

**Bereitstellung und
Weiterentwicklung von
Methoden, Daten und
Rechenmethoden
zu nuklearen
Sicherheitsanalysen:
2022 - 2025**

**Bereitstellung und
Weiterentwicklung von
Methoden, Daten und
Rechenmethoden
zu nuklearen
Sicherheitsanalysen:
2022 - 2025**

Abschlussbericht

Fabian Sommer
Thomas Eisenstecken
Robert Kilger
Alexander Kolbasseff

November 2025

Anmerkung:

Das diesem Bericht zugrunde liegende Eigenforschungsvorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Umwelt, Klimaschutz, Naturschutz und nukleare Sicherheit (BMUKN) unter dem Förderkennzeichen 4722E03240 durchgeführt.

Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt bei der GRS.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung der GRS wieder und muss nicht mit der Meinung des BMUKN übereinstimmen.

Deskriptoren

Actinoide, aktuelle Rechenverfahren, Handbuch zur Kritikalität, Handbuch zur Störfallanalyse, Kritikalitätssicherheit, Löslichkeitsmodelle, Periodische Sicherheitsüberprüfung PSÜ, Störfallanalysen, Uran-Molybdän, Uransilizid, Validierung

Kurzfassung

Der vorliegende Bericht beschreibt die im Rahmen des Vorhabens 4722E03240 durchgeführten Arbeiten an dem GRS „Handbuch zu Störfallanalysen für Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung“, sowie die fortgeführten Arbeiten zur Revision und Aktualisierung des GRS „Handbuch zur Kritikalität“, die sich hier auf Spaltstoffsysteme von Forschungsreaktoren fokussierten. Beschrieben wird auch die Überprüfung und Qualifikation eingesetzter Rechenverfahren, die aktive Teilnahme an einem OECD-NEA Benchmark sowie die Zusammenfassung der Ergebnisse der Verfolgung des Standes von Wissenschaft und Technik auf dem Gebiet der Rechenverfahren zu Kritikalitätssicherheitsanalysen. Die in früheren Vorhaben begonnene Literaturrecherche zu innovativen Brennstoffkonzepten wurde fortgeführt. Der Fokus lag zum einen auf der Reduzierung von radioaktiven Abfällen durch Partitionierungs- und Konversionsverfahren, zum anderen auf der Herstellung und Verarbeitung von nuklearen Brennstoffen, die sich für den Einsatz in Forschungsreaktoren eignen.

Abstract

This report describes the activities carried out within the framework of the project 4722E03240 on the GRS "Handbook on Accident Analysis for Nuclear Front and Back End Facilities", and the continuing work on the revision and updating of the GRS "Handbook on Criticality". Here the focus lies on fissile systems for the use in research reactors. Also described are the review and qualification of computational methods, the active participation in an OECD-NEA benchmark as well as a summary of the results of monitoring the state of art in science and technology in the field of computational methods for criticality safety analysis. The ongoing literature review on innovative fuel concepts is continued, which started in previous projects. The focus was, on the one hand, on the reduction of nuclear waste through methods of partitioning and conversion, and, on the other hand, on the production and processing of nuclear fuels suitable for use in research reactors.

Inhaltsverzeichnis

	Kurzfassung	I
	Abstract	III
1	Handbuch zur Störfallanalyse	1
2	Nukleare Sicherheit: Handbuch zur Kritikalität	3
2.1	Einfluss von Löslichkeitsmodellen auf kritische Parameterkurven.....	5
2.1.1	Allgemeine Betrachtungen zu Löslichkeiten und Löslichkeitsmodellen von Spaltstoffsystemen.....	5
2.1.2	Recherche zu Löslichkeiten und Löslichkeitsmodellen von spezifischen Spaltstoffsystemen	6
2.1.3	Nähere Betrachtung zu Uranylinitrat	9
2.1.4	Nähere Betrachtung zu Uranylfluorid	18
2.2	Kritische Parameterkurven von Actinoiden.....	20
2.2.1	Prüfung der vorhandenen Werte und der zugrundeliegenden Daten	22
2.2.2	Nachrechnung der Stoffsysteme	26
2.2.3	Überprüfung der neugerechneten Parameter durch Nachrechnung kritischer Experimente	34
2.2.4	Überprüfung der kritischen Parameter durch Kontrollrechnungen.....	40
2.2.5	Überprüfung der kritischen Parameter durch Berechnung der Unsicherheit aufgrund Unsicherheit in den nuklearen Daten.....	41
2.2.6	Vergleich der kritischen Parameter mit historischen Daten	46
2.2.7	Vergleich der kritischen Parameter mit aktuellen internationalen Werten.....	49
2.3	Kritische Parameterkurven von Uransilizid (U_3Si_2)	51
2.3.1	Berechnung der kritischen Parameterkurven	52
2.3.2	Überprüfung der kritischen Parameterkurven durch Berechnung der Unsicherheit aufgrund Unsicherheit in den nuklearen Daten.....	55
2.3.3	Validierung der kritischen Parameterkurven mittels Experimentnachrechnungen	58
2.4	Kritische Parameterkurven von Uran-Molybdän (U-Mo).....	61

2.4.1	Berechnung der kritischen Parameterkurven	62
2.4.2	Überprüfung der kritischen Parameterkurven durch Berechnung der Unsicherheit aufgrund Unsicherheit in den nuklearen Daten.....	66
2.4.3	Validierung der kritischen Parameterkurven mittels Experimentnachrechnungen	68
2.5	Elektronische Version des <i>Handbuch zur Kritikalität</i>	72
2.5.1	Erweiterung der graphische Benutzeroberfläche HBcritGUI.....	72
2.5.2	Weiterführende Dokumentation	76
3	Implementierung und Validierung moderner Rechenverfahren	77
3.1	Übersicht der verfügbaren Rechencodes von Kritikalität, Abbrand und Aktivierung.....	77
3.1.1	SCALE.....	78
3.1.2	MCNP	86
3.1.3	KRAKEN.....	90
3.1.4	<i>FISPACT-II</i>	96
3.1.5	Helios-2	102
3.1.6	CASMO	103
3.1.7	SNF	105
3.1.8	CRISTAL	106
3.1.9	MONK.....	107
3.1.10	ERANOS	107
3.1.11	OpenMC	109
3.1.12	Diverse Code-Pakete des Argonne National Laboratory	110
3.1.13	Codebewertungen	123
3.2	Nachrechnung kritischer Experimente zur Validierung der Rechensequenz CSAS5 von SCALE 6.3	133
3.2.1	Beschreibung der Experimente.....	135
3.2.2	Beschreibung der Rechenfälle	138
3.2.3	Vergleich der Rechnungen untereinander und mit experimentellen Werten.....	139
3.3	Analyse von SHIFT in SCALE 6.3.....	142

3.4	Analyse von TSUNAMI in SCALE 6.3 und Vergleich mit Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalysen ähnlicher Werkzeuge.....	149
3.4.1	Neuerungen von <i>TSUNAMI</i> in <i>SCALE 6.3</i>	150
3.4.2	Vergleich von TSUNAMI aus SCALE 6.3.2 mit TSUNAMI aus SCALE 6.2.3 und XSUSA.....	151
3.4.3	Analyse der in TSUNAMI-IP zur Verfügung stehenden Korrelationsgrößen	159
3.4.4	TSUNAMI-IP Beispielrechnungen zur Untersuchung der Neuerungen...	162
3.5	Rechenbenchmark zum Methodenvergleich bei der Bestimmung Kritikalität von Endlagerbehälter im Rahmen der SG 13 der WPNCs der OECD-NEA	167
3.5.1	Hintergrund.....	169
3.5.2	Problembeschreibung.....	169
3.5.3	Benchmark-Spezifikationen	171
3.5.4	Mathematisches Modell	175
3.5.5	Anwendung der Bias-Methode auf den Benchmark und Ergebnisse.....	178
4	Innovative Kernbrennstoffkonzepte	191
4.1	Reduzierung von radioaktiven Abfällen: Partitionierung und Transmutation, Small Modular Reactors und beschleunigergetriebene, unterkritische Systeme.....	191
4.1.1	Einleitung.....	191
4.1.2	Rezyklierung, Partitionierung und transmutatorische Verfahren.....	193
4.1.3	Beschleunigergetriebene Transmutationssysteme.....	202
4.1.4	Reaktorgetriebene Transmutationskonzepte.....	206
4.1.5	Homogene- und heterogene Transmutations-Konzepte.....	212
4.1.6	Demonstrations- und Erprobungsanlagen für Transmutation	213
4.1.7	Allgemeine Gefahren potenzieller Brennstoffe im Zusammenhang mit deren Aufbereitung	216
4.2	Herstellung und Verarbeitung von Uransilizid U_3Si_2	221
4.2.1	Einleitung.....	221
4.2.2	Uransilizid U_3Si_2 -Brennstoff in Kombination mit einem SiC-Hüllrohr für den Einsatz in Leichtwasser Reaktoren	223

4.2.3	Uransilizide als Brennstoff für Forschungsreaktoren	225
4.2.4	Kenndaten des U_3Si_2 Brennstoffmaterials und des eingesetzten Aluminiums	239
4.2.5	Brennstoff und Brennelement im Herstellungsprozess.....	244
4.2.6	Bestrahlungseigenschaften von Brennstoff und Brennelement	248
4.2.7	Mechanische Integrität von Brennelementen in Bezug auf Blasenbildung	249
4.2.8	U_3Si_2 -Brennstoff, Brennstoffhülle, Verarbeitungsmethoden mit Fokus Umrüstung von HEU auf LEU-Forschungsreaktoren / Baseline- Brennstoffherstellungsanlage (USA, PRO-X).....	251
4.2.9	Endlagerung	265
4.2.10	Sicherheitsrelevante Randbedingungen bei der Herstellung von Uransilizid	265
4.3	Herstellung und Verarbeitung von Uranmolybdän U-Mo	268
4.3.1	Einleitung.....	268
4.3.2	U-Mo-Brennstoff	268
4.3.3	Gefahrenpotentiale bei der Herstellung von U-Mo-Brennstoffen sowie bei der Materialverarbeitung	278
4.3.4	Materialbearbeitung und thermomechanische Verarbeitung	279
4.4	Sicherheit bei der Herstellung von Uran-Silizid und Uran-Molybdän Brennstoffen für Forschungsreaktoren, Zusammenfassung.....	280
5	Zusammenfassung	281
	Literaturverzeichnis.....	283
	Abbildungsverzeichnis.....	305
	Tabellenverzeichnis.....	311

1 Handbuch zur Störfallanalyse

Im Zuge dieses Eigenforschungsvorhabens wurde das *Handbuch zur Störfallanalyse von nuklearen Ver- und Entsorgungseinrichtungen* bearbeitet und erweitert. Das Handbuch wurde vornehmlich mit dem Ziel erstellt, den in Behörden oder Forschungseinrichtungen tätigen und mit Störfallanalysen befassten Personen Informationen an die Hand zu geben, die bei der Planung, der Erstellung, dem Betrieb und dem Rückbau von Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung eine zutreffende und rasche Beurteilung von Störfällen erlauben.

Der sinnvolle Gebrauch der im Handbuch vorliegenden Informationen erfordert ein grundsätzliches Verständnis der Störfallproblematik und der Terminologie der nuklearen Sicherheit. In Teil A, *Grundlagen der Störfallanalyse*, werden daher zunächst die wichtigsten Begriffe und Grundlagen eingeführt und erläutert, und der gesetzliche Rahmen gesteckt /GRS 19a/. In Teil B, *Physikalisch-chemische Grundlagen der Störfallanalyse*, werden die Prozesse erläutert, die bei einem Störfall auftreten können /GRS 19b/. In Teil C, *Auswertung der Betriebserfahrung von Vorkommnissen*, werden die bisherig aufgetretenen nationalen wie auch internationalen Vorkommnisse statistisch ausgewertet /GRS 19c/. In Teil D, *Exemplarische Anwendung der Störfallanalyse auf deutsche Einrichtungen der nuklearen Ver- und Entsorgung*, werden die verschiedenen Aspekte der Störfallanalyse exemplarisch auf zwei möglichst unterschiedliche generische Störfälle angewendet /GES 25a/.

Die konkreten Arbeiten umfassen zum einen den Teil A, *Grundlagen der Störfallanalyse*, des Handbuchs, der um drei zusätzliche Anhänge erweitert wird. Die Arbeiten aus dem vorhergehenden Eigenforschungsvorhaben 4719E03320, die auf das Kapitel 3, *Methodik der Störfallanalyse*, Bezug nehmen, werden weitergeführt und ergänzt. In dieser Arbeit wurde die Störfallanalyse um periodische Sicherheitsüberprüfungen (PSÜen) für Einrichtungen zur Kernbrennstoffversorgung im Sinne von § 19a (3) und (4) AtG erweitert, Anhang A von Teil A des *Handbuch zur Störfallanalyse*.

Diese Arbeiten wurden für die aktuelle Veröffentlichung von Teil A des Handbuchs fortgesetzt /GES 25b/. Dabei wurde recherchiert, wie andere Länder (EU- und nicht-EU-Mitgliedsstaaten) die EU-Richtlinie 2014/87/EURATOM /REU 14/ in nationales Recht umgesetzt haben, und welche Erkenntnisse aus den jeweiligen Umsetzungen für die deutsche Situation gezogen werden können. Die Erkenntnisse sind im *Handbuch zur Störfallanalyse* in Anhang B dokumentiert.

Anschließend wurden die ersten Hauptkapitel des Teil A des *Handbuch zur Störfallanalyse* mit internationalen Werken verglichen und die Übertragbarkeit der darin enthaltenen Informationen auf deutsche Anlagen überprüft. Dabei wurden relevante Inhalte im *Handbuch zur Störfallanalyse* in Anhang C dokumentiert. Die Anwendbarkeit der ermittelten Informationen für Teil D des Handbuchs steht dabei im Vordergrund.

Außerdem wurden die Arbeiten an Teil D, *Exemplarische Anwendung der Störfallanalyse auf Einrichtungen der nuklearen Ver- und Entsorgung*, des Handbuchs fortgeführt. In diesem Kapitel werden die verschiedenen Aspekte der Störfallanalyse exemplarisch auf zwei möglichst unterschiedliche Teilprozesse und Schadensszenarien der Brennelementfertigung angewendet. In dem Eigenforschungsvorhaben 4719E03320 wurde der Störfall eines Brandes in einer Tablettenschleifmaschine behandelt, der in Kapitel 2 von /GES 25a/ dokumentiert ist. Die durchgeführten Analysen betreffen den Hauptprozess *Tablettenherstellung* und insbesondere die Konfektionierung der Brennstofftabletten auf ihr Sollmaß mittels eines materialabtragenden Schleifprozesses. Die dort zusätzlich vorhandene Systemtechnik hat die Aufgabe eine weitgehende und frühzeitige Eliminierung von möglichen Schleifstaub aus dem allgemeinen Abluftstrom, d. h. über eine primäre Filterstrecke, zu bewältigen. Durch einen Schaden am ölgeschmierten Lager der Schleifmaschine, kommt es in der Folge zu einem Ölbrand. Der bei der Entzündung freigesetzte Druckstoß verursacht eine Teilzerstörung der rauminternen primären Filterstufe.

Als weiteres Beispiel wurde das Thema Uranhexafluorid gewählt, konkreter die Freisetzung von UF_6 mit einer möglichen gasförmigen Freisetzung. Das maximale Gefahrenpotential eines 30B-Behälters gefüllt mit Uranhexafluorid besteht im erhitzten Zustand. Bei Normaldruck und einer Temperatur von $56,5\text{ °C}$ geht Uranhexafluorid durch Sublimation direkt vom festen in den gasförmigen Aggregatzustand über. Auch reagiert UF_6 intensiv mit Wasser, d. h. für eine Reaktion reicht im Falle einer Freisetzung an die Atmosphäre in der Regel die vorhandene Luftfeuchtigkeit aus. Die Entleerung des Zylinders in der Brennstofffabrik erfolgt innerhalb eines Aufheiz-Ausdampf-Autoklavs, der gleichzeitig als zweite Sicherheitsbarriere dient. Im hier konstruierten Beispiel wird durch fehlerhafte Leittechnikwerte ein angefangener Aufheizprozess abgebrochen. Zur Unterstützung eines schnelleren Abkühlprozesses wird die Autoklaventür im heißen Zustand geöffnet und der 30B-Behälter bewegt. Dabei kommt es in diesem Szenario durch einen Fremdkörper zu einer Lochbildung am UF_6 -Behälter mit einem Ausdampfen in die Betriebshalle. Die Beschreibung und Analyse der generischen Anlage und der exemplarischen Störfalluntersuchung sind in Kapitel 3 von /GES 25a/ dokumentiert.

2 Nukleare Sicherheit: Handbuch zur Kritikalität

Das Handbuch zur Kritikalität, das seit den 1970er Jahren von der GRS gepflegt und veröffentlicht wird, gliedert sich aktuell in zwei Bände; die früheren Bände II und III wurden im Zuge der letzten Veröffentlichung 2015 in Band 2 zusammengefasst. In Band 1 /GRS 15/ sind zahlreiche mit Kritikalität in Zusammenhang stehende Themengebiete dargelegt. Neben den Grundlagen der Kritikalität umfassen diese u. a. experimentelle Aufbauten, Rechenverfahren, Neutronenwechselwirkungen und nukleare Unfälle. In den beiden Teilen von Band 2 sind eine Vielzahl von berechneten kritischen und weiteren relevanten Parameterkurven und Tabellen für verschiedene Spaltstoffsysteme zusammengefasst, die jeweils die kritischen Werte des Systems in Abhängigkeit der Dichte des Spaltstoffs zeigen. Dabei werden zumeist das kritische Volumen und die kritische Masse einer vollständig reflektierten Kugel, die kritische Schichtdicke einer unendlichen ausgedehnten Platte und der Radius eines unendlich langen Zylinders betrachtet. Diese Kurven sind meist für mehrere Anreicherungen und teilweise für unterschiedliche Konfigurationen und Stoffmischungen berechnet.

