kap. 4.2.1 herangezogene Experimente mit UO_2 -Brennstoff und Absorberplatten zu entsprechenden Experimenten ohne Absorberplatten zeigt aber, dass für beide Experimentgruppen ein sehr ähnlicher mittlerer Bias bestimmt werden kann. Allerdings zeigen die Experimente mit Absorberplatten eine etwas größere Streuung in den errechneten k_{eff} -Werten als die Experimente ohne Absorber, woraus eine betragsmäßig um etwa 0,002 größere untere Grenze für Bias und dessen Unsicherheit resultiert. In Ermangelung weiterer Daten wird hier der Wert von 0,002 als eine zusätzliche Unsicherheit auf den Bias aufgrund der in den Experimenten nicht berücksichtigten Absorberplatten veranschlagt. Details zur Ableitung dieses Wertes sind im Anhang C zu finden.

Um weiter die Ähnlichkeit dieser Experimente zu Anwendungsfällen mit bestrahltem Brennstoff zu beurteilen, können aus klassischer Sicht dieselben oder analoge Parameter wie bereits zuvor im Fall der Anwendungsfälle mit unbestrahltem Brennstoff herangezogen werden. Dementsprechend kommen hier im Einzelnen die folgenden Parameter zum Einsatz:

- **PuO_2 -Anteil:** Gewichtsanteil des PuO_2 im Brennstoff,
- **^{239}Pu -Anreicherung:** Anreicherung des Isotops ^{239}Pu im Spaltmaterial in Gewichtsprozent,

- **Brennstababstand:** Nomineller Abstand der Brennstabmitten ohne spezielle Korrektur auf ggf. einzelne fehlende Brennstäbe innerhalb des Gitters,
- **H/SM:** Verhältnis der Kernzahldichten von Wasserstoff und Schwermetall (Uran + Plutonium) in der Brennstab-Einheitszelle,
- **H/SM_{fis}:** Verhältnis der Kernzahldichten von Wasserstoff und der Summe der thermisch spaltbaren Isotope der Brennstoffs ($^{235}\text{U} + ^{239}\text{Pu} + ^{241}\text{Pu}$) in der Brennstab-Einheitszelle,
- **EALF:** „Energy of Average Lethargy causing Fission“, die Energie der mittleren Lethargie der Neutronen, die zu Spaltungen führen.

Für die vorliegenden 41 Konfigurationen geben Abb. 4.21 bis Abb. 4.26 die Verteilungen der errechneten k_{eff} -Werte in Abhängigkeit der genannten Parameter wieder. Die Parameter EALF und der Brennstababstand werden hier analog wie zuvor im Kap. 4.2.1 herangezogen. Aufgrund des vorhandenen Plutoniums, welches in diesem Fall die Reaktivität des Brennstoffs wesentlich bestimmt, wird anstelle der ^{235}U -Anreicherung hier der Gewichtsanteil des PuO_2 im Brennstoff und die Zusammensetzung des Plutoniumvektors anhand des Gewichtsanteils des Isotops ^{239}Pu im Plutonium betrachtet. Entsprechend wird auch das Moderationsverhältnis nicht nur bezüglich des Urans, sondern bezüglich des gesamten Schwermetalls (Uran + Plutonium) bzw. bezüglich aller thermisch spaltbarer Nuklide im Brennstoff ($^{235}\text{U} + ^{239}\text{Pu} + ^{241}\text{Pu}$) betrachtet. In Tab. 4.7 ist der jeweilige Parameterbereich, der durch die verfügbaren Experimente abgedeckt wird, angegeben. Der Vollständigkeit halber sind auch die abgedeckten Bereiche für die Gewichtsanteile der Isotope ^{240}Pu und ^{241}Pu im Plutonium aufgeführt.

Tab. 4.7 Parameterbereich der zur Validierung der Anwendungsfälle mit bestrahltem Brennstoff ausgewählten Experimente

Parameter	Abgedeckter Bereich
PuO ₂ -Anteil im Brennstoff [wt.-%]	1,5 – 3,98
²³⁹ Pu-Anteil im Pu [wt.-%]	68,2 – 91,8
²⁴⁰ Pu-Anteil im Pu [wt.-%]	7,8 – 23,5
²⁴¹ Pu-Anteil im Pu [wt.-%]	0,47 – ,3
Brennstababstand [cm]	1,40 – 4,32
H/SM	3,47 – 36,69
H/SM _{fis}	157,6 – 1137,6
EALF [eV]	0,078 – 0,528

Der Vergleich der Parameterwerte der Anwendungsfälle 365 – 40 und 445 – 55 (Tab. 4.3) mit den jeweils abgedeckten Parameterbereichen zeigt, dass die Werte der Anwendungsfälle für die Parameter H/SM , H/SM_{fis} und $EALF$ sowie für den Brennstababstand innerhalb des durch die Experimente abgedeckten Bereichs liegen. Dagegen weisen die Anwendungsfälle für die Anteile des PuO_2 und des Isotops ^{239}Pu im Plutonium Werte etwas unterhalb des jeweils durch die Experimente abgedeckten Bereichs auf. In diesen Fällen ist eine Extrapolation zur Bias-Bestimmung notwendig.

Zwar unterscheiden sich die betrachteten Anwendungsfälle und Experimente auch in der restlichen ^{235}U -Anreicherung sowie in der Zusammensetzung des Plutonium bezüglich der Isotope ^{240}Pu und ^{241}Pu , allerdings ergeben sich aus den verfügbaren Experimenten nicht genügend weitere Informationen, als dass ein zusätzliches Betrachten dieser Größen zusätzliche Erkenntnisse ergeben würden. Dies folgt im Fall der ^{235}U -Anreicherung aus der Tatsache, dass im Wesentlichen nur zwei verschiedene Anreicherungen vorliegen (Abb. 4.27), womit nur schwer eine aussagekräftige Trendanalyse und Extrapolation auf die Werte der Anwendungsfälle zu erstellen ist. Da für die Experimente mit UO_2 -Brennstoff kein signifikanter Trend bezüglich der ^{235}U -Anreicherung zu erkennen ist, wird in Ermangelung weiterer Daten hier für die Experimente mit MOX-Brennstoff die Unabhängigkeit des Bias vom Anteil des Isotops ^{235}U unterstellt. Bezüglich der Isotope ^{240}Pu und ^{241}Pu erübrigen sich zusätzliche Trendanalysen, da die Gewichtsanteile beider Isotope direkt mit dem Anteil des Isotops ^{239}Pu korreliert sind. Aufgrund der begrenzten Anzahl an Experimente liegen hier nur wenige Kombinationen der drei Isotope vor, so dass Trendanalysen bezüglich dieser drei Isotope letztlich immer dieselbe Information enthalten.

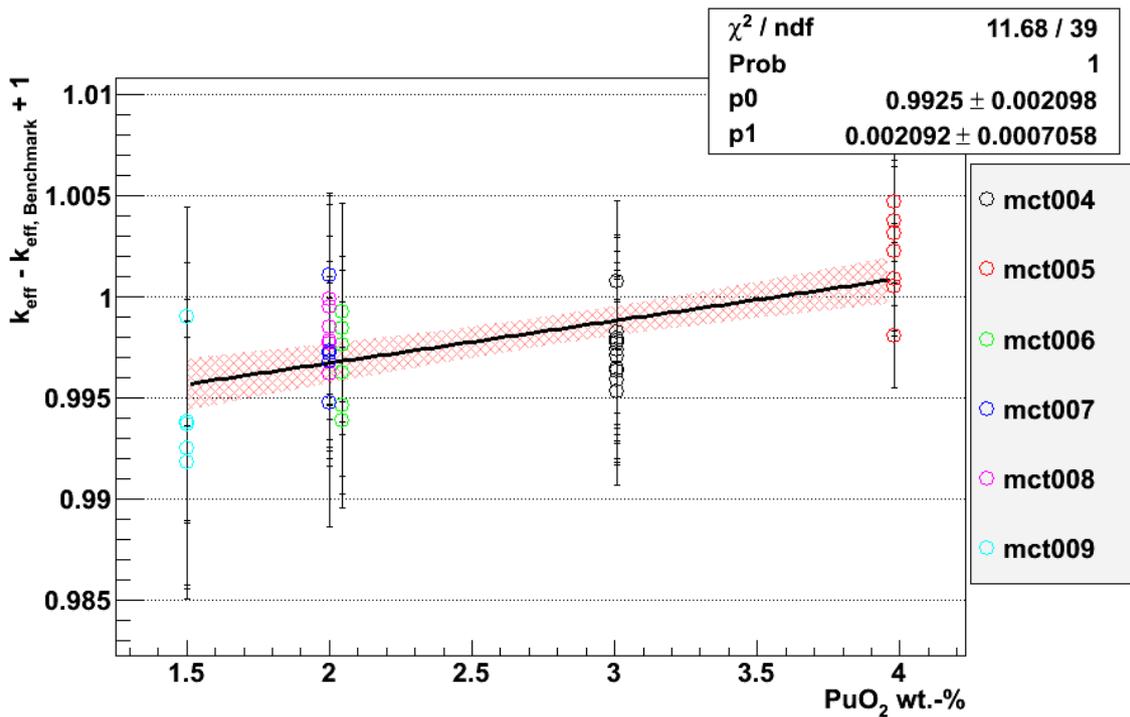


Abb. 4.21 Trendanalyse für Δk_{eff} bezüglich des Anteils an PuO_2 im Brennstoff für die Experimente mit MOX-Brennstoff

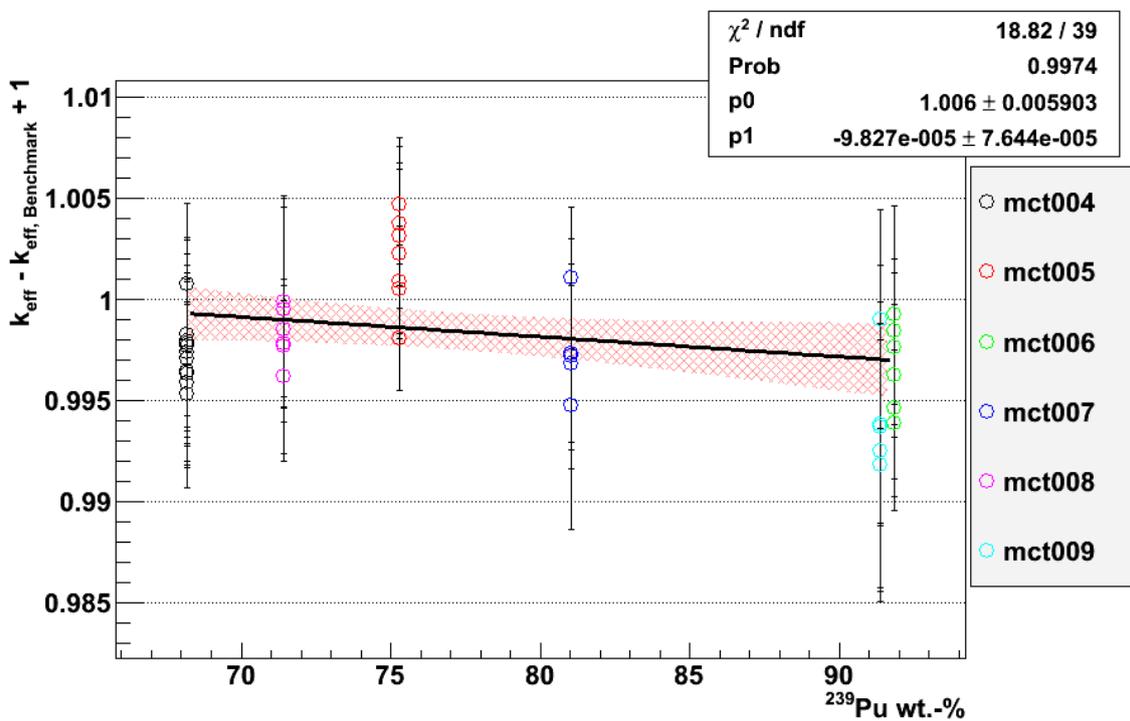


Abb. 4.22 Trendanalyse für Δk_{eff} bezüglich des Anteils an ^{239}Pu im Plutonium des Brennstoffs für die Experimente mit MOX-Brennstoff

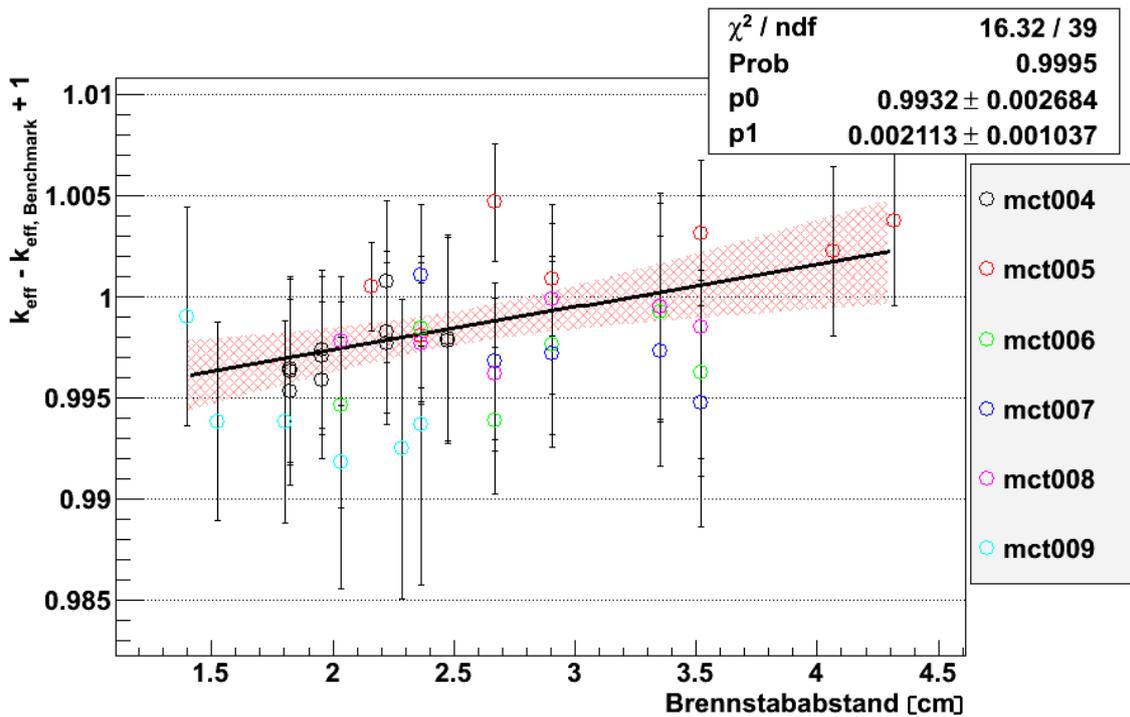


Abb. 4.23 Trendanalyse für Δk_{eff} bezüglich des Brennstababstands für die Experimente mit MOX-Brennstoff

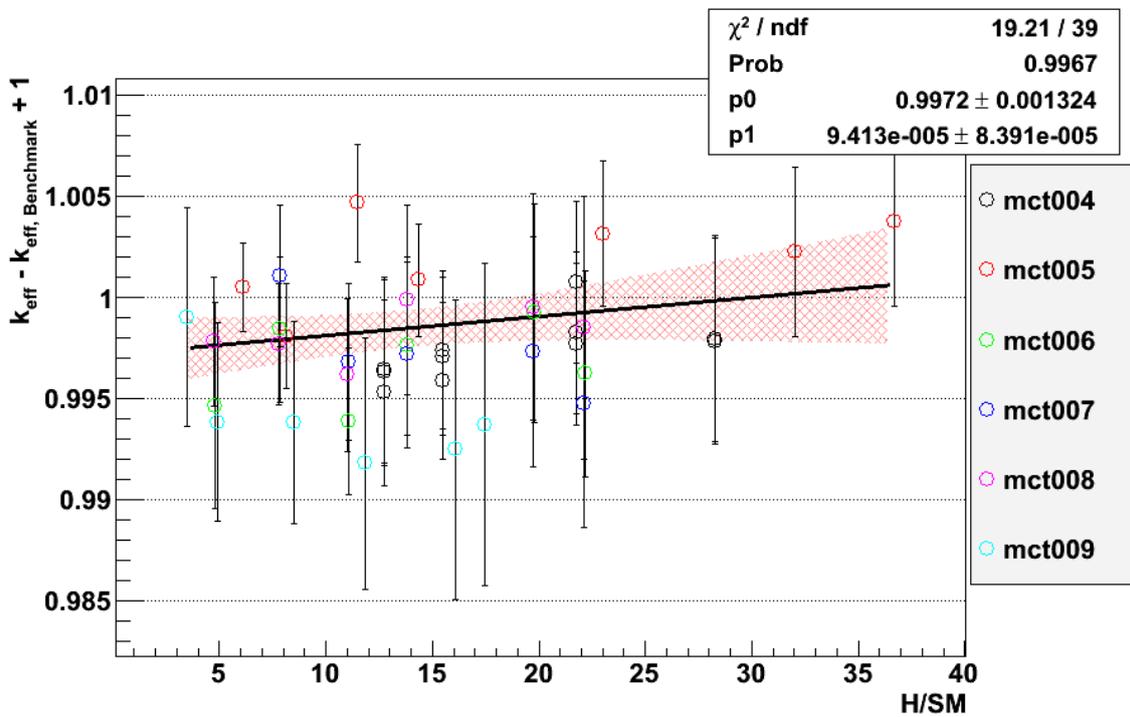


Abb. 4.24 Trendanalyse für Δk_{eff} bezüglich des Verhältnisses H/SM für die Experimente mit MOX-Brennstoff

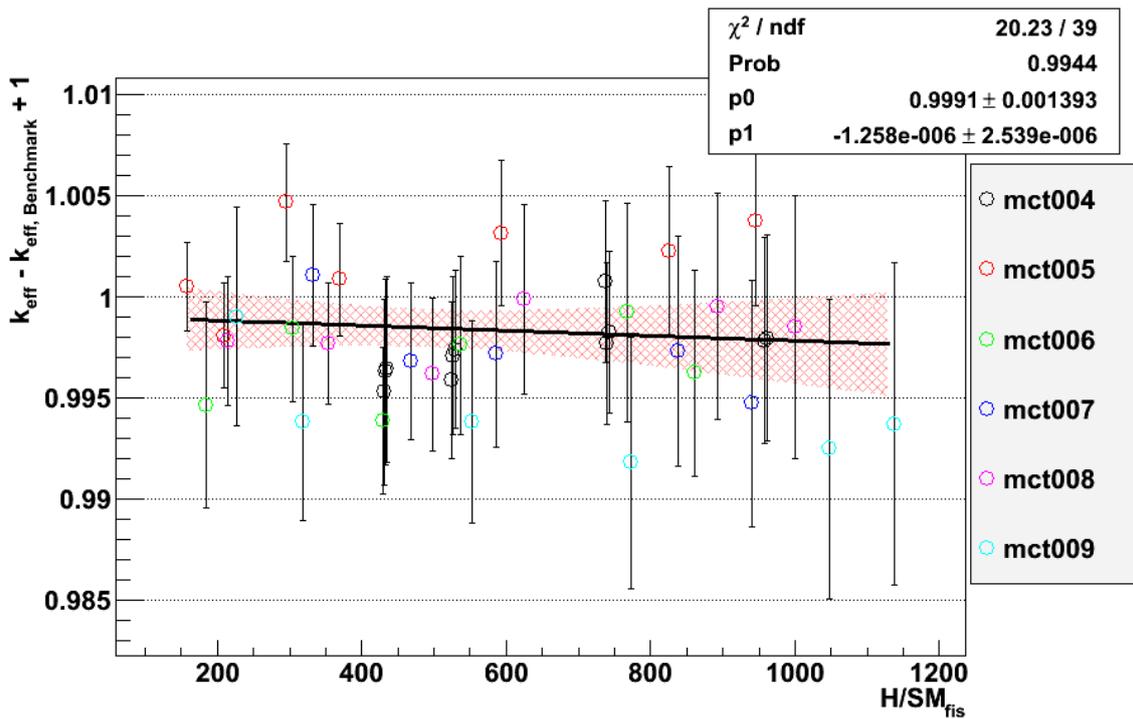


Abb. 4.25 Trendanalyse für Δk_{eff} bezüglich des Verhältnisses H/SM_{fis} für die Experimente mit MOX-Brennstoff

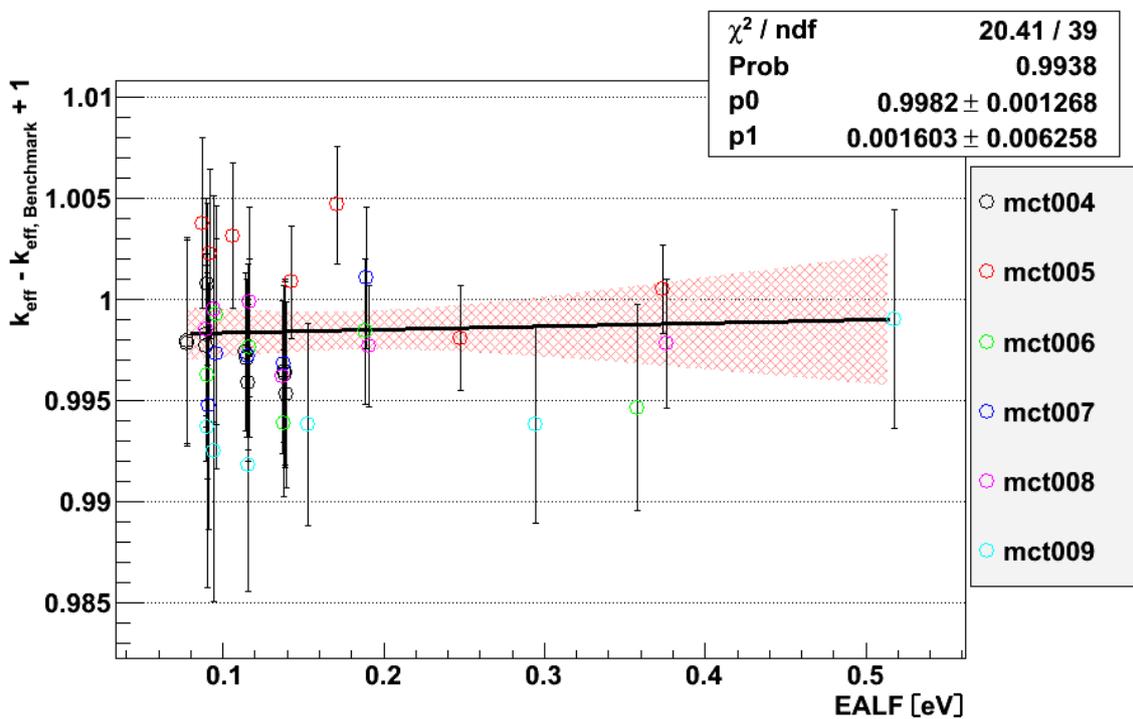


Abb. 4.26 Trendanalyse für Δk_{eff} bezüglich des Parameters EALF für die Experimente mit MOX-Brennstoff

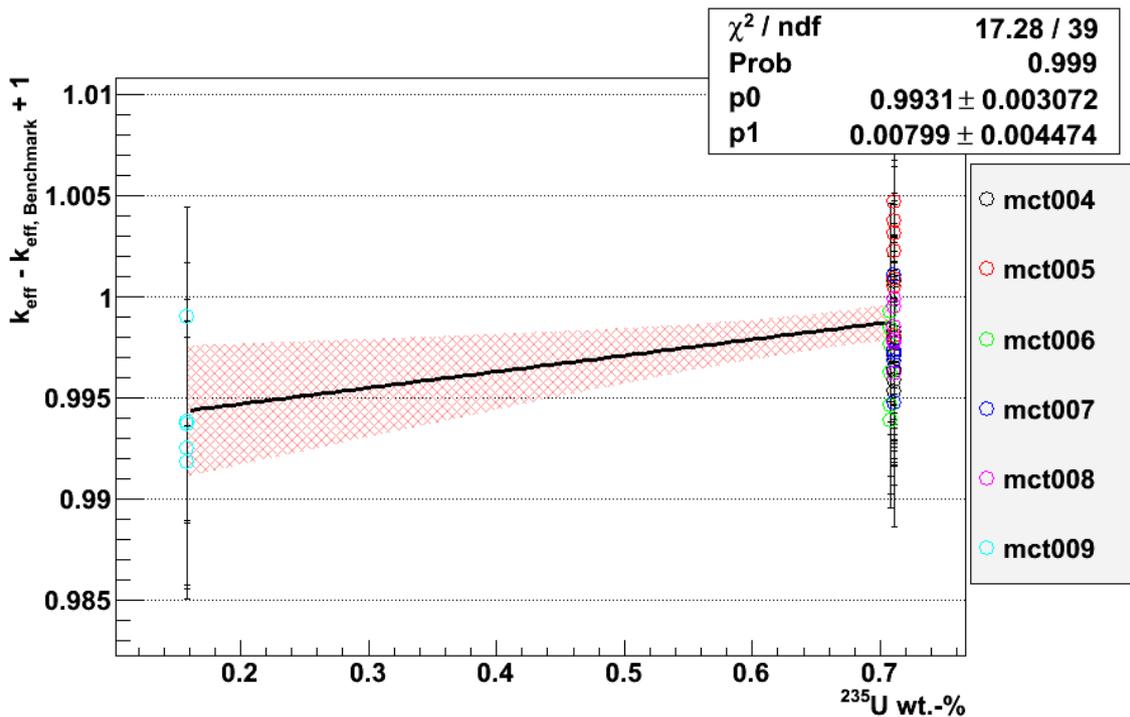


Abb. 4.27 Verteilung von Δk_{eff} bezüglich des Anteils an ^{235}U im Uran des Brennstoffs für die Experimente mit MOX-Brennstoff

Die obigen Trendanalysen (Abb. 4.21 bis Abb. 4.26) zeigen für den Gewichtsanteil des Isotops ^{239}Pu im Plutonium sowie für die Parameter H/SM , H/SM_{fis} und EALF Steigungen in der Größenordnung ihrer Unsicherheiten. D. h. es liegen bezüglich dieser Parameter keine signifikanten Trends vor. Für den Brennstababstand ergibt sich eine Steigung, die das Doppelte ihrer Unsicherheit beträgt. Dies kann als Hinweis für einen möglichen Trend gewertet werden, wobei ein sog. „2-Sigma-Effekt“ in der Regel noch nicht als signifikant erachtet wird. Nur für den Gewichtsanteil des PuO_2 im Brennstoff ist die ermittelte Steigung erheblich größer als ihre Unsicherheit (etwa Faktor 3), so dass man für diesen Parameter von einem vorhandenen Trend sprechen kann.