In Teil 1 von Band 2 sind alle Systeme gesammelt, die ^{235}U als Spaltstoff besitzen /GRS 19d/. Dies beinhaltet auch einige Systeme, in denen zusätzlich Thorium enthalten ist. In Teil 2 von Band 2 werden kritische Systeme mit anderen Spaltstoffen behandelt, was i. W. Plutonium, ^{233}U , Mischungen aus Uran und Plutonium, bzw. Mischungen aus Plutonium mit Thorium beinhaltet /GRS 19e/. In Zuge dieser Veröffentlichungen erfolgte der Textsatz in LaTeX2 ϵ /GOO 94/, /KOP 00/ zur Erzeugung von Dateien im PDF-Format. Zahlreiche Datenblätter, die aus älteren Ausgaben des Handbuchs übernommen und nicht ersetzt wurden und die bislang nur analog auf Papier bzw. als gescanntes PDF vorlagen, wurden mit Hilfe der freien Software *Engauge Digitizer* /MIT 18/ aus den alten Abbildungen digitalisiert, neu gezeichnet und ebenfalls in die Datensammlung übernommen.

Im Folgenden wird in Kapitel 2.1 die Revision und Aktualisierung von kritischen Parameterkurven von Urandioxid-Thoriumdioxid und Plutonium-(IV)-Oxalat beschrieben. In Kapitel 2.2 werden die durchgeführten Arbeiten zur Validierung der neugerechneten Parameterkurven präsentiert. Kapitel 2.4.2 gibt einen Überblick über die Arbeiten zur elektronischen Version des *Handbuch zur Kritikalität*.

Die im Handbuch zur Kritikalität gesammelten kritischen Parameterkurven (Kugelvolumen, und -masse, Radius eines unendlich ausgedehnten Zylinders und Dicke einer unendlich ausgedehnten Schicht) stützen sich für einige Materialien immer noch auf Berechnungen aus den 1970er Jahren. Die Relevanz dieser Stoffe und der mit ihnen verbundenen Kritikalitätssicherheitsparameter für die nukleare Sicherheit ist nach wie vor gegeben, da sie international bis heute in verschiedenen Anlagen verwendet werden. Dies zeigt beispielsweise ein Vorkommnis vom 13.07.2016 in der US-amerikanischen Brennelementfabrik Columbia, bei dem es zu einer unerwarteten Akkumulation von Spaltstoff in einem Wäscher während der Konversion von Kernbrennstoff kam; Kritikalität wurde hier nicht erreicht. Zur Bewertung derartiger Vorkommnisse müssen die relevanten bestehenden, insbesondere älteren Daten immer wieder überprüft, und falls sie überholt und gegenüber neueren Erkenntnissen nicht mehr konservativ sind, neu berechnet werden, um den aktuellen Stand von Wissenschaft und Technik wiederzugeben. Andernfalls können die bestehenden Daten weiterverwendet werden.

In diesem Eigenforschungsvorhaben wurde zunächst der Einfluss von Löslichkeiten von nuklearen Brennstoffen auf die Erstellung von kritischen Parameterkurven untersucht, siehe Kapitel 2.1.

Außerdem wurden für die folgenden Stoffzusammensetzungen die kritischen Parameter, bzw. -kurven überprüft, nachgerechnet und mit den ursprünglichen Daten verglichen. Die historischen Daten wurden in diesen Fällen im Handbuch zur Kritikalität durch die neu berechneten Daten ersetzt. Es wurden folgende Stoffzusammensetzungen betrachtet:

- Zahlreiche höhere Actinoide, siehe Kapitel 2.2
- Uransilizid, siehe Kapitel 2.3
- Uran-Molybdän, siehe Kapitel 2.4

Die Arbeiten zur Weiterentwicklung, Erweiterung und weiterführende Dokumentation des Softwaretools HBcrit sind in Kapitel 2.5 präsentiert.

2.1 Einfluss von Löslichkeitsmodellen auf kritische Parameterkurven

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der Recherchen und Arbeiten zu dem Einfluss von Löslichkeitsmodellen auf kritische Parameterkurven beschrieben. Dazu wird zu relevanten Spaltstoffsyste­men in Wasserlösung recherchiert, ob geeignete Löslichkeitsmodelle zur Verfügung stehen, bzw. ob ein Effekt dieser Löslichkeiten auf die Kritikalität der idealisierten Systeme zu erwarten ist, wie z. B. Uranyl­nitrat, Uransilizid oder Uranmolybdän. Bei den folgenden Berechnungen liegt der Fokus auf Löslichkeitsgrenzen und Korngrößen eventuell ausfallender Feststoffe.

In Kapitel 2.1.1 werden zunächst einige allgemeine Betrachtungen zu Löslichkeiten und Löslichkeitsmodellen von Spaltstoffsyste­men dokumentiert. In Kapitel 2.1.2 werden die Ergebnisse der Recherchen zu Löslichkeiten von spezifischen Spaltstoffsyste­men zusammengefasst. In Kapitel 2.1.3 werden die Erkenntnisse zu Lösungseffekte von Uranyl­nitrat dokumentiert. In Kapitel 2.1.4 wird auf Lösungseffekte von Uranylfluorid eingegangen.

2.1.1 Allgemeine Betrachtungen zu Löslichkeiten und Löslichkeitsmodellen von Spaltstoffsyste­men

Lösungseffekte können die Spaltstoffdichte verändern. Dieses Phänomen wird auch als Volumenkontraktion bezeichnet. Diese ist bspw. wie folgt zu verstehen: 1 cm³ Spaltstoff gemischt mit 100 cm³ Wasser ergibt nicht eine Mischung mit 101 cm³ Volumen, sondern eine Lösung von 100,8 cm³. Das heißt, die Gesamtdichte entspricht nicht der Summe der gewichteten Einzeldichten.

Während der Recherche konnte keine allgemeingültige Formel für die Berechnung der Gesamtdichte idealisierter Systeme aus Spaltstoff und Wasser in Abhängigkeit des Spaltstoffanteils sowie der Löslichkeit eines Spaltstoffes gefunden werden. Es ist anzunehmen, dass es eine solche allgemeingültige Formel nicht gibt, da einerseits die Löslichkeiten der Stoffsysteme verschieden bzw. nicht bekannt sind, sowie keine bzw. unzureichende Erkenntnisse über eventuelle Ausfällungen vorliegen. Letzteres ist entweder nicht untersucht oder nicht dokumentiert.

In den wenigen Spaltstoffsystemen mit hoher Löslichkeit in Lösung, meist Wasser, könnten relevante Änderungen eintreten. In den meisten konventionellen Spaltstoffsystemen wird ein eher vernachlässigbar geringer Effekt erwartet, da Spaltstoffe grundsätzlich schwer löslich bis unlöslich sind.

Bei vielen Berechnungen der Kritikalitätskurven wurde bisher, wie international bei solchen Berechnungen üblich, die Methode der sogenannten Restwasserauffüllung verwendet. Dabei wird der Volumenanteil der untersuchten Spaltstoffverbindung (z. B. Urandioxid) variiert und das restliche Volumen als reines Wasser angenommen. Aus dem Volumenanteil der Spaltstoffverbindung lässt sich die anteilige Dichte und schlussendlich die Konzentration des Spaltstoffs (z. B. Uran, Plutonium, Thorium) berechnen. Diese Methode gilt als sinnvolle Näherung für Lösungen insbesondere bei niedrigen Konzentrationen (mittlere Dichte = gewichtetes Mittel der Einzeldichten). Allerdings werden dabei Löslichkeitseffekte der Spaltstoffverbindung vernachlässigt. Die Methode der Restwasserauffüllung ist für in Wasser schwerlösliche Spaltstoffverbindungen, wie z. B. das Urandioxid, unmittelbar gültig, da deren Löslichkeitseffekte vernachlässigbar sind. Bei Spaltstoffverbindungen mit einer endlichen Löslichkeit, für die Löslichkeitseffekte von Relevanz sein können, gilt diese Näherung gerade bei hohen Konzentrationen aufgrund der hier eintretenden Volumenkontraktion oft nicht mehr. Zusätzlich entsteht bei Erreichen der Löslichkeitsgrenze ein heterogenes System aus einer spaltstoffhaltigen Lösung und einem spaltstoffhaltigen kristallinen Feststoff.

2.1.2 Recherche zu Löslichkeiten und Löslichkeitsmodellen von spezifischen Spaltstoffsystemen

In verifizierten Datenbanken gibt es Modelldaten für einige Uran- und Plutoniumverbindungen, z. B. in der THEREDA-Datenbank /ALT 08/. Darin finden sich insbesondere Daten für metallisches Uran und Plutonium sowie für Uran und Plutonium-Oxide.

Metallische U-, Pu-, UO_2 -, PuO_2 -Verbindungen in wässrigen Lösungen, u. a. mit löslichkeitsbestimmender Di-Uranat-Festphase, sind allesamt gering löslich bis unlöslich, Uran-Löslichkeiten zumeist im Bereich von 10^{-6} bis 10^{-8} mol/kgH₂O vor. Einen großen Einfluss auf die Löslichkeiten haben eh-pH-Bedingungen und Stoffkomponenten in Lösung bzw. Wasser (Verunreinigungen), selbst in kleinsten Konzentrationen, z. B. durch Bildung von Komplexen. Für Pu-Verbindungen ist Disproportionierung des Plutoniums ein weiterer bedeutsamer Effekt. Unter Disproportionierung versteht man eine spezielle Redoxreaktion, bei der ein Element gleichzeitig oxidiert und reduziert wird. Umfangreiche

Kenntnisse über Löslichkeiten von U- und Pu-Verbindungen in verschiedenen Lösungssystemen und über elementspezifische Löslichkeitsmodelle sowie zu Festphasen durch Ausfällungen bestehen v. a. am KIT Karlsruhe, insbesondere dem Institut für Nukleare Entsorgung (INE). Wie bereits erwähnt, ist aufgrund der geringen Löslichkeit kein signifikanter Einfluss bei der Berechnung von kritischen Kurven zu erwarten.

Mit THEREDA /ALT 08/ besteht die Möglichkeit, Löslichkeitsgrenzen für ausgewählte Stoffsysteme zu berechnen. Daten zur Korngröße von ausgefallenen Feststoffen liegen in dieser Datenbank nicht vor.

Es wurden weiter stark idealisierte Spaltstoff-Wasser-Systeme (ohne Verunreinigungen) hinsichtlich ihrer Löslichkeit, bzw. Löslichkeitsdaten betrachtet. Grundsätzlich sind die meisten U- und Pu-Verbindungen in den unten genannten Spaltstoffsystemen gering löslich bis unlöslich. Die einzigen Ausnahmen dazu bilden Uranyl Nitrat und Uranylfluorid.

Es folgt eine Auflistung aller recherchierter Systeme mit zusätzlichen Informationen:

- Uranmetall (Dichte: $18,9 \text{ g/cm}^3$)
Quasi unlöslich in Wasser; als wassergefährdend eingestuft, oxidiert bei Feuchte und entsprechendem Redox-Milieu schnell und intensiv.
- UO_2 (Dichte: $10,96 \text{ g/cm}^3$)
Quasi unlöslich in Wasser; als wassergefährdend eingestuft.
- Uranylfluorid
Leicht löslich, leicht flüchtig; entsteht als Zwischenprodukt bei der Konversion von Uranhexafluorid UF_6 zu Urandioxid UO_2 , sowie bei Freisetzungsfällen mit UF_6 bei Kontakt mit Wasser (Luftfeuchtigkeit).
- Uranyl Nitrat: $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$
Löslich mit einer hohen Löslichkeit in Wasser von 550 g/l ; kommt im PUREX-Prozess vor /IFA 22/.
- Ammoniumuranylcarbonat (AUC): $(\text{NH}_4)_4\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3$
Quasi unlöslich, Fällungsprodukt bei chemischer Behandlung von Uranyl Nitrat mit Ammoniumdicarbonat (ADC).
- Ammoniumdiuranat (ADU): $(\text{NH}_4)_2\text{U}_2\text{O}_7$ (Dichte: $4,97 \text{ g/cm}^3$)
Schwer löslich bis unlöslich, siehe Di-Uranate; ein möglicher Bestandteil von Yellowcake.

- Uran(VI)-Oxid: UO_3 (Dichte: $8,45 \text{ g/cm}^3$)
Quasi unlöslich; als wassergefährdend eingestuft.
- Uransilizid: U_3Si_2 (Dichte: $12,2 \text{ g/cm}^3$)
Unlöslich, Schwermetall-Legierung.
- Uran-Molybdän: U-Mo (Dichte: $17,3 \text{ g/cm}^3$)
Unlöslich, Schwermetall-Legierung, typischerweise 10 Gew.% Molybdän.
- Plutonium-Metall (Dichte: $19,7 \text{ g/cm}^3$)
Quasi unlöslich in Wasser; als wassergefährdend eingestuft, oxidiert bei Feuchte und entsprechendem Redox-Milieu schnell und intensiv.
- PuO_2 (Dichte: $11,46 \text{ g/cm}^3$)
Quasi unlöslich in Wasser; wird als wassergefährdend eingestuft.
- Plutoniumkarbid: PuC (Dichte: $13,62 \text{ g/cm}^3$)
Unlöslich, Schwermetall-Legierung.
- Plutonium(IV)-Oxalate: $\text{Pu}(\text{C}_2\text{O}_4)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, bzw. $\text{Pu}(\text{C}_2\text{O}_4)_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$
(Dichte: $3,05 \text{ g/cm}^3$)
Schwer löslich; Oxalate sind Komplexbildner für Pu-Verbindungen und erhöhen die Löslichkeit, noch keine stoffspezifischen Modelldaten in THEREDA.
- Plutoniumnitrat: $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ (Dichte: $2,90 \text{ g/cm}^3$)
Leicht löslich, Pu wird chemisch mit Salpetersäure aufgeschlossen.
- Plutonylnitrat: $\text{PuO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (Dichte: $2,90 \text{ g/cm}^3$)
Löslich, wird im PUREX-Prozess verwendet.
- Ammoniumplutonylcarbonat (APuC): $(\text{NH}_4)_4\text{PuO}_2(\text{CO}_3)_3$ (Dichte: $2,78 \text{ g/cm}^3$)
Quasi unlöslich, Fällungsprodukt bei chemischer Behandlung von Plutonylnitrat mit Ammoniumdicarbonat.

In der recherchierten Literatur lassen sich erste Erkenntnisse zu Löslichkeiten von Uran-Dispersionsbrennstoffen in Matrixmaterial Aluminium, wie z. B. Uransilizid (U_3Si_2), finden. Inwieweit aus diesen ersten Erkenntnissen Löslichkeiten und Löslichkeitsmodelle abgeleitet werden können, konnte im Rahmen dieser Arbeit nicht ermittelt werden. In verifizierten Datenbanken sind noch keine Daten zu diesen Dispersionsbrennstoffen vorhanden, weshalb eine rechnerische Behandlung zum aktuellen Zeitpunkt nicht umsetzbar ist.

2.1.3 Nähere Betrachtung zu Uranylнитrat

Ein Spaltstoff, bei dem es zu relevanten Lösungseffekten kommt, ist Uranylнитrat mit der Summenformel $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$. Dafür wird in /ALT 08/ mit 550 g/l eine hohe Löslichkeit in Wasser angegeben. In dem *Latec workbench* aus dem französischen Codepaket *CRISTAL V2* /ASNR 24/, das unter anderem für Kritikalitätsrechnungen eingesetzt werden kann, ist eine Dichtere relation für die Lösung von Uranylнитrat in Wasser implementiert. Diese sind als Polynom sechster Ordnung definiert, wobei für drei unterschiedliche Moderationsbereiche H/U unterschiedliche Koeffizienten definiert sind. Diese Moderationsbereiche sind bestimmt durch die Intervalle $H/U \in [12,00002, 40]$, $H/U \in]40, 120[$ und $H/U \in [120, 600]$.

In Abb. 2.1 sind die Verläufe von ρ_U in Abhängigkeit des Moderationsverhältnisses H/U für die Dichteformel nach CRISTAL V2 (orange) und für die traditionell verwendete Methode der Restwasserauffüllung (blau) aufgetragen.

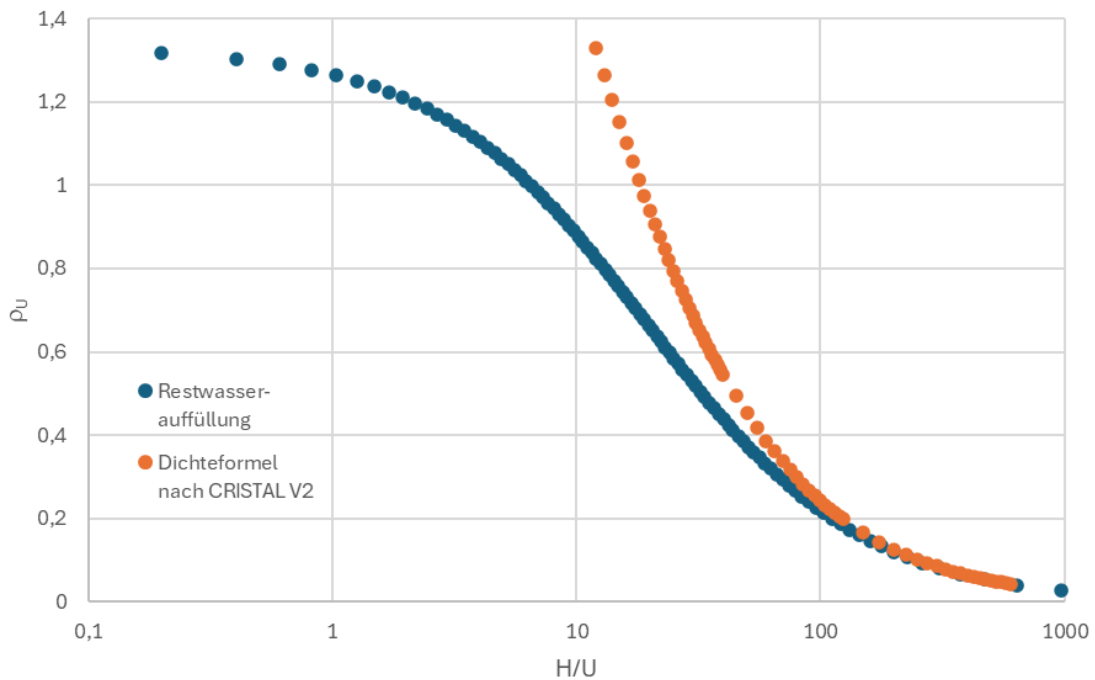


Abb. 2.1 Urandichte ρ_U in Abhängigkeit des Moderationsverhältnisses H/U Uranyl-nitrat

Aus diesem Verlauf lassen sich diverse Erkenntnisse ziehen. Bei hohen Werten von H/U, also bei hoher Verdünnung, bzw. niedriger Urandichte in der Lösung, stimmen die Dichteformel und die Restwasserauffüllung überein. Die mögliche maximale Urandichte ρ_U ($1,33 \text{ g/cm}^3$) ändert sich bei Verwendung der Dichteformel nicht, nur das Moderationsverhältnis H/U und damit der Wassergehalt in der Lösung bei vorgegebener Urandichte. Bei einem Moderationsverhältnis von H/U = 12,0 ist die Differenz der Urandichte ρ_U $0,492 \text{ g/cm}^3$, bzw. 492 g/l . Dies liegt nahe an dem in in /ALT 08/ dokumentierten Wert für die Löslichkeit in Wasser von 550 g/l .

Für Uranylнитrat wurden die kritischen Parameterkurven für die kritische Kugelmasse, das kritische Kugelvolumen, die kritische Schichtdicke, der Durchmesser eines unendlich ausgedehnten Zylinders und die kritische Dicke einer unendliche ausgedehnten Schicht unter Verwendung der Dichterelation nach CRISTAL V2 für die Anreicherungen 5 Gew.% und 10 Gew.% ^{235}U berechnet und mit den in 2018 durchgeführten Rechnungen mit Restwasserauffüllung verglichen, die im Handbuch zur Kritikalität, Band 2, Teil 1 /GRS 19d/ dokumentiert sind. Für die Rechnungen wurde jeweils der Code XSDRN der Steuersequenz CSAS1 aus dem Programmsystem SCALE 6.2 im „search“-Modus verwendet /REA 17/. Zur Berechnung wurden die nukleare Wirkungsquerschnittsdaten aus der 252-Energiegruppen ENDF/B-VII /CHA 11/ verwendet.

Diese Vergleiche sind in Abb. 2.2 bis Abb. 2.5 gezeigt. Darin sind jeweils die Kurven für 5 Gew.% und 10 Gew.% in blau und grün angetragen. Die gestrichelten Linien zeigen jeweils die Daten für die Rechnungen mit Restwasserauffüllung, während die gepunkteten Linien die Rechnungen mit der Dichterelation nach CRISTAL V2 zeigen. Zusätzlich ist als durchgezogene Linie die relative Abweichung zwischen den Kurven gezeigt, zugehörig zu der zweiten Skala auf der rechten Seite.

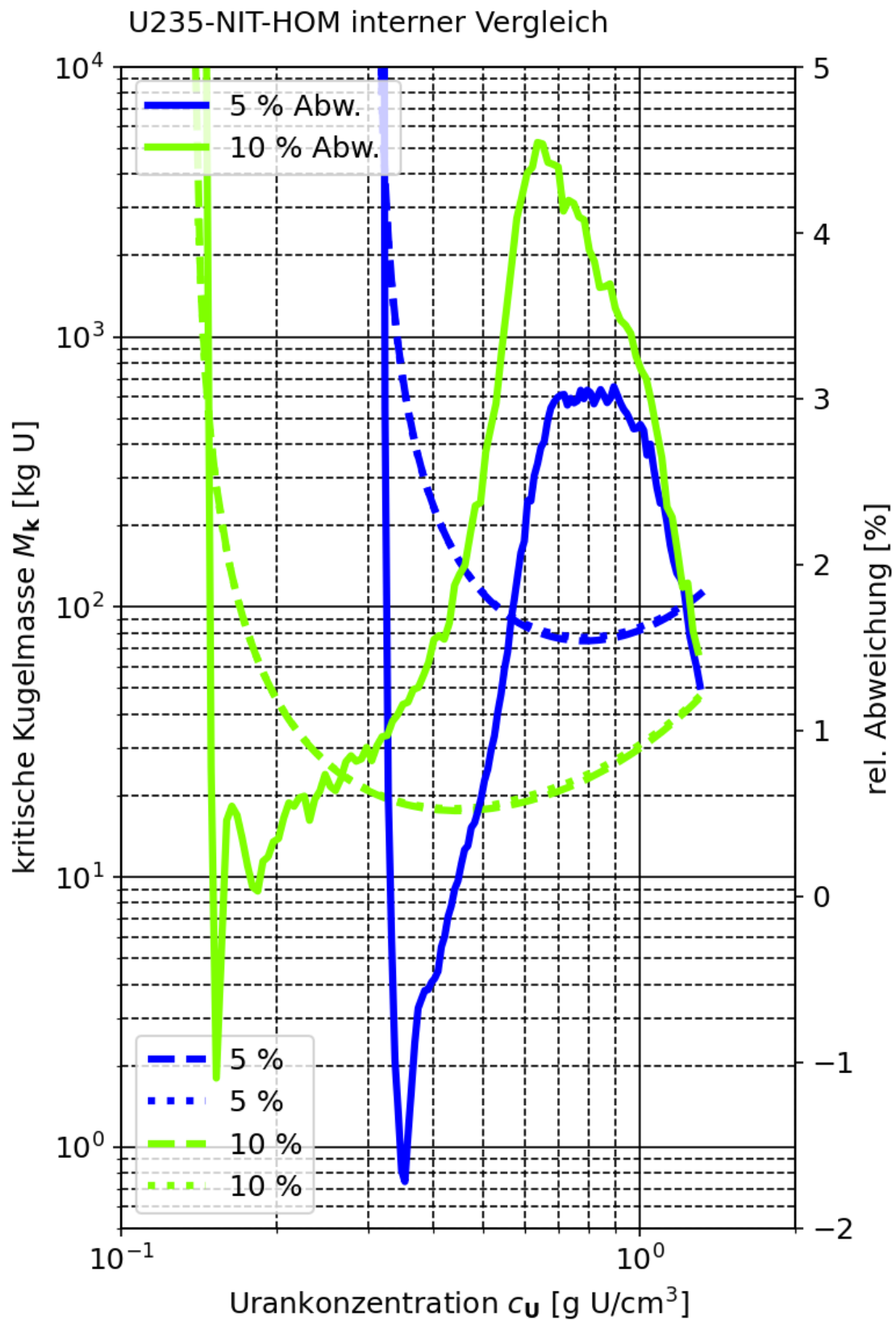


Abb. 2.2 Kritische Kugelmasse von Uranylнитrat-Wasser-Systemen. Vergleich der Rechnungen mit klassischer Volumenaddition und unter Verwendung der Dichteformel nach CRISTAL V2

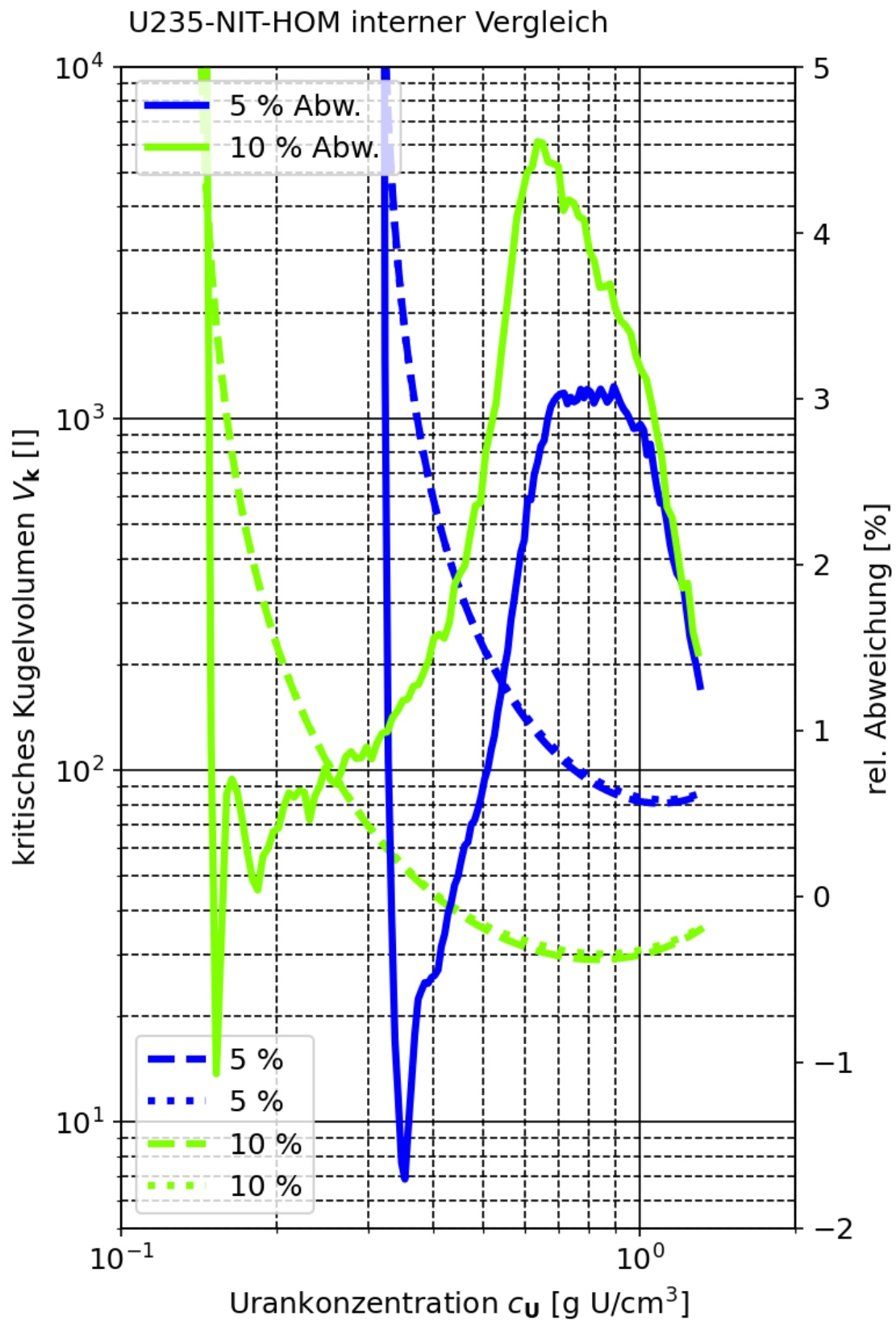


Abb. 2.3 Kritisches Kugelvolumen von Uranylinitrat-Wasser-Systemen. Vergleich der Rechnungen mit klassischer Volumenaddition und unter Verwendung der Dichteformel nach CRISTAL V2

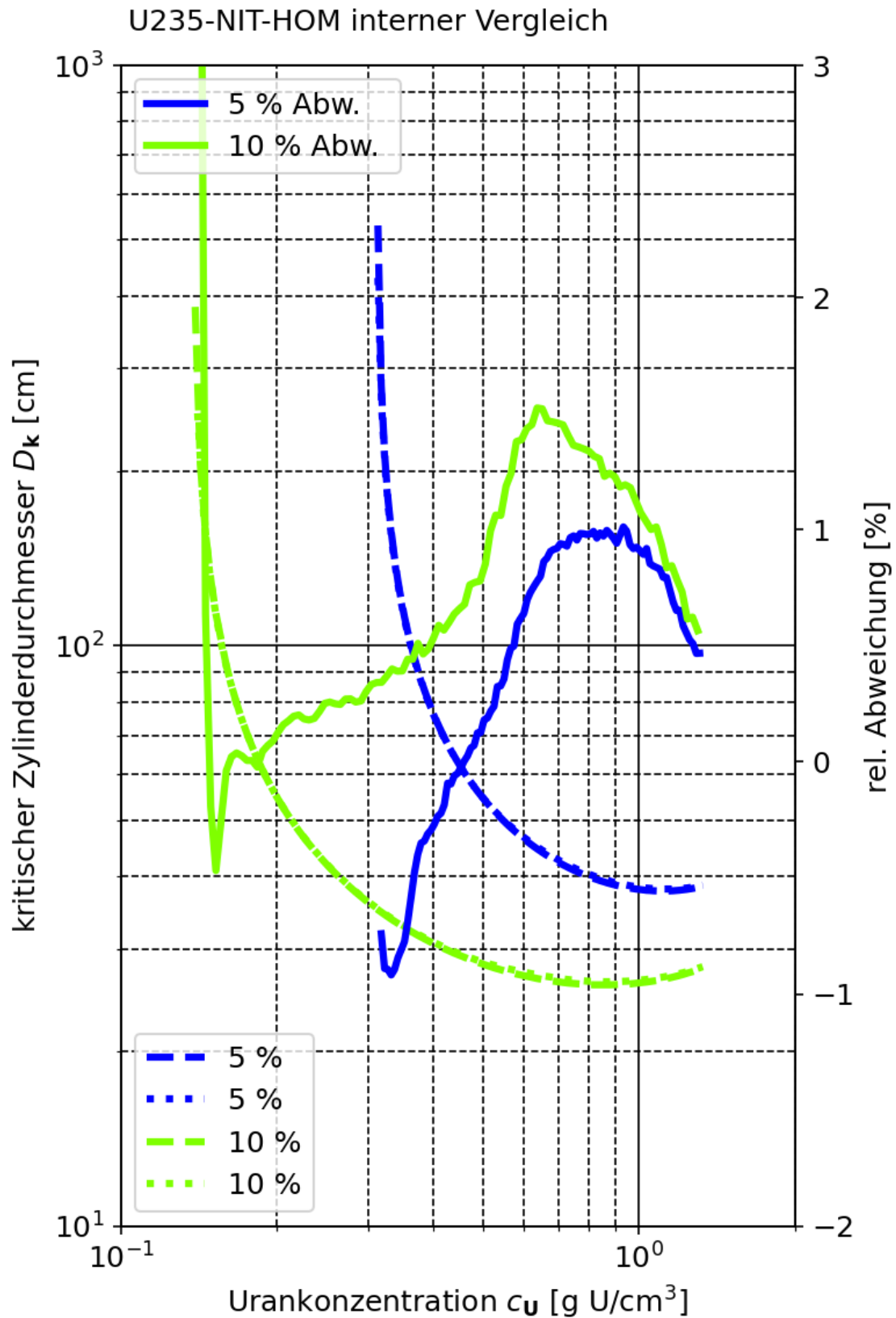


Abb. 2.4 Kritischer Zylinderdurchmesser von Uranylinitrat-Wasser-Systemen. Vergleich der Rechnungen mit klassischer Volumenaddition und unter Verwendung der Dichteformel nach CRISTAL V2

U235-NIT-HOM interner Vergleich

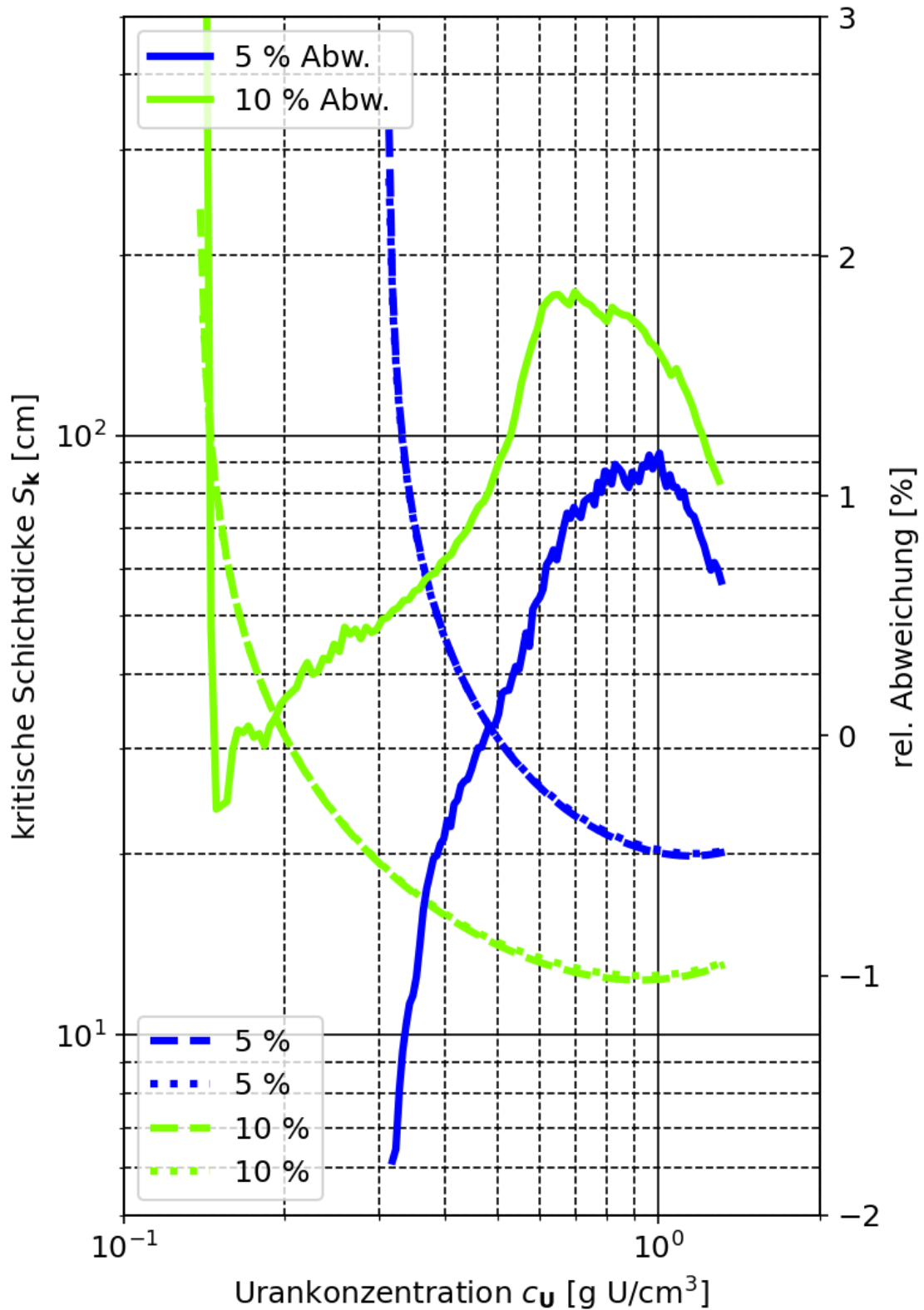


Abb. 2.5 Kritische Schichtdicke von Uranylнитrat-Wasser-Systemen. Vergleich der Rechnungen mit klassischer Volumenaddition und unter Verwendung der Dichteformel nach CRISTAL V2

Es zeigt sich für alle vier kritischen Parameter ein ähnliches Bild. In weiten Bereichen liefern die Rechnungen unter Annahme der Dichteformel höhere kritische Werte, als die Rechnungen mit Restwasserauffüllung (positive Abweichung). Für 10 Gew.% gilt dies für die gesamte Kurve, bis auf die letzten Datenpunkte mit niedrigster Urankonzentration. Dieser Bereich großer Nichtlinearitäten besitzt allerdings auch sehr hohe Werte der kritischen Größen, sodass die ohnehin sehr geringe Abweichung vernachlässigt werden kann. Für 5 Gew.% ergeben sich für Urandichten über $0,5 \text{ gU/cm}^3$ durchweg positive Abweichungen. Dies schließt für alle Kurven den Bereich der Kurvenminima ein, die die jeweiligen Minima der kritischen Größen bedingen. Für niedrigere Konzentrationswerte ergeben sich teils geringe negative Abweichungen bis maximal -2% . Da auch die absoluten Werte der kritischen Größen mit steigender Abweichung deutlich zunehmen, spielen diese Abweichungen aus sicherheitstechnischer Sicht aufgrund ihrer geringen Größe eine untergeordnete Rolle.