Im Gegensatz zu den Experimenten mit UO_2 -Brennstoff zeigen die k_{eff} -Werte in den Abb. 4.21 bis Abb. 4.26 keinerlei Inkompatibilitäten mit den angepassten Geraden. Die ermittelten χ^2 -Werte sind sogar deutlich kleiner als die Unsicherheiten der k_{eff} -Werte, die hier durch die Unsicherheiten in den k_{eff} -Werten der Benchmark-Modelle dominiert werden, erwarten lassen. D. h. die Fluktuationen der Datenpunkte um die angepassten Geraden sind geringer, als nach ihren Unsicherheiten bzw. einer entsprechenden Normalverteilung zu erwarten wäre.

Wie schon zuvor wurde auch hier das Programm USLSTATS zur Bias-Bestimmung verwendet. In Abb. 4.28 bis Abb. 4.33 sind die jeweils in Anhängigkeit der betrachteten Trendparameter ermittelten Bias- und Toleranzlimit-Verläufe grafisch wiedergegeben. Aufgrund der vergleichsweise schmalen Verteilungen der Datenpunkte um die angepassten Geraden ist in diesem Fall nicht von einem Unterschätzen der zugehörigen Toleranzlimits auszugehen. Daher werden hier als untere Grenze des Bias die regulär mit USLSTATS ermittelten 95%/95%-Toleranzlimits genutzt. Eine zusätzliche zu berücksichtigende Konservativität ist hier nicht notwendig. Dies wird auch durch die ermittelten 95%/95%-Toleranzlimits bestätigt, sie verlaufen in allen Fällen deutlich unterhalb aller Datenpunkte inklusive ihrer Unsicherheiten. Die sich aus den ermittelten Toleranzlimits in Abb. 4.28 bis Abb. 4.33 für die einzelnen Anwendungsfälle ergebenden unteren Grenzen des Bias sind in Tab. 4.8 zusammengestellt.

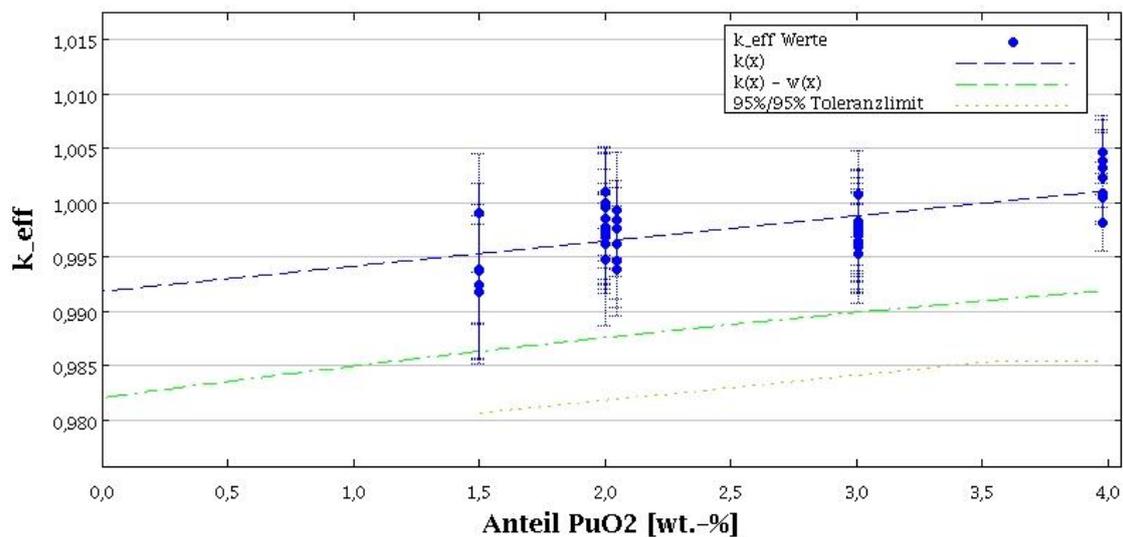


Abb. 4.28 Mit USLSTATS errechnete Toleranzlimits als Funktion des PuO₂-Gewichtsanteils im Brennstoff für die Anwendungsfälle mit bestrahltem Brennstoff

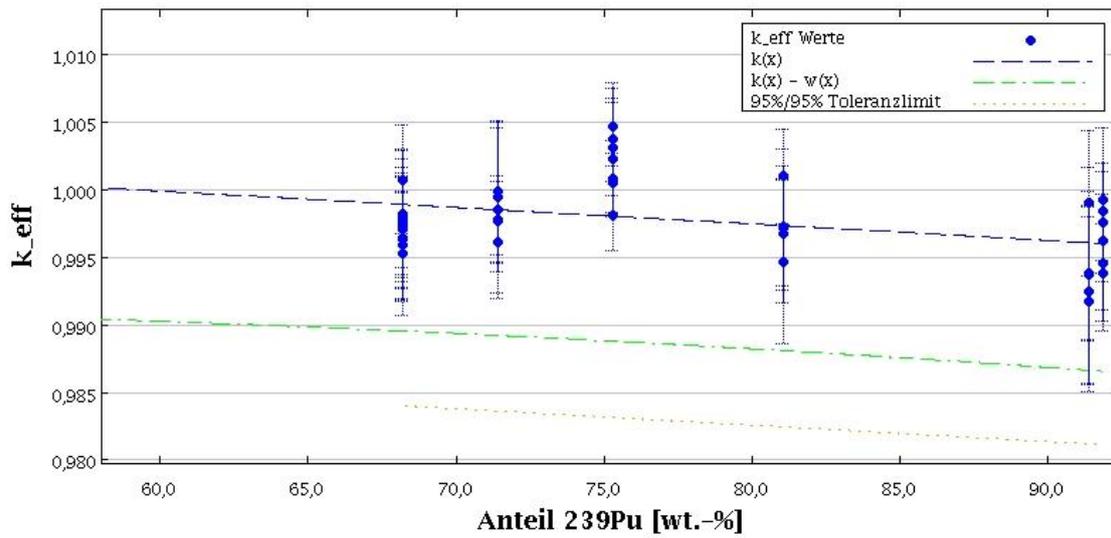


Abb. 4.29 Mit USLSTATS errechnete Toleranzlimits als Funktion des ^{239}Pu -Gewichtsanteils im Plutonium für die Anwendungsfälle mit bestrahltem Brennstoff

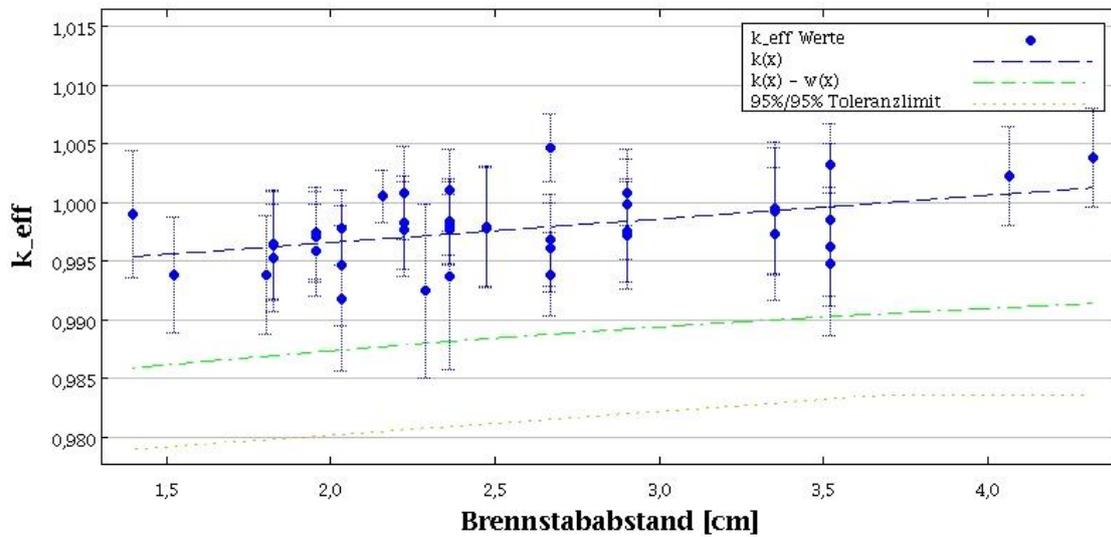


Abb. 4.30 Mit USLSTATS errechnete Toleranzlimits als Funktion des Brennelementabstands für die Anwendungsfälle mit bestrahltem Brennstoff

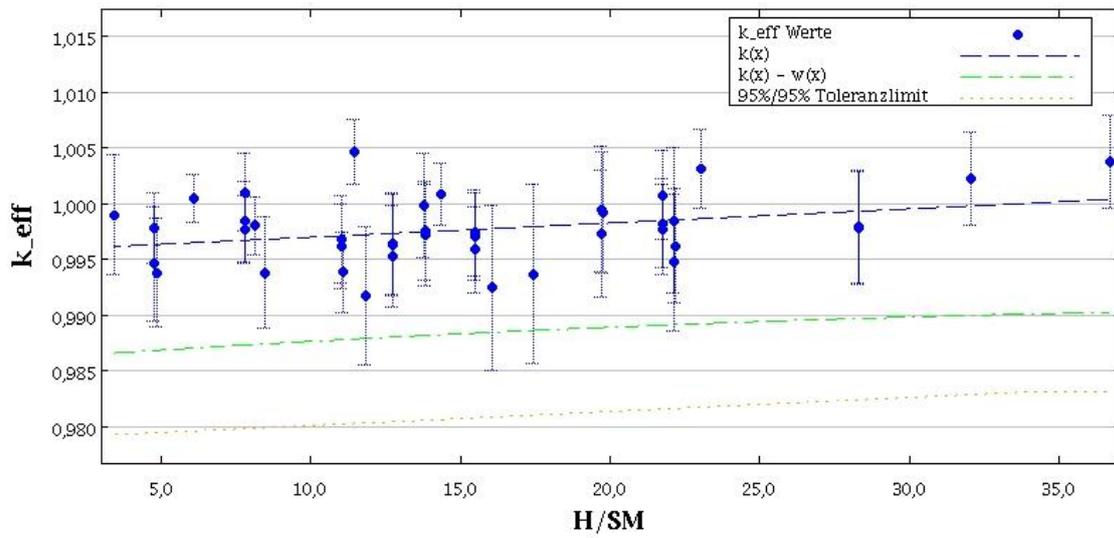


Abb. 4.31 Mit USLSTATS errechnete Toleranzlimits als Funktion des Verhältnisses H/SM für die Anwendungsfälle mit bestrahltem Brennstoff

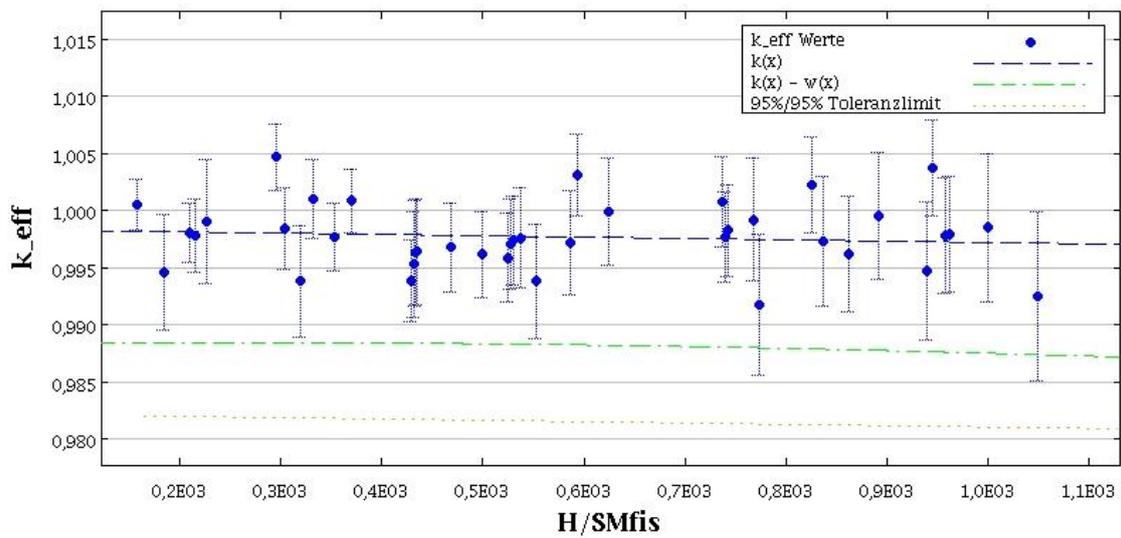


Abb. 4.32 Mit USLSTATS errechnete Toleranzlimits als Funktion des Verhältnisses H/SM_{fis} für die Anwendungsfälle mit bestrahltem Brennstoff

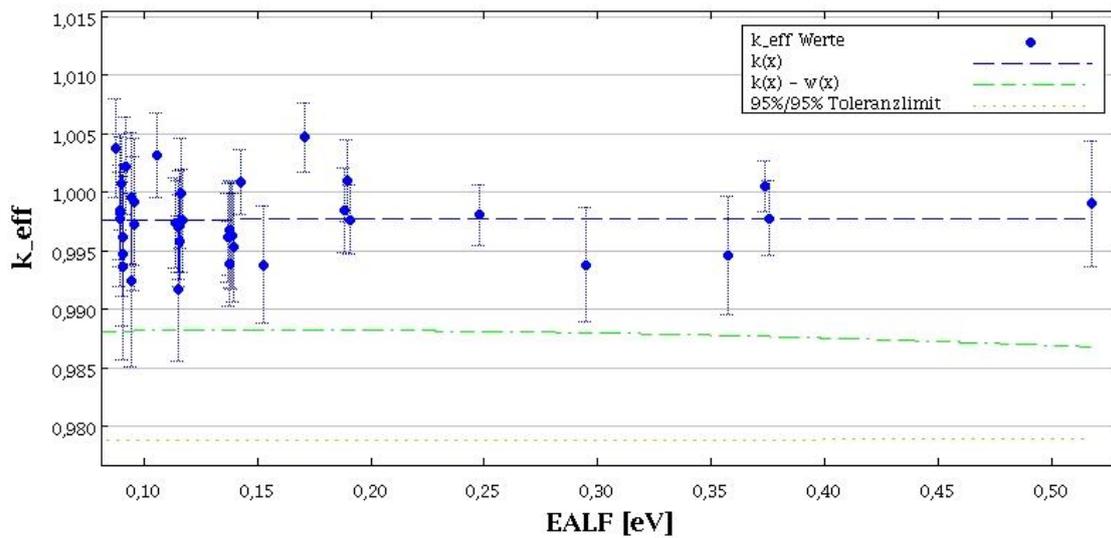


Abb. 4.33 Mit USLSTATS errechnete Toleranzlimits als Funktion des Parameters EALF für die Anwendungsfälle mit bestrahltem Brennstoff

Tab. 4.8 Abschätzungen der unteren Grenze des Bias in k_{eff} nach USLSTATS für die Anwendungsfälle mit bestrahltem Brennstoff und hohem Abbrand

Parameter	Modell	
	365 – 40	445 – 55
PuO ₂ / wt.-%	-0.0203	-0.0197
²³⁹ Pu / wt.-%	-0.0153	-0.0152
Brennstababstand / cm	-0.0210	-0.0210
H/SM	-0.0205	-0.0205
H/SM _{fis}	-0.0181	-0.0181
EALF / eV	-0.0211	-0.0211
c _k	-0.0233	-0.0229

Neben den klassischen Parametern wird auch hier wieder der Parameter c_k zwischen Experimenten und Anwendungsfällen als Trendparameter betrachtet. Die c_k -Werte zwischen den zwei hier untersuchten Anwendungsfällen mit hohem Abbrand und allen zur Verfügung stehenden Experimenten gibt Abb. 4.34 wieder. In diesem Fall liegen die c_k -Werte beider Anwendungsfälle mit allen Experimenten mit UO₂-Brennstoff unterhalb von 0,42 und sind damit im Rahmen der Auswahl nach c_k für die Validierung nicht geeignet. Dagegen weisen die c_k -Werte mit den Experimenten mit MOX-Brennstoff Werte oberhalb von 0,85 auf und sind damit für eine Validierung geeignet. Einzige

Ausnahme ist das Experiment MIX-MISC-THERM-004 (MOX-Brennstäbe in MOX-Lösung) mit $c_k \approx 0,75$.

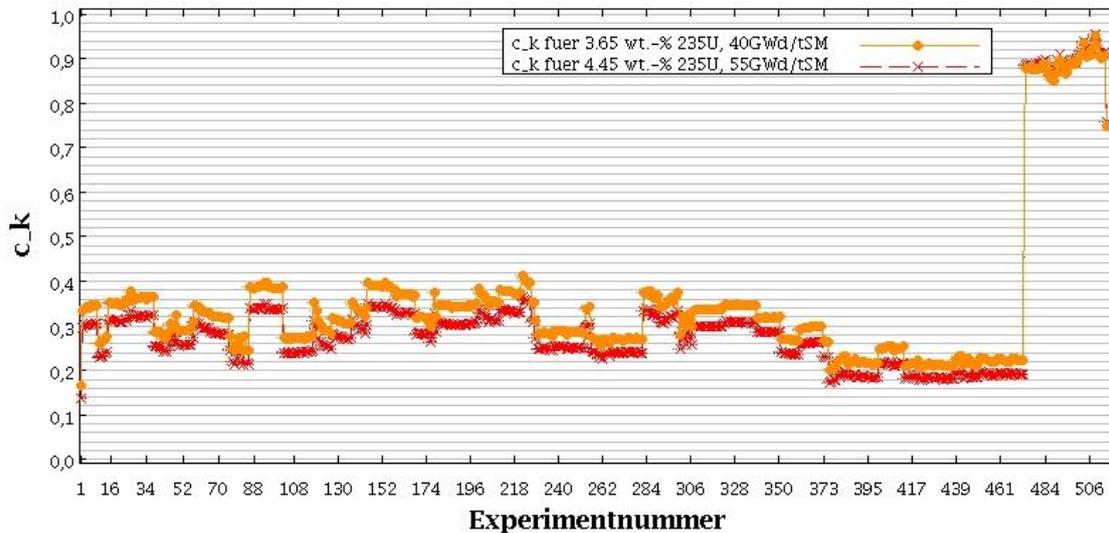


Abb. 4.34 Parameter c_k zwischen den Experimentnachrechnungen und Anwendungsfällen mit bestrahltem Brennstoff und hohem Abbrand

Die Abb. 4.35 und Abb. 4.36 geben die Verteilung der errechneten k_{eff} -Werte für die 41 Konfigurationen der Experimente mit MOX-Brennstoff in Anhängigkeit des Parameters c_k zum Anwendungsfall 445 – 55 wieder. Die in Abb. 4.35 angepasste Steigung liegt dabei in der Größenordnung deren Unsicherheit, womit kein signifikanter Trend bezüglich des Parameters c_k vorliegt. Da sich die c_k -Werte der beiden Anwendungsfälle nur wenig unterscheiden ergibt sich für den Anwendungsfall 365 – 40 ein entsprechend ähnliches Bild. Für die Bestimmung des Bias bzw. dessen Toleranzlimit werden hier wiederum die Experimente mit $c_k > 0,85$ genutzt, welches alle hier verfügbaren Experimente der Gruppe MIX-COMP-THERM sind. D. h. in diesem Fall werden dieselben Experimente wie bei der Bias-Bestimmung in Abhängigkeit der klassischen Trendparameter genutzt. Die Bestimmung der Toleranzlimits erfolgt wiederum mittels USLS-TATS (Abb. 4.36) Die für $c_k = 1,0$ abzulesenden unteren Grenzen für den Bias der beiden Anwendungsfälle sind in Tab. 4.8 aufgeführt.