Mit diesen Vergleichen ist gezeigt, dass für die hier betrachtete Fälle die Annahme der Restwasserauffüllung im Vergleich zur Anwendung einer empirischen Dichteformel über weite Konzentrationsbereiche, vor allem um den relevanten Bereich der Minimal der Kurven, durchweg konservative kritische Werte liefert.

Weiterhin wurden Untersuchungen zum Einfluss von Heterogenität durchgeführt. Dazu wurde eine Parameterstudie durchgeführt, um den kritischen Radius in Abhängigkeit der Partikeldichte des Spaltstoffs Uranyl Nitrat zu finden. In dieser Parameterstudie wird angenommen, dass der Spaltstoff Uranyl Nitrat innerhalb der Lösungskugel als gleichverteilte, kugelförmige Partikel vorliegt und von Wasser umgeben wird. Entsprechend wird in der Parameterstudie die Größe der Spaltstoffpartikel und deren Anzahl so variiert, dass das Gesamtvolumen, und damit auch die Masse des Spaltstoffs und des Wassers in der Lösungskugel konstant bleibt. In der Parameterstudie wurden für die beiden Anreicherungen 5 Gew.% und 10 Gew.% ^{235}U jeweils die Fälle der niedrigsten kritischen Masse betrachtet. In Tab. 2.1 sind die wichtigsten Parameter für beide Fälle zusammengefasst.

Tab. 2.1 Wichtigste Parameter zur Betrachtung des Einflusses von Heterogenitäten

	5 Gew.%	10 Gew.%
M_k in kg	77,06	17,90
Kugelradius in cm	28,59	21,34
Volumen in l	97,89	40,71
ρ_U in g/cm ³	0,7872	0,4396
ρ_{ges} in g/cm ³	2,057	1,590
H/U	25,30	51,75

Die Anzahl der Spaltstoffpartikel wurde zwischen 10^3 und 10^{14} variiert. Dies führt zu Partikelradien von 0,00049 cm bis 2,288 cm für 5 Gew.%, bzw. 0,00035 cm bis 1,626 cm für 10 Gew.%.

Die kritische Masse in Abhängigkeit des Partikelradius ist in Abb. 2.6 für 5 Gew.% Anreicherung, und in Abb. 2.7 10 Gew.% Anreicherung gezeigt. Die waagerechte schwarze Linie entspricht jeweils der kritischen Masse des homogenen Falls.

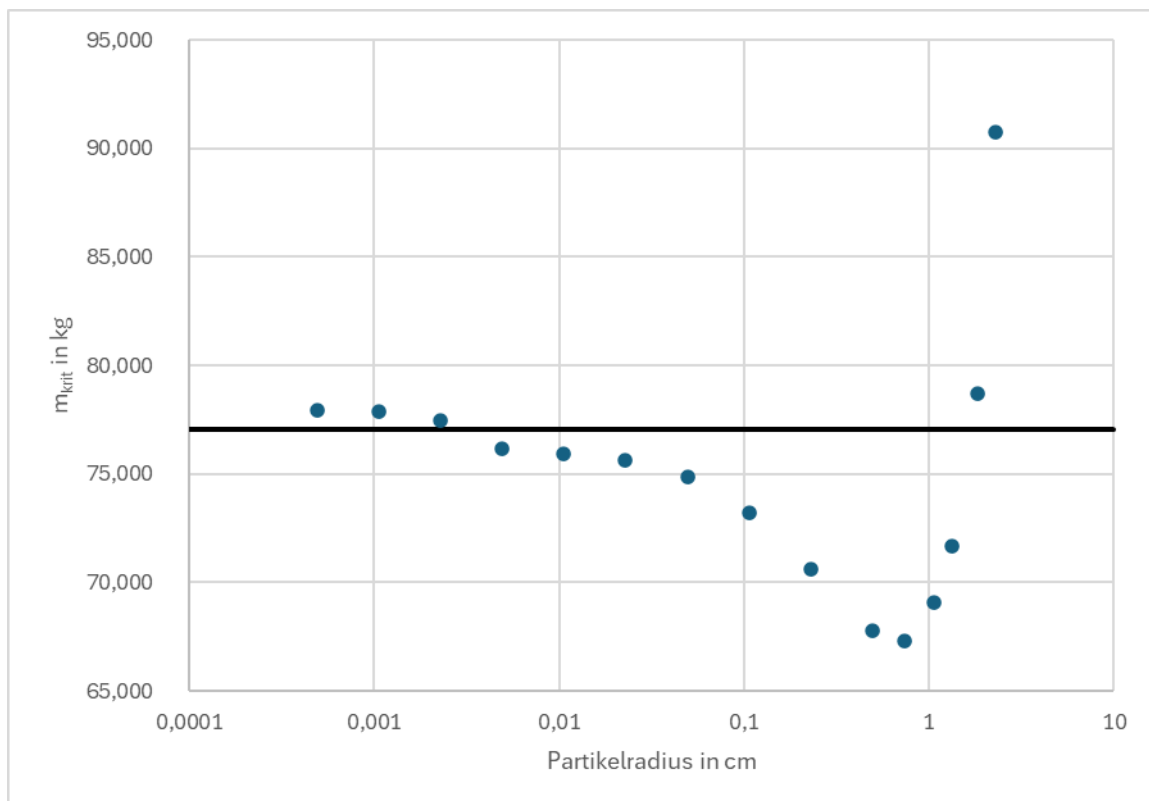


Abb. 2.6 Kritische Kugelmasse eines Uranylinitrat-Wasser-Systems mit 5 Gew.% Anreicherung in Abhängigkeit des Partikelradius

Die waagerechte schwarze Linie entspricht der kritischen Masse des homogenen Falls.

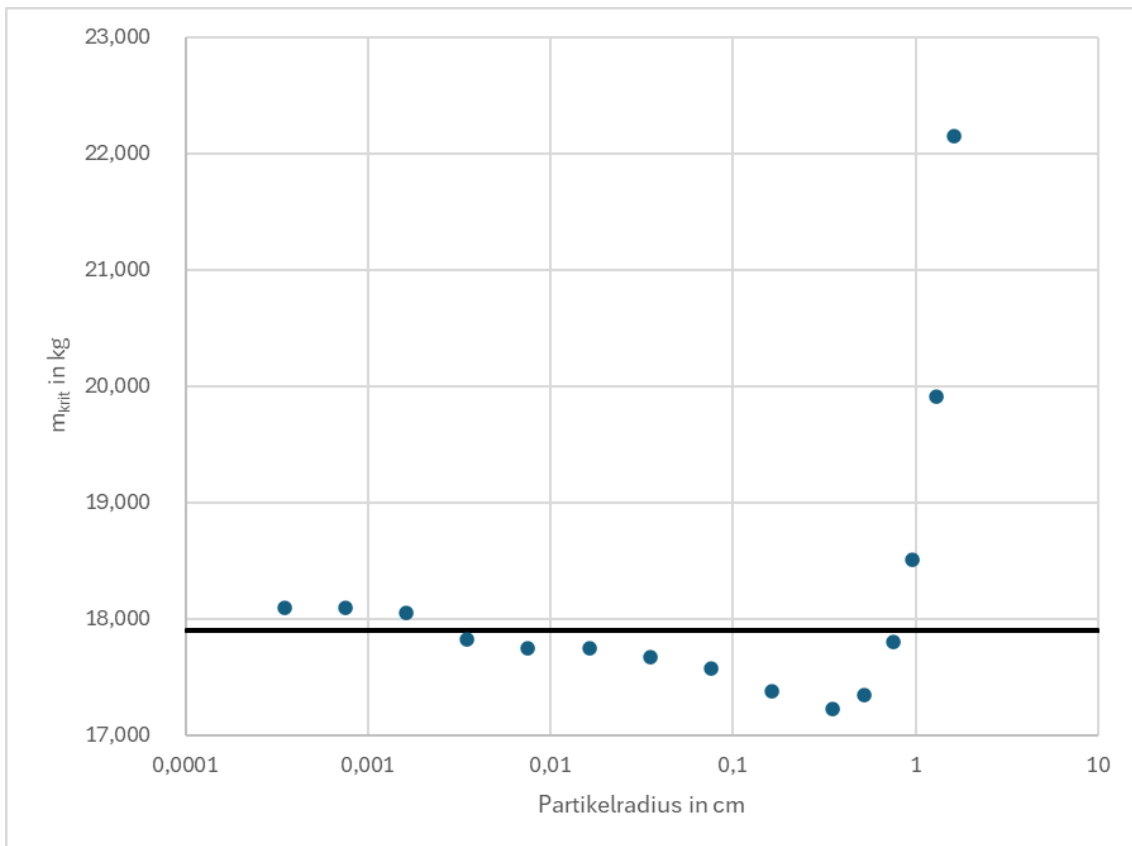


Abb. 2.7 Kritische Kugelmasse eines Uranylinitrat-Wasser-Systems mit 10 Gew.% Anreicherung in Abhängigkeit des Partikelradius

Die waagerechte schwarze Linie entspricht der kritischen Masse des homogenen Falls.

Der Verlauf der Kurven beider Fälle ist sehr ähnlich, unterscheidet sich aber in der Größe der Effekte. Für beide Fälle haben die Kurven ein Minimum der kritischen Masse um eine Partikelgröße von 0,5 cm, bzw. 0,4 cm. Für 5 Gew.% findet dabei eine signifikante Reduzierung der kritischen Masse von 13 % statt, während diese für 10 Gew.% nur knapp 4 % beträgt. Deutlich tritt in beiden Fällen hervor, dass sich die Kurven bei Partikelradien unter 0,01 cm (0,1 mm) dem Grenzfall einer homogenen Mischung annähern.

Beide Kurven weisen bei Partikelradien um 0,003 cm zwischen dem drittniedrigsten und dem viertniedrigsten Partikelradius eine Unstetigkeit auf. Für die kleineren drei Partikelgrößen werden höhere kritische Massen berechnet, als für den homogenen Fall. Bei diesen drei Fällen mit niedrigsten Partikelradien (0,002 cm bis 0,0004 cm) müssen 10^{12} bis 10^{14} Partikel berücksichtigt werden. Diese extrem hohe Anzahl an Partikeln könnte der Grund für dieses Verhalten sein. Dabei handelt es sich wahrscheinlich um numerische Artefakte, nicht um echte physikalische Effekte.

Wie weiter oben bereits erwähnt, konnten keine belastbare Informationen zum Ausfällen von nuklearem Brennstoff im Allgemeinen und zu Uranylнитrat im Speziellen gefunden werden. Die hier durchgeführten Untersuchungen zeigen, dass durch Heterogenitäten in Uranylнитrat, dessen kritische Parameter unter speziellen theoretischen Bedingungen kleinere Werte annehmen können, als dies für die jeweilige homogene Lösung der Fall ist. Damit wäre die Verwendung der dokumentierten kritischen Kurven nicht-konservativ. Allerdings befindet sich das Maximum dieses Effekts bei sehr großen Partikelgrößen im Bereich von 0,5 cm bis 0,7 cm. Diese Korngrößen, in Zusammenhang mit einer Gleichverteilung der Partikel in der Lösung, sind sehr unwahrscheinliche Bedingungen, die in realen Anwendungen ausgeschlossen sind. Selbst Partikelgrößen von Uranylнитrat über 0,01 cm sind unwahrscheinlich, weshalb die Annahme einer homogenen Verteilung des Spaltstoffs in der Lösung für die Kritikalitätssicherheit gerechtfertigt ist.

2.1.4 Nähere Betrachtung zu Uranylfluorid

Ein weitere Spaltstoff, bei dem es zu relevanten Lösungseffekten kommt, ist Uranylfluorid mit der Summenformel UO_2F_2 . Für diesen Spaltstoff wurden bereits in Jahr 2008 Untersuchungen bezüglich von Lösungseffekten in der GRS durchgeführt /KIL 09/, /GRS 19d/. Damals wurde der Zusammenhang zwischen Urankonzentration c_U und zugehörigem Moderationsverhältnis H/U mit Hilfe einer auf dem Prinzip additiver molarer Volumina basierenden empirischen Dichterelation /JOR 92/ errechnet. Aufgrund eines physikalischen Phasenübergangs im Kristallgitter bei $H/U = 4$ ist diese Relation zweigeteilt. Mit entsprechenden Zahlenwerten für UO_2F_2 lautet der Zusammenhang:

$$\rho_U\left(\frac{H}{U}\right) = \frac{238}{\frac{344,057}{4,76} + \left(\frac{H}{U} - 4\right) \frac{18,016}{2 \times 0,9982}}, \quad \frac{H}{U} \geq 4 \quad (2.1)$$

$$\rho_U\left(\frac{H}{U}\right) = 4,96 - 0,32 \frac{H}{U}, \quad \frac{H}{U} < 4 \quad (2.2)$$

Auch für Uranylfluorid ist in dem *Latec workbench* aus *CRISTAL V2* /ASNR 24/ eine Dichtere relation als Polynom sechster Ordnung in drei Moderationsbereichen implementiert. Diese drei Bereiche sind:

- [4, 18]
-]18, 100]
-]100, 600]

In Abb. 2.8 sind die Verläufe von ρ_U in Abhängigkeit des Moderationsverhältnisses H/U für die oben beschriebene Dichtere relation nach Jordan (orange), für die Dichteformel nach CRISTAL V2 (grün), und für die traditionell verwendete Restwasserauffüllung (blau) aufgetragen.

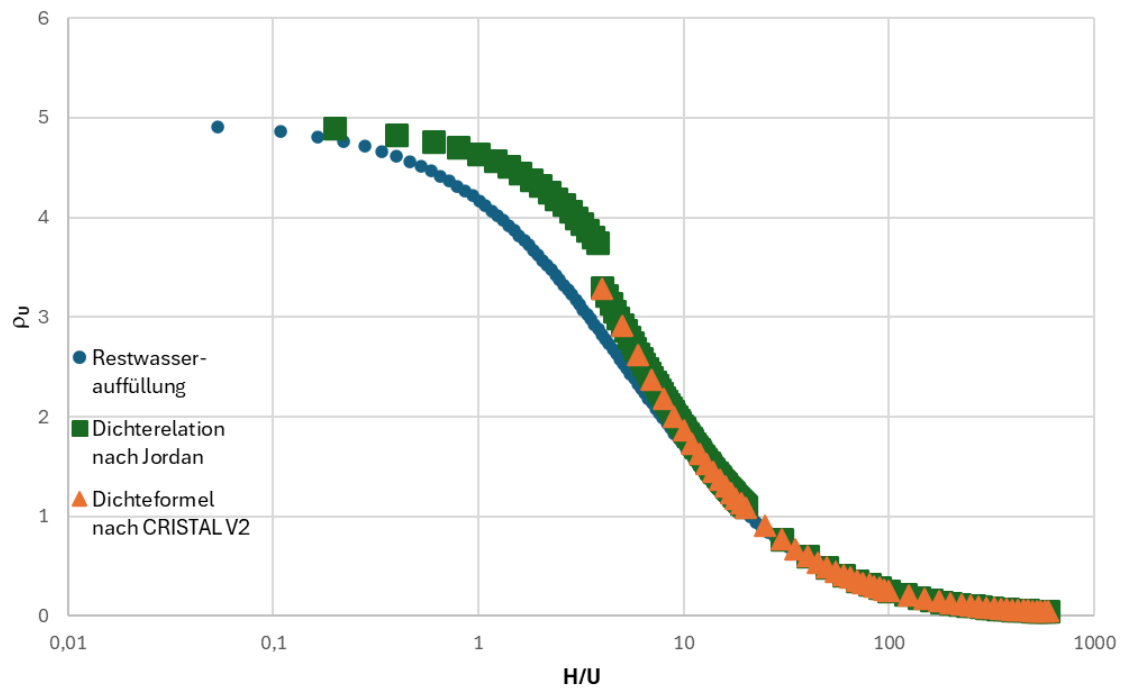


Abb. 2.8 Urandichte ρ_U in Abhängigkeit des Moderationsverhältnisses H/U für Uranylfluorid

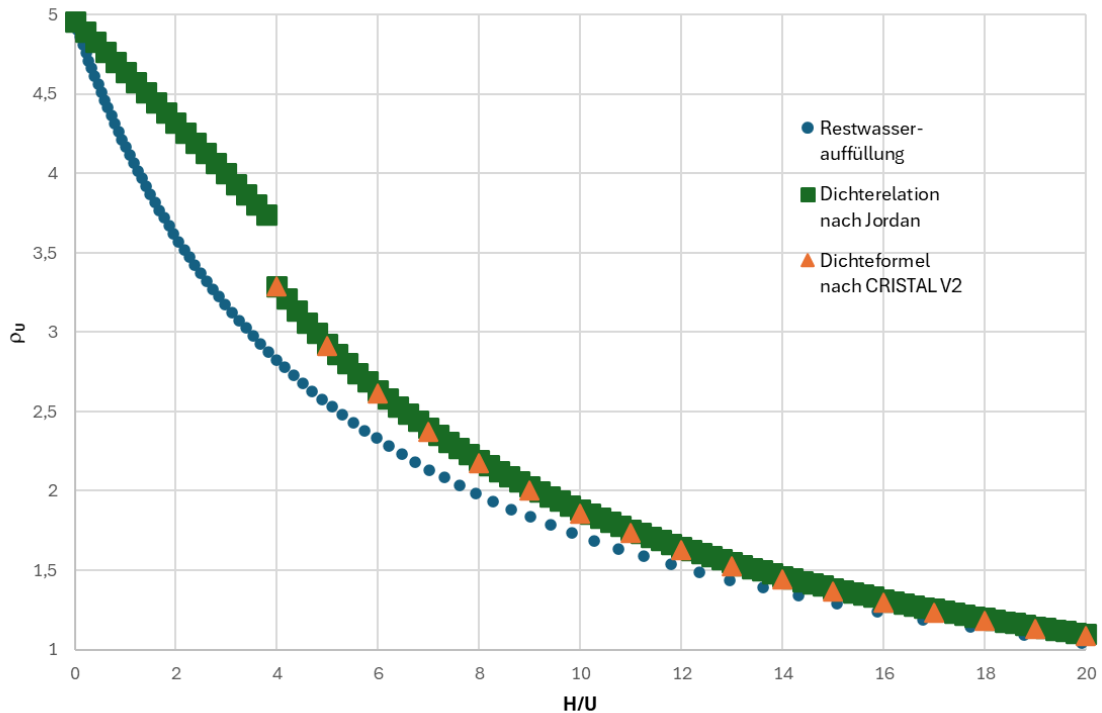


Abb. 2.9 Urandichte ρ_U in Abhängigkeit des Moderationsverhältnisses H/U für Uranylfluorid, Bereich H/U : [0, 20]

Auch für die Dichteformel für Uranylfluorid gilt, dass bei hohen Werten von H/U , also bei hoher Verdünnung, bzw. niedriger Urandichte in der Lösung, die Dichteformeln und die Volumenaddition übereinstimmen.

Die Dichteformel nach CRISTAL V2 ist nur für $H/U > 4$ definiert. In diesem Bereich stimmt sie gut mit der bereits in der GRS verwendeten Dichtereleation nach Jordan überein. Dies ist aus Abb. 2.9 ersichtlich, in der der Bereich H/U : [0, 20] erneute linear aufgetragen ist. Daher wird für die Auswirkungen von Lösungseffekten auf die Berechnung von kritischen Parametern für Uranylfluorid auf /KIL 09/ verwiesen.

2.2 Kritische Parameterkurven von Actinoiden

Bei der Stoffgruppe der Actinoide (historisch auch als Aktiniden bezeichnet) handelt es sich um Schwermetalle. Zu Ihnen werden Actinium (Ac) und die im Periodensystem darauffolgenden 14 Elemente gezählt: Thorium (Th), Protactinium (Pa), Uran (U), Neptunium (Np), Plutonium (Pu), Americium (Am), Curium (Cm), Berkelium (Bk), Californium (Cf), Einsteinium (Es), Fermium (Fm), Mendelevium (Md), Nobelium (No) und Lawrencium (Lr).

Eine weitere Unterteilung kann in *majore Actinoide* und *minore Actinoide* gemacht werden. Zu den majoren Actinoiden zählen nur Uran und Plutonium, da sie in Kernreaktoren den Hauptteil des spaltbaren Materials ausmachen, während alle anderen Actinoide zu den minoren Actinoiden zählen. Darüberhinausgehend gibt es die Bezeichnung der *Transurane (TRU)*, die alle Elemente einschließen, die höhere Kernzahlen als Uran besitzen. Damit beinhalten sie auch einen Teil der Actinoide.

Neben der Erzeugung höherer Actinoide in Beschleunigern, werden größere Mengen in Kernreaktoren durch Transmutation erzeugt. Dies erfolgt hauptsächlich durch Neutroneneinfang Reaktionen (n,γ) und β^- -Zerfall. Deutlich seltener treten ($n,2n$), ($n,3n$), (γ,n), Elektroneneinfang-Reaktionen oder spontane α -Teilchen Aussendung auf.

Den Actinoiden kommt bei der Betrachtung der Radioaktivität von abgebranntem Kernbrennstoff eine besondere Rolle zu, da sie die Gesamtaktivität während einem Großteil der Abklingzeit gegenüber dem Beitrag der Spaltprodukte dominieren. Aufgrund der teilweise sehr großen Halbwertszeiten gilt dies insbesondere für große Zeitskalen, die für die Endlagerung relevant sind: 10.000 bis 1.000.000 Jahre.

Im Folgenden werden alle Nuklide der Actinoide bis Einsteinium betrachtet, die eine Halbwertszeit von mehr als 40 Tagen besitzen. Davon ausgenommen sind die Nuklide ^{257}Fm und ^{258}Md , die nicht in der verwendeten Bibliothek für nukleare Daten ENDF/B-VII.1 enthalten sind, die mit SCALE verteilt wird. Tab. 2.2 gibt eine Übersicht über die insgesamt 45 untersuchten Nuklide. Von diesen werden 38 Nuklide kritisch. Die jeweiligen Halbwertszeiten und die verwendeten Dichten sind in Tab. 2.8 in Kapitel 2.2.2 wiedergegeben. Für einen Teil der hier betrachteten Nuklide finden sich kritische Werte in der aktuellen US-Norm ANSI/ANS 8.15-2014 (R2019) /ANS 14/.

Tab. 2.2 Übersicht über die untersuchten Nuklide der Actinoide

Actinoid	Betrachtete Isotope
Actinium	^{227}Ac
Thorium	^{228}Th , ^{229}Th , ^{230}Th , ^{232}Th
Protactinium	^{231}Pa
Uran	^{232}U , ^{233}U , ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U
Neptunium	^{235}Np , ^{236}Np , ^{237}Np
Plutonium	^{236}Pu , ^{237}Pu , ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu , ^{244}Pu
Americium	^{241}Am , $^{242\text{m}}\text{Am}$, ^{243}Am ,
Curium	^{242}Cm , ^{243}Cm , ^{244}Cm , ^{245}Cm , ^{246}Cm , ^{247}Cm , ^{248}Cm , ^{250}Cm
Berkelium	^{247}Bk , ^{248}Bk , ^{249}Bk
Californium	^{248}Cf , ^{249}Cf , ^{250}Cf , ^{251}Cf , ^{252}Cf , ^{254}Cf
Einsteinium	^{252}Es , ^{254}Es

2.2.1 Prüfung der vorhandenen Werte und der zugrundeliegenden Daten

In der bisherigen Version des *Handbuch zur Kritikalität* sind für einen Teil dieser Nuklide (^{237}Np , 238 , 239 , 240 , ^{241}Pu , 241 , ^{242}Am , 243 , 244 , 245 , ^{247}Cm , 249 , ^{251}Cf) die kritischen Kugelmassen von vier Systemen angegeben, wobei nicht alle Werte für alle Nuklide dokumentiert sind /GRS 19e/:

- Thermisches System, H₂O-Reflektor
- Unmoderierte Metallkugel, ohne Reflektor
- Unmoderierte Metallkugel, H₂O-Reflektor
- Unmoderierte Metallkugel, Stahlreflektor

Die in /GRS 19e/ angegebenen Werte sind in Tab. 2.3 wiedergegeben.

Tab. 2.3 Kritische Kugelmasse [kg] für thermische und schnelle Systeme für Actinoide aus dem bisherigen *Handbuch zur Kritikalität*

Aus /GRS 19e/. ²³⁹Pu ist ein eigenständiges Kapitel im Handbuch zur Kritikalität (Band 2, Teil 2, 10.A) gewidmet, wird an dieser Stelle der Vollständigkeit halber mitgezogen.

Nuklid	Thermisches System, H ₂ O-Reflektor	Unmoderierte Metallkugel, ohne Reflektor	Unmoderierte Metallkugel, H ₂ O-Reflektor	Unmoderierte Metallkugel, Stahlreflektor
²³⁷ Np	–	~60	64,9	43,1
²³⁸ Pu	–	7,2	5,6	4,5
²³⁹ Pu	0,510	10,0	5,42	4,45
²⁴⁰ Pu	–	158,7	148,4	96,4
²⁴¹ Pu	0,260	12,18	5,9	–
²⁴¹ Am	–	113,5	105,3	71,4
²⁴² Am	0,023	17,65	3,8	–
²⁴³ Cm	0,213	8,10	–	–
²⁴⁴ Cm	–	23,2	22,0	14,2
²⁴⁵ Cm	0,042	12,28	–	–
²⁴⁷ Cm	0,159	7,87	–	–
²⁴⁹ Cf	0,032	8,34	–	–
²⁵¹ Cf	0,010	7,78	–	–

In dem bisherigen Begleittext des *Handbuch zur Kritikalität* sind Quellen nur allgemein angegeben, nicht spezifisch für jeden der dokumentierten Werte. Demnach /GRS 19e/ entstammen die meisten Werte /CLA 73/ und /MAU 78/. Weitere Daten finden sich in /CLA 71/, /WES 81/, /CLA 80/, /ANS 96/, /IAEA 98/, /LAV 04/ und /SAN 03/.

Es ist davon auszugehen, dass die dokumentierten Werte aus der Literatur übernommen wurden und nicht mithilfe eigener Berechnungen erzeugt wurden. Nach Sichtung der angegebenen Quellen konnte teilweise nachvollzogen werden, welcher Wert aus welcher Quelle stammt. In /SAN 03/ lassen sich keine für dieses Kapitel des Handbuch zur Kritikalität relevanten Daten finden. Diese Quelle beschreibt eins der wenigen kritischen nicht-U/Pu-Experimente, eine kritische ²³⁷Np Kugel. Dabei musste erheblicher Aufwand betrieben werden, um Kritikalität zu erreichen. In /WES 81/ finden sich zwar Werte zu einigen der im Handbuch behandelten Nuklide, die dort berechneten Werte weichen allerdings teils stark von den im Handbuch angegebenen Werten ab.

In Tab. 2.4 bis Tab. 2.7 sind die Quellen zu den im *Handbuch zur Kritikalität* dokumentierten Werten wiedergegeben. Für die thermischen Systeme konnte aus den Quellen zusätzlich der jeweilige Anteil des Spaltstoffs in Lösung extrahiert werden.

Tab. 2.4 Details und Quellen zu den kritischen Kugelmassen für die thermischen Systeme aus dem bisherigen *Handbuch zur Kritikalität*

Nuklid	Krit. Kugelmasse [kg]	Anteil in Lösung [g/l]	Quelle
²³⁹ Pu	0,510	32	/MAU 78/
²⁴¹ Pu	0,260	32	/CLA 73/, /MAU 78/
²⁴² Am	0,023	5	/CLA 73/, /MAU 78/
²⁴³ Cm	0,213	40	/CLA 73/, /MAU 78/
²⁴⁵ Cm	0,042	16	/CLA 73/, /MAU 78/
²⁴⁷ Cm	0,159	60	/CLA 73/, /MAU 78/
²⁴⁹ Cf	0,032	20	/CLA 73/, /MAU 78/
²⁵¹ Cf	0,010	6	/CLA 73/, /MAU 78/

Es ist naheliegend, dass für die jeweilige Bestimmung Rechnungen bei unterschiedlichen Anteilen gemacht wurden, um die kleinste kritische Masse zu bestimmen. Aus den vorhandenen Quellen ist nicht ersichtlich, ob dieses Vorgehen durchgeführt wurde, oder wie viele Datenpunkte bei unterschiedlichen Spaltstoffanteilen gerechnet wurden.

Die Dicke des H₂O Reflektors ist explizit nur für ²³⁹Pu mit 20 cm angegeben. Die Rechnungen aus französischen Quellen, v. a. die älteren, verwenden fast immer 20 cm H₂O Reflektor. Alle anderen nehmen, falls nicht anders angegeben, typischerweise 30 cm an. Eine Dichte des Spaltstoffs ist nur für ²³⁹Pu angegeben mit < 19,6 g/cm³.

Während /MAU 78/ denselben Wert für die kritische Masse angibt, der auch im *Handbuch zur Kritikalität* dokumentiert ist (0,510 kg), beträgt der Wert in Quelle /CLA 73/ einen etwas höheren Wert von 0,53 kg. Dieser Umstand ist verwunderlich, da diese zwei Quellen für alle anderen Nuklide jeweils dieselben Werte angeben. Höchstwahrscheinlich wurde zur Erstellung des *Handbuch zur Kritikalität* der konservativere Wert verwendet.

Tab. 2.5 Details und Quellen zu den kritischen Kugelmassen für schnelle Systeme (unmoderierte Metallkugeln) ohne Reflektor aus dem bisherigen *Handbuch zur Kritikalität*

Nuklid	Krit. Kugelmasse [kg]	Quelle
²³⁷ Np	~60	/CLA 73/
²³⁸ Pu	7,2	/CLA 73/, /LAV 04/, /MAU 78/
²³⁹ Pu	10,0	/CLA 73/
²⁴⁰ Pu	158,7	/CLA 73/
²⁴¹ Pu	12,18	/LAV 04/
²⁴¹ Am	113,5	/CLA 73/
²⁴² Am	17,65	nicht gefunden
²⁴³ Cm	8,10	nicht gefunden
²⁴⁴ Cm	23,2	/CLA 73/
²⁴⁵ Cm	12,28	nicht gefunden
²⁴⁷ Cm	7,87	nicht gefunden
²⁴⁹ Cf	8,34	nicht gefunden
²⁵¹ Cf	7,78	nicht gefunden

Die Quellenangaben für schnelle Systeme (unmoderierte Metallkugeln) ohne Reflektor sind in Tab. 2.5 gegeben. Eine Dichte des Spaltstoffs ist nur für ²³⁹Pu angegeben mit 19,6 g/cm³. Nicht alle Werte aus dem Handbuch zur Kritikalität konnten in den angegebenen Quellen gefunden werden.

Tab. 2.6 Details und Quellen zu den kritischen Kugelmassen für schnelle Systeme (unmoderierte Metallkugeln) mit H₂O-Reflektor aus dem bisherigen *Handbuch zur Kritikalität*

Nuklid	Krit. Kugelmasse [kg]	Quelle
²³⁷ Np	64,9	/CLA 73/
²³⁸ Pu	5,6	/CLA 73/
²³⁹ Pu	5,42	/CLA 73/, /MAU 78/
²⁴⁰ Pu	148,4	/CLA 73/
²⁴¹ Pu	5,9	/CLA 73/: 6,0 kg, /LAV 04/: 5,87 kg, /MAU 78/
²⁴¹ Am	105,3	/CLA 73/
²⁴² Am	3,8	/MAU 78/
²⁴⁴ Cm	22,0	/CLA 73/, /LAV 04/: 22,1 kg

Die Quellenangaben für schnelle Systeme (unmoderierte Metallkugeln) mit H₂O-Reflektor sind in Tab. 2.6 gegeben. Eine Dichte des Spaltstoffs ist nur für ²³⁹Pu angegeben mit 19,6 g/cm³. Für ²⁴¹Pu und ²⁴⁴Cm sind in verschiedenen Quellen ähnliche, aber nicht exakt gleiche Werte gegeben, die aber im Rahmen von kleinen Rundungsfehlern miteinander übereinstimmen.

Tab. 2.7 Details und Quellen zu den kritischen Kugelmassen für schnelle Systeme (unmoderierte Metallkugeln) mit Stahlreflektor aus dem bisherigen *Handbuch zur Kritikalität*

Nuklid	Krit. Kugelmasse [kg]	Quelle
²³⁷ Np	43,1	/CLA 73/
²³⁸ Pu	4,5	/CLA 73/
²³⁹ Pu	4,45	nicht gefunden
²⁴⁰ Pu	96,4	/CLA 73/
²⁴¹ Am	71,4	/CLA 73/
²⁴⁴ Cm	14,2	/CLA 73/

Die Quellenangaben für schnelle Systeme (unmoderierte Metallkugeln) mit Stahlreflektor sind in Tab. 2.7 gegeben. Auch für diese Systeme konnten nicht alle Werte aus dem Handbuch zur Kritikalität in den angegebenen Quellen gefunden werden.

Für die angegebenen kritischen Werte mit fehlender Quellenangabe konnte in den z. T. mehrere Jahrzehnte alten Datensammlungen keine Quelle mehr nachvollzogen werden.

2.2.2 Nachrechnung der Stoffsysteme

Für die Berechnungen des Multiplikationsfaktors eines unendlich ausgedehnten Systems (k_{inf}) und der kritischen Massen (M_k) kam die Programmsequenz CSAS1 des vom Oak Ridge National Laboratory entwickelten Programmsystems SCALE 6.2.3 /REA 17/ zum Einsatz. Es wurde die im SCALE-Paket enthaltene und auf den ENDF/B-VII.1-Daten basierende 252-Gruppen-Wirkungsquerschnittsbibliothek /CHA 11/ verwendet. Im Zonensuchmodus des S_N -Verfahrens (Methode der diskreten Ordinaten) wurden die kritischen Parameter der Spaltstoffsysteme ermittelt. Für die in Tab. 2.2 aufgelisteten Nuklide wurden folgende kritische Parameter berechnet:

- k_{inf} des thermischen Systems (in H₂O-Lösung)
- k_{inf} des schnellen Systems (metallisch)

- kritische Kugelmasse des schnellen Systems (metallisch) ohne Reflektor
- kritische Kugelmasse des schnellen Systems (metallisch) mit 30 cm H₂O-Reflektor
- kritische Kugelmasse des schnellen Systems (metallisch) mit 30 cm Stahlreflektor
- kritische Kugelmassen des thermischen Systems (in H₂O-Lösung) ohne Reflektor in Abhängigkeit des Spaltstoffdichte im Lösungsmittel
- kritische Kugelmassen des thermischen Systems (in H₂O-Lösung) mit 30 cm H₂O-Reflektor in Abhängigkeit des Spaltstoffdichte im Lösungsmittel.

Die unmoderierten, metallischen Systemen besitzen jeweils einen Datenpunkt bei der nominalen theoretischen Dichte des jeweiligen Nuklids. Für die Lösungssysteme wurden Kurven gerechnet mit 100 logarithmisch verteilten Datenpunkten der Spaltstoffdichte in der Lösung. Dabei wurde die sogenannte Restwasserauffüllung verwendet, bei der die nominellen Dichten von Spaltstoff und Lösung (H₂O), gewichtet mit dem jeweiligen Volumenanteil, addiert werden. In einem ersten Schritt wurde die Spaltstoffdichte zwischen 0,001 g/cm³ und der jeweiligen Maximaldichte des Spaltstoffs variiert, um die Grenzen des kritischen Bereichs zu ermitteln. Dieser Bereich wurde für die weiteren Ermittlung der kritischen Massen und Volumina verwendet. In einem zweiten Schritt wurde mit einem Anfangsradius der Spaltzone von 10 cm für die Suchsequenz der kritische Radius ermittelt. Bei den reflektierten Systemen betrug der Anfangs-Außenradius der Reflektorzone 40 cm, wobei dessen Dicke bei der automatischen Suche nach dem kritischen Radius konstant bei 30 cm gehalten wurde. Dabei wurde die maximale Anzahl an inneren (Parameter *iim*) und äußeren (Parameter *icm*) Iterationen auf 1.000 festgelegt. Der Parameter, der die Breite der Zonenvariation definiert, wurde auf 0,0005 festgelegt (*zmd(1)=0,0005*).