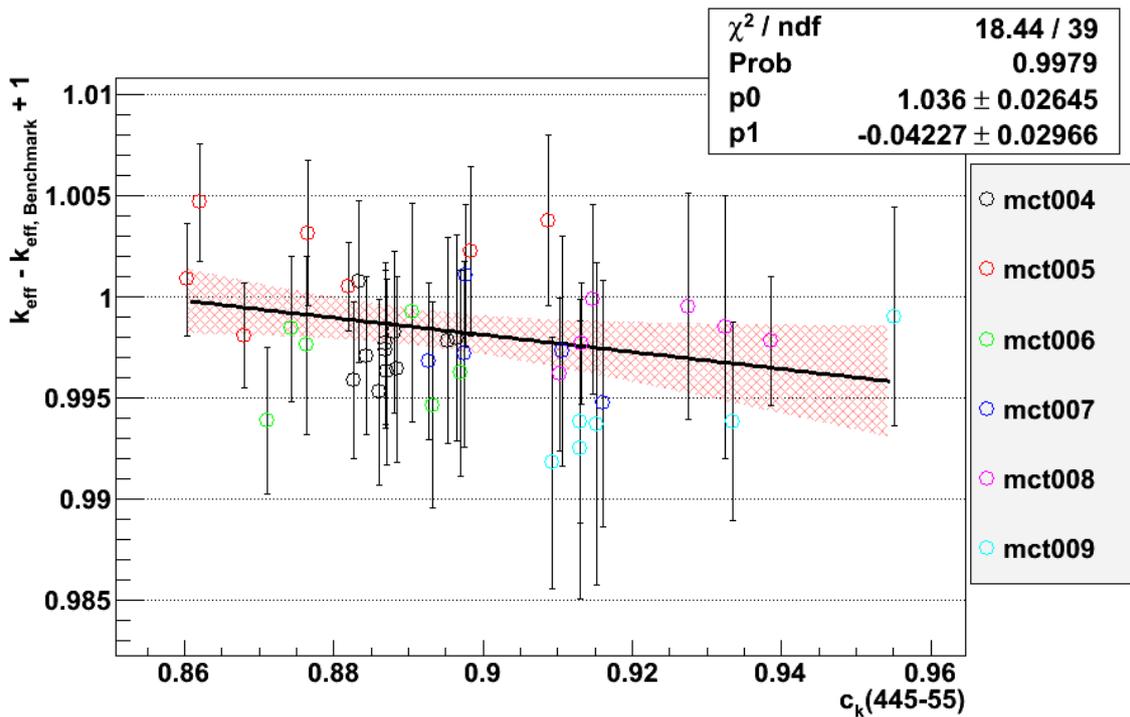


Abb. 4.35 Trendanalyse für Δk_{eff} bezüglich des Parameters c_k für den Anwendungsfall 445 – 55 mit bestrahltem Brennstoff

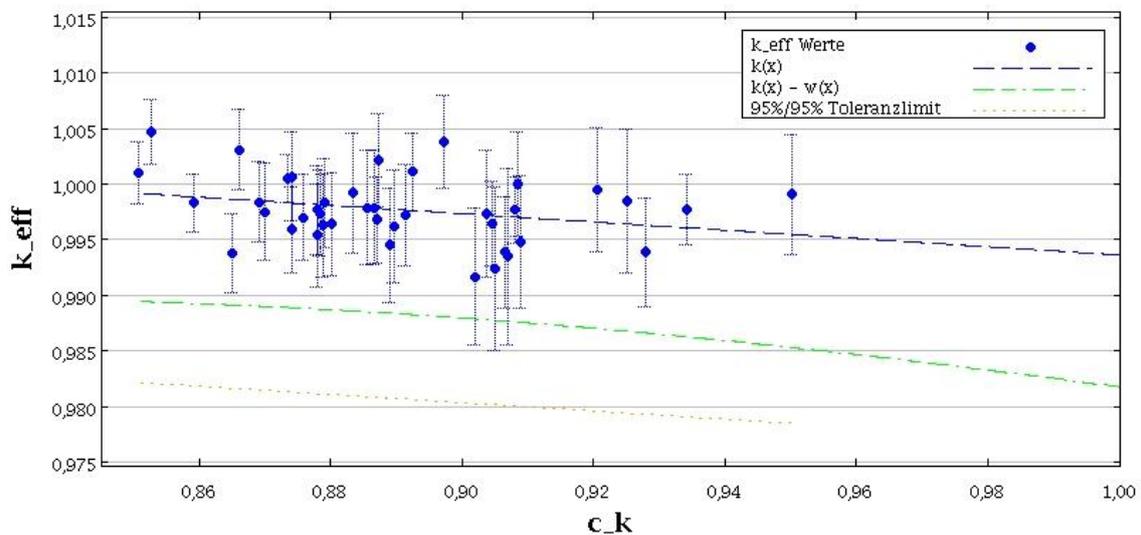


Abb. 4.36 Mit USLSTATS errechnete Toleranzlimits als Funktion des Parameters c_k für den Anwendungsfall 445 – 55 mit bestrahltem Brennstoff

Damit ergeben sich nach Tab. 4.8 aufgrund der Experimente mit MOX-Brennstoff für die unteren Grenzen des Bias bezüglich der klassischen Trendparameter Werte zwischen etwa -0.0210 und -0.0180. Ausnahme ist der Bias bezüglich des Gewichtsanteils des Isotops ^{239}Pu im Plutonium. Für diesen Parameter ergibt sich eine untere Grenze

von nur etwa -0.0150. Dagegen resultiert aus der Analyse es Parameters c_k wie im Fall der Anwendungsfälle mit unbestrahltem Brennstoff ein größerer Wert. Dieser beträgt hier etwa -0.0230 und ist damit die konservativste Abschätzung der unteren Grenze des Bias. Zu beachten ist, dass die Werte in Tab. 4.8 den im Anhang C abgeschätzten Einfluss von Stahl- oder borhaltigen Absorberplatten nicht enthalten. D. h. diese Korrektur ist zusätzlich zu den Werten in Tab. 4.8 zu berücksichtigen. Damit ergibt sich für die beiden hier betrachteten Anwendungsfälle 365 – 40 und 445 – 55 insgesamt eine untere Grenze für den Bias von eine -0.0253 bzw. -0.0249.

4.2.3 Validierung für die Anwendungsfälle mit bestrahltem Brennstoff und niedrigem Abbrand

Der Anwendungsfall 465 – 12 stellt hier mit seinem vergleichsweise geringen Abbrand eine dritte Variante neben den Anwendungsfällen mit frischem Brennstoff und mit Brennstoff mit hohem Abbrand dar. Nach klassischem Ansatz zur Auswahl der Experimente zur Validierung sollten diese u. a. einen Brennstoff möglichst ähnlich zu dem des Anwendungsfalls aufweisen. Der Vergleich der Brennstoffzusammensetzung des Anwendungsfalls 465 – 12 (Tab. 4.3) mit den Brennstoffzusammensetzungen der verfügbaren Experimente (Tab. 4.4 und Tab. 4.7) zeigt allerdings keine gute Übereinstimmung. Im Fall der Experimente mit UO_2 -Brennstoff wird das im Anwendungsfall vorhandene Plutonium nicht berücksichtigt und im Fall der Experimente mit MOX-Brennstoff enthalten der Brennstoff einen deutlich höheren Plutoniumanteil und einen erheblich geringeren Gewichtsanteil für das Isotop ^{235}U .

Auch über den Vergleich mittels des Parameters c_k ergibt sich ein ähnliches Bild. Abb. 4.37 gibt die zwischen dem Anwendungsfall 465 – 12 und allen verfügbaren Experimenten ermittelten c_k -Werte wieder. Lediglich die Konfigurationen der Experimente LEU-COMP-THERM-008, LEU-COMP-THERM-011 und LEU-COMP-THERM-017 erreichen c_k -Werte knapp über 0,8. Nur mit diesen ist aber keine aussagekräftige Trendanalyse und Bias-Bestimmung durchführbar.

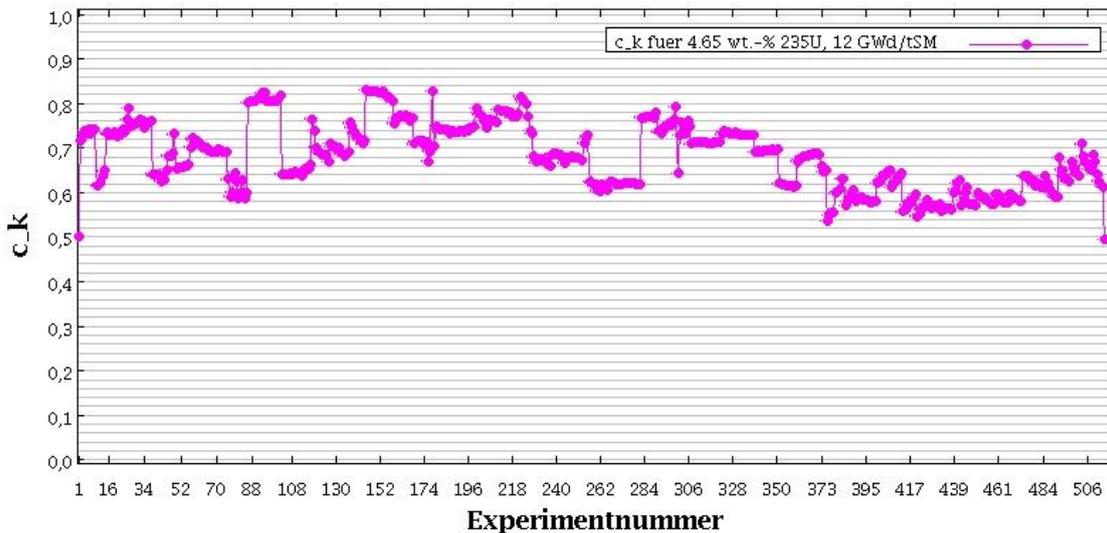


Abb. 4.37 Parameter c_k zwischen den Experimentnachrechnungen und dem Anwendungsfall 465 – 12 mit bestrahltem Brennstoff und geringem Abbrand

Um dennoch Aussagen zum Bias für den Anwendungsfall 465 – 12 treffen zu können, wird hier ein Ansatz analog zu dem in /FUE 99/ verwendet. Dabei wird unterstellt, dass der Bias für Anwendungsfälle mit frischem UO_2 -Brennstoff kontinuierlich in den Bias für Anwendungsfälle mit bestrahltem Brennstoff und hohem Abbrand übergeht und sein konservativsten Wert für Anwendungsfälle mit frischen Brennstoff oder bestrahltem Brennstoff und hohem Abbrand, nicht aber für Anwendungsfälle mit bestrahltem Brennstoff und niedrigem Abbrand annimmt. Die Trendanalyse für die Experimente mit MOX-Brennstoff bezüglich des Gewichtsanteils an PuO_2 im Brennstoff deutet ein solches Verhalten an (Abb. 4.21 bzw. Abb. 4.28). Dabei steigt der Bias betragsmäßig kontinuierlich mit abnehmendem Gewichtsanteils an. In der Extrapolation auf einen Gewichtsanteil von 0 wt.-% ergibt sich danach ein Bias von etwa -0,026 inklusive der Korrektur für den möglichen Einfluss borhaltiger Absorber (Kap. C). Dieser Wert ist allerdings größer (damit aber konservativer) als der Bias, der mit Hilfe der klassischen Trendparameter für die Experimente mit UO_2 -Brennstoff und Absorberplatten abgeschätzt wurde (Tab. 4.5). Inwiefern sich das in Abb. 4.21 bzw. Abb. 4.28 zu beobachtende Verhalten tatsächlich zwischen den Gewichtsanteilen von 0 wt.-% und 1,5 wt.-% PuO_2 in dieser Form fortsetzt, kann mit dem vorliegenden Datenmaterial nicht eindeutig belegt werden. Dementsprechend ist hier die erwähnte Annahme vorauszusetzen.

In der praktischen Durchführung ist mit diesem Ansatz der zu untersuchende Anwendungsfall einmal wie ein Anwendungsfall mit frischen Brennstoff und ein weiteres Mal wie ein Anwendungsfall mit hohem Abbrand zu behandeln und entsprechend eine

Bias-Bestimmung vorzunehmen. Der jeweils konservativste Wert ist dann als Abschätzung des Bias bzw. dessen untere Grenze zu berücksichtigen. Als Experimente zur Bias-Bestimmung bieten sich dazu dieselben Experimente an, die bereits in Kap. 4.2.1 und Kap. 4.2.2 verwendet wurden.

Der Vergleich des Anwendungsfalls 465 – 12 anhand der klassischen Trendparameter mit den Experimenten mit UO_2 -Brennstoff und Absorberplatten (Kap. 4.2.1) zeigt, dass die (restliche) ^{235}U -Anreicherung, sowie die Verhältnisse H/U und $\text{H}/^{235}\text{U}$ in den Bereichen liegt, die durch die Experimente abgedeckt werden. Der Brennstababstand liegt wie bei den übrigen Anwendungsfällen etwas unterhalb des durch die Experimente abgedeckten Bereichs und der Parameter EALF liegt oberhalb dieses Bereichs. Für die letzten beiden Parameter sind daher Extrapolationen notwendig. Bezogen auf die Experimente mit MOX-Brennstoff (Kap. 4.2.2) liegen der Gewichtsanteil der Isotops ^{239}Pu im Plutonium, der Brennstababstand, das Verhältnis H/SM und der Parameter EALF des Anwendungsfalls jeweils in dem durch die Experimente abgedeckten Bereich. Dagegen ist das Verhältnis $\text{H}/\text{SM}_{\text{fis}}$ etwas geringer als durch die Experimente abgedeckt und wie bereits erwähnt weist der Gewichtsanteil an PuO_2 einen deutlich geringen Wert als die Experimente auf. Auch in diesem Fall sind für die beiden letztgenannten Parameter Extrapolationen notwendig.

Aufgrund der identischen Experimentauswahl ändern sich hier die in Kap. 4.2.1 und Kap. 4.2.2 erstellten Trendanalysen bzw. Bestimmungen der Toleranzlimits bezüglich der klassischen Parameter nicht. D. h. die genannten Trendanalysen und Toleranzlimits können hier direkt zur Ermittlung der unteren Grenze des Bias für den Anwendungsfall 465 – 12 genutzt werden. In Tab. 4.9 sind die für die Parameterwerte des Anwendungsfalls resultierenden unteren Grenzen in Abhängigkeit der Trendparameter zusammengestellt.

Tab. 4.9 Abschätzungen der unteren Grenze des Bias in k_{eff} für den Anwendungsfall 465 – 12 mit bestrahltem Brennstoff und niedrigem Abbrand

Parameter	Experimente mit	
	UO ₂ -Brennstoff	MOX-Brennstoff
PuO ₂ / wt.-%	---	-0,0222
²³⁵ U / wt.-%	-0,0187	---
²³⁹ Pu / wt.-%	---	-0,0181
Brennstababstand / cm	-0,0218	-0,0210
H/U	-0,0195	---
H/ ²³⁵ U	-0,0188	---
H/SM	---	-0,0205
H/SM _{fis}	---	-0,0180
EALF / eV	-0,0200	-0,0211

Anhand der Experimente mit UO₂-Brennstoff werden auf diese Weise untere Grenzen für den Bias zwischen -0,0218 und -0,0187 abgeschätzt. Ähnliche Werte für die untere Grenze zwischen -0,0222 und -0,0180 ergeben sich aus den Experimenten mit MOX-Brennstoff. Bei letzteren Werten ist aber noch zusätzlich die Korrektur von -0,0020 aufgrund der fehlenden Absorberplatten in den Experimenten zu berücksichtigen. Damit ergibt sich hier als konservativste Abschätzung der unteren Grenze des Bias ein Wert von -0,0242.

4.2.4 Bias-Bestimmung der gesamten Rechenkette

Für die vollständige Erfassung des möglichen Bias einer Kritikalitätsrechnung mit Abbrandberücksichtigung sind sowohl der Bias aus der Inventarberechnung als auch der Bias der Kritikalitätsrechnung selbst zu betrachten. Die einfachste und konservativste Berücksichtigung beider Bias-Werte ist die lineare Addition der für den jeweiligen Bias abgeschätzten einseitigen Toleranzlimits. Die Zusammenfassung der aus der Inventarbestimmung (Kap. 3.2.1) und der obigen Kritikalitätsanalyse resultierenden Bias-Korrekturen und die daraus resultierenden Bias-korrigierten Multiplikationsfaktoren sind in Tab. 4.10 enthalten.

Tab. 4.10 Zusammenstellung der Bias-Korrekturen aus Inventarberechnung und Kritikalitätsanalyse

	365 – 40	445 – 55	465 – 12
„Best estimate“, $k_{\text{eff}} + 3 \sigma_{\text{CSAS}}$	0,7377	0,7373	0,9072
Inventarberechnung mit konstanten Isotopenkorrekturfaktoren, Konservativität $3 \sigma_{\text{Isotop}}$, $k_{\text{eff}} + 3 \sigma_{\text{CSAS}}$	0,7746	0,7743	0,9385
Bias in k_{eff} der Kritikalitätsrechnung	-0,0253	-0,0249	-0,0242
Bias-korrigierter Multiplikationsfaktor k_{eff}	0,7999	0,7992	0,9627
Gesamtbias in k_{eff}	-0,0622	-0,0619	-0,0555

In der Summe ergeben sich nach Tab. 4.10 Gesamtbias-Werte für das betrachtete generische DWR-Brennelement-Lagerbecken zwischen etwa -0,056 und -0,062 in k_{eff} . Davon stammen etwa -0,025 in k_{eff} aus den Kritikalitätsrechnungen selbst und dementsprechend etwa -0,030 bis -0,037 in k_{eff} aus den Inventarberechnungen. Für die Modelle mit hohem Abbrand (365 – 44 und 445 – 55) führen diese Bias-Werte zu Bias-korrigierten Multiplikationsfaktoren von etwa 0,80. Für das Modell 465 – 12 mit vergleichsweise geringem Abbrand ergibt sich dagegen ein Bias-korrigierter Multiplikationsfaktor von ca. 0,963. Damit würde in diesem Fall der Multiplikationsfaktor den Grenzwert von 0,95 überschreiten. Wie bereits im Kap. 3.2.1.3 diskutiert, ergeben die bei diesem Vergleich berücksichtigten konstanten Isotopenkorrekturfaktoren unter Berücksichtigung der dreifachen Standardabweichungen die konservativsten Bias-Beiträge aus den Inventarberechnungen. Durch Verwendung von Monte Carlo-Sampling-Ansätzen kann ein Teil dieser Konservativitäten abgebaut werden.

Insgesamt zeigen die durchgeführten Untersuchungen, dass Bias-Werte für Kritikalitätsrechnungen für typische Anwendungsfälle wie Lagergestelle oder Transport- und Lagerbehälter in der Größe von 0,02 bis 0,03 in k_{eff} zu erwarten sind. Im Fall der Berücksichtigung des Abbrands sind zusätzliche Beiträge zum Bias aufgrund der Inventarberechnungen zu berücksichtigen. Diese Beiträge sind je nach Konservativität der Bestimmungsmethode und Abbrand des zu untersuchenden Kernbrennstoffs in der Größe von etwa 0,01 bis 0,04 in k_{eff} zu erwarten.

5 Zusammenfassung

Zur Validierung eines Inventarberechnungssystems wurde eine Methode abgeleitet, um durch die Nachrechnung einer ausreichenden Anzahl an radiochemischen Analyseproben Isotopenkorrekturfaktoren für einzelne Nuklide abzuleiten. Kernpunkt ist die Bildung von Mittelwert und Standardabweichung der isotonenweisen Verhältnisse von errechneten (C) und experimentell ermittelten (E) Nuklidmassen über alle nachgerechneten Analyseproben. Je nach erforderlicher Konservativität werden die um zwei oder drei Standardabweichungen zur konservativen Seite hin verschobenen Mittelwerte der interessierenden Nuklidmassen als Korrekturfaktor für die errechneten Massen verwendet, bevor diese als Eingangsparameter für Kritikalitätsanalysen genutzt werden. Alternativ können auch stochastische Variationen dieser Massen auf Basis ihres Mittelwerts mit zugehöriger Standardabweichung zur Bestimmung der Verteilung der resultierenden Werte von k_{eff} sowie dessen 95 %/95 % Toleranzlimits verwendet werden. Letztere Methode ist weniger konservativ als die Verwendung konstanter, konservativer Isotopenkorrekturfaktoren, doch durch die Anwendung statistischer Methoden deutlich rechenzeitintensiver.

Die Methodik wurde in der vorliegenden Arbeit durch Nachrechnung von vierzig radiochemischen Analyseproben aus bestrahlten Kernbrennstoffen mit dem Inventarberechnungssystem KENOREST v1.1 praktisch demonstriert. Der Anwendungsbereich der dargestellten Methodik zur Abbrandberücksichtigung erstreckt sich bedingt durch die zu Grunde gelegte experimentelle Datenbasis auf bestrahlten Urandioxid-Brennstoff aus Druckwasserreaktoren mit Abbrand zwischen 14 und 60 GWd/tSM, sowie durch die Beschränkung auf Uran und Plutonium auf die Isotope ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U , ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu und ^{242}Pu . Die Validierung des Inventarberechnungssystems hinsichtlich einiger weiterer Isotope ist aufgrund der verwendeten Datenbasis möglich, wurde aber aufgrund des Mangels entsprechender geeigneter kritischer Experimente nicht explizit durchgeführt.

Anhand eines generischen Kritikalitätsmodells eines Brennelement-Lagergestells in einem Lagerbecken sowie eines generischen Transport- und Lagerbehälters wurden die unterschiedlichen Varianten der Ableitung von Isotopenkorrekturfaktoren verglichen und quantitativ gegenübergestellt. Dabei zeigte sich, dass – je nach Modell und Abbrand – der errechnete Multiplikationsfaktor k_{eff} auf Basis der validierungskorrigierten Isotopmassen von Uran und Plutonium um bis zu 4 % $\Delta k/k$ höher liegt als auf Basis der

„Best Estimate“ Rechnung, d. h. bei der direkten Verwendung der mittels KENO-REST v1.1 errechneten Nuklidmassen. Die Verwendung der Monte Carlo Sampling Methode zeigte bei höheren Abbränden eine gegenüber konservativ fixierten Isotopenkorrekturfaktoren um 1 % bis 2 % $\Delta k/k$ verringerte Konservativität (vgl. Kap. 3.2.1). Es zeigte sich aber auch, dass die Monte Carlo Sampling Methode bei niedrigen Abbränden zu einem vergleichsweise geringeren Abbau an Konservativität führt, da der errechnete Multiplikationsfaktor nahezu alleinig von der verbliebenen Menge an ^{235}U dominiert wird und somit fast linear der unterstellten Verteilungsfunktion für dessen Nuklidmasse als Eingangsparameter folgt.

Die demonstrierte Validierungsmethodik ist nicht auf KENO-REST v1.1 beschränkt, sondern kann qualitativ bei abweichenden Zahlenwerten auch mit jedem anderen Inventarberechnungssystem umgesetzt werden.

Zur Validierung eines Kritikalitätsrechensystems wurde auf den klassischen Ansatz der Trendanalyse zurückgegriffen. Ein Vorteil dieses Ansatzes besteht in der Flexibilität mit denen die Trendanalysen an die jeweilige Datenlage angepasst werden können. Die Auswahl der Experimente erfolgt anhand von charakteristischen, technischen bzw. neutronenphysikalischen Parametern, die die Eigenarten des zu untersuchenden Anwendungsfalls und dessen Neutronenmultiplikationsfaktors festlegen. Die Wahl der Parameter und deren zu berücksichtigende Bandbreite basiert dabei auf der in der Literatur beschriebenen Erfahrungen, kann aber ggf. an die jeweils verfügbaren experimentellen Messungen angepasst werden.

Konkret wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit die Validierung der Sequenz CSAS5 des SCALE-Pakets in der Version 6.1.2 durchgeführt. Dazu wurden eine bereits aus früheren Arbeiten bestehende Datenbasis aus 279 Konfigurationen verschiedener kritischer Experimente durch weitere 236 Konfigurationen ergänzt und mit der SCALE-Version 6.1.2. nachgerechnet, so dass aktuell insgesamt 515 kritische Konfigurationen zu Validierungszwecken zur Verfügung stehen. Als exemplarischen Anwendungsfall wurde das bereits erwähnte generische Brennelement-Lagergestell eines Lagerbeckens mit frischen sowie mit bestrahlten Brennstoff genutzt, welches zur Demonstration der Validierung des Abbrandcodes KENO-REST Verwendung fand. Die Auswahl der Experimente erfolgt auf zwei verschiedene Weisen. Einerseits wurden relevante technische bzw. neutronenphysikalische Parameter wie Experimentaufbau, Brennstoffzusammensetzung, Brennstababstand, Moderationsverhältnis und Spektralparameter EALF herangezogen, andererseits wurde der Korrelation c_k der errechneten

Neutronenmultiplikationsfaktoren von Experiment und Anwendungsfall bezüglich der gemeinsamen Unsicherheiten der Wirkungsquerschnitte berücksichtigt. Im ersten Fall erwiesen sich insgesamt 77 Konfigurationen kritischer Benchmark-Experimente mit niedrig angereichertem Uranoxid-Stabgitter in Wasser sowie 41 Konfigurationen kritischer Benchmark-Experimente mit MOX-Stabgitter in Wasser als geeignet. Im zweiten Fall wurden bis zu 142 Konfigurationen ausgewählt, die teils die bereits im ersten Fall berücksichtigten Konfigurationen enthielten. Für jeden betrachteten Parameter wurde eine Trendanalyse und Bias-Bestimmung mit Hilfe des Programms USLSTATS durchgeführt und der konservativste Wert als abschließende Schätzung des Bias gewertet.