Für eine noch genauere Bestimmung wurde in einem dritten Schritt die Suche nach dem kritischen Radius wiederholt, indem die maximale Anzahl der an inneren und äußeren Iterationen auf 10.000 erhöht wurde, und der *zone width modifier* auf 0,00025 reduziert wurde. Eine zusätzliche Verbesserung der Genauigkeit der ermittelten kritischen Radien konnte erreicht werden, indem die Spaltzone in 1.000 radiale Zonen unterteilt wurde (*int(1)=1000*), und die Reflektorzone in 3000 (*int(3)=3000*). Außerdem wurde der Grad der S_n-Winkelquadratur der Suchsequenz auf 32 erhöht (*isn=32*). Voruntersuchungen ergaben, dass dies einen guten Kompromiss zwischen Rechenzeit und Genauigkeit

liefert. Außerdem wurde der im zweiten Schritt ermittelte kritische Radius um 5 % reduziert, und als Anfangsradius der Spaltzone in diesem dritten Schritt verwendet. In den Fällen mit Reflexion wurde die Dicke der Reflektorzone auf 30 cm festgehalten. Aus dem so ermittelten finalen kritischen Radius wurde das kritische Volumen, und mithilfe der jeweiligen Dichte die kritische Masse ermittelt. Bei den thermischen Systemen wurde aus den Kurven die minimale kritische Masse und die zugehörige Schwermetалldichte ermittelt.

Bei der Berechnung von k_{inf} für die thermischen Systeme wurde der Bereich der Spaltstoffdichte zwischen $0,001 \text{ g/cm}^3$ und der jeweiligen Maximaldichte des Spaltstoffs in 100 logarithmisch verteilte Datenpunkte eingeteilt, um eine gleichmäßige Abdeckung des Partialdichtebereichs zu erhalten.

Die theoretischen Dichten für die Neuberechnung der kritischen Parameter wurden aus /LAV 04/ entnommen, das eine vollständige Sammlung der relevanten Actinoide darstellt. In Tab. 2.8 sind die verwendeten Dichten (Spalte 1), die Halbwertszeiten (Spalte 2, /LUM 24/) und sämtliche berechneten kritischen Parameter zusammengefasst. Bei der Rechnung hat sich gezeigt, dass das Maximum von k_{inf} für die Lösungssysteme für alle Actinoide jeweils bei der maximalen Schwermetалldichte auftritt. Dies entspricht dem k_{inf} für das metallische System (Spalte 3). In Spalte 4 bis 6 sind die kritischen Massen einer Metallkugel ohne (Spalte 4), mit 30 cm H₂O-Reflektor (Spalte 5), und mit 30 cm Stahlreflektor (Spalte 6) wiedergegeben. Die minimale kritische Masse der Lösungen liegt für zahlreiche Actinoide bei der jeweils maximalen Schwermetалldichte. Auch diese Datenpunkte entsprechen der kritischen Masse des metallischen Systems. Daher sind sie in der Tabelle nicht noch ein zweites Mal aufgeführt (Spalte 8 und 10). Für die Nuklide, bei denen die minimalen kritischen Massen des Lösungssystems von der des Metallsystems abweichen, ist zusätzlich die zugehörige Schwermetалldichte angegeben (Spalte 8 und 10). Abb. 2.10 und Abb. 2.11 zeigen exemplarisch die k_{inf} -Kurven und die Kurven der kritischen Kugelmasse M_k für alle gerechneten Plutonium Isotope in Lösung ohne Reflektor. Alle ermittelten Werte und Kurven wurden in das *Handbuch zur Kritikalität /GRS 25a/* übernommen.

Abb. 2.12 zeigt die kritische Kugelmasse M_k [kg] aller Nuklide für die metallischen Systeme mit H₂O-Reflektor.

Abb. 2.13 zeigt den infiniten Multiplikationsfaktor k_{inf} der metallischen Systeme.

Tab. 2.8 Kritische Parameter der Actinoide

Spalte	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
Nuklid	Dichte [g/cm ³]	Halbwertszeit	k _{inf}	M _k [kg]						
			Metall	Metall			Lösung			
		Reflektor	-	ohne	H ₂ O	Stahl	ohne		H ₂ O	
								Bei Dichte [g/cm ³]		Bei Dichte [g/cm ³]
²²⁹ Th	11,575	7.880 a	1,07419	30.539,1	26.988,3	16.460	Metall	-	Metall	-
²³² U	18,681	68 d	3,10202	6,13078	3,62658	3,19096	Metall	-	Metall	-
²³³ U	18,762	159.200 a	2,55203	15,509	7,27672	6,66272	1,0802	0,04542	0,56484	0,05693
²³⁴ U	18,842	245.500 a	1,72669	126,732	116,317	71,1675	Metall	-	Metall	-
²³⁵ U	18,923	703 Mio a	2,27657	46,4455	21,2992	18,303	1,4593	0,04585	0,80364	0,05730
²³⁵ Np	20,303	396 d	2,61063	8,04266	6,14018	4,32177	Metall	-	Metall	-
²³⁶ Np	20,389	154.000 a	2,51688	10,7785	5,43321	4,93481	0,21950	0,00888	0,11486	0,01171
²³⁷ Np	20,476	2,144 Mio a	1,71949	59,0294	54,2125	35,5367	Metall	-	Metall	-
²³⁶ Pu	19,601	2,858 a	3,02106	4,84791	2,46496	2,40595	2,3463	0,14364	1,1700	0,1993
²³⁷ Pu	19,685	45 d	2,98527	4,8537	2,4636	2,40453	0,17294	0,009747	0,08550	0,01287
²³⁸ Pu	19,768	87,7 a	2,85750	8,22386	6,86767	4,53287	Metall	-	Metall	-
²³⁹ Pu	19,851	24.110 a	2,97869	9,93321	5,39387	4,77854	0,90792	0,02638	0,51015	0,03361
²⁴⁰ Pu	19,934	6.564 a	2,15272	38,7024	34,8192	22,0534	Metall	-	Metall	-
²⁴¹ Pu	20,017	14,35 a	2,89850	12,7247	5,84674	5,52881	0,52254	0,02062	0,27765	0,02653
²⁴² Pu	20,101	375.000 a	1,89468	72,1216	66,3373	42,8356	Metall	-	Metall	-
²⁴⁴ Pu	20,267	80 Mio a	1,72878	112,379	103,999	68,8596	Metall	-	Metall	-
²⁴¹ Am	13,662	432,2 a	1,87249	70,895	64,3729	42,2213	Metall	-	Metall	-
^{242m} Am	13,717	141 a	3,36188	11,5918	4,29046	4,2691	0,047572	0,002618	0,023248	0,003847

Spalte	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
Nuklid	Dichte [g/cm ³]	Halbwertszeit	k _{inf}	M _k [kg]						
			Metall	Metall			Lösung			
		Reflektor	-	ohne	H ₂ O	Stahl	ohne		H ₂ O	
								Bei Dichte [g/cm ³]		Bei Dichte [g/cm ³]
²⁴³ Am	13,774	7370 a	1,66786	149,335	137,584	92,1706	Metall	-	Metall	-
²⁴² Cm	13,407	162,8 d	3,14494	14,4202	10,7154	7,17261	Metall	-	Metall	-
²⁴³ Cm	13,463	29,1 a	3,57036	5,94511	2,48059	2,52939	0,45934	0,02928	0,21898	0,04316
²⁴⁴ Cm	13,518	18,1 a	2,55465	26,9331	22,3187	13,9908	Metall	-	Metall	-
²⁴⁵ Cm	13,574	8.500 a	3,53260	11,7908	3,86169	4,41427	0,13716	0,008948	0,064354	0,01279
²⁴⁶ Cm	13,629	4.760 a	2,14916	87,052	72,7178	45,5212	Metall	-	Metall	-
²⁴⁷ Cm	13,685	15,6 Mio a	3,95992	7,45296	3,06911	3,03988	2,4911	0,1667	1,2485	0,2264
²⁴⁸ Cm	13,74	348.000 a	2,21476	98,2153	78,0761	51,8808	Metall	-	Metall	-
²⁵⁰ Cm	13,851	8.300 a	1,23877	1.822,08	1.741,86	1.305,28	Metall	-	Metall	-
²⁴⁷ Bk	14,671	1.380 a	1,37708	332,185	312,159	239,642	Metall	-	Metall	-
²⁴⁸ Bk	14,731	9 a	3,48838	10,6574	4,3059	4,23103	0,17786	0,009117	0,089306	0,01195
²⁴⁹ Bk	14,79	330 d	1,54649	160,7	149,397	109,48	Metall	-	Metall	-
²⁴⁸ Cf	15,05	334 d	3,10418	21,9024	14,0782	11,4732	Metall	-	Metall	-
²⁴⁹ Cf	15,11	351 a	4,07577	6,01318	2,37738	2,66512	0,13670	0,009172	0,063830	0,01316
²⁵⁰ Cf	15,171	13,08 a	2,58416	19,1558	17,0523	12,4568	Metall	-	Metall	-
²⁵¹ Cf	15,232	900 a	4,03304	12,5263	4,64317	5,16183	0,059921	0,003214	0,029990	0,004303
²⁵² Cf	15,292	2,645 a	4,29722	3,34558	1,8972	1,83534	Metall	-	Metall	-
²⁵⁴ Cf	15,412	60,5 d	4,05052	7,87758	4,68455	4,22221	Metall	-	Metall	-
²⁵² Es	8,808	471,7 d	4,40132	9,54987	2,23434	2,76876	0,084261	0,007688	0,036653	0,01194

Spalte	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
Nuklid	Dichte [g/cm ³]	Halbwertszeit	k _{inf}	M _k [kg]						
			Metall	Metall			Lösung			
		Reflektor	-	ohne	H ₂ O	Stahl	ohne		H ₂ O	
								Bei Dichte [g/cm ³]		Bei Dichte [g/cm ³]
²⁵⁴ Es	8,878	275,7 d	4,21604	12,992	3,13983	3,7006	0,077702	0,007151	0,033285	0,01116
Unterkritische Systeme										
²²⁷ Ac	10,043	21,773 a	0,00849	-	-	-	-	-	-	-
²²⁸ Th	11,524	1,9131 a	0,36116	-	-	-	-	-	-	-
²³⁰ Th	11,626	75,38 a	0,19853	-	-	-	-	-	-	-
²³² Th	11,727	14,05 Mrd a	0,06124	-	-	-	-	-	-	-
²³¹ Pa	15,336	32.760 a	0,92324	-	-	-	-	-	-	-
²³⁶ U	19,004	23,4 Mio a	0,71101	-	-	-	-	-	-	-
²³⁸ U	19,165	2,468 Mrd a	0,30616	-	-	-	-	-	-	-

05.03.2024

Actinoide

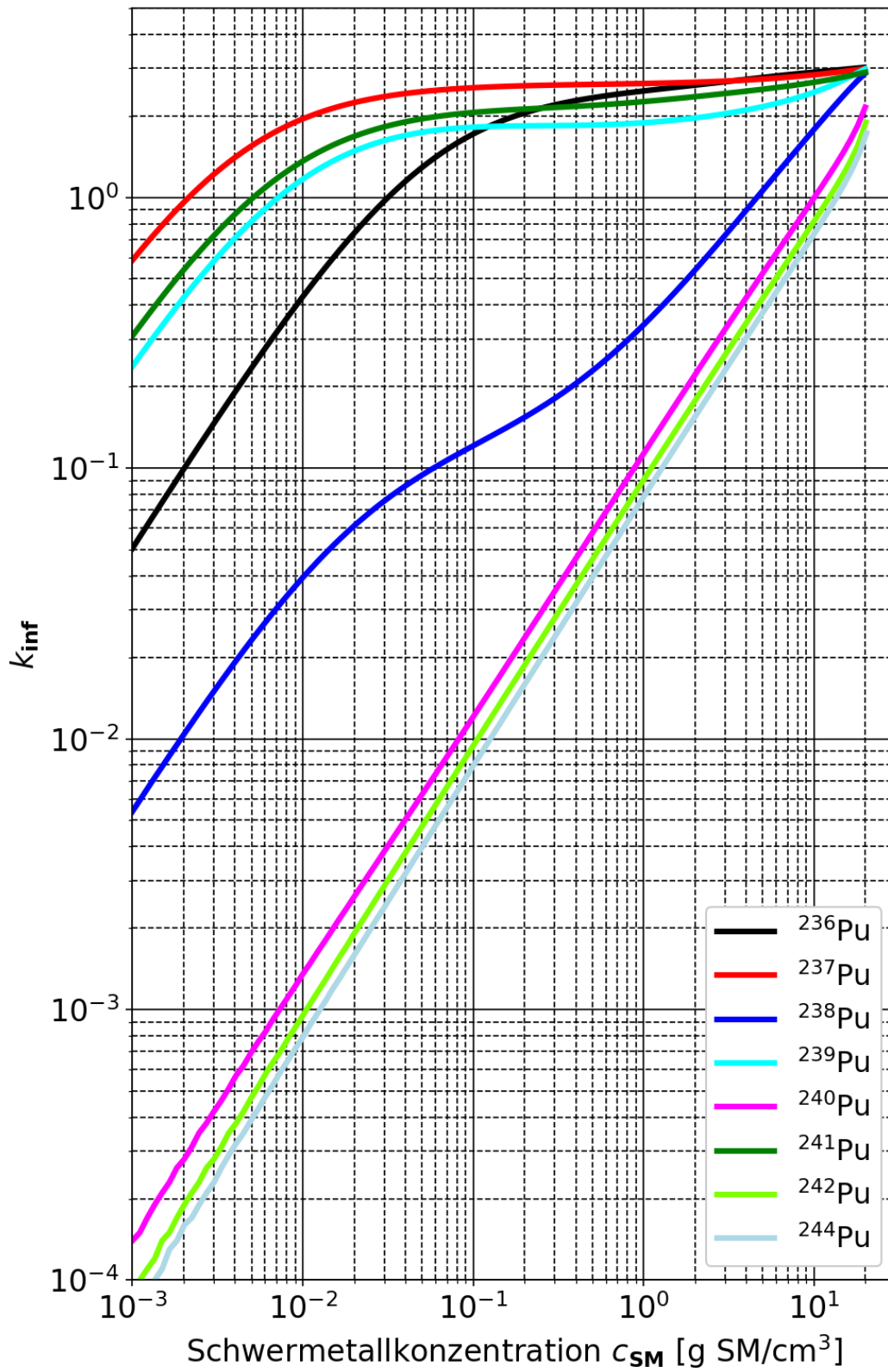


Abb. 2.10 K_{inf} Kurven für alle gerechneten Plutonium Isotope

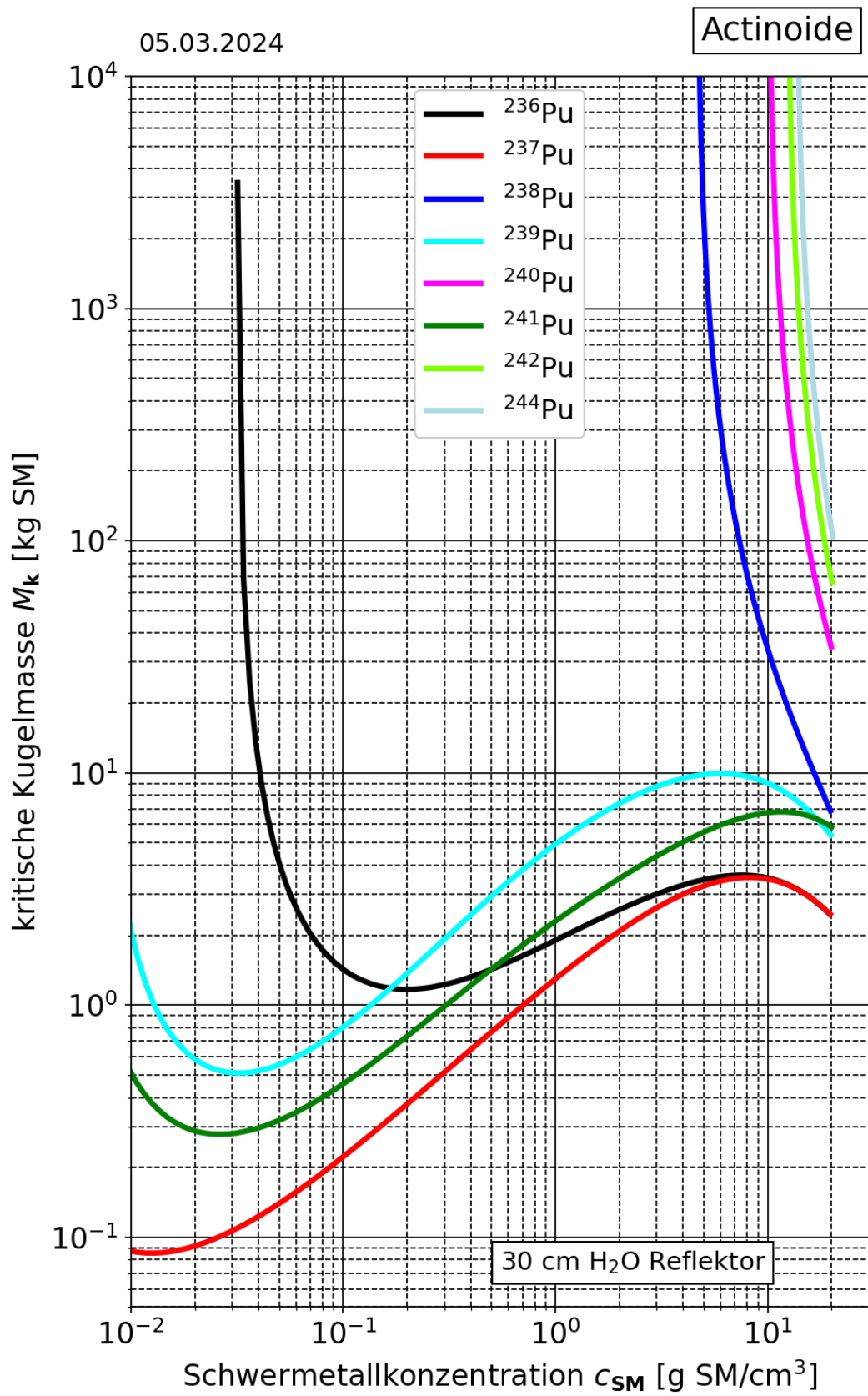


Abb. 2.11 Kritische Kugelmasse M_k für alle gerechneten Plutonium Isotope mit H₂O Reflektor