Auf diese Weise ergab sich für den Anwendungsfall bei Berücksichtigung von frischem Brennstoff ein Bias im Neutronenmultiplikationsfaktor k_{eff} von etwa -0,0295. Dagegen konnte bei Betrachtung des Anwendungsfalls mit abgebranntem Brennstoff ein Bias in k_{eff} von etwa -0,0230 (bei unterstelltem hohem Abbrand) bzw. von etwa -0,0240 (bei unterstellten geringen Abbrand) ermittelt werden. Wird zusätzlich der Bias im Neutronenmultiplikationsfaktor aus der Inventarberechnung hinzugezogen, so ergibt im konservativsten Fall ein Gesamtbias in k_{eff} von bis zu -0,0622.

Damit steht in der GRS ein konsistentes Berechnungssystem für belastbare Aussagen im Rahmen der Abbrandberücksichtigung bei Kritikalitätsanalysen mit bestrahlten Kernbrennstoffen aus Druckwasserreaktoren unter den oben beschriebenen Randbedingungen zur Verfügung. Eine Zusammenfassung der hier beschriebenen Arbeiten wurde in englischer Sprache auf der International Conference on Nuclear Criticality (ICNC 2015) in Charlotte, North Carolina, USA vom 13. – 17. September 2015 vorgestellt und veröffentlicht /BEH 15/.

Literaturverzeichnis

- /ANS 04/ ANSI/ANS-8.14-2004, „Use of Soluble Neutron Absorbers in Nuclear Facilities Outside Reactors“, American Nuclear Society, La Grange Park, Illinois, USA, Mai 2004.
- /ANS 07/ ANSI/ANS-8.24-2007, „Validation of Neutron Transport Methods for Nuclear Criticality Safety Calculations“, American Nuclear Society, La Grange Park, Illinois, USA, März 2007.
- /ANS 08/ ANSI/ANS-8.27-2008, „Burnup Credit for LWR Fuel“, American Nuclear Society, La Grange Park, Illinois, USA, August 2008.
- /ANS 09/ ANSI/ANS-8.17-2004(R2009), „Criticality Safety Criteria for the Handling, Storage, and Transport of LWR Fuel outside Reactors“, American Nuclear Society, La Grange Park, Illinois, USA, Mai 2004, Reaffirmed 2009.
- /ANS 14/ ANSI/ANS-8.1-2014, „Nuclear Criticality Safety in Operations with Fissionable Materials Outside Reactors“, American Nuclear Society, La Grange Park, Illinois, USA, April 2014.
- /BEH 11/ M. Behler, V. Hannstein, R. Kilger, M. Kirsch, E.F. Moser, M. Wagner, „Erstellung und Validierung von Beladepkurven für einen generischen Transport- und Lagerbehälter für abgebrannte LWR-Brennelemente mit Abbrandkredit unter Berücksichtigung von Spaltprodukten“, Abschlussbericht zu den Arbeitspaketen 3 und 4 des Vorhabens 3608R03310, GRS-A-3608, GRS, Garching, Juli 2011.
- /BEH 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 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, GRS, 2014.
- /BEH 15/ M. Behler, V. Hannstein, R. Kilger, F.-E. Moser, M. Stuke, „Quantification of Calculation accuracy for Code Systems in Burn-up Credit Applications by Recalculations of Experimental Data“, International Conference on Nuclear Criticality (ICNC 2015), Charlotte, North Carolina, USA, 13. – 17. September 2015.
- /BRA 96/ M.C. Brady, M. Takano, M.D. DeHart, H. Okuno, A. Nouri, E. Sartori, „Findings of the OECD/NEA Study on Burnup Credit“, Physor'96, Mito, Japan, 1996.
- /BRO 04/ B. L. Broadhead, B. T. Rearden, C. M. Hopper, J. J. Wagschal, and C. V. Parks, "Sensitivity- and Uncertainty-Based Criticality Safety Validation Techniques," Nucl. Sci. Eng. 146, 340 – 366 (2004).
- /CAS 92/ J.J. Casal, R.J.J. Stamm'ler, E.A. Villarino, A.A. Ferri (1992) "HELIOS: Geometric Capabilities of a New Fuel-Assembly Program," Proc. Int. Top. Mtg. Adv. Math. Comp. Reac. Phys., Pittsburg, PA, USA, Vol. II, Sect. 10.2.1, 1 – 13.
- /DEH 96/ M.D. DeHart, O.W. Hermann, „An Extension of the Validation of SCALE (SAS2H) Isotopic Predictions for PWR Spent Fuel“, ORNL/TM-13317, Oak Ridge National Laboratory, September 1996.
- /DIN 07/ Deutsche Norm DIN 25712, „Kritikalitätssicherheit unter Anrechnung des Brennstoffabbrands bei Transport und Lagerung bestrahlter Leichtwasserreaktor-Brennelemente in Behältern“, DIN Deutsches Institut für Normung e.V., Beuth Verlag, Berlin, Juli 2007.
- /DIN 09/ Deutsche Norm DIN 25471, „Kritikalitätssicherheit unter Anrechnung des Brennelementabbrands bei der Lagerung und Handhabung von Brennelementen in Brennelementlagerbecken von Kernkraftwerken mit Leichtwasserreaktoren“, DIN Deutsches Institut für Normung e.V., Beuth Verlag, Berlin, Mai 2009.

- /DIN 12/ Deutsche Norm DIN 25472, „Kritikalitätssicherheit bei der Endlagerung ausgedienter Kernbrennstoffe“, DIN Deutsches Institut für Normung e.V., Beuth Verlag, Berlin, August 2012.
- /DIN 12a/ Deutsche Norm DIN 25478 Beiblatt 1, „Einsatz von Berechnungssystemen beim Nachweis der Kritikalitätssicherheit – Beiblatt 1: Erläuterungen“, DIN Deutsches Institut für Normung e.V., Beuth Verlag, Berlin, September 2012.
- /DIN 13/ Deutsche Norm DIN 25403-1, „Kritikalitätssicherheit bei der Verarbeitung und Handhabung von Kernbrennstoffen – Teil 1: Grundsätze“, DIN Deutsches Institut für Normung e.V., Beuth Verlag, Berlin, Dezember 2013.
- /DIN 14/ DIN 25478 „Einsatz von Berechnungssystemen beim Nachweis der Kritikalitätssicherheit“, DIN Deutsches Institut für Normung e.V., Beuth Verlag, Berlin, Juni 2014.
- /FER 06/ F. Fernex, Programme HTC–Phase 1: Réseaux de Crayons dans l'Eau Pure (Water-Moderated and Reflected Simple Arrays) Reevaluation des Expériences, DSU/SEC/T/2005-33/D.R, Valduc, France, IRSN (2006). PROPRIETARY document.
- /FUE 99/ E. Fuentes, D.B. Lancaster, M. Rahimi, „Actinide-only Burnup Credit for Pressurized Water Reactor Spent Nuclear Fuel – II: Validation“, Nucl. Tech. 125 (271) 1999.
- /GAU 03/ I.C. Gauld, Strategies for Application of Isotopic Uncertainties in Burnup Credit, NUREG/CR-6811 (ORNL/TM-2001/257), prepared for the U.S. NRC by ORNL, Oak Ridge, Tennessee (2003).
- /GUE 91/ R.J. Guenther, D.E. Blahnik, U.P. Jenquin, J.E. Mendel, L.E. Thomas, C.K. Thornhill, “Characterization of spent fuel approved testing material – ATM-104”, PNL–5109-104 DE92 006636, Richland WA, USA, December 1991.

- /GYS 06/ M. Gysemans, P. Van Bree, A. Dobney, L. Vandeveldel, "Destructive Radiochemical Spent Fuel Characterization of a PWR UO₂ Fuel Sample M11 – Final Report", RE 2005/35 Rev. A, BN Ref.: 0502640/221; Mol, Belgium, February 2006.
- /IAE 03/ International Atomic Energy Agency, "Requirements, practices and developments in burnup credit applications", Proceedings of a Technical Committee meeting held in Madrid, 22 – 26 April 2002, IAEA-TECDOC-1378, November 2003.
- /IAE 08/ IAEA Safety Standards, Safety Requirements "Safety of Nuclear Fuel Cycle Facilities", NS-R-5, 2008.
- /IAE 09/ IAEA Safety Standards, General Safety Requirements Part 4, „Safety Assessment for Facilities and Activities“, GSR Part 4, 2009.
- /IAE 14/ IAEA Safety Standards, Safety Guide SSG-27 (formerly DS407) „Criticality Safety in the Handling of Fissile Material“ (2014).
- /ISO 95/ International Standard ISO 1709 „Nuclear energy – Fissile materials - Principles of criticality safety in storing, handling and processing“, November 1995.
- /KIL 05/ R. Kilger, B. Gmal, "Burnup Calculations with KENOREST and Associated Criticality Studies for Spent Fuel Samples from Takahama-3 Reactor", ANS NCSD Meeting, Integrating Criticality Safety into the Resurgence of Nuclear Power, Knoxville, Tenn., Sept. 19 – 20, 2005.
- /KIL 08/ R. Kilger, S. Langenbuch, "Influence of the Two- and Three-Dimensional Sample Environment during Irradiation of Nuclear Fuel on the Numerical Determination of their Isotopic Inventory after Discharge", PHYSOR-2008, Interlaken, Switzerland, Sep. 14 – 19, 2008.
- /KIL 09/ R. Kilger, E.-F. Moser, M. Behler: „Neuberechnung von kritischen Parametern und deren Validierung für das deutsche Handbuch zur Kritikalität“, GRS-A-3532, November 2009.

- /KTA 87/ Sicherheitstechnische Regel des Kerntechnischen Ausschusses KTA 3101.2, „Auslegung der Reaktorkerne von Druck- und Siedewasserreaktoren, Teil 2: Neutronenphysikalische Anforderungen an Auslegung und Betrieb des Reaktorkerns und der angrenzenden Systeme“, veröffentlicht Bundesanzeiger 44a, 04.03.1988, Fassung Dezember 1987.
- /KTA 12/ Sicherheitstechnische Regel des Kerntechnischen Ausschusses KTA 3101.2, „Auslegung der Reaktorkerne von Druck- und Siedewasserreaktoren, Teil 2: Neutronenphysikalische Anforderungen an Auslegung und Betrieb des Reaktorkerns und der angrenzenden Systeme“, veröffentlicht Bundesanzeiger 44a, 04.03.1988, Fassung November 2012.
- /LAN 13/ Lancaster D.B., Smith K.S., Machiels A.J., “Benefits of Using EPRI Depletion Reactivity Benchmarks for Burnup Credit Validation”, NCS D 2013 - Criticality Safety in the Modern Era: Raising the Bar, 29.09. – 3.10., Wilmington NC, USA (2013).
- /LEP 09/ J. Leppänen, M. Pusa, "Burnup calculation capability in the PSG2 / Serpent Monte Carlo reactor physics code." In proc. M&C 2009, Saratoga Springs, NY, May 3 – 7, 2009.
- /LEP 13/ J. Leppänen, “Serpent – a Continuous-energy Monte Carlo Reactor Physics Burnup Calculation Code – User’s Manual”, March 6, 2013.
http://montecarlo.vtt.fi/download/Serpent_manual.pdf
- /LIC 97/ J.J. Lichtenwalter, S.M. Bowman, M.D. DeHart, and C.M. Hopper, Criticality Benchmark Guide for Light-Water-Reactor Fuel in Transportation and Storage Packages, NUREG/CR-6361 (ORNL/TM-13211), U.S. Nuclear Regulatory Commission, Oak Ridge National Laboratory, März 1997.
- /NAK 02/ Y. Nakahara, K. Suyama, T. Suzaki, „Technical development on burn-up credit for spent LWR fuels,“ ORNL/TR 2001/01, Translation of JAERI Tech 2000 071, Oak Ridge TN, USA, January 2002.
- /NEA 12/ OECD-NEA-Data-Bank / “International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments”, NEA/NSC/DOC(95)03, ISBN 978-92-64-99192-7, Dezember 2012.

- /NEU 07a/ J.C. Neuber and A. Hoefer, "Data Evaluation Methods for Estimating the Variability in k_{eff} of a Nuclear Fuel System Due to the Variability of Parameters Characterizing the System," Proceedings of the 8th International Conference on Nuclear Criticality Safety (ICNC 2007), May 28–June 1, 2007, St. Petersburg, Russia (2007).
- /NEU 07b/ J.C. Neuber and A. Hoefer, "Statistical Evaluation of the Isotopic Bias in Burn-up Credit Criticality Analysis of Spent Nuclear Fuel Systems," Proceedings of the 8th International Conference on Nuclear Criticality Safety (ICNC 2007), May 28–June 1, 2007, St. Petersburg, Russia (2007).
- /NEU 11/ J.C. Neuber, J.M. Conde Lopez, "Burnup Credit Criticality Calculation Methods and Applications – The principal BUC route and related validation issues and problems", IAEA International Workshop on Burnup Credit Criticality Calculation Methods and Applications, Peking, China, 25. – 28. Oktober 2011.
- /NRC 06/ U.S. Nuclear Regulatory Commission, Division of Fuel Cycle Safety and Safeguards, Office of Nuclear Material Safety and Safeguards, "Justification for Minimum Margin of Subcriticality for Safety", Interim Staff Guidance FCSS-ISG-10, Rev. 0, Juni 2006.
- /NRC 10/ U.S. Nuclear Regulatory Commission, Office of Nuclear Regulatory Research, "Nuclear Criticality Safety Standards for Fuels and Material Facilities", Regulatory Guide 3.71, Rev. 2 Dezember 2010.
- /NRC 12/ U.S. Nuclear Regulatory Commission Regulations: Title 10, Code of Federal Regulations, Juni 2012.
- /NRC 12a/ U.S. Nuclear Regulatory Commission, Spent Fuel Project Office, "Burnup Credit in the Criticality Safety Analyses of PWR Spent Fuel in Transport and Storage Casks", Interim Staff Guidance SFST-ISG-8, Rev. 3, September 2012.

- /OEC 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.
- /OEC 12/ OECD/NEA International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments, NEA/NSC/DOC(95)03, NEA Nuclear Science Committee, September 2012.
- /OWE 63/ D.B. Owen, "Factors for One-Sided Tolerance Limits for Variables Sampling Plans, SCR-607, Sandia Corporation Monograph, 1963.
- /PFE 12/ A. Pfeiffer, "Praxisbeleg – Studien zur Validierung der Kritikalitätssequenz CSAS5 aus dem SCALE-Paket auf Basis neutronenphysikalischer Parameter", Fakultät Maschinenwesen, Hochschule Zittau/Görlitz, März 2012.
- /PRI 03/ R.T. Primm III., "ARIANE International Programme Final Report", Fissile Materials Disposition Program, ORNL/SUB/97-XSV750-1, Oak Ridge (2003).
- /RAD 10/ G. Radulescu, I.C. Gauld, G. Ilas, "SCALE 5.1 Predictions of PWR Spent Nuclear Fuel Isotopic Compositions", ORNL/TM-2010/44, Oak Ridge, March 2010.
- /RAD 12/ G. Radulescu, I.C. Gauld, G. Ilas, J.C. Wagner, An Approach for Validating Actinide and Fission Product Burnup Credit Criticality Safety Analyses- Isotopic Composition Predictions, NUREG/CR-7108 (ORNL/TM-2011/509), prepared for the U.S. NRC by ORNL, Oak Ridge, Tennessee (2012).
- /REA 03/ B.T. Rearden, C.M. Hopper, K.R. Elam, S. Goluoglu, C.V. Parks (2003): "Applications of the TSUNAMI Sensitivity and Uncertainty Analysis Methodology", ICNC 2003, Tokai-mura, Japan, October 20 – 24, 2003.
- /REA 07/ B.T. Rearden, "Criticality Code Validation Exercises with TSUNAMI," p. 84 – 88 in Proceedings of the 8th International Conference on Nuclear Criticality Safety (ICNC 2007), Vol. I, St. Petersburg, Russia, May 28-June 1, 2007.

- /ROQ 03/ B. Roque, A. Santamarina, "Experimental validation of actinide and fission products inventory from chemical assays in French PWR spent fuels" in: 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. Published October 2003.
- /SCA 02/ J.M. Scaglione, "Three Mile Island Unit 1 Radiochemical Assay Comparisons to SAS2H Calculations", Office of Civilian Radioactive Waste Management CAL-UDC-NU-000011 REV A, April 2002.
- /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.
- /SCA 12/ J.M. Scaglione, D.E. Mueller, J.C. Wagner, W.J. Marshall, An Approach for Validating Actinide and Fission Product Burnup Credit Criticality Safety Analyses—Criticality (k_{eff}) Predictions, NUREG/CR-7109 (ORNL/TM-2011/514), prepared for the U.S. NRC by ORNL, Oak Ridge, Tennessee (2012).
- /SHA 65/ Shapiro S.S., Wilk M.B., "An Analysis of Variance Test for Normality (Complete Samples)", *Biometrika* (1965) 52, 3 and 4, pp. 591 – 611.
- /SOL 04/ Solberg H.E.: The IFCC recommendation on estimation of reference intervals. The RefVal Program. *Clin Chem Lab Med* 42: 710 – 714 (2004).
- /SUY 11/ K. Suyama, M. Murazaki, K. Ohkubo, Y. Nakahara, G. Uchiyama, "Re-evaluation of Assay Data of Spent Nuclear Fuel obtained at Japan Atomic Energy Research Institute for validation of burnup calculation code systems", *Annals of Nuclear Energy* 38 pp. 930 – 941 (2011).
- /WAG 01/ J.C. Wagner, "Computational Benchmark for the Estimation of the Reactivity Margin from Fission Products and Minor Actinides in PWR Burnup Credit," NUREG/CR-6747 (ORNL/TM-2000/306), U.S. Nuclear Regulatory Commission, Oak Ridge National Laboratory, August 2001.

- WIL 41/ Wilks .S.S., „Determination of sample sizes for setting tolerance limits”,
Annals of Mathematical Statistics 1 (1) (1941), pp. 91 – 96.
- /WRI 99/ Wright E.M., Royston P.: Calculating reference intervals for laboratory
measurements. Statistical Methods in Medical Research 8: 93 – 112
(1999).
- /YAZ 07/ B. Yazici, S. Yolacan: A comparison of various tests of normality, Journal
of Statistical Computation and Simulation, 77(2), 2007, pp. 175 – 183.

Abbildungsverzeichnis

Abb. 1.1	Schema zur Transmutation und zum Aufbau höherer Aktinoide bei der Bestrahlung von Kernbrennstoff im Leichtwasserreaktor	2
Abb. 3.1	Trendanalyse der mit KENOREST v1.1 berechneten C/E-Werte für die Isotope des Elements Uran.....	46
Abb. 3.2	Trendanalyse der mit KENOREST v1.1 berechneten C/E-Werte für die Isotope des Elements Plutonium.....	48
Abb. 3.3	Werte C/E für ²⁴⁰ Pu, aufgeschlüsselt nach radiochemischem Analyseprogramm.....	50
Abb. 3.4	Querschnitt durch das exemplarische Rechenmodell für ein generisches Lagerbecken für Druckwasserreaktor-Brennelemente	53
Abb. 3.5	Reaktivitätsbeiträge der betrachteten Nuklide zum Multiplikationsfaktor k_{eff} für das Anwendungsbeispiel „generisches Lagerbecken“	56
Abb. 3.6	Verteilung der errechneten Werte für k_{eff} für 500 Stichproben des Inventars 365 - 40 bei stochastischer Variation aller Nuklidmassen unter Annahme von Normalverteilungen.....	62
Abb. 3.7	Verteilung der errechneten Werte für k_{eff} für 500 Stichproben des Inventars 445 – 55 bei stochastischer Variation aller Nuklidmassen unter Annahme von Normalverteilungen.....	62
Abb. 3.8	Verteilung der errechneten Werte für k_{eff} für 500 Stichproben des Inventars 465 – 12 bei stochastischer Variation aller Nuklidmassen unter Annahme von Normalverteilungen.....	63
Abb. 3.9	Verteilung der errechneten Werte für k_{eff} für 500 Stichproben des Inventars 365 – 40 bei stochastischer Variation aller Nuklidmassen bei Gleichverteilung innerhalb eines $\pm 2 \sigma$ Intervalls	64
Abb. 3.10	Verteilung der errechneten Werte für k_{eff} für 500 Stichproben des Inventars 365 – 40 bei stochastischer Variation aller Nuklidmassen bei Gleichverteilung innerhalb eines $\pm 3 \sigma$ Intervalls	64

Abb. 3.11	Verteilung der errechneten Werte für k_{eff} für 500 Stichproben des Inventars 445 – 55 bei stochastischer Variation aller Nuklidmassen bei Gleichverteilung innerhalb eines $\pm 2 \sigma$ Intervalls	65
Abb. 3.12	Verteilung der errechneten Werte für k_{eff} für 500 Stichproben des Inventars 445 – 55 bei stochastischer Variation aller Nuklidmassen bei Gleichverteilung innerhalb eines $\pm 3 \sigma$ Intervalls	65
Abb. 3.13	Verteilung der errechneten Werte für k_{eff} für 500 Stichproben des Inventars 465 – 12 bei stochastischer Variation aller Nuklidmassen bei Gleichverteilung innerhalb eines $\pm 2 \sigma$ Intervalls	66
Abb. 3.14	Verteilung der errechneten Werte für k_{eff} für 500 Stichproben des Inventars 465 – 12 bei stochastischer Variation aller Nuklidmassen bei Gleichverteilung innerhalb eines $\pm 3 \sigma$ Intervalls	66
Abb. 3.15	Querschnitt durch das exemplarische Rechenmodell für einen generischen Transport- und Zwischenlagerbehälter DBB19 für Druckwasserreaktor-Brennelemente.....	71
Abb. 3.16	Reaktivitätsbeiträge der betrachteten Nuklide zum Multiplikationsfaktor k_{eff} für das Anwendungsbeispiel „generisches Behältermodell DBB19“	73
Abb. 3.17	SERPENT Modellierung der Takahama-3 Probenserie SF 97	76
Abb. 4.1	Errechnete Neutronenmultiplikationsfaktoren k_{eff} der verfügbaren kritischen Experimente.....	86
Abb. 4.2	Häufigkeitsverteilung der errechneten Multiplikationsfaktoren k_{eff}	86
Abb. 4.3	Verteilungen der errechneten k_{eff} -Werte der betrachteten Experimentklassen	87
Abb. 4.4	Verteilungen der Differenzen der errechneten k_{eff} -Werte und den erwarteten k_{eff} -Werten der Benchmark-Modelle für die betrachteten Experimentklassen	88
Abb. 4.5	Verteilungen des Parameters EALF der betrachteten Experimentklassen	89
Abb. 4.6	Verteilung der ^{235}U -Anreicherung der betrachteten Experimentklassen	89