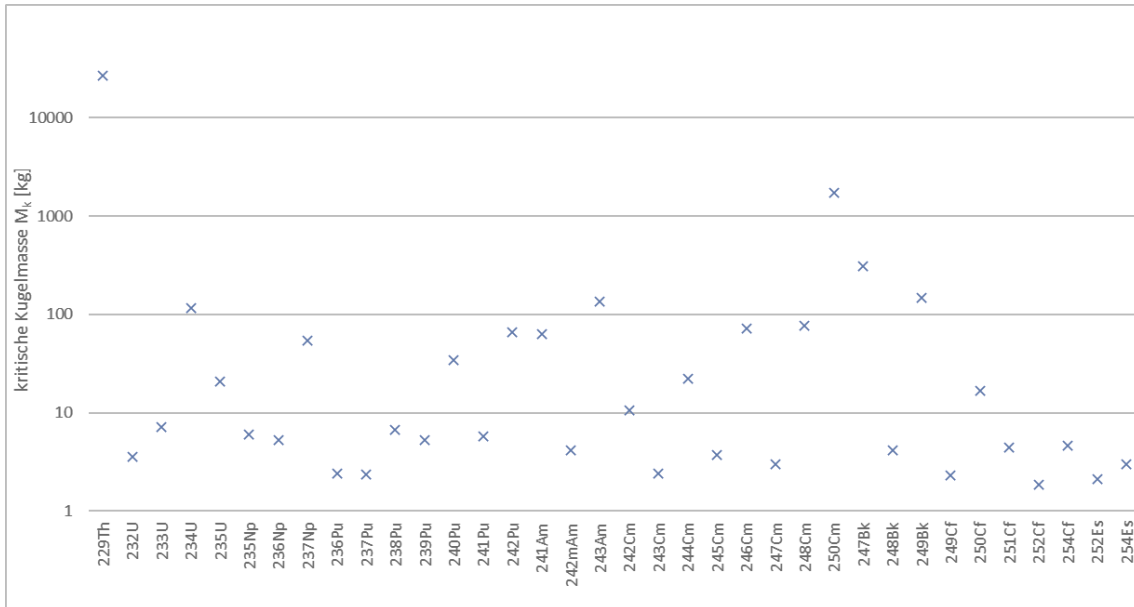


Abb. 2.12 Kritische Kugelmasse M_k [kg] der metallischen Systeme mit H_2O Reflektor

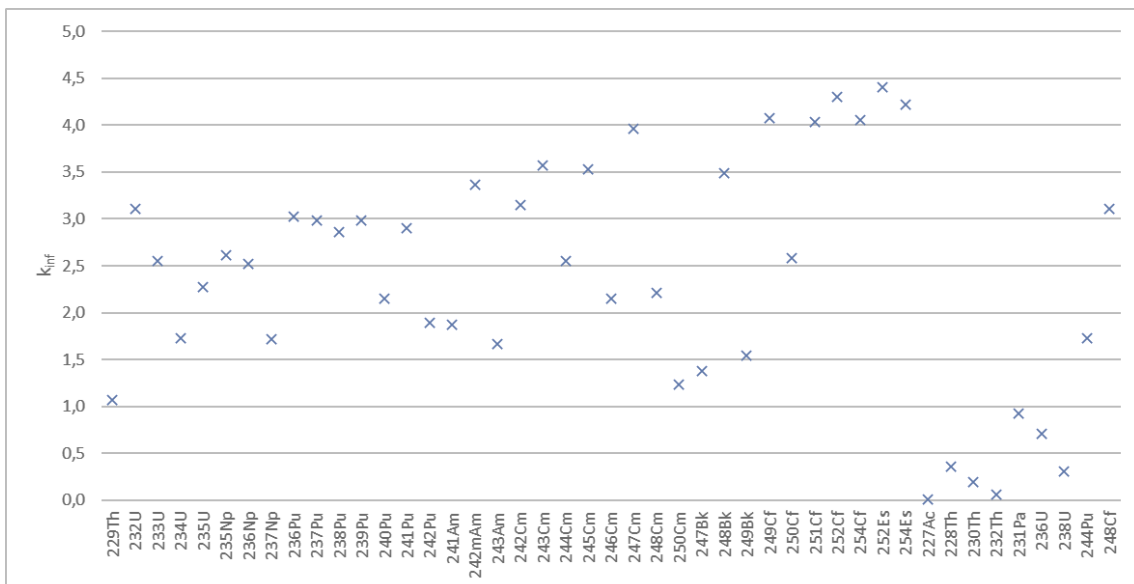


Abb. 2.13 k_{inf} -Werte der metallischen Systeme

2.2.3 Überprüfung der neugerechneten Parameter durch Nachrechnung kritischer Experimente

Ziel dieser Untersuchungen ist die Validierung der neu berechneten kritischen Parameter (kritische Kugelmasse und Kugelvolumen, und infiniter Multiplikationsfaktor k_{inf}) für das GRS *Handbuch zur Kritikalität*. Die primäre Literaturquelle für kritische Experimente mit Actinoiden ist das Handbuch kritischer Experimente (ICSBEP) der OECD-NEA /NEA 24/ und die darin aufgeführten Quellen. Es wurden insgesamt sechs Experimentserien gefunden, die minore Actinoide enthalten. Die Validierung der kritischen Kurven

der majoren Actinoide Uran und Plutonium, wurde im Zuge der Erstellung der entsprechenden Kapitel des Handbuch zur Kritikalität durchgeführt. Die untersuchten Fälle sind dem Handbuch kritischer Experimente (ICSBEP) der OECD-NEA entnommen. In Tab. 2.9 sind einige Details der untersuchten Experimenterserien zusammengefasst.

Tab. 2.9 Kritische Experimenterserien zur Überprüfung der neu gerechneten Parameter

Experimenterserie	Kürzel	Fälle	Betrachtete Nuklide	Vergleichs-Größe
SPEC-MET-FAST-001	SMF-001	3	^{244}Cm , ^{239}Pu , ^{235}U	Reaktivitätsunterschied
SPEC-MET-FAST-002	SMF-002	3	^{238}Pu , ^{239}Pu	Reaktivitätsunterschied
SPEC-MET-FAST-003	SMF-003	4	^{237}Np , HEU	Reaktivitätsunterschied
SPEC-MET-FAST-008	SMF-008	1	^{237}Np	k_{eff}
SPEC-MET-FAST-011	SMF-011	1	^{237}Np	k_{eff}
SPEC-MET-FAST-014	SMF-014	1	^{237}Np	k_{eff}

2.2.3.1 Beschreibung der Experimente

Das Rechenmodell der Experimenterserien SMF-001 und SMF-002 bestehen aus der kugelförmigen Jezabel Plutoniumanordnung, die einen zentralen Hohlraum enthält. In diesen Hohlraum wird eine kugelförmige Probe, für SMF-001 gefüllt mit ^{244}Cm , ^{239}Pu , oder ^{235}U , für SMF-002 gefüllt mit ^{238}Pu oder ^{239}Pu , eingebracht, und jeweils der Reaktivitätsunterschied zur Anordnung ohne diese Probe gemessen. Für SMF-002 wird zusätzlich der Quotient der Reaktivitäten mit den zwei unterschiedlichen Proben ermittelt.

Die Experimenterserie SMF-003 besteht aus der kugelförmigen Flattop-Anordnung aus Plutonium (SMF-003-001), bzw. hochangereichertem Uran (HEU: Highly enriched Uranium, SMF-003-002), die einen zentralen Hohlraum enthält. In diesen Hohlraum wird eine kugelförmige Probe eingebracht, die mit ^{237}Np oder HEU gefüllt ist, und jeweils der Reaktivitätsunterschied zwischen diesen beiden Anordnungen mit unterschiedlichen Proben gemessen. In SMF-003-002 wird zusätzlich eine leere Probe eingebracht und der Reaktivitätsunterschied zu den anderen beiden Proben gemessen.

Bei den Experimenterserien SMF-008, SMF-011, und SMF-014 handelt es sich um die kritischen Planet Anordnung in der LACEF (*Los Alamos Critical Experiment Facility*). In diesen drei Experimenten wurde eine Neptuniumkugel von mehreren, ineinanderpassenden Halbkugeln aus hochangereichertem Uran umgeben. Bei SMF-011 wurde diese

Anordnung von einem Neutronenreflektor aus Polyethylen-Halbkugeln, bei SMF-014 aus Metall-Halbkugeln umgeben. Bei der Nachrechnung aller drei Experimente wurde jeweils das vereinfachte Modell (*simple model*) verwendet.

In Tab. 2.10 sind die in der Benchmark-Beschreibung gegebenen Werte des Reaktivitätsunterschieds Δk_{eff} , bzw. des Multiplikationsfaktors k_{eff} und deren Unsicherheiten für die Benchmark-Modelle zusammengefasst.

Weitere Details zu Geometrie und Materialien können den Experimentbeschreibungen aus /NEA 24/ entnommen werden.

2.2.3.2 Kritikalitätsrechnungen

Für die Experimentserien SMF-001, -002 und -003 wurde der Neutronenmultiplikationsfaktor k_{eff} mit der Monte Carlo Rechensequenz CSAS5, für die Experimente SMF-008 und SMF-011 mit CSAS6 des amerikanischen Codepakets SCALE in der Version 6.2.3 /REA 17/ nachgerechnet. Dabei wurde die Querschnittsbibliothek für nukleare Daten mit 252 Energiegruppen verwendet, die auf den ENDF/B-VII.1 Daten basiert. Als Abbruchkriterium der Berechnung von k_{eff} wurde eine statistische Unsicherheit von $\sigma_{k_{\text{eff}}} = 1 \times 10^{-5}$ angesetzt. Pro Generation wurden je nach Komplexität des Modells zwischen 20.000 und 50.000 Neutronen gerechnet und die ersten 150 Generationen verworfen, da diese noch eine hohe Varianz aufweisen. Für die Rechnungen wurden die in den Experimentbeschreibungen angegebenen Kernzahldichten direkt in den KENO Eingabedateien übernommen.

Die Ergebnisse der Nachrechnungen der Benchmark-Experimente sind in Tab. 2.10 wiedergegeben.

Tab. 2.10 Werte des Reaktivitätsunterschieds Δk_{eff} , bzw. des Multiplikationsfaktors k_{eff} und deren Unsicherheiten aller Experimentserien

Serie	SMF-001			SMF-002		
Experiment	001	002	003	001	002	001/002
Δk_{eff} [ϕ/g]	5,23	5,83	2,98	5,77	5,72	1,01
$\sigma_{\Delta k_{\text{eff}}}$ [%]/ ϕ/g)	5 % (0,26 ϕ/g)	3 % (0,17 ϕ/g)	2 % (0,06 ϕ/g)	0,30 ϕ/g (5 %)	0,20 ϕ/g (3 %)	0,06 ϕ/g (6 %)
Nachrechnung Δk_{eff} [ϕ/g]	4,96	5,57	3,13	5,62	5,2	1,08
Serie	SMF-003					
Experiment	001	002				
	HEU - ^{237}Np	^{237}Np - Al	HEU - ^{237}Np	HEU - Al		
Δk_{eff} [ϕ/g]	6,4	18,96	3,42	22,44		
$\sigma_{\Delta k_{\text{eff}}}$ [%] (ϕ/g)	0,4 (6 %)	0,32 (2 %)	0,39 (11 %)	0,22 (1 %)		
Nachrechnung Δk_{eff} [ϕ/g]	10,30	18,31	4,33	22,65		
Serie	SMF-008	SMF-011	SMF-014			
Experiment	001	001	001			
k_{eff}	1,0026	1,0017	0,9993			
$\sigma_{\Delta k_{\text{eff}}}$	0,0034 (0,34 %)	0,0029 (0,29 %)	0,0039 (0,39 %)			
Nachrechnung k_{eff}	0,99373	0,99451	0,99210			

Ein Vergleich der Nachrechnung mit den experimentellen Werten ist für die Experimentserien SMF-001, -002, und -003 in Abb. 2.14 gegeben. Die experimentellen Werte sind als blaue Punkte gezeigt, inkl. der experimentellen Unsicherheiten als schwarze Fehlerbalken. Die GRS Nachrechnungen mit SCALE und END/B-VII.1 Daten sind in orange gezeigt. Zusätzlich sind die in /NEA 19/ berichteten Beispielnachrechnungen durch andere Institute mit anderen Rechencodes und Querschnittsbibliotheken gezeigt (grau: MCNP, ENDF/B-V; gelb: MCNP, ENDF/B-VI, hellblau: ONEDAT, ENDF/B-IV).

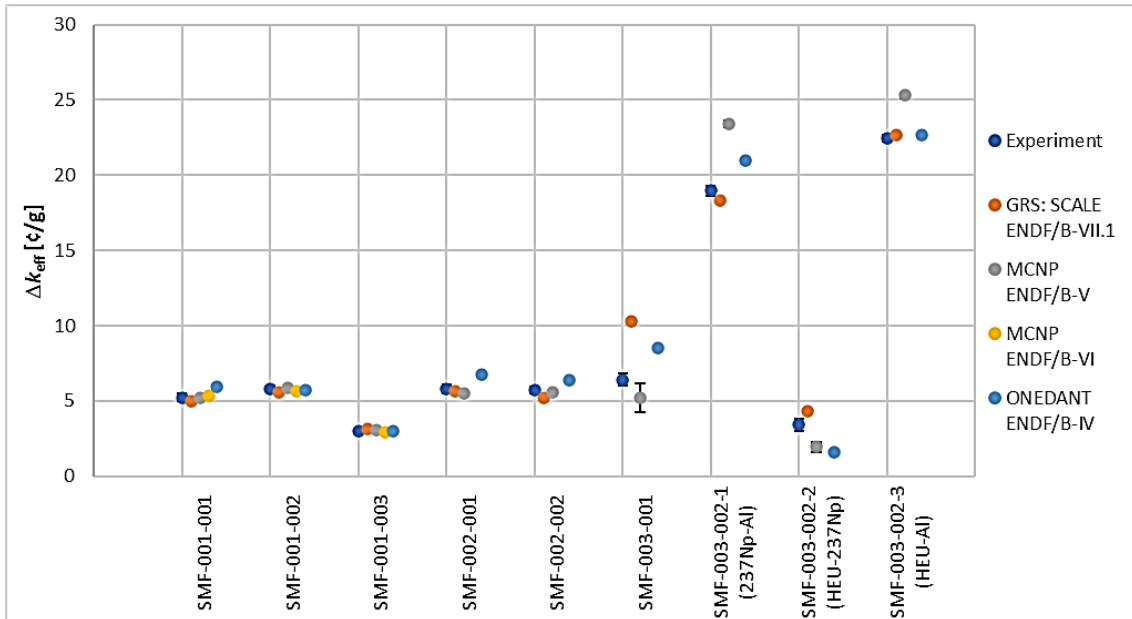


Abb. 2.14 Vergleich der berechneten Reaktivitätsunterschiede (GRS und andere Institute) mit experimentellen Werten für SMF-001, -002, und -003

Für diese Serien zeigt sich zumeist eine gute Übereinstimmung der Nachrechnungen mit den experimentellen Werten innerhalb, oder knapp außerhalb der spezifizierten experimentellen Unsicherheiten. Nur das Experiment SMF-003-001 zeigt eine größere Überschätzung von 61 % auf. Die Herkunft dieser Abweichung konnte im Rahmen der vorliegenden Arbeit nicht ermittelt werden.

Ein Vergleich der Nachrechnung mit den experimentellen Werten ist für die Experimente SMF-008, -011, und -014 in Abb. 2.15 gegeben. Die experimentellen Werte sind als blaue Punkte gezeigt, inkl. der experimentellen Unsicherheiten als schwarze Fehlerbalken. Die GRS Nachrechnungen mit SCALE und ENDF/B-VII.1 Daten sind in orange gezeigt. Zusätzlich sind die in /NEA 19/ berichteten Beispielnachrechnungen durch andere Institute mit anderen Rechencodes und Querschnittsbibliotheken gezeigt (grau: MCNP, ENDF/B-VI; gelb: MCNP, ENDF/B-V, hellblau: Apollo2-Moret4, JEF-2.2, grün: Tripoli 4, JEF-2.2).

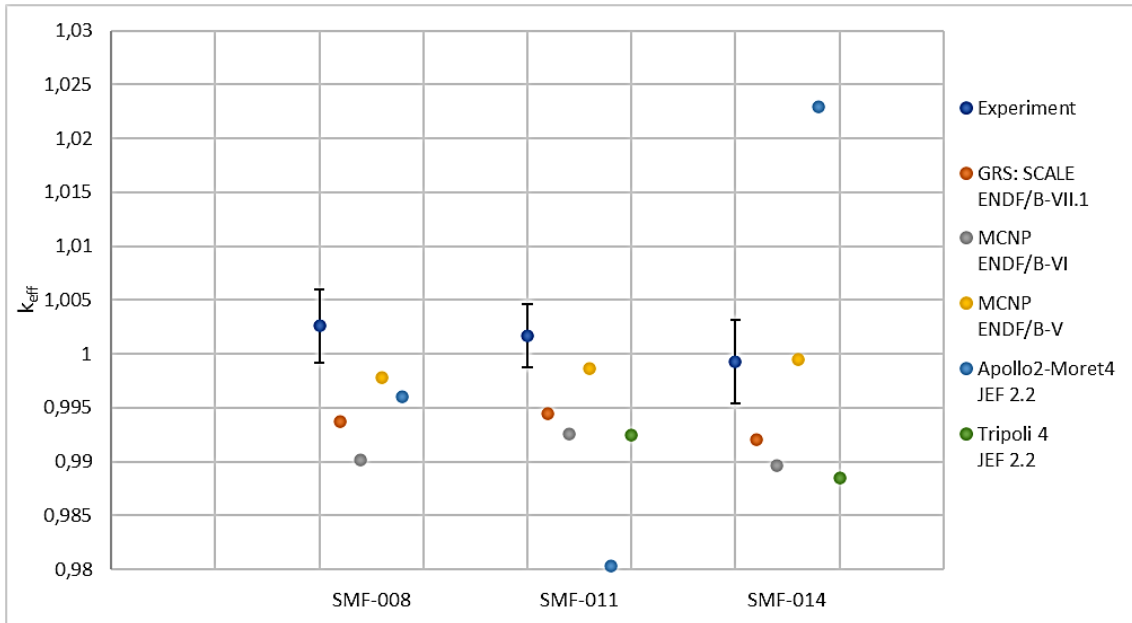


Abb. 2.15 Vergleich der berechneten k_{eff} -Werte (orange) mit experimentellen Werten (dunkelblau) und Nachrechnungen anderer Institute (grau, gelb, hellblau, grün) für die kritischen Experimente SMF-008, -011, und -014

Für diese Serien zeigt sich zwar eine konsistente Unterschätzung des k_{eff} -Werte um etwa $2\sigma_{k_{\text{eff}}}$, allerdings liegen die Werte innerhalb des Streubereichs der Rechnungen der anderen Institute. Für diese Abweichungen können mehrere Ursachen verantwortlich sein:

- Alle Nachrechnungen liefern niedrigere k_{eff} -Werte für diese ^{237}Np -Systeme, als experimentell gemessen.
- Die experimentellen Unsicherheiten sind zu niedrig angegeben.
- Alle verwendeten Rechenprogramme und Querschnittsbibliotheken führen für diese drei Experimente auf ähnliche Weise zu abweichenden Ergebnissen.