Abb. 4.7	Vergleich der errechneten k_{eff} -Werte für Konfigurationen mit verschiedenen Absorbern	94
Abb. 4.8	Trendanalyse für k_{eff} bezüglich der ^{235}U -Anreicherung	98
Abb. 4.9	Trendanalyse für k_{eff} bezüglich des Brennstababstandes.....	98
Abb. 4.10	Trendanalyse für k_{eff} bezüglich des Verhältnisses H/U.....	99
Abb. 4.11	Trendanalyse für k_{eff} bezüglich des Verhältnisses $\text{H}/^{235}\text{U}$	99
Abb. 4.12	Trendanalyse für k_{eff} bezüglich des Parameters EALF	100
Abb. 4.13	Mit USLSTATS errechnete Toleranzlimits als Funktion der ^{235}U -Anreicherung für die Anwendungsfälle mit unbestrahltem Brennstoff.....	102
Abb. 4.14	Mit USLSTATS errechnete Toleranzlimits als Funktion des Brennstababstands für die Anwendungsfälle mit unbestrahltem Brennstoff	103
Abb. 4.15	Mit USLSTATS errechnete Toleranzlimits als Funktion des Moderationsverhältnisses H/U für die Anwendungsfälle mit unbestrahltem Brennstoff.....	103
Abb. 4.16	Mit USLSTATS errechnete Toleranzlimits als Funktion des Moderationsverhältnisses $\text{H}/^{235}\text{U}$ für die Anwendungsfälle mit unbestrahltem Brennstoff.....	104
Abb. 4.17	Mit USLSTATS errechnete Toleranzlimits als Funktion des Parameters EALF für die Anwendungsfälle mit unbestrahltem Brennstoff.....	104
Abb. 4.18	Parameter c_k zwischen den Experimentnachrechnungen und Anwendungsfällen mit unbestrahltem Brennstoff	106
Abb. 4.19	Trendanalyse für Δk_{eff} bezüglich des Parameters c_k für den Anwendungsfall 445 mit unbestrahltem Brennstoff	109
Abb. 4.20	Mit USLSTATS errechnete Toleranzlimits als Funktion des Parameters c_k für den Anwendungsfall 445 mit unbestrahltem Brennstoff.....	110
Abb. 4.21	Trendanalyse für Δk_{eff} bezüglich des Anteils an PuO_2 im Brennstoff für die Experimente mit MOX-Brennstoff.....	114

Abb. 4.22	Trendanalyse für Δk_{eff} bezüglich des Anteils an ^{239}Pu im Plutonium des Brennstoffs für die Experimente mit MOX-Brennstoff.....	114
Abb. 4.23	Trendanalyse für Δk_{eff} bezüglich des Brennstababstands für die Experimente mit MOX-Brennstoff	115
Abb. 4.24	Trendanalyse für Δk_{eff} bezüglich des Verhältnisses H/SM für die Experimente mit MOX-Brennstoff	115
Abb. 4.25	Trendanalyse für Δk_{eff} bezüglich des Verhältnisses H/SM _{fis} für die Experimente mit MOX-Brennstoff	116
Abb. 4.26	Trendanalyse für Δk_{eff} bezüglich des Parameters EALF für die Experimente mit MOX-Brennstoff	116
Abb. 4.27	Verteilung von Δk_{eff} bezüglich des Anteils an ^{235}U im Uran des Brennstoffs für die Experimente mit MOX-Brennstoff.....	117
Abb. 4.28	Mit USLSTATS errechnete Toleranzlimits als Funktion des PuO ₂ -Gewichtsanteils im Brennstoff für die Anwendungsfälle mit bestrahltem Brennstoff	118
Abb. 4.29	Mit USLSTATS errechnete Toleranzlimits als Funktion des ^{239}Pu -Gewichtsanteils im Plutonium für die Anwendungsfälle mit bestrahltem Brennstoff	119
Abb. 4.30	Mit USLSTATS errechnete Toleranzlimits als Funktion des Brennelementabstands für die Anwendungsfälle mit bestrahltem Brennstoff	119
Abb. 4.31	Mit USLSTATS errechnete Toleranzlimits als Funktion des Verhältnisses H/SM für die Anwendungsfälle mit bestrahltem Brennstoff	120
Abb. 4.32	Mit USLSTATS errechnete Toleranzlimits als Funktion des Verhältnisses H/SM _{fis} für die Anwendungsfälle mit bestrahltem Brennstoff	120
Abb. 4.33	Mit USLSTATS errechnete Toleranzlimits als Funktion des Parameters EALF für die Anwendungsfälle mit bestrahltem Brennstoff.....	121
Abb. 4.34	Parameter c_k zwischen den Experimentnachrechnungen und Anwendungsfällen mit bestrahltem Brennstoff und hohem Abbrand	122

Abb. 4.35	Trendanalyse für Δk_{eff} bezüglich des Parameters c_k für den Anwendungsfall 445 – 55 mit bestrahltem Brennstoff	123
Abb. 4.36	Mit USLSTATS errechnete Toleranzlimits als Funktion des Parameters c_k für den Anwendungsfall 445 – 55 mit bestrahltem Brennstoff.....	123
Abb. 4.37	Parameter c_k zwischen den Experimentnachrechnungen und dem Anwendungsfall 465 – 12 mit bestrahltem Brennstoff und geringem Abbrand.....	125
Abb. D.1	Vergleich der errechneten k_{eff} -Werte für Experimente mit und ohne borhaltige Absorberplatten oder Stahlbleche	194
Abb. D.2	Vergleich des Bias und dessen Toleranzlimit für Experimente mit und ohne Absorberplatten	195

Tabellenverzeichnis

Tab. 3.1	Übersicht der mit KENOREST v1.1 nachgerechneten radiochemischen Analyseproben.....	37
Tab. 3.2	Auswertung der errechneten C/E Werte aller verfügbaren Nuklide	39
Tab. 3.3	Aus den nachgerechneten radiochemischen Analyseproben abgeleitete Isotopenkorrekturfaktoren für KENOREST v1.1.....	43
Tab. 3.4	Shapiro-Wilk-Test auf Normalverteilung für die C/E-Werte aus der Nachrechnungen radiochemischer Analyseproben mit KENOREST v1.1	45
Tab. 3.5	Berechnete Multiplikationsfaktoren k_{eff} für das generische Brennelement-Lagerbecken, beladen mit unbestrahltem Brennstoff	53
Tab. 3.6	Berechnete Multiplikationsfaktoren k_{eff} für das generische Brennelement-Lagerbecken unter abdeckenden Abbrandkredit-Annahmen	55
Tab. 3.7	Modellabhängige Sensitivität des errechneten Multiplikationsfaktors k_{eff} auf die Genauigkeit des erreichten Abbrands	58
Tab. 3.8	Variation der Startzufallszahl für die drei betrachteten Anreicherungs- und Abbrandkombinationen mit der 3σ -Isotopenkorrektur in dem generischen Lagerbecken.....	59
Tab. 3.9	Mittelwerte, Standardabweichungen σ_{MCS} der Multiplikationsfaktoren k_{MCS} sowie empirische 95 %/95 % und 99 %/99 % Toleranzlimits von k_{eff} für die betrachteten Nuklidinventare bei unterschiedlichen stochastischen Variationen der eingehenden Nuklidmassen	68
Tab. 3.10	Vergleich der mittels Isotopenkorrekturfaktoren und Monte Carlo Sampling Techniken ermittelten Multiplikationsfaktoren k_{eff} für das generische Brennelement-Lagerbecken	69
Tab. 3.11	Berechnete Multiplikationsfaktoren k_{eff} für das generische Transport- und Zwischenlagerbehältermodell bei unterschiedlichen Beladungen und Isotopenkorrekturen	72

Tab. 3.12	Variation der Startzufallszahl für die Anreicherungs- und Abbrandkombination 465 – 12 mit 3σ Isotopenkorrekturfaktor in dem generischen Behältermodell DBB19	74
Tab. 3.13	Mittelwerte, Standardabweichungen und abgeleitete Isotopenkorrekturfaktoren der mit SERPENT 1.1.19 erzielten C/E-Werte der gadoliniumfreien radiochemischen Analyseproben aus dem Messprogramm Takahama-3	77
Tab. 4.1	Zusammenstellung der mit CSAS5 modellierten experimentellen Konfigurationen aus dem ICSBEP	83
Tab. 4.2	Technische und neutronenphysikalische Parameter für das Modell des generischen DWR-Brennelement-Lagerbeckens mit unbestrahltem Brennstoff	91
Tab. 4.3	Technische und neutronenphysikalische Parameter für das Modell des generischen DWR-Brennelement-Lagerbeckens mit bestrahltem Brennstoff	92
Tab. 4.4	Parameterbereich der zur Validierung der Anwendungsfälle mit unbestrahltem Brennstoff ausgewählten Experimente	97
Tab. 4.5	Abschätzungen der unteren Grenze des Bias in k_{eff} für die Anwendungsfälle mit unbestrahltem Brennstoff	105
Tab. 4.6	Zusammenstellung der Experimentanzahlen mit $c_k > 0,80$ für die Anwendungsfälle mit unbestrahltem Brennstoff	108
Tab. 4.7	Parameterbereich der zur Validierung der Anwendungsfälle mit bestrahltem Brennstoff ausgewählten Experimente	112
Tab. 4.8	Abschätzungen der unteren Grenze des Bias in k_{eff} nach USLSTATS für die Anwendungsfälle mit bestrahltem Brennstoff und hohem Abbrand	121
Tab. 4.9	Abschätzungen der unteren Grenze des Bias in k_{eff} für den Anwendungsfall 465 – 12 mit bestrahltem Brennstoff und niedrigem Abbrand	127
Tab. 4.10	Zusammenstellung der Bias-Korrekturen aus Inventarberechnung und Kritikalitätsanalyse	128

Tab. A.1	Verwendete Kernzahldichten des Nuklidinventars 365 – 40 in seinen unterschiedlichen Korrekturstufen.....	151
Tab. A.2	Verwendete Kernzahldichten des Nuklidinventars 445 – 55 in seinen unterschiedlichen Korrekturstufen.....	152
Tab. A.3	Verwendete Kernzahldichten des Nuklidinventars 465 – 12 in seinen unterschiedlichen Korrekturstufen.....	153
Tab. C.1	Parameter der nachgerechneten Experimente.....	157
Tab. C.2	Resultate der Experimentnachrechnungen	174

A In den Kritikalitätsrechnungen verwendete Kernzahldichten

Tab. A.1 Verwendete Kernzahldichten des Nuklidinventars 365 – 40 in seinen unterschiedlichen Korrekturstufen

Nuklid	db ⁸	nom	- 2 σ	+ 2 σ	- 3 σ	+ 3 σ
²³⁸ Pu	5,143729E-06	4,915693E-06	3,807681E-06	6,023705E-06	3,253675E-06	6,577711E-06
²³⁹ Pu	1,360877E-04	1,363021E-04	1,259089E-04	1,466953E-04	1,207123E-04	1,518920E-04
²⁴⁰ Pu	5,647778E-05	5,781521E-05	5,220793E-05	6,342249E-05	4,940428E-05	6,622613E-05
²⁴¹ Pu	2,829962E-05	2,731014E-05	2,505087E-05	2,956942E-05	2,392123E-05	3,069905E-05
²⁴² Pu	1,485095E-05	1,434855E-05	1,262797E-05	1,606913E-05	1,176768E-05	1,692942E-05
²³⁴ U	3,910934E-06	3,981988E-06	3,202235E-06	4,761742E-06	2,812358E-06	5,151619E-06
²³⁵ U	1,901915E-04	1,896974E-04	1,670372E-04	2,123575E-04	1,557071E-04	2,236876E-04
²³⁶ U	1,042327E-04	9,942779E-05	9,515370E-05	1,037019E-04	9,301665E-05	1,058389E-04
²³⁸ U	2,167466E-02	2,163449E-02	2,142283E-02	2,184615E-02	2,131699E-02	2,195198E-02

⁸ Zur Nomenklatur der Nuklidinventare siehe Kap. 3.2, zu den Korrekturstufen aus der Validierung siehe Kap. 3.2.1.1.

Tab. A.2 Verwendete Kernzahldichten des Nuklidinventars 445 – 55 in seinen unterschiedlichen Korrekturstufen

Nuklid	db	nom	- 2 σ	+ 2 σ	- 3 σ	+ 3 σ
²³⁸ Pu	9,738553E-06	9,306816E-06	7,209032E-06	1,140460E-05	6,160139E-06	1,245349E-05
²³⁹ Pu	1,509365E-04	1,511743E-04	1,396470E-04	1,627016E-04	1,338834E-04	1,684652E-04
²⁴⁰ Pu	6,740801E-05	6,900427E-05	6,231180E-05	7,569674E-05	5,896557E-05	7,904298E-05
²⁴¹ Pu	3,539887E-05	3,416117E-05	3,133514E-05	3,698721E-05	2,992212E-05	3,840023E-05
²⁴² Pu	2,293308E-05	2,215727E-05	1,950032E-05	2,481421E-05	1,817185E-05	2,614269E-05
²³⁴ U	3,495169E-06	3,558670E-06	2,861811E-06	4,255529E-06	2,513381E-06	4,603958E-06
²³⁵ U	1,654560E-04	1,650261E-04	1,453131E-04	1,847392E-04	1,354565E-04	1,945957E-04
²³⁶ U	1,337671E-04	1,276007E-04	1,221156E-04	1,330859E-04	1,193730E-04	1,358284E-04
²³⁸ U	2,124926E-02	2,120987E-02	2,100237E-02	2,141738E-02	2,089861E-02	2,152113E-02

Tab. A.3 Verwendete Kernzahldichten des Nuklidinventars 465 – 12 in seinen unterschiedlichen Korrekturstufen

Nuklid	db	nom	- 2 σ	+ 2 σ	- 3 σ	+ 3 σ
²³⁸ Pu	1,934459E-07	1,848699E-07	1,431997E-07	2,265401E-07	1,223646E-07	2,473753E-07
²³⁹ Pu	8,711692E-05	8,725418E-05	8,060092E-05	9,390744E-05	7,727429E-05	9,723407E-05
²⁴⁰ Pu	1,271421E-05	1,301529E-05	1,175299E-05	1,427760E-05	1,112183E-05	1,490875E-05
²⁴¹ Pu	4,035092E-06	3,894008E-06	3,571870E-06	4,216146E-06	3,410801E-06	4,377215E-06
²⁴² Pu	3,596195E-07	3,474538E-07	3,057895E-07	3,891180E-07	2,849574E-07	4,099502E-07
²³⁴ U	6,089351E-06	6,199983E-06	4,985902E-06	7,414065E-06	4,378861E-06	8,021105E-06
²³⁵ U	7,900147E-04	7,879621E-04	6,938368E-04	8,820875E-04	6,467741E-04	9,291501E-04
²³⁶ U	5,428521E-05	5,178277E-05	4,955679E-05	5,400875E-05	4,844380E-05	5,512174E-05
²³⁸ U	2,195589E-02	2,191519E-02	2,170079E-02	2,212960E-02	2,159358E-02	2,223680E-02

B Exemplarische SCALE Eingabedatei für das generische Brennelement-Lagerbecken

Exemplarische SCALE Eingabedatei für das generische Brennelement-Lagerbecken für DWR, hier mit 3σ -korrigiertem 465 – 12 Nuklidinventar des Brennstoffs (vgl. Anhang A).

```
=csas5
Generisches DWR Brennelement-Lagerbecken
v7-238
read composition
  O-16      11 0  4.630778e-02  300.  end
  U-234     11 0  4.378861e-06  300.  end
  U-235     11 0  9.291501e-04  300.  end
  U-236     11 0  4.844380e-05  300.  end
  U-238     11 0  2.159358e-02  300.  end
  PU-238    11 0  1.223646e-07  300.  end
  PU-239    11 0  9.723407e-05  300.  end
  PU-240    11 0  1.112183e-05  300.  end
  PU-241    11 0  4.377215e-06  300.  end
  PU-242    11 0  2.849574e-07  300.  end
  h2o       12 1           300.  end
  he        13 1           300.  end
  zirc2     14 1           300.  end
  zirc2     51 1           300.  end
  h2o       52 1           300.  end
  wtpt-borstahl 60 7.65 2
                                26000 98.4
                                5000 1.6
                                1 300  end
  ss304     70 1 300  end
end composition
read celldata
  latticecell squarepitch fuelr=0.4555 11 gapr=0.465 13 cladr=0.5375 14 hpitch=0.715 12
end
end celldata
read parameter
  gen=1600
  npg=20000
  nsk=100
  plt=no
  flx=yes
  htm=no
  mfp=yes
  cfx=yes
end parameter
read geometry
unit 1
com="brennstab"
  zcylinder 11 1  0.4555      10      0
  zcylinder 13 1  0.465      10      0
  zcylinder 14 1  0.5375      10      0
  cuboid 12 1  0.715  -0.715  0.715  -0.715  10  0
unit 5
com="steuerstabfuehrungsrohr"
  zcylinder 52 1  0.645      10      0
  zcylinder 51 1  0.685      10      0
  cuboid 52 1  0.715  -0.715  0.715  -0.715  10  0
global unit 6
```

```

com="lagerposition einheitszelle"
array 1 -11.44 -11.44 0
cuboid 52 1 11.50 -11.50 11.50 -11.50 10 0
cuboid 60 1 11.80 -11.80 11.80 -11.80 10 0
cuboid 52 1 13.91 -13.91 13.91 -13.91 10 0
cuboid 70 1 14.21 -14.21 14.21 -14.21 10 0
end geometry
read array
ara=1 nux=16 nuy=16 nuz=1
com=''
fill
  1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1
  1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1
  1 1 5 1 1 5 1 1 1 1 5 1 1 5 1 1
  1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1
  1 1 1 1 1 1 5 1 1 5 1 1 1 1 1
  1 1 5 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 5 1 1
  1 1 1 1 1 5 1 1 1 1 1 1 5 1 1 1
  1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1
  1 1 1 1 5 1 1 1 1 1 1 5 1 1 1 1
  1 1 5 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 5 1 1
  1 1 1 1 1 1 5 1 1 5 1 1 1 1 1 1
  1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1
  1 1 5 1 1 5 1 1 1 1 5 1 1 5 1 1
  1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1
  1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 end
fill
end array
read plot
scr=yes
ttl='dwr-be 16x16-20-lagerbecken einheitszelle'
pic=mixtures
xul=-14.21
yul=14.21
zul=5
xlr=14.21
ylr=-14.21
zlr=5
nax=1280
clr=11 64 0 64
  12 0 0 255
  13 255 255 224
  14 192 192 192
  51 192 192 192
  52 0 0 255
  60 238 221 130
  70 244 164 96
end color
uax=1 vdn=-1
end
end plot
read bnds
+xb=periodic
-xb=periodic
+yb=periodic
-yb=periodic
+z=periodic
-zb=periodic
end bnds
end data
end

```

C Parameter und Resultate der nachgerechneten Experimente

Tab. C.1 Parameter der nachgerechneten Experimente

Nr.	Experiment	Konfiguration	Spaltmaterial	Anreicherung / wt-%					feste Absorber	gelöste Absorber	H/U	H/ ²³⁵ U	H/SM	H/SM _{fis}
				²³⁵ U	PuO ₂	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu						
1	hst012	1	UO ₂ F ₂	93.180	---	---	---	---	---	---	1186.261	1272.25	1186.261	1272.25
2	lct001	1	UO ₂	2.350	---	---	---	---	---	---	9.493	398.96	9.493	398.96
3		2												
4		3												
5		4												
6		5												
7		6												
8		7												
9		8												
10	lct002	1	UO ₂	4.306	---	---	---	---	---	---	11.173	256.34	11.173	256.34
11		2												
12		3												
13		4												
14		5												
15	lct003	1	UO ₂	2.350	---	---	---	---	---	Gadolinium	5.204	218.71	5.204	218.71
16		2												
17		3												
18		4												
19		5												
20		6												
21		7												
22		8												
23		9												
24		10												
25		11												
26		12												

Nr.	Experiment	Konfiguration	Spaltmaterial	Anreicherung / wt-%					feste Absorber	gelöste Absorber	H/U	H/ ²³⁵ U	H/SM	H/SM _{fis}
				²³⁵ U	PuO ₂	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu						
126		13												
127		14								4.596	105.45	4.596	105.45	
128		15												
129		16												
130		17												
131		18												
132		19												
133		20												
134		21												
135		22												
136		23												
137		24												
138		25												
139		26												
140		27												
141		28												
142		29												
143		30												
144	lct011	1	UO ₂	2.459	---	---	---	---	---	---	5.387	216.39	5.387	216.39
145		2								Bor	5.408	217.22	5.408	217.22
146		3									5.388	216.41	5.388	216.41
147		4												
148		5									5.388	216.42	5.388	216.42
149		6									5.388	216.40	5.388	216.40
150		7									5.388	216.42	5.388	216.42
151		8									5.388	216.42	5.388	216.42
152		9									5.388	216.40	5.388	216.40
153		10						B4C	---		5.391	216.53	5.391	216.53
154		11									5.390	216.51	5.390	216.51
155		12												
156		13												
157		14												
158		15						---						

Nr.	Experiment	Konfiguration	Spaltmaterial	Anreicherung / wt-%					feste Absorber	gelöste Absorber	H/U	H/ ²³⁵ U	H/SM	H/SM _{fis}			
				²³⁵ U	PuO ₂	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu									
159	lct012	1	UO ₂	2.350	---	---	---	---	Stainless Steel	---	5.204	218.71	5.204	218.71			
160		2													Borated Stainless Steel		
161		3															
162		4															
163		5															
164		6															
165		7															
166		8															
167		9															
168		10														Cadmium, Copper	
169	lct013	1	UO ₂	4.306	---	---	---	---	Stainless Steel	---	4.596	105.45	4.596	105.45			
170		2													Borated Stainless Steel		
171		3															
172		4															
173		5															
174		6															
175		7															Cadmium, Copper
176		lct014															
177	2		Bor														
178	5																
179	6																
180	7			---													
181	lct016	1	UO ₂		2.350	---	---	---	---	Stainless Steel	---	9.498	399.18	9.498	399.18		
182		2															
183		3															
184		4															
185		5															

Nr.	Experiment	Konfiguration	Spaltmaterial	Anreicherung / wt-%					feste Absorber	gelöste Absorber	H/U	H/ ²³⁵ U	H/SM	H/SM _{fis}
				²³⁵ U	PuO ₂	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu						
252		25												
253		26												
254	lct035	1	UO ₂	2.596	---	---	---	---	---	Bor	5.278	200.80	5.278	200.80
255		2									5.274	200.67	5.274	200.67
256		3								Gadolinium	5.281	200.93	5.281	200.93
257	lct039	1	UO ₂	4.738	---	---	---	---	---	---	5.269	109.74	5.269	109.74
258		2												
259		3												
260		4												
261		5												
262		6												
263		7												
264		8												
265		9												
266		10												
267		11												
268		12												
269		13												
270		14												
271		15												
272		16												
273		17												
274	lct043	1	UO ₂	4.349	---	---	---	---	Gadolinium	---	7.763	176.36	7.763	176.36
275		2												
276		3												
277		4												
278		5												
279		6												
280		7												
281		8												
282		9												
									Gadolinium, Stainless Steel					

Nr.	Experiment	Konfiguration	Spaltmaterial	Anreicherung / wt-%					feste Absorber	gelöste Absorber	H/U	H/ ²³⁵ U	H/SM	H/SM _{fis}
				²³⁵ U	PuO ₂	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu						
283	lct049	1	UO ₂	4.978	---	---	---	---	---	---	2.012	39.94	2.012	39.94
284		2												
285		3												
286		4												
287		5												
288		6												
289		7												
290		8												
291		9												
292		10												
293		11												
294		12												
295		13												
296		14												
297		15												
298		16												
299		17												
300		18												
301	lct050	9	UO ₂	4.738	---	---	---	---	---	Samarium	5.855	122.10	5.855	122.10
302	lct052	1	UO ₂	4.738	---	---	---	---	---	Gadolinium	5.197	108.37	5.197	108.37
303		2									10.977	228.91	10.977	228.91
304		3									21.915	457.00	21.915	457.00
305		4									5.195	108.32	5.195	108.32
306		5									10.980	228.96	10.980	228.96
307		6									21.920	457.10	21.920	457.10
308	lct062	1	UO ₂	2.592	---	---	---	---	---	---	5.325	202.91	5.325	202.91
309		2												
310		3												
311		4												
312		5												
313		6												
										Borated				

Nr.	Experiment	Konfiguration	Spaltmaterial	Anreicherung / wt-%					feste Absorber	gelöste Absorber	H/U	H/ ²³⁵ U	H/SM	H/SM _{fis}
				²³⁵ U	PuO ₂	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu						
314		7												
315		8												
316		9												
317		10												
318		11												
319		12												
320		13												
321		14												
322		15												
323	lct065	1	UO ₂	2.592	---	---	---	---	---	5.234	202.49	5.234	202.49	
324		2												Stainless Steel
325		3												Borated Stainless Steel
326		4												---
327		5												Stainless Steel
328		6												Borated Stainless Steel
329		7												
330		8												
331		9												
332		10												
333		11												
334		12												
335		13												
336		14												
337		15												
338		16												
339		17												
340	lct070	1	UO ₂	6.500	---	---	---	---	---	2.547	38.73	2.547	38.73	
341		2												
342		3												
343		4												
344		5												

Nr.	Experiment	Konfiguration	Spaltmaterial	Anreicherung / wt-%					feste Absorber	gelöste Absorber	H/U	H/ ²³⁵ U	H/SM	H/SM _{fis}
				²³⁵ U	PuO ₂	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu						
345		6												
346		7												
347		8												
348		9												
349		10												
350		11												
351		12												
352	lct091	1	UO ₂	4.349	---	---	---	---	Gadolinium	---	7.763	176.36	7.763	176.36
353		2												
354		3												
355		4												
356		5												
357		6												
358		7												
359		8												
360		9												
361	lmct005	1	UO ₂ , UO ₂ (NO ₃) ₂	4.980	---	---	---	---	---	Samarium	6.529	127.02	6.529	127.02
362		2		6.000							6.525	126.95	6.525	126.95
363		3									6.528	127.00	6.528	127.00
364		4								Samarium, Cesium	6.553	127.52	6.553	127.52
365		5									6.577	128.03	6.577	128.03
366		6									6.602	128.55	6.602	128.55
367		7								Samarium, Cesium, Rhodium	6.594	128.38	6.594	128.38
368		8									6.590	128.30	6.590	128.30
369		9									6.587	128.24	6.587	128.24
370		10								Samarium, Cesium, Rhodium, Europium	6.547	127.42	6.547	127.42
371		11									6.541	127.30	6.541	127.30
372		12									6.544	127.36	6.544	127.36
373	lst002	1	UO ₂ F ₂	4.890	---	---	---	---	---	---	54.361	1098.33	54.361	1098.33
374		2									49.558	1001.28	49.558	1001.28
375		3									49.558	1001.28	49.558	1001.28
376	lst003	1	UO ₂ (NO ₃) ₂	10.07	---	---	---	---	---	---	78.494	770.31	78.494	770.31

Nr.	Experiment	Konfiguration	Spaltmaterial	Anreicherung / wt-%					feste Absorber	gelöste Absorber	H/U	H/ ²³⁵ U	H/SM	H/SM _{ris}
				²³⁵ U	PuO ₂	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu						
377		2								89.427	877.60	89.427	877.60	
378		3								91.405	897.01	91.405	897.01	
379		4								93.059	913.25	93.059	913.25	
380		5								119.568	1173.38	119.568	1173.38	
381		6								123.615	1213.10	123.615	1213.10	
382		7								126.337	1239.80	126.337	1239.80	
383		8								143.847	1411.64	143.847	1411.64	
384		9								146.481	1437.51	146.481	1437.51	
385	Ist007	1	UO ₂ (NO ₃) ₂	9.970	---	---	---	---	---	71.524	709.25	71.524	709.25	
386		2								77.648	769.97	77.648	769.97	
387		3								84.930	842.18	84.930	842.18	
388		4								90.362	896.05	90.362	896.05	
389		5								95.020	942.24	95.020	942.24	
390	Ist008	1	UO ₂ (NO ₃) ₂	9.970	---	---	---	---	---	96.288	954.82	96.288	954.82	
391		2								96.026	952.22	96.026	952.22	
392		3								95.871	950.69	95.871	950.69	
393		4								96.444	956.36	96.444	956.36	
394	Ist009	1	UO ₂ (NO ₃) ₂	9.970	---	---	---	---	---	94.369	934.63	94.369	934.63	
395		2								94.196	934.06	94.196	934.06	
396		3								94.169	933.49	94.169	933.49	
397	Ist010	1	UO ₂ (NO ₃) ₂	9.970	---	---	---	---	---	95.421	946.20	95.421	946.20	
398		2								95.280	944.81	95.280	944.81	
399		3								95.162	943.63	95.162	943.63	
400		4								94.963	941.67	94.963	941.67	
401	Ist011	1	UO ₂ (NO ₃) ₂	6.010	---	---	---	---	---	47.872	787.10	47.872	787.10	
402		2								50.310	827.17	50.310	827.17	
403		3								54.121	889.83	54.121	889.83	
404		4								58.036	954.19	58.036	954.19	
405		5								60.578	996.01	60.578	996.01	
406		6								63.077	1037.07	63.077	1037.07	
407		7								64.772	1064.94	64.772	1064.94	
408		8								47.889	787.34	47.889	787.34	
409		9								50.253	826.24	50.253	826.24	

Nr.	Experiment	Konfiguration	Spaltmaterial	Anreicherung / wt-%					feste Absorber	gelöste Absorber	H/U	H/ ²³⁵ U	H/SM	H/SM _{ris}
				²³⁵ U	PuO ₂	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu						
410		10									54.139	890.12	54.139	890.12
411		11									58.057	954.54	58.057	954.54
412		12									60.564	995.77	60.564	995.77
413		13									63.166	1038.55	63.166	1038.55
414	Ist016	1	UO ₂ (NO ₃) ₂	9.970	---	---	---	---	---	---	47.269	468.73	47.269	468.73
415		2									51.848	514.15	51.848	514.15
416		3									61.357	608.43	61.357	608.43
417		4									65.571	650.21	65.571	650.21
418		5									70.505	699.14	70.505	699.14
419		6									74.517	738.93	74.517	738.93
420		7									77.832	771.79	77.832	771.79
421	Ist017	1	UO ₂ (NO ₃) ₂	9.970	---	---	---	---	---	---	47.269	468.73	47.269	468.73
422		2									51.515	510.85	51.515	510.85
423		3									61.611	610.95	61.611	610.95
424		4									65.557	650.08	65.557	650.08
425		5									70.512	699.21	70.512	699.21
426		6									73.516	729.00	73.516	729.00
427	Ist018	1	UO ₂ (NO ₃) ₂	9.970	---	---	---	---	---	---	75.773	751.38	75.773	751.38
428		2									74.307	736.85	74.307	736.85
429		3									74.188	735.66	74.188	735.66
430		4									74.049	734.28	74.049	734.28
431		5									73.908	732.89	73.908	732.89
432		6									73.702	730.84	73.702	730.84
433	Ist019	1	UO ₂ (NO ₃) ₂	9.970	---	---	---	---	---	---	73.155	725.42	73.155	725.42
434		2									73.397	727.81	73.397	727.81
435		3									73.262	726.48	73.262	726.48
436		4									73.058	724.46	73.058	724.46
437		5									72.922	723.11	72.922	723.11
438		6									72.739	721.29	72.739	721.29
439	Ist020	1	UO ₂ (NO ₃) ₂	9.970	---	---	---	---	---	---	97.923	971.00	97.923	971.00
440		2									106.296	1053.92	106.296	1053.92
441		3									117.785	1167.99	117.785	1167.99
442		4									124.974	1239.27	124.974	1239.27

Nr.	Experiment	Konfiguration	Spaltmaterial	Anreicherung / wt-%					feste Absorber	gelöste Absorber	H/U	H/ ²³⁵ U	H/SM	H/SM _{ris}
				²³⁵ U	PuO ₂	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu						
443	Ist021	1	UO ₂ (NO ₃) ₂	9.970	---	---	---	---	---	---	97.920	971.00	97.920	971.00
444		2									106.159	1052.69	106.159	1052.69
445		3									117.785	1167.99	117.785	1167.99
446		4									124.933	1238.87	124.933	1238.87
447	Ist022	1	UO ₂ (NO ₃) ₂	9.970	---	---	---	---	---	---	75.365	747.34	75.365	747.34
448		2									75.515	748.83	75.515	748.83
449		3									75.614	749.80	75.614	749.80
450		4									74.998	743.69	74.998	743.69
451	Ist023	1	UO ₂ (NO ₃) ₂	9.970	---	---	---	---	---	---	80.952	802.74	80.952	802.74
452		2									79.114	784.52	79.114	784.52
453		3									79.139	784.75	79.139	784.75
454		4									80.894	802.16	80.894	802.16
455		5									80.792	801.15	80.792	801.15
456		6									80.735	800.58	80.735	800.58
457		7									80.502	798.27	80.502	798.27
458		8									80.410	797.36	80.410	797.36
459		9									79.415	787.49	79.415	787.49
460	Ist024	1	UO ₂ (NO ₃) ₂	9.970	---	---	---	---	---	---	79.461	787.95	79.461	787.95
461		2									79.348	786.83	79.348	786.83
462		3									79.211	785.47	79.211	785.47
463		4									79.084	784.21	79.084	784.21
464		5									78.907	782.45	78.907	782.45
465		6									78.770	781.09	78.770	781.09
466		7									78.635	779.76	78.635	779.76
467	Ist025	1	UO ₂ (NO ₃) ₂	9.970	---	---	---	---	---	---	80.826	801.49	80.826	801.49
468		2									80.686	800.09	80.686	800.09
469		3									80.535	798.60	80.535	798.60
470		4									80.394	797.21	80.394	797.21
471		5									80.222	795.49	80.222	795.49
472		6									80.039	793.69	80.039	793.69
473		7									79.763	790.94	79.763	790.94
474	mct004	1	MOX	0.711	3.010	68.18	22.02	7.26	---	---	13.130	1823.69	12.737	431.73
475		2												433.06

Nr.	Experiment	Konfiguration	Spaltmaterial	Anreicherung / wt-%					feste Absorber	gelöste Absorber	H/U	H/ ²³⁵ U	H/SM	H/SM _{fis}
				²³⁵ U	PuO ₂	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu						
476		3											434.44	
477		4								15.975	2218.75	15.496	525.15	
478		5											526.92	
479		6											530.19	
480		7								22.433	3115.79	21.761	737.22	
481		8											739.99	
482		9											742.38	
483		10								29.152	4049.01	28.279	958.16	
484		11											961.70	
485	mct005	1	MOX	0.711	3.98	75.29	18.15	5.12	---	---	6.369	884.64	6.116	157.55
486		2									8.462	1175.23	8.125	209.31
487		3									11.953	1660.09	11.477	295.66
488		4									14.949	2076.29	14.354	369.79
489		5									23.979	3330.38	23.024	593.14
490		6									33.367	4634.38	32.038	825.38
491		7									38.216	5307.80	36.694	945.32
492	mct006	1	MOX	0.708	2.04	91.84	7.76	0.37	---	---	4.869	679.10	4.770	185.10
493		2									7.994	1114.85	7.831	303.87
494		3									11.294	1575.21	11.065	429.36
495		4									14.128	1970.37	13.840	537.06
496		5									20.184	2815.05	19.774	767.30
497		6									22.665	3161.08	22.204	861.62
498	mct007	1	MOX	0.711	2.00	81.04	16.59	1.83	---	---	7.976	1107.82	7.818	331.88
499		2						1.79			11.264	1564.39	11.040	468.80
500		3						1.76			14.096	1957.70	13.815	586.81
501		4									20.115	2793.69	19.715	837.39
502		5						1.82			22.593	3137.91	22.144	940.11
503	mct008	1	MOX	0.711	2.00	71.43	23.49	4.03	---	---	4.853	674.07	4.757	214.99
504		2						4.06			7.968	1106.59	7.809	352.84
505		3						4.00			11.258	1563.54	11.033	498.82
506		4						3.93			14.082	1955.74	13.801	624.30
507		5						3.95			20.118	2794.19	19.717	891.82
508		6						4.06			22.591	3137.58	22.140	1000.42

Nr.	Experiment	Konfiguration	Spaltmaterial	Anreicherung / wt-%					feste Absorber	gelöste Absorber	H/U	H/ ²³⁵ U	H/SM	H/SM _{fis}
				²³⁵ U	PuO ₂	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu						
509	mct009	1	MOX	0.158	1.50	91.37	7.86	0.67	---	---	3.518	2198.93	3.466	226.05
510		2						0.67			4.969	3105.55	4.895	319.23
511		3						0.68			8.604	5377.62	8.476	552.76
512		4						12.033			7520.40	11.853	773.01	
513		5						16.321			10200.85	16.078	1048.53	
514		6						0.67			17.706	11066.47	17.442	1137.57
515	mmct004	1	MOX, MOX(NO ₃) _x	0.711 0.665	25.17	86.36 93.85	11.95 5.72	1.65 0.37	---	Gadolinium	62.243	8942.61	44.974	173.71

Tab. C.2 Resultate der Experimentnachrechnungen

Nr.	Experiment	Konfiguration	EALF / eV	k_{eff}			
				Benchmark		CSAS5, 238 Gruppen	
1	hst012	1	3.184E-02	0.9999	± 0.0058	1.00081	± 0.00002
2	lct001	1	9.661E-02	0.9998	± 0.0031	0.99829	± 0.00002
3		2	9.593E-02	0.9998	± 0.0031	0.99757	± 0.00002
4		3	9.499E-02	0.9998	± 0.0031	0.99726	± 0.00002
5		4	9.571E-02	0.9998	± 0.0031	0.99770	± 0.00002
6		5	9.433E-02	0.9998	± 0.0031	0.99566	± 0.00002
7		6	9.531E-02	0.9998	± 0.0031	0.99762	± 0.00002
8		7	9.357E-02	0.9998	± 0.0031	0.99696	± 0.00002
9		8	9.460E-02	0.9998	± 0.0031	0.99603	± 0.00002
10		lct002	1	1.132E-01	0.9997	± 0.0020	0.99756
11	2		1.130E-01	0.9997	± 0.0020	0.99891	± 0.00002
12	3		1.128E-01	0.9997	± 0.0020	0.99838	± 0.00002
13	4		1.119E-01	0.9997	± 0.0018	0.99800	± 0.00002
14	5		1.103E-01	0.9997	± 0.0019	0.99656	± 0.00002
15	lct003	1	1.715E-01	1.0000	± 0.0039	0.98784	± 0.00002
16		2	1.720E-01	1.0000	± 0.0039	0.98809	± 0.00002
17		3	1.722E-01	1.0000	± 0.0039	0.98877	± 0.00002
18		4	1.722E-01	1.0000	± 0.0039	0.98891	± 0.00002
19		5	1.716E-01	1.0000	± 0.0039	0.98869	± 0.00002
20		6	1.496E-01	1.0000	± 0.0039	0.98659	± 0.00002
21		7	1.591E-01	1.0000	± 0.0039	0.98885	± 0.00002
22		8	1.520E-01	1.0000	± 0.0039	0.99079	± 0.00002
23		9	1.534E-01	1.0000	± 0.0039	0.98371	± 0.00002
24		10	1.610E-01	1.0000	± 0.0039	0.98354	± 0.00002
25		11	1.449E-01	1.0000	± 0.0039	0.98498	± 0.00002
26		12	1.495E-01	1.0000	± 0.0039	0.98354	± 0.00002
27		13	1.491E-01	1.0000	± 0.0039	0.98701	± 0.00002

Nr.	Experiment	Konfiguration	EALF / eV	k_{eff}				
				Benchmark		CSAS5, 238 Gruppen		
28		14	1.492E-01	1.0000	± 0.0039	0.98601	± 0.00002	
29		15	1.500E-01	1.0000	± 0.0039	0.98633	± 0.00002	
30		16	1.522E-01	1.0000	± 0.0039	0.98592	± 0.00002	
31		17	1.534E-01	1.0000	± 0.0039	0.98541	± 0.00002	
32		18	1.550E-01	1.0000	± 0.0039	0.98524	± 0.00002	
33		19	1.566E-01	1.0000	± 0.0039	0.98603	± 0.00002	
34		20	1.661E-01	1.0000	± 0.0039	0.98648	± 0.00002	
35		21	1.620E-01	1.0000	± 0.0039	0.98494	± 0.00002	
36		22	1.586E-01	1.0000	± 0.0039	0.99457	± 0.00002	
37		23	1.570E-01	1.0000	± 0.0039	0.99559	± 0.00002	
38		lct004	1	2.890E-01	0.9998	± 0.0033	0.99336	± 0.00002
39			2	2.878E-01	0.9998	± 0.0033	0.99267	± 0.00002
40			3	2.880E-01	0.9998	± 0.0033	0.99341	± 0.00002
41	4		2.887E-01	0.9998	± 0.0033	0.99328	± 0.00002	
42	5		1.977E-01	0.9998	± 0.0033	0.99166	± 0.00002	
43	6		2.326E-01	0.9998	± 0.0033	0.99199	± 0.00002	
44	7		2.025E-01	0.9998	± 0.0033	0.99104	± 0.00002	
45	8		2.400E-01	0.9998	± 0.0038	0.99073	± 0.00002	
46	9		2.739E-01	0.9998	± 0.0038	0.99178	± 0.00002	
47	10		2.681E-01	0.9998	± 0.0038	0.99910	± 0.00002	
48	11		2.088E-01	0.9998	± 0.0038	0.98661	± 0.00002	
49	12		2.239E-01	0.9998	± 0.0038	0.98326	± 0.00002	
50	13		2.341E-01	0.9998	± 0.0038	0.98900	± 0.00002	
51	14		2.325E-01	0.9998	± 0.0038	0.98841	± 0.00002	
52	15		2.323E-01	0.9998	± 0.0038	0.98889	± 0.00002	
53	16		2.336E-01	0.9998	± 0.0038	0.98901	± 0.00002	
54	17		2.362E-01	0.9998	± 0.0038	0.98896	± 0.00002	
55	18		2.378E-01	0.9998	± 0.0038	0.98891	± 0.00002	
56	19		2.407E-01	0.9998	± 0.0038	0.99002	± 0.00002	

Nr.	Experiment	Konfiguration	EALF / eV	k _{eff}			
				Benchmark		CSAS5, 238 Gruppen	
57		20	2.206E-01	0.9998	± 0.0038	0.98592	± 0.00002
58	lct006	1	2.361E-01	1.0000	± 0.0020	0.99804	± 0.00002
59		2	2.427E-01	1.0000	± 0.0020	0.99857	± 0.00002
60		3	2.494E-01	1.0000	± 0.0020	0.99849	± 0.00002
61		4	1.818E-01	1.0000	± 0.0020	0.99897	± 0.00002
62		5	1.870E-01	1.0000	± 0.0020	0.99888	± 0.00002
63		6	1.920E-01	1.0000	± 0.0020	0.99939	± 0.00002
64		7	1.970E-01	1.0000	± 0.0020	0.99925	± 0.00002
65		8	2.021E-01	1.0000	± 0.0020	0.99924	± 0.00002
66		9	1.355E-01	1.0000	± 0.0020	0.99987	± 0.00002
67		10	1.389E-01	1.0000	± 0.0020	0.99976	± 0.00002
68		11	1.422E-01	1.0000	± 0.0020	0.99988	± 0.00002
69		12	1.456E-01	1.0000	± 0.0020	0.99972	± 0.00002
70		13	1.490E-01	1.0000	± 0.0020	0.99959	± 0.00002
71		14	1.145E-01	1.0000	± 0.0020	1.00003	± 0.00002
72		15	1.171E-01	1.0000	± 0.0020	0.99994	± 0.00002
73		16	1.197E-01	1.0000	± 0.0020	0.99999	± 0.00002
74		17	1.223E-01	1.0000	± 0.0020	0.99993	± 0.00002
75		18	1.249E-01	1.0000	± 0.0020	0.99987	± 0.00002
76	lct007	1	2.405E-01	1.0000	± 0.0014	0.99557	± 0.00002
77		2	1.088E-01	1.0000	± 0.0008	0.99757	± 0.00002
78		3	7.079E-02	1.0000	± 0.0007	0.99698	± 0.00002
79		4	6.045E-02	1.0000	± 0.0008	0.99774	± 0.00002
80		5	2.639E-01	1.0000	± 0.0014	0.99508	± 0.00002
81		6	1.110E-01	1.0000	± 0.0008	0.99555	± 0.00002
82		7	7.056E-02	1.0000	± 0.0007	0.99787	± 0.00002
83		8	2.486E-01	1.0000	± 0.0014	0.99530	± 0.00002
84		9	1.111E-01	1.0000	± 0.0008	0.99507	± 0.00002
85		10	7.093E-02	1.0000	± 0.0007	0.99792	± 0.00002

Nr.	Experiment	Konfiguration	EALF / eV	k_{eff}				
				Benchmark		CSAS5, 238 Gruppen		
86	lct008	1	2.796E-01	1.0007	± 0.0012	0.99726	± 0.00002	
87		2	2.466E-01	1.0007	± 0.0012	0.99783	± 0.00002	
88		3	2.464E-01	1.0007	± 0.0012	0.99831	± 0.00002	
89		4	2.467E-01	1.0007	± 0.0012	0.99770	± 0.00002	
90		5	2.467E-01	1.0007	± 0.0012	0.99733	± 0.00002	
91		6	2.461E-01	1.0007	± 0.0012	0.99771	± 0.00002	
92		7	2.462E-01	1.0007	± 0.0012	0.99706	± 0.00002	
93		8	2.443E-01	1.0007	± 0.0012	0.99665	± 0.00002	
94		9	2.437E-01	1.0007	± 0.0012	0.99696	± 0.00002	
95		10	2.495E-01	1.0007	± 0.0012	0.99738	± 0.00002	
96		11	2.547E-01	1.0007	± 0.0012	0.99810	± 0.00002	
97		12	2.486E-01	1.0007	± 0.0012	0.99777	± 0.00002	
98		13	2.486E-01	1.0007	± 0.0012	0.99778	± 0.00002	
99		14	2.508E-01	1.0007	± 0.0012	0.99752	± 0.00002	
100		15	2.509E-01	1.0007	± 0.0012	0.99739	± 0.00002	
101		16	2.282E-01	1.0007	± 0.0012	0.99773	± 0.00002	
102		17	1.993E-01	1.0007	± 0.0012	0.99697	± 0.00002	
103	lct009	1	1.127E-01	1.0000	± 0.0021	0.99845	± 0.00002	
104		2	1.122E-01	1.0000	± 0.0021	0.99827	± 0.00002	
105		3	1.125E-01	1.0000	± 0.0021	0.99769	± 0.00002	
106		4	1.121E-01	1.0000	± 0.0021	0.99842	± 0.00002	
107		5	1.136E-01	1.0000	± 0.0021	0.99905	± 0.00002	
108		6	1.128E-01	1.0000	± 0.0021	0.99834	± 0.00002	
109		7	1.137E-01	1.0000	± 0.0021	0.99917	± 0.00002	
110		8	1.128E-01	1.0000	± 0.0021	0.99823	± 0.00002	
111		9	1.136E-01	1.0000	± 0.0021	0.99862	± 0.00002	
112	26	1.120E-01	1.0000	± 0.0021	0.99860	± 0.00002		
113	27	1.119E-01	1.0000	± 0.0021	0.99863	± 0.00002		
114	lct010	1	1.179E-01	1.0000	± 0.0021	1.00357	± 0.00002	

Nr.	Experiment	Konfiguration	EALF / eV	k_{eff}			
				Benchmark		CSAS5, 238 Gruppen	
115		2	1.151E-01	1.0000	± 0.0021	1.00386	± 0.00002
116		3	1.132E-01	1.0000	± 0.0021	1.00293	± 0.00002
117		4	1.104E-01	1.0000	± 0.0021	0.99574	± 0.00002
118		5	3.539E-01	1.0000	± 0.0021	0.99990	± 0.00002
119		6	2.614E-01	1.0000	± 0.0021	0.99997	± 0.00002
120		7	2.085E-01	1.0000	± 0.0021	1.00064	± 0.00002
121		8	1.839E-01	1.0000	± 0.0021	0.99714	± 0.00002
122		9	1.220E-01	1.0000	± 0.0021	1.00067	± 0.00002
123		10	1.182E-01	1.0000	± 0.0021	1.00067	± 0.00002
124		11	1.155E-01	1.0000	± 0.0021	1.00065	± 0.00002
125		12	1.123E-01	1.0000	± 0.0021	0.99948	± 0.00002
126		13	1.104E-01	1.0000	± 0.0021	0.99688	± 0.00002
127		14	3.072E-01	1.0000	± 0.0028	1.00137	± 0.00002
128		15	2.948E-01	1.0000	± 0.0028	1.00178	± 0.00002
129		16	2.852E-01	1.0000	± 0.0028	1.00221	± 0.00002
130		17	2.790E-01	1.0000	± 0.0028	1.00153	± 0.00002
131		18	2.744E-01	1.0000	± 0.0028	1.00132	± 0.00002
132		19	2.677E-01	1.0000	± 0.0028	1.00087	± 0.00002
133		20	2.932E-01	1.0000	± 0.0028	1.00222	± 0.00002
134		21	2.846E-01	1.0000	± 0.0028	1.00241	± 0.00002
135		22	2.735E-01	1.0000	± 0.0028	1.00190	± 0.00002
136		23	2.673E-01	1.0000	± 0.0028	1.00040	± 0.00002
137		24	5.977E-01	1.0000	± 0.0028	0.99944	± 0.00002
138		25	5.513E-01	1.0000	± 0.0028	1.00083	± 0.00002
139		26	4.974E-01	1.0000	± 0.0028	1.00197	± 0.00002
140		27	4.771E-01	1.0000	± 0.0028	1.00129	± 0.00002
141		28	4.473E-01	1.0000	± 0.0028	1.00145	± 0.00002
142		29	4.222E-01	1.0000	± 0.0028	1.00140	± 0.00002
143		30	3.669E-01	1.0000	± 0.0028	0.99929	± 0.00002

Nr.	Experiment	Konfiguration	EALF / eV	k_{eff}				
				Benchmark		CSAS5, 238 Gruppen		
144	lct011	1	1.579E-01	1.0010	± 0.0018	0.99083	± 0.00002	
145		2	2.295E-01	1.0009	± 0.0032	0.98657	± 0.00002	
146		3	1.813E-01	1.0009	± 0.0032	0.98648	± 0.00002	
147		4	1.817E-01	1.0009	± 0.0032	0.98694	± 0.00002	
148		5	1.824E-01	1.0009	± 0.0032	0.98662	± 0.00002	
149		6	1.836E-01	1.0009	± 0.0032	0.98662	± 0.00002	
150		7	1.847E-01	1.0009	± 0.0032	0.98678	± 0.00002	
151		8	1.855E-01	1.0009	± 0.0032	0.98705	± 0.00002	
152		9	1.864E-01	1.0009	± 0.0032	0.98687	± 0.00002	
153		10	1.753E-01	1.0010	± 0.0017	0.98672	± 0.00002	
154		11	1.532E-01	1.0010	± 0.0017	0.98763	± 0.00002	
155		12	1.571E-01	1.0010	± 0.0017	0.98771	± 0.00002	
156		13	1.390E-01	1.0010	± 0.0017	0.98801	± 0.00002	
157		14	1.420E-01	1.0010	± 0.0017	0.98801	± 0.00002	
158		15	1.309E-01	1.0010	± 0.0018	0.98934	± 0.00002	
159	lct012	1	1.676E-01	1.0000	± 0.0034	0.98641	± 0.00002	
160		2	1.744E-01	1.0000	± 0.0034	0.98700	± 0.00002	
161		3	1.759E-01	1.0000	± 0.0034	0.98633	± 0.00002	
162		4	1.832E-01	1.0000	± 0.0034	0.98651	± 0.00002	
163		5	1.819E-01	1.0000	± 0.0034	0.98601	± 0.00002	
164		6	1.818E-01	1.0000	± 0.0034	0.98802	± 0.00002	
165		7	1.829E-01	1.0000	± 0.0034	0.98726	± 0.00002	
166		8	1.767E-01	1.0000	± 0.0049	0.98717	± 0.00002	
167		9	1.650E-01	1.0000	± 0.0034	0.98602	± 0.00002	
168		10	1.732E-01	1.0000	± 0.0034	0.98703	± 0.00002	
169	lct013	1	2.863E-01	1.0000	± 0.0018	1.00053	± 0.00002	
170		2	2.937E-01	1.0000	± 0.0018	1.00045	± 0.00002	
171		3	2.975E-01	1.0000	± 0.0018	1.00017	± 0.00002	
172		4	2.968E-01	1.0000	± 0.0018	1.00112	± 0.00002	

Nr.	Experiment	Konfiguration	EALF / eV	k_{eff}				
				Benchmark		CSAS5, 238 Gruppen		
173		5	2.961E-01	1.0000	± 0.0032	1.00004	± 0.00002	
174		6	2.872E-01	1.0000	± 0.0018	1.00002	± 0.00002	
175		7	2.926E-01	1.0000	± 0.0018	0.99941	± 0.00002	
176	lct014	1	2.773E-01	1.0000	± 0.0019	0.99852	± 0.00002	
177		2	3.332E-01	1.0000	± 0.0077	0.98583	± 0.00002	
178		5	5.833E-01	1.0000	± 0.0069	1.00127	± 0.00002	
179		6	4.974E-01	1.0000	± 0.0033	1.00504	± 0.00002	
180		7	7.482E-01	1.0000	± 0.0051	1.00097	± 0.00002	
181		lct016	1	9.568E-02	1.0000	± 0.0031	0.99749	± 0.00002
182			2	9.545E-02	1.0000	± 0.0031	0.99620	± 0.00002
183	3		9.537E-02	1.0000	± 0.0031	0.99723	± 0.00002	
184	4		9.553E-02	1.0000	± 0.0031	0.99619	± 0.00002	
185	5		9.523E-02	1.0000	± 0.0031	0.99701	± 0.00002	
186	6		9.617E-02	1.0000	± 0.0031	0.99713	± 0.00002	
187	7		9.591E-02	1.0000	± 0.0031	0.99718	± 0.00002	
188	8		9.689E-02	1.0000	± 0.0031	0.99722	± 0.00002	
189	9		9.621E-02	1.0000	± 0.0031	0.99780	± 0.00002	
190	10		9.700E-02	1.0000	± 0.0031	0.99690	± 0.00002	
191	11		9.627E-02	1.0000	± 0.0031	0.99762	± 0.00002	
192	12		9.743E-02	1.0000	± 0.0031	0.99707	± 0.00002	
193	13		9.655E-02	1.0000	± 0.0031	0.99745	± 0.00002	
194	14		9.749E-02	1.0000	± 0.0031	0.99765	± 0.00002	
195	31	9.495E-02	1.0000	± 0.0031	0.99753	± 0.00002		
196	32	9.485E-02	1.0000	± 0.0031	0.99734	± 0.00002		
197	lct017	1	9.783E-02	1.0000	± 0.0031	0.99892	± 0.00002	
198		2	9.653E-02	1.0000	± 0.0031	0.99869	± 0.00002	
199		3	9.471E-02	1.0000	± 0.0031	0.99742	± 0.00002	
200		4	2.018E-01	1.0000	± 0.0031	0.99659	± 0.00002	
201		5	1.777E-01	1.0000	± 0.0031	0.99821	± 0.00002	

Nr.	Experiment	Konfiguration	EALF / eV	k_{eff}				
				Benchmark		CSAS5, 238 Gruppen		
202		6	1.682E-01	1.0000	± 0.0031	0.99826	± 0.00002	
203		7	1.596E-01	1.0000	± 0.0031	0.99808	± 0.00002	
204		8	1.329E-01	1.0000	± 0.0031	0.99621	± 0.00002	
205		9	1.088E-01	1.0000	± 0.0031	0.99551	± 0.00002	
206		10	9.975E-02	1.0000	± 0.0031	0.99684	± 0.00002	
207		11	9.821E-02	1.0000	± 0.0031	0.99680	± 0.00002	
208		12	9.675E-02	1.0000	± 0.0031	0.99681	± 0.00002	
209		13	9.526E-02	1.0000	± 0.0031	0.99703	± 0.00002	
210		14	9.463E-02	1.0000	± 0.0031	0.99717	± 0.00002	
211		15	1.775E-01	1.0000	± 0.0028	0.99567	± 0.00002	
212		16	1.713E-01	1.0000	± 0.0028	0.99653	± 0.00002	
213		17	1.665E-01	1.0000	± 0.0028	0.99770	± 0.00002	
214		18	1.650E-01	1.0000	± 0.0028	0.99644	± 0.00002	
215		19	1.623E-01	1.0000	± 0.0028	0.99664	± 0.00002	
216		20	1.608E-01	1.0000	± 0.0028	0.99558	± 0.00002	
217		21	1.593E-01	1.0000	± 0.0028	0.99553	± 0.00002	
218		22	1.583E-01	1.0000	± 0.0028	0.99469	± 0.00002	
219		23	1.691E-01	1.0000	± 0.0028	0.99632	± 0.00002	
220		24	1.645E-01	1.0000	± 0.0028	0.99711	± 0.00002	
221		25	1.570E-01	1.0000	± 0.0028	0.99542	± 0.00002	
222		26	3.740E-01	1.0000	± 0.0028	0.99413	± 0.00002	
223		27	3.202E-01	1.0000	± 0.0028	0.99607	± 0.00002	
224		28	2.805E-01	1.0000	± 0.0028	0.99665	± 0.00002	
225		29	2.507E-01	1.0000	± 0.0028	0.99668	± 0.00002	
226	lct033	3	2.079E-01	1.0000	± 0.0038	1.00432	± 0.00002	
227		13	6.477E-02	1.0000	± 0.0041	1.00110	± 0.00002	
228		19	2.488E-01	1.0000	± 0.0038	1.01311	± 0.00002	
229		22	9.833E-02	1.0000	± 0.0039	1.01338	± 0.00002	
230	lct034	1	1.508E-01	1.0000	± 0.0047	1.00380	± 0.00002	

Nr.	Experiment	Konfiguration	EALF / eV	k_{eff}				
				Benchmark		CSAS5, 238 Gruppen		
231		2	1.473E-01	1.0000	± 0.0047	1.00518	± 0.00002	
232		3	1.414E-01	1.0000	± 0.0039	1.00212	± 0.00002	
233		4	1.368E-01	1.0000	± 0.0039	1.00049	± 0.00002	
234		5	1.332E-01	1.0000	± 0.0039	0.99972	± 0.00002	
235		6	1.299E-01	1.0000	± 0.0039	1.00123	± 0.00002	
236		7	1.279E-01	1.0000	± 0.0039	0.99952	± 0.00002	
237		8	1.260E-01	1.0000	± 0.0039	0.99917	± 0.00002	
238		10	1.462E-01	1.0000	± 0.0048	1.00109	± 0.00002	
239		11	1.450E-01	1.0000	± 0.0048	1.00093	± 0.00002	
240		12	1.429E-01	1.0000	± 0.0048	0.99686	± 0.00002	
241		13	1.397E-01	1.0000	± 0.0048	0.99822	± 0.00002	
242		14	1.378E-01	1.0000	± 0.0043	0.99530	± 0.00002	
243		15	1.351E-01	1.0000	± 0.0043	0.99486	± 0.00002	
244		17	1.564E-01	1.0000	± 0.0053	1.00932	± 0.00002	
245		18	1.522E-01	1.0000	± 0.0053	1.00637	± 0.00002	
246		19	1.481E-01	1.0000	± 0.0053	1.00554	± 0.00002	
247		20	1.451E-01	1.0000	± 0.0053	1.00253	± 0.00002	
248		21	1.418E-01	1.0000	± 0.0047	1.00287	± 0.00002	
249		22	1.397E-01	1.0000	± 0.0047	1.00021	± 0.00002	
250		23	1.372E-01	1.0000	± 0.0047	1.00098	± 0.00002	
251		24	1.347E-01	1.0000	± 0.0047	1.00184	± 0.00002	
252		25	1.330E-01	1.0000	± 0.0047	1.00042	± 0.00002	
253		26	1.312E-01	1.0000	± 0.0047	0.99940	± 0.00002	
254		lct035	1	2.082E-01	1.0000	± 0.0018	0.99848	± 0.00002
255			2	2.116E-01	1.0000	± 0.0019	0.99810	± 0.00002
256			3	2.082E-01	1.0000	± 0.0022	0.99383	± 0.00002
257	lct039	1	2.220E-01	1.0000	± 0.0014	0.99596	± 0.00002	
258		2	2.117E-01	1.0000	± 0.0014	0.99702	± 0.00002	
259		3	1.922E-01	1.0000	± 0.0014	0.99668	± 0.00002	

Nr.	Experiment	Konfiguration	EALF / eV	k_{eff}				
				Benchmark		CSAS5, 238 Gruppen		
260		4	1.839E-01	1.0000	± 0.0014	0.99583	± 0.00002	
261		5	1.393E-01	1.0000	± 0.0009	0.99788	± 0.00002	
262		6	1.454E-01	1.0000	± 0.0009	0.99767	± 0.00002	
263		7	2.129E-01	1.0000	± 0.0012	0.99622	± 0.00002	
264		8	2.030E-01	1.0000	± 0.0012	0.99648	± 0.00002	
265		9	1.976E-01	1.0000	± 0.0012	0.99678	± 0.00002	
266		10	1.729E-01	1.0000	± 0.0012	0.99758	± 0.00002	
267		11	2.217E-01	1.0000	± 0.0013	0.99497	± 0.00002	
268		12	2.167E-01	1.0000	± 0.0013	0.99531	± 0.00002	
269		13	2.142E-01	1.0000	± 0.0013	0.99542	± 0.00002	
270		14	2.124E-01	1.0000	± 0.0013	0.99599	± 0.00002	
271		15	2.111E-01	1.0000	± 0.0013	0.99612	± 0.00002	
272		16	2.102E-01	1.0000	± 0.0013	0.99651	± 0.00002	
273		17	2.099E-01	1.0000	± 0.0013	0.99623	± 0.00002	
274		lct043	1	1.516E-01	1.0004	± 0.0010	1.00102	± 0.00002
275			2	1.547E-01	1.0004	± 0.0010	1.00112	± 0.00002
276			3	1.546E-01	1.0004	± 0.0010	1.00084	± 0.00002
277	4		1.519E-01	1.0006	± 0.0010	1.00099	± 0.00002	
278	5		1.541E-01	1.0004	± 0.0010	1.00089	± 0.00002	
279	6		1.542E-01	1.0005	± 0.0010	1.00092	± 0.00002	
280	7		1.541E-01	1.0006	± 0.0010	1.00092	± 0.00002	
281	8		1.539E-01	1.0004	± 0.0010	1.00059	± 0.00002	
282	9		1.525E-01	1.0006	± 0.0010	1.00048	± 0.00002	
283	lct049	1	2.022E+00	1.0000	± 0.0034	0.99860	± 0.00002	
284		2	2.033E+00	1.0000	± 0.0034	0.99926	± 0.00002	
285		3	2.153E+00	1.0000	± 0.0034	0.99921	± 0.00002	
286		4	2.241E+00	1.0000	± 0.0034	1.00008	± 0.00002	
287		5	1.131E+00	1.0000	± 0.0042	0.99880	± 0.00002	
288		6	1.143E+00	1.0000	± 0.0042	1.00087	± 0.00002	

Nr.	Experiment	Konfiguration	EALF / eV	k_{eff}				
				Benchmark		CSAS5, 238 Gruppen		
289		7	1.102E+00	1.0000	± 0.0042	1.00049	± 0.00002	
290		8	1.181E+00	1.0000	± 0.0042	1.00017	± 0.00002	
291		9	7.427E-01	1.0000	± 0.0037	0.99746	± 0.00002	
292		10	7.484E-01	1.0000	± 0.0037	0.99957	± 0.00002	
293		11	7.455E-01	1.0000	± 0.0037	0.99791	± 0.00002	
294		12	7.868E-01	1.0000	± 0.0037	0.99837	± 0.00002	
295		13	1.412E+00	1.0000	± 0.0036	0.99838	± 0.00002	
296		14	1.416E+00	1.0000	± 0.0036	0.99892	± 0.00002	
297		15	1.419E+00	1.0000	± 0.0036	1.00022	± 0.00002	
298		16	1.107E+00	1.0000	± 0.0036	0.99889	± 0.00002	
299		17	1.184E+00	1.0000	± 0.0036	0.99905	± 0.00002	
300		18	1.016E+00	1.0000	± 0.0030	1.00196	± 0.00002	
301		lct050	9	1.963E-01	1.0004	± 0.0010	0.99670	± 0.00002
302		lct052	1	4.326E-01	1.0003	± 0.0023	0.98904	± 0.00002
303			2	1.633E-01	1.0003	± 0.0036	0.98955	± 0.00002
304			3	8.437E-02	1.0003	± 0.0034	0.99932	± 0.00002
305			4	4.340E-01	1.0003	± 0.0023	0.99297	± 0.00002
306			5	1.642E-01	1.0003	± 0.0036	0.98840	± 0.00002
307	6		8.554E-02	1.0003	± 0.0034	0.98856	± 0.00002	
308	lct062	1	1.847E-01	1.0000	± 0.0016	1.00132	± 0.00002	
309		2	1.867E-01	1.0000	± 0.0016	1.00250	± 0.00002	
310		3	1.881E-01	1.0000	± 0.0016	1.00211	± 0.00002	
311		4	1.870E-01	1.0000	± 0.0016	1.00228	± 0.00002	
312		5	1.863E-01	1.0000	± 0.0016	1.00176	± 0.00002	
313		6	1.896E-01	1.0000	± 0.0016	1.00196	± 0.00002	
314		7	1.905E-01	1.0000	± 0.0016	1.00134	± 0.00002	
315		8	1.885E-01	1.0000	± 0.0016	1.00292	± 0.00002	
316		9	1.891E-01	1.0000	± 0.0016	1.00060	± 0.00002	
317		10	1.868E-01	1.0000	± 0.0016	1.00325	± 0.00002	

Nr.	Experiment	Konfiguration	EALF / eV	k_{eff}			
				Benchmark		CSAS5, 238 Gruppen	
318		11	1.877E-01	1.0000	± 0.0016	1.00098	± 0.00002
319		12	1.901E-01	1.0000	± 0.0016	1.00121	± 0.00002
320		13	1.905E-01	1.0000	± 0.0016	1.00164	± 0.00002
321		14	1.887E-01	1.0000	± 0.0016	1.00260	± 0.00002
322		15	1.875E-01	1.0000	± 0.0016	1.00233	± 0.00002
323	lct065	1	1.890E-01	1.0000	± 0.0014	1.00168	± 0.00002
324		2	1.939E-01	0.9999	± 0.0014	1.00193	± 0.00002
325		3	1.965E-01	0.9996	± 0.0015	1.00030	± 0.00002
326		4	1.963E-01	0.9997	± 0.0015	1.00099	± 0.00002
327		5	1.875E-01	1.0000	± 0.0014	1.00184	± 0.00002
328		6	1.904E-01	0.9998	± 0.0014	1.00202	± 0.00002
329		7	1.899E-01	0.9991	± 0.0014	1.00155	± 0.00002
330		8	1.920E-01	1.0000	± 0.0016	1.00190	± 0.00002
331		9	1.911E-01	1.0001	± 0.0015	1.00144	± 0.00002
332		10	1.939E-01	1.0002	± 0.0016	1.00079	± 0.00002
333		11	1.925E-01	1.0005	± 0.0016	1.00086	± 0.00002
334		12	1.949E-01	1.0000	± 0.0017	1.00019	± 0.00002
335		13	1.926E-01	1.0001	± 0.0016	1.00065	± 0.00002
336		14	1.939E-01	1.0003	± 0.0016	1.00149	± 0.00002
337		15	1.927E-01	0.9994	± 0.0016	1.00102	± 0.00002
338		16	1.947E-01	0.9998	± 0.0017	1.00113	± 0.00002
339		17	1.932E-01	1.0003	± 0.0016	1.00079	± 0.00002
340	lct070	1	1.488E+00	1.0004	± 0.0016	1.00519	± 0.00002
341		2	1.457E+00	1.0004	± 0.0016	1.00524	± 0.00002
342		3	1.443E+00	1.0004	± 0.0016	1.00497	± 0.00002
343		4	1.424E+00	1.0004	± 0.0016	1.00481	± 0.00002
344		5	1.401E+00	1.0004	± 0.0016	1.00457	± 0.00002
345		6	1.394E+00	1.0004	± 0.0016	1.00413	± 0.00002
346		7	1.384E+00	1.0004	± 0.0016	1.00421	± 0.00002

Nr.	Experiment	Konfiguration	EALF / eV	k_{eff}			
				Benchmark		CSAS5, 238 Gruppen	
347		8	1.370E+00	1.0004	± 0.0016	1.00396	± 0.00002
348		9	1.357E+00	1.0004	± 0.0016	1.00384	± 0.00002
349		10	1.339E+00	1.0004	± 0.0016	1.00360	± 0.00002
350		11	1.316E+00	1.0004	± 0.0016	1.00333	± 0.00002
351		12	1.302E+00	1.0004	± 0.0016	1.00320	± 0.00002
352	lct091	1	1.488E-01	1.0005	± 0.0010	1.00034	± 0.00002
353		2	1.518E-01	1.0006	± 0.0010	1.00070	± 0.00002
354		3	1.506E-01	1.0004	± 0.0010	1.00023	± 0.00002
355		4	1.509E-01	1.0006	± 0.0010	1.00067	± 0.00002
356		5	1.502E-01	1.0006	± 0.0010	1.00126	± 0.00002
357		6	1.319E-01	1.0006	± 0.0010	1.00101	± 0.00002
358		7	1.323E-01	1.0004	± 0.0010	0.99663	± 0.00002
359		8	1.314E-01	1.0004	± 0.0010	0.99733	± 0.00002
360		9	1.310E-01	1.0004	± 0.0010	0.99736	± 0.00002
361		lmct005	1	1.156E-01	1.0000	± 0.0007	1.00255
362	2		1.173E-01	1.0001	± 0.0007	1.00309	± 0.00002
363	3		1.190E-01	0.9999	± 0.0007	1.00314	± 0.00002
364	4		1.191E-01	1.0000	± 0.0007	1.00323	± 0.00002
365	5		1.192E-01	1.0000	± 0.0007	1.00315	± 0.00002
366	6		1.192E-01	1.0000	± 0.0007	1.00362	± 0.00002
367	7		1.195E-01	0.9999	± 0.0007	1.00318	± 0.00002
368	8		1.198E-01	0.9999	± 0.0007	1.00292	± 0.00002
369	9		1.198E-01	0.9999	± 0.0007	1.00335	± 0.00002
370	10		1.201E-01	0.9998	± 0.0007	1.00276	± 0.00002
371	11		1.201E-01	0.9998	± 0.0007	1.00266	± 0.00002
372	12		1.201E-01	0.9999	± 0.0007	1.00230	± 0.00002
373	lst002	1	3.750E-02	1.0038	± 0.0040	1.00028	± 0.00002
374		2	3.935E-02	1.0024	± 0.0037	0.99611	± 0.00002
375		3	3.853E-02	1.0024	± 0.0044	1.00112	± 0.00002

Nr.	Experiment	Konfiguration	EALF / eV	k_{eff}				
				Benchmark		CSAS5, 238 Gruppen		
376	Ist003	1	4.019E-02	0.9997	± 0.0039	0.99654	± 0.00002	
377		2	3.843E-02	0.9993	± 0.0042	0.99542	± 0.00002	
378		3	3.814E-02	0.9995	± 0.0042	0.99976	± 0.00002	
379		4	3.798E-02	0.9995	± 0.0042	0.99336	± 0.00002	
380		5	3.537E-02	0.9997	± 0.0048	0.99766	± 0.00002	
381		6	3.508E-02	0.9999	± 0.0049	0.99816	± 0.00002	
382		7	3.491E-02	0.9994	± 0.0049	0.99649	± 0.00002	
383		8	3.389E-02	0.9993	± 0.0052	1.00011	± 0.00002	
384		9	3.377E-02	0.9996	± 0.0052	0.99745	± 0.00002	
385	Ist007	1	4.142E-02	0.9961	± 0.0009	1.01207	± 0.00002	
386		2	4.016E-02	0.9973	± 0.0009	1.01423	± 0.00002	
387		3	3.893E-02	0.9985	± 0.0010	1.01253	± 0.00002	
388		4	3.815E-02	0.9988	± 0.0011	1.01528	± 0.00002	
389		5	3.757E-02	0.9983	± 0.0011	1.01400	± 0.00002	
390	Ist008	1	3.736E-02	1.0002	± 0.0015	1.00131	± 0.00002	
391		2	3.734E-02	0.9999	± 0.0014	1.00217	± 0.00002	
392		3	3.732E-02	0.9999	± 0.0014	1.00281	± 0.00002	
393		4	3.724E-02	0.9999	± 0.0014	1.00310	± 0.00002	
394	Ist009	1	3.771E-02	0.9998	± 0.0014	1.00047	± 0.00002	
395		2	3.775E-02	0.9999	± 0.0014	1.00094	± 0.00002	
396		3	3.776E-02	0.9999	± 0.0014	1.00126	± 0.00002	
397	Ist010	1	3.733E-02	0.9999	± 0.0015	1.00073	± 0.00002	
398		2	3.728E-02	0.9999	± 0.0014	1.00114	± 0.00002	
399		3	3.729E-02	1.0000	± 0.0014	1.00134	± 0.00002	
400		4	3.731E-02	1.0001	± 0.0014	1.00167	± 0.00002	
401	Ist011	1	4.221E-02	0.9999	± 0.0010	1.00397	± 0.00002	
402		2	4.140E-02	1.0000	± 0.0010	1.00432	± 0.00002	
403		3	4.030E-02	1.0000	± 0.0009	1.00362	± 0.00002	
404		4	3.933E-02	0.9998	± 0.0009	1.00311	± 0.00002	

Nr.	Experiment	Konfiguration	EALF / eV	k_{eff}				
				Benchmark		CSAS5, 238 Gruppen		
405		5	3.877E-02	0.9998	± 0.0011	1.00224	± 0.00002	
406		6	3.827E-02	1.0000	± 0.0011	1.00334	± 0.00002	
407		7	3.795E-02	0.9999	± 0.0010	1.00332	± 0.00002	
408		8	4.256E-02	0.9967	± 0.0010	1.00016	± 0.00002	
409		9	4.173E-02	0.9974	± 0.0010	1.00117	± 0.00002	
410		10	4.057E-02	0.9980	± 0.0009	1.00076	± 0.00002	
411		11	3.956E-02	0.9984	± 0.0009	1.00050	± 0.00002	
412		12	3.900E-02	0.9985	± 0.0011	1.00032	± 0.00002	
413		13	3.846E-02	0.9987	± 0.0010	1.00128	± 0.00002	
414		Ist016	1	5.021E-02	0.9996	± 0.0013	1.00447	± 0.00002
415			2	4.783E-02	0.9999	± 0.0013	1.00440	± 0.00002
416			3	4.421E-02	0.9994	± 0.0014	1.00374	± 0.00002
417			4	4.299E-02	0.9996	± 0.0014	1.00312	± 0.00002
418	5		4.176E-02	0.9995	± 0.0014	1.00261	± 0.00002	
419	6		4.092E-02	0.9992	± 0.0015	1.00112	± 0.00002	
420	7		4.028E-02	0.9994	± 0.0015	1.00233	± 0.00002	
421	Ist017	1	5.036E-02	0.9981	± 0.0013	1.00668	± 0.00002	
422		2	4.811E-02	0.9986	± 0.0013	1.00647	± 0.00002	
423		3	4.421E-02	0.9989	± 0.0014	1.00485	± 0.00002	
424		4	4.304E-02	0.9992	± 0.0014	1.00555	± 0.00002	
425		5	4.180E-02	0.9987	± 0.0015	1.00524	± 0.00002	
426		6	4.116E-02	0.9996	± 0.0015	1.00499	± 0.00002	
427	Ist018	1	4.052E-02	0.9992	± 0.0010	1.00166	± 0.00002	
428		2	4.083E-02	0.9996	± 0.0010	1.00207	± 0.00002	
429		3	4.087E-02	0.9996	± 0.0010	1.00225	± 0.00002	
430		4	4.090E-02	0.9997	± 0.0010	1.00211	± 0.00002	
431		5	4.093E-02	0.9992	± 0.0010	1.00184	± 0.00002	
432		6	4.098E-02	0.9996	± 0.0010	1.00181	± 0.00002	
433	Ist019	1	4.104E-02	0.9994	± 0.0009	1.00173	± 0.00002	

Nr.	Experiment	Konfiguration	EALF / eV	k_{eff}					
				Benchmark		CSAS5, 238 Gruppen			
434		2	4.096E-02	0.9997	±	0.0009	1.00276	±	0.00002
435		3	4.098E-02	0.9995	±	0.0009	1.00298	±	0.00002
436		4	4.100E-02	0.9999	±	0.0009	1.00349	±	0.00002
437		5	4.105E-02	0.9996	±	0.0009	1.00332	±	0.00002
438		6	4.109E-02	0.9998	±	0.0009	1.00111	±	0.00002
439	Ist020	1	3.688E-02	0.9995	±	0.0010	0.99984	±	0.00002
440		2	3.605E-02	0.9996	±	0.0010	0.99956	±	0.00002
441		3	3.511E-02	0.9997	±	0.0012	0.99894	±	0.00002
442		4	3.460E-02	0.9998	±	0.0012	1.00006	±	0.00002
443	Ist021	1	3.709E-02	0.9983	±	0.0009	0.99804	±	0.00002
444		2	3.624E-02	0.9985	±	0.0010	0.99838	±	0.00002
445		3	3.526E-02	0.9989	±	0.0011	0.99754	±	0.00002
446		4	3.474E-02	0.9993	±	0.0012	0.99945	±	0.00002
447	Ist022	1	4.062E-02	0.9999	±	0.0010	1.00333	±	0.00002
448		2	4.060E-02	0.9994	±	0.0010	1.00323	±	0.00002
449		3	4.058E-02	0.9993	±	0.0010	1.00316	±	0.00002
450		4	4.070E-02	0.9994	±	0.0010	1.00344	±	0.00002
451	Ist023	1	3.972E-02	0.9963	±	0.0009	0.99939	±	0.00002
452		2	4.002E-02	0.9967	±	0.0009	0.99919	±	0.00002
453		3	3.999E-02	0.9967	±	0.0009	0.99893	±	0.00002
454		4	3.966E-02	0.9960	±	0.0009	0.99800	±	0.00002
455		5	3.964E-02	0.9959	±	0.0009	0.99785	±	0.00002
456		6	3.959E-02	0.9959	±	0.0009	0.99747	±	0.00002
457		7	3.960E-02	0.9966	±	0.0009	0.99795	±	0.00002
458		8	3.957E-02	0.9970	±	0.0009	0.99842	±	0.00002
459		9	3.973E-02	0.9977	±	0.0009	0.99937	±	0.00002
460	Ist024	1	3.985E-02	0.9975	±	0.0009	1.00000	±	0.00002
461		2	3.979E-02	0.9974	±	0.0009	1.00001	±	0.00002
462		3	3.977E-02	0.9977	±	0.0009	1.00034	±	0.00002

Nr.	Experiment	Konfiguration	EALF / eV	k_{eff}					
				Benchmark		CSAS5, 238 Gruppen			
463		4	3.977E-02	0.9978	±	0.0009	1.00042	±	0.00002
464		5	3.979E-02	0.9983	±	0.0009	1.00075	±	0.00002
465		6	3.982E-02	0.9981	±	0.0009	1.00062	±	0.00002
466		7	3.984E-02	0.9989	±	0.0009	1.00067	±	0.00002
467	lst025	1	3.966E-02	0.9965	±	0.0009	0.99814	±	0.00002
468		2	3.964E-02	0.9981	±	0.0009	0.99775	±	0.00002
469		3	3.961E-02	0.9976	±	0.0009	0.99757	±	0.00002
470		4	3.959E-02	0.9981	±	0.0009	0.99833	±	0.00002
471		5	3.961E-02	0.9984	±	0.0009	0.99943	±	0.00002
472		6	3.964E-02	0.9985	±	0.0009	0.99983	±	0.00002
473		7	3.969E-02	0.9985	±	0.0010	0.99982	±	0.00002
474	mct004	1	1.396E-01	1.0000	±	0.0046	0.99529	±	0.00002
475		2	1.390E-01	1.0000	±	0.0046	0.99629	±	0.00002
476		3	1.383E-01	1.0000	±	0.0046	0.99641	±	0.00002
477		4	1.154E-01	1.0000	±	0.0039	0.99588	±	0.00002
478		5	1.148E-01	1.0000	±	0.0039	0.99707	±	0.00002
479		6	1.138E-01	1.0000	±	0.0039	0.99739	±	0.00002
480		7	9.013E-02	1.0000	±	0.0040	1.00077	±	0.00002
481		8	8.974E-02	1.0000	±	0.0040	0.99770	±	0.00002
482		9	8.939E-02	1.0000	±	0.0040	0.99826	±	0.00002
483		10	7.778E-02	1.0000	±	0.0051	0.99783	±	0.00002
484		11	7.753E-02	1.0000	±	0.0051	0.99794	±	0.00002
485	mct005	1	3.735E-01	1.0008	±	0.0022	1.00130	±	0.00002
486		2	2.480E-01	1.0011	±	0.0026	0.99917	±	0.00002
487		3	1.710E-01	1.0016	±	0.0029	1.00627	±	0.00002
488		4	1.425E-01	1.0021	±	0.0028	1.00295	±	0.00002
489		5	1.059E-01	1.0026	±	0.0036	1.00576	±	0.00002
490		6	9.174E-02	1.0033	±	0.0042	1.00555	±	0.00002
491		7	8.750E-02	1.0035	±	0.0042	1.00728	±	0.00002

Nr.	Experiment	Konfiguration	EALF / eV	k_{eff}					
				Benchmark			CSAS5, 238 Gruppen		
492	mct006	1	3.576E-01	1.0016	±	0.0051	0.99622	±	0.00002
493		2	1.887E-01	1.0017	±	0.0036	1.00013	±	0.00002
494		3	1.376E-01	1.0026	±	0.0036	0.99647	±	0.00002
495		4	1.168E-01	1.0051	±	0.0044	1.00269	±	0.00002
496		5	9.571E-02	1.0040	±	0.0054	1.00323	±	0.00002
497		6	9.064E-02	1.0055	±	0.0051	1.00171	±	0.00002
498	mct007	1	1.895E-01	1.0023	±	0.0035	1.00335	±	0.00002
499		2	1.375E-01	1.0024	±	0.0039	0.99920	±	0.00002
500		3	1.160E-01	1.0036	±	0.0046	1.00078	±	0.00002
501		4	9.591E-02	1.0037	±	0.0057	1.00101	±	0.00002
502		5	9.084E-02	1.0044	±	0.0061	0.99912	±	0.00002
503	mct008	1	3.757E-01	0.9997	±	0.0032	0.99750	±	0.00002
504		2	1.909E-01	1.0008	±	0.0030	0.99848	±	0.00002
505		3	1.372E-01	1.0023	±	0.0038	0.99845	±	0.00002
506		4	1.161E-01	1.0015	±	0.0047	1.00138	±	0.00002
507		5	9.463E-02	1.0022	±	0.0056	1.00172	±	0.00002
508		6	8.971E-02	1.0028	±	0.0065	1.00129	±	0.00002
509	mct009	1	5.177E-01	1.0003	±	0.0054	0.99932	±	0.00002
510		2	2.946E-01	1.0020	±	0.0049	0.99582	±	0.00002
511		3	1.529E-01	1.0035	±	0.0050	0.99731	±	0.00002
512		4	1.154E-01	1.0046	±	0.0062	0.99637	±	0.00002
513		5	9.475E-02	1.0059	±	0.0074	0.99837	±	0.00002
514		6	9.053E-02	1.0067	±	0.0080	1.00040	±	0.00002
515	mmct004	1	2.048E-01	1.0000	±	0.0030	0.99629	±	0.00002

D Vergleich des Bias für Anwendungen mit und ohne Absorberplatten

Bei der Lagerung oder dem Transport von Brennelementen kommen oft Absorbermaterialien in Form von Absorberblechen oder -platten sowie Stahlbleche als Trägerstrukturen zum Einsatz. Für Anwendungsfälle mit frischem UO_2 -Brennstoff sind im ICSBEP eine Reihe von geeigneten Experimenten mit Absorberplatten bzw. Stahlbleche enthalten (vgl. Kap.4.2.1). Dagegen fehlen z. B. entsprechende Experimente für Anwendungsfälle mit bestrahltem Brennstoff. Zwar liegen mit den Experimenten der Gruppe MIX-COMP-THERM geeignete Experimente vor, die den bestrahlten Brennstoff repräsentieren, diese Experimente enthalten allerdings keine Absorberplatten oder Stahlbleche. Um dennoch einen möglichen Einfluss von Absorberplatten auf den Bias für Anwendungsfälle ohne entsprechende Experimente angeben zu können, wird hier deren Einfluss mit Hilfe der verfügbaren Experimente mit UO_2 -Brennstoff abgeleitet. Da üblicherweise borhaltige Materialien als Absorber genutzt werden, konzentriert sich die folgende Abschätzung auf diese Materialien.

Nach Kap. 4.2.1, Abb. 4.7 ist kein signifikanter Unterschied bezüglich des Bias beim Einsatz von verschiedenen borhaltigen Absorbermaterialien oder unboriertem Stahl zu beobachten. Dementsprechend werden auch hier diese Materialien zusammen betrachtet. Borhaltige Absorberplatten oder Stahlbleche liegen in den Experimenten LEU-COMP-THERM-009, -012, -013, -016, -034, -062 und -065 vor (vgl. Kap. 4.2.1). Als borhaltige Materialien kommen in diesen Experimenten borierter Stahl, Boral und Boraflex zum Einsatz. Mit Ausnahme von Experiment LEU-COMP-THERM-034 existieren im ICSBEP analoge experimentelle Konfigurationen ohne Absorberplatten. Diese Konfigurationen sind als Experimente LEU-COMP-THERM-001, -002, -003, -006, -010 im ICSBEP enthalten und stehen auch in Form von Nachrechnungen mit den SCALE-Sequenzen CSAS5 und TSUNAMI-3D-K5 für diese Arbeit zur Verfügung (vgl. Tab. 4.1). Zusätzlich enthalten auch die Experimente LEU-COMP-THERM-062 und -065 einzelne Konfigurationen ohne Absorber.

In Abb. D.1 sind die errechneten Neutronenmultiplikationsfaktoren k_{eff} der Experimente mit und ohne Absorberplatten zusammengestellt. Das Experiment LEU-COMP-THERM-034 wird dabei aufgrund der fehlenden analogen Konfigurationen ohne Absorber nicht berücksichtigt. Gleiches gilt für die Konfigurationen des Experiments LEU-COMP-THERM-010, welche Blei oder Uran als Reflektormaterial verwenden. Damit

sind insgesamt 62 Konfigurationen mit Absorberplatten und 68 Konfigurationen ohne Absorber in Abb. D.1 enthalten. Um Unterschiede im Neutronenspektrum der einzelnen Konfigurationen, z. B. aufgrund der eingesetzten Absorber, berücksichtigen zu können, erfolgt der Vergleich der errechneten k_{eff} -Werte in Abhängigkeit des Parameters EALF.

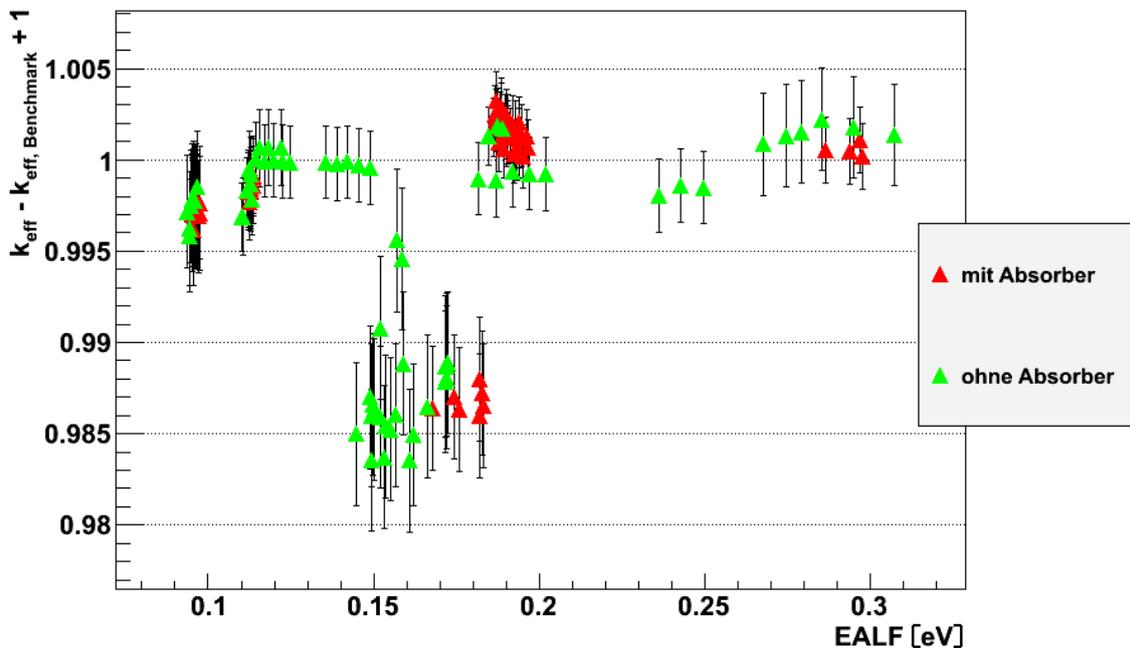


Abb. D.1 Vergleich der errechneten k_{eff} -Werte für Experimente mit und ohne borhaltige Absorberplatten oder Stahlbleche

Aus Abb. D.1 kann kein grundsätzlicher Unterschied zwischen Nachrechnungen mit und ohne Absorber abgeleitet werden. Selbst die größeren Abweichungen der errechneten k_{eff} -Werten von ihrem zu erwartenden Wert 1,0 des Experiment LEU-COMP-Therm-012 ($k_{\text{eff}} \approx 0,987$) werden von den analogen Konfigurationen ohne Absorberplatten, die im Experiments LEU-COMP-THERM-003 enthalten sind, reproduziert.

Für einen detaillierteren Vergleich werden in Abb. D.2 die jeweils gleiche Anzahl an Experimenten mit und ohne Absorber zur Bias-Bestimmung herangezogen. Insbesondere wurde vom Experiment LEU-COMP-THERM-003 nur die ersten sieben der insgesamt 23 Konfigurationen genutzt, damit die gleiche Anzahl an Konfigurationen wie für Experiment LEU-COMP-THERM-012 mit größerer Abweichung zwischen errechneten und erwarteten Multiplikationsfaktoren vorliegt. Anderenfalls könnte die Bias-Bestimmt

allein durch die unterschiedlichen Anzahlen der in den Experimenten LEU-COMP-THERM-003 und -012 vermessenen Konfigurationen beeinflusst werden⁹. Abb. D.2 fasst die jeweils 52 verwendeten Konfigurationen mit und ohne Absorberplatten sowie die mit USLSTATS daran angepassten Geraden und Toleranzlimits zusammen.

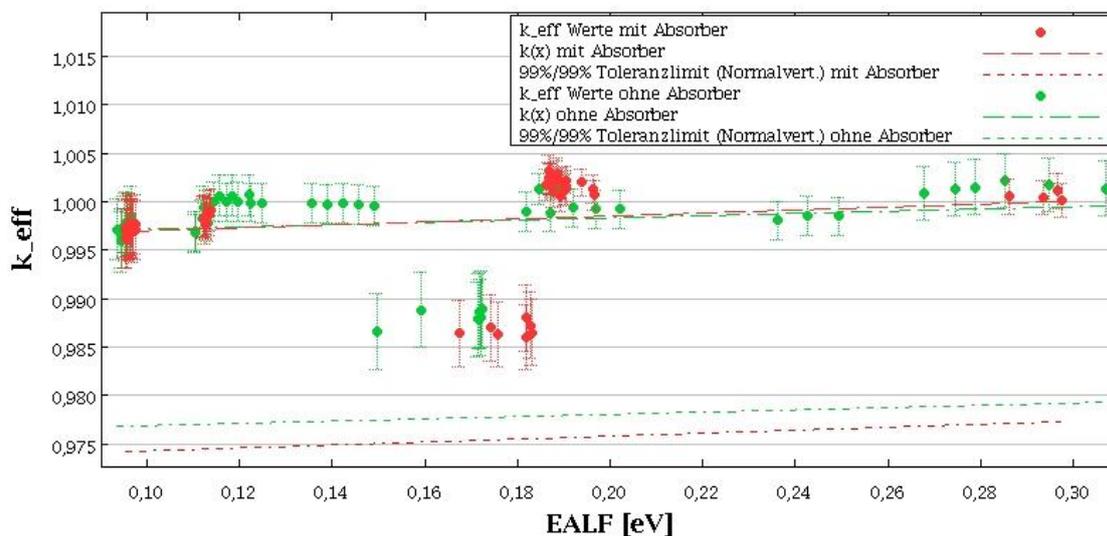


Abb. D.2 Vergleich des Bias und dessen Toleranzlimit für Experimente mit und ohne Absorberplatten

Der Vergleich der angepassten Geraden und Toleranzlimits zeigen, dass die Experimente mit und ohne Absorberplatten sehr ähnliche mittlere Bias-Werte in dem verfügbaren Bereich des Parameters EALF aufweisen. Die Experimente mit Absorberplatten zeigen allerdings eine etwas größere Streuung um die angepasste Gerade als die Experimente ohne Absorber, woraus sich letztlich ein für die Experimente mit Absorberplatten etwas geringeres Toleranzlimit ergibt. Der Unterschied zu dem Toleranzlimit der

⁹ Im Experiment LEU-COMP-THERM-003 des ICSBEP sind insgesamt 23 Konfigurationen ohne Absorber zusammengefasst, wohingegen das Experiment LEU-COMP-THERM-012 nur 7 Konfigurationen mit borhaltigen Absorbern enthält. Diese Zahlen ergeben sich aus der Anzahl der durchgeführten und im ICSBEP akzeptierten Messungen. Da alle Konfigurationen beider Experimente eine ähnlich große Abweichung zwischen errechneten und erwarteten k_{eff} -Werten zeigen, ist zu vermuten, dass auch weitere Konfigurationen mit Absorbern eine ähnlich große Abweichung aufweisen würden. Es ist also kein physikalischer Grund erkennbar, warum mehr Konfigurationen ohne Absorber eine größere Abweichung in k_{eff} aufweisen sollten als Konfigurationen mit Absorber. Würden nun anstelle von 7 Konfigurationen alle 23 Konfigurationen des Experiments LEU-COMP-THERM-003 verwendet, so würde sich für die Experimente ohne Absorber eine größere Standardabweichung ergeben. Diese wäre aber lediglich durch die zusätzliche Anzahl an Konfigurationen des Experiments LEU-COMP-THERM-003 und nicht durch einen physikalischen Grund bedingt.

Experimente ohne Absorber beträgt für EALF-Werte um 0,3 eV etwa -0,002. Dieser Unterschied kann damit als möglicher Einfluss der Absorberplatten auf den Bias bzw. als zusätzliche Unsicherheit interpretiert werden.

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

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

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

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

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

www.grs.de

ISBN 978-3-944161-16-7