Allgemein lässt sich sagen, dass die Nachrechnung der kritischen Experimente zur Plausibilität der kritischen Parameterkurven beitragen, die Datenbasis allerdings für eine Validierung zu gering ist. Zum einen stehen nur zu einigen wenigen minoren Actinoiden Experimente zur Verfügung, zum anderen ist deren Anzahl zu gering und deckt einen zu geringen Parameterraum ab, um umfangreiche Aussagen treffen zu können.

In den folgenden Kapiteln werden daher zwei unterschiedliche Verfahren verwendet, mit denen die neu gerechneten Parameterkurven quergeprüft (Kapitel 2.2.4) und deren Unsicherheiten abgeschätzt werden können (Kapitel 2.2.5).

2.2.4 Überprüfung der kritischen Parameter durch Kontrollrechnungen

Die in Kapitel 2.2.2 mit CSAS1 aus dem SCALE Paket gerechneten kritischen Werte wurden stichprobenartig durch Kontrollrechnungen mit anderen Rechensequenzen überprüft.

Die k_{inf} -Werte der metallischen Systeme wurden für alle 45 untersuchten Nuklide mit der Rechensequenz CSAS5 aus dem SCALE Paket nachgerechnet. Dabei wurden 10.000 Neutronen pro Generation ($npg=10000$) gerechnet, die ersten 50 Neutronengenerationen verworfen ($nsk=50$) und bis zu einer Monte Carlo (MC) Unsicherheit von 1×10^{-4} gerechnet ($sig=1.0e-04$). Für die geometrische Beschreibung eines unendlich ausgedehnten Stoffs wurde ein Würfel mit Kantenlänge 200 cm mit reflektierenden Randbedingungen gewählt. Die maximale Abweichung zwischen den beiden Rechnungen liegt für alle Nuklide bei 0,015 %, außer für ^{227}Ac . Damit liegt die Abweichung in der Größenordnung der statistischen Monte-Carlo-Unsicherheit von 0,01 %. Die Abweichung zwischen den beiden Codes für ^{227}Ac liegt mit 0,10 % etwas höher. Dies ist in der Genauigkeit der Textausgabe von CSAS1 begründet, in der maximal fünf Nachkommastellen angegeben werden. Da k_{inf} für ^{227}Ac einen (tief unterkritischen) Wert von 0,00849 besitzt, werden bei fünf Nachkommastellen nur drei signifikante Stellen angegeben. Dies begründet eine maximale Genauigkeit von 0,12 %. Die beobachtete Abweichung zwischen den Rechencodes ist also konsistent mit der zu erreichenden Genauigkeit.

Für die Überprüfung der Rechnungen zur Bestimmung der kritischen Masse wurden Rechnungen mit CSAS1 und CSAS5 durchgeführt. Dabei wird der ermittelte kritische Radius (siehe Kapitel 2.2.2), aus dem zusammen mit der Dichte die kritische Masse bestimmt wird, als Eingangsgröße für die Kontrollrechnungen verwendet, und die Abweichung des berechneten effektiven Multiplikationsfaktors k_{eff} von 1 betrachtet. Es wurden dieselben Rechenparameter wie bei den vorherigen Rechnungen verwendet.

Die Rechnungen mit CSAS1 zeigen eine mittlere Abweichung von $-0,005 \% \pm 0,011 \%$, wobei die Abweichungen von $-0,04 \%$ bis $+0,03 \%$ reichen. Diese sehr geringen Abweichungen zeigen, dass die Suchsequenz von CSAS1 den kritischen Radius im Vergleich zur nominalen CSAS1 Rechnung mit hoher Präzision ermittelt.

Für die Rechnungen mit CSAS5 ergibt sich eine mittlere Abweichung von $-0,06 \% \pm 0,03 \%$, wobei die Abweichungen von $-0,14 \%$ bis $-0,01 \%$ reichen. Außerdem ist ein

Trend der Abweichung mit dem kritischen Radius auszumachen: Je kleiner der kritische Radius ist, desto größer ist die Abweichung.

Diese Abweichung ließe sich weiter reduzieren, indem bei den CSAS 1 Rechnungen der Parameter ISN von 32 auf 64 erhöht wird. Damit reduziert sich die mittlere Abweichung auf -0,038 %, auch die Standardabweichung reduziert sich auf 0,02 %, mit einem Bereich von -0,08 % bis 0,00 %. Die dadurch verdoppelte Rechenzeit ist für die Vielzahl an Rechnungen für die Bestimmung der kritischen Kurven nicht praktikabel. Außerdem liegen die Unsicherheiten der kritischen Parameter aufgrund von Unsicherheiten in den nuklearen Daten um ein Vielfaches höher, siehe Kapitel 2.2.5. Daher wurde bei der Bestimmung der kritischen Parameter auf eine durchgängige Erhöhung des Parameters ICN von 32 auf 64 verzichtet.

Abschließend ist zu sagen, dass die Abweichungen des kritischen Radius zwischen der Suchsequenz von CSAS1 und den nominellen CSAS5-Rechnungen mit max. -0,14 % gering sind. Außerdem liefern die Suchergebnisse mit CSAS1 immer konservative Werte, da die ermittelten kritischen Radien bei Verwendung von CSAS5 zu k_{eff} -Werten unter 1,0 führen.

2.2.5 Überprüfung der kritischen Parameter durch Berechnung der Unsicherheit aufgrund Unsicherheit in den nuklearen Daten

Zur weiteren Überprüfung und Einordnung der gerechneten Parameter wurde für einen Teil der Rechnungen die Unsicherheit von k_{inf} , bzw. des kritischen Radius aufgrund der Unsicherheit in den nuklearen Daten berechnet. Hierfür wurde sowohl die Rechensequenz TSUNAMI-1D, als auch die Rechensequenz TSUNAMI-3D aus dem SCALE Paket verwendet. Bei allen hier angegebenen Unsicherheiten handelt es sich um normalverteilte 1σ -Unsicherheiten.

Die k_{inf} -Werte der metallischen Systeme wurden mit TSUNAMI-1D nachgerechnet. Die resultierenden Unsicherheiten in k_{inf} reichen von 0,77 % für ^{233}U bis zu 40,38 % für ^{250}Cm , was sich aufgrund der großen Unterschiede von k_{inf} in Unsicherheiten von $0,18 \times 10^{-2} k_{\text{inf}}$ für ^{227}Ac bis $72 \times 10^{-2} k_{\text{inf}}$ für ^{248}Cf übersetzt. Tab. 2.11 zeigt die resultierenden Unsicherheiten $\sigma_{k_{\text{inf}}}$ in [% k_{inf}] (Spalte 1) und in [$1 \times 10^{-2} k_{\text{inf}}$] (Spalte 2) für alle Nuklide. Die k_{inf} -Werte mit den zugehörigen Unsicherheiten sind in Abb. 2.16 abgebildet. Ein sehr ähnliches Bild zeigt sich für die Rechnungen mit TSUNAMI-3D. Die hierbei ermittelten Unsicherheiten weichen um maximal 0,8 % von den Rechnungen mit TSUNAMI-1D ab.

Tab. 2.11 Unsicherheiten von k_{inf} und M_k aufgrund von Unsicherheiten der nuklearen Daten

Spalte	1	2	3	4	5	6	7	8
Nuklid	$\sigma_{k_{inf}}$		σ_{keff}	M_k	$M_{k, 1-\sigma_{keff}}$	$\sigma_{Mk, 1-\sigma_{keff}}$	$M_{k, 1+\sigma_{keff}}$	$\sigma_{Mk, 1+\sigma_{keff}}$
	TSUNAMI-1D		TSUNAMI-1D	CSAS1	CSAS1		CSAS1	
	[% k_{inf}]	[$1 \times 10^{-2} k_{inf}$]	[%]	[kg]	[kg]	[% M_k]	[kg]	[% M_k]
²²⁹ Th	15,34	16,46	14,97	26.978,5	3126,39	-88 %	-	-
²³² U	3,53	10,94	2,84	3,5604	3,1771	-11%	3,9029	10%
²³³ U	0,77	1,96	0,78	7,1377	6,7863	-5%	7,2286	1%
²³⁴ U	10,05	17,34	15,20	115,399	53,6937	-53%	245,1220	112%
²³⁵ U	2,37	5,39	1,09	20,662	19,2775	-7%	21,1313	2%
²³⁵ Np	9,32	24,32	18,75	6,0434	2,7555	-54%	11,8823	97%
²³⁶ Np	23,65	59,50	25,22	5,2916	1,7704	-67%	13,4035	153%
²³⁷ Np	4,62	7,94	4,20	53,6836	42,9821	-20%	65,7479	22%
²³⁶ Pu	4,27	12,90	5,35	2,4106	1,9531	-19%	2,8973	20%
²³⁷ Pu	5,08	15,15	14,29	2,3858	1,3337	-44%	3,8503	61%
²³⁸ Pu	3,83	10,93	4,09	6,7643	5,7195	-15%	7,7178	14%
²³⁹ Pu	0,84	2,50	0,56	5,2700	5,0510	-4%	5,2660	0%
²⁴⁰ Pu	7,02	15,10	4,64	34,4431	27,8619	-19%	41,4662	20%
²⁴¹ Pu	3,49	10,10	1,48	5,7072	5,2821	-7%	5,8980	3%
²⁴² Pu	4,13	7,83	3,74	65,7573	54,7219	-17%	77,4656	18%
²⁴¹ Am	7,63	14,28	5,59	63,633	47,9428	-25%	82,1354	29%
^{242m} Am	2,51	8,41	9,26	4,1245	2,8147	-32%	5,5345	34%
²⁴³ Am	10,09	16,81	9,05	136,045	83,2500	-39%	219,0400	61%

Spalte	1	2	3	4	5	6	7	8
Nuklid	σ_{kinf}		σ_{keff}	M_k	$M_{k, 1-\sigma_{\text{keff}}}$	$\sigma_{M_k, 1-\sigma_{\text{keff}}}$	$M_{k, 1+\sigma_{\text{keff}}}$	$\sigma_{M_k, 1+\sigma_{\text{keff}}}$
	TSUNAMI-1D		TSUNAMI-1D	CSAS1	CSAS1		CSAS1	
	[% k_{inf}]	[$1 \times 10^{-2} k_{\text{inf}}$]	[%]	[kg]	[kg]	[% M_k]	[kg]	[% M_k]
²⁴² Cm	5,54	17,42	5,96	10,5377	8,2806	-21%	12,8161	22%
²⁴³ Cm	2,73	9,74	3,05	2,3952	2,1031	-12%	2,6114	9%
²⁴⁴ Cm	6,98	17,81	6,66	22,0096	16,6445	-24%	28,1838	28%
²⁴⁵ Cm	3,53	12,47	3,57	3,7270	3,1944	-14%	4,1140	10%
²⁴⁶ Cm	6,38	13,70	5,57	71,9157	55,7635	-22%	90,2673	26%
²⁴⁷ Cm	3,83	15,15	3,98	3,0012	2,6192	-13%	3,4292	14%
²⁴⁸ Cm	5,85	12,95	6,04	77,2328	58,7711	-24%	98,7092	28%
²⁵⁰ Cm	40,38	49,96	42,86	1736,82	66,2092	-96%	-	-
²⁴⁷ Bk	25,13	34,32	23,64	309,985	62,7533	-80%	2840,9800	816%
²⁴⁸ Bk	12,37	43,02	17,26	4,1693	2,1359	-49%	7,2019	73%
²⁴⁹ Bk	15,77	24,37	14,15	148,065	64,3999	-57%	352,9400	138%
²⁴⁹ Cf	3,68	15,00	2,72	2,2911	2,0257	-12%	2,4289	6%
²⁵⁰ Cf	22,71	58,63	29,13	16,7997	4,4929	-73%	49,9536	197%
²⁵¹ Cf	12,78	51,50	24,17	4,4783	1,7731	-60%	9,2273	106%
²⁵² Cf	7,49	32,17	7,70	1,8534	1,3881	-25%	2,3398	26%
²⁵⁴ Cf	10,34	41,85	24,73	4,5942	1,7623	-62%	10,0082	118%
²⁵² Es	8,38	36,79	15,07	2,1252	1,1887	-44%	3,3868	59%
²⁵⁴ Es	8,37	35,25	9,84	2,9774	1,9958	-33%	4,0234	35%
²²⁷ Ac	21,31	0,18	-	-	-	-	-	-

Spalte	1	2	3	4	5	6	7	8
Nuklid	σ_{kinf}		σ_{keff}	M_k	$M_{k, 1-\sigma_{\text{keff}}}$	$\sigma_{Mk, 1-\sigma_{\text{keff}}}$	$M_{k, 1+\sigma_{\text{keff}}}$	$\sigma_{Mk, 1+\sigma_{\text{keff}}}$
	TSUNAMI-1D		TSUNAMI-1D	CSAS1	CSAS1		CSAS1	
	[% k_{inf}]	[$1 \times 10^{-2} k_{\text{inf}}$]	[%]	[kg]	[kg]	[% M_k]	[kg]	[% M_k]
²²⁸ Th	19,57	7,06	-	-	-	-	-	-
²³⁰ Th	13,00	2,58	-	-	-	-	-	-
²³² Th	11,63	0,71	-	-	-	-	-	-
²³¹ Pa	20,94	19,31	-	-	-	-	-	-
²³⁶ U	21,19	15,05	-	-	-	-	-	-
²³⁸ U	17,42	5,33	-	-	-	-	-	-
²⁴⁴ Pu	7,31	12,62	5,49	103,127	77,6485	-25%	134,9240	31%
²⁴⁸ Cf	23,22	71,79	32,95	13,8153	3,2088	-77%	42,9902	211%

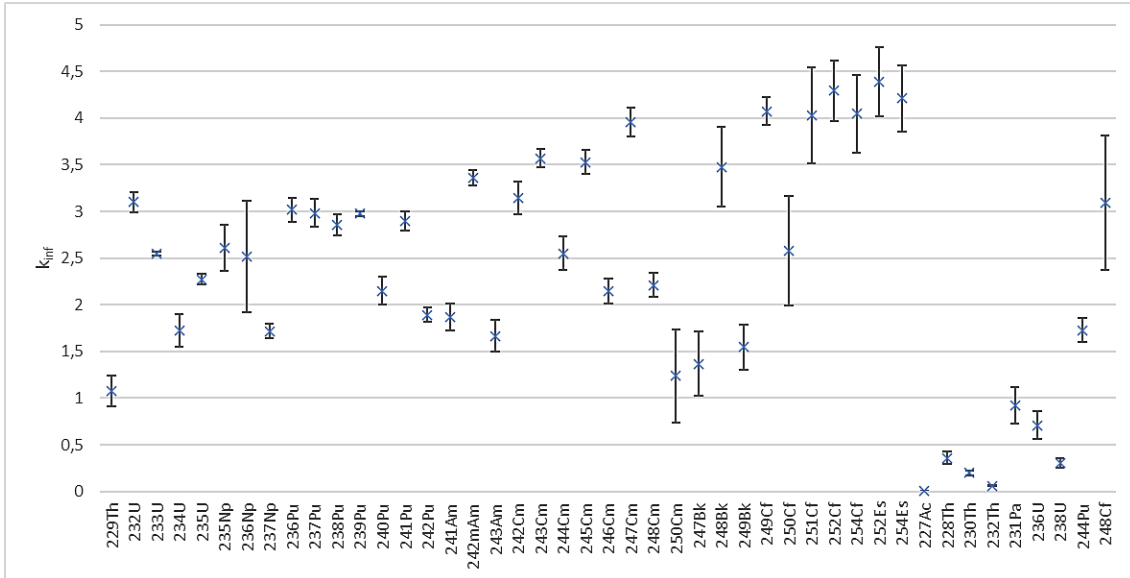


Abb. 2.16 k_{inf} -Werte der metallischen Systeme mit Unsicherheiten aufgrund von Unsicherheiten der nuklearen Daten, ermittelt mit TSUNAMI-1D

Für die Bestimmung der Unsicherheiten der kritischen Masse der metallischen Systeme mit H_2O -Reflektor wurden Rechnungen mit TSUNAMI-1D durchgeführt. Dabei wird in zwei Schritten vorgegangen. Im ersten Schritt wird für jedes Nuklid die Unsicherheit von k_{eff} aufgrund der Unsicherheiten in den nuklearen Daten um $k_{eff}=1$ bestimmt. Diese reichen von 0,56 % für ^{239}Pu bis 42,84 % für ^{250}Cm . Die Unsicherheiten für alle 38 berechnete Nuklide sind in Tab. 2.11 in Spalte 3 wiedergegeben. Es können nur Werte für Nuklide angegeben werden, die zu einer kritischen Anordnung führen. Da k_{eff} für diese Fälle sehr nahe an 1 liegt, entspricht die Unsicherheit in [% k_{inf}] der Unsicherheit in [$1 \times 10^{-2} k_{inf}$].

Aus diesen Unsicherheiten werden im zweiten Schritt die Unsicherheiten der kritischen Massen abgeschätzt. Dafür werden für jedes Nuklid zwei weitere Rechnungen mit CSAS1 im Zonensuchmodus durchgeführt, um den kritischen Radius, und damit die kritische Masse, für $k_{eff} = 1$ konservativ minus bzw. plus der Unsicherheit von k_{eff} aufgrund der Unsicherheiten der nuklearen Daten zu bestimmen ($k_{eff} = 1 - \sigma_{k_{eff},ND}$, bzw. $k_{eff} = 1 + \sigma_{k_{eff},ND}$).

Die so abgeschätzten Unsicherheiten der kritischen Massen besitzen teils erhebliche Spannen von bis zu -80 % bis +816 % für ^{247}Bk . In Tab. 2.11 ist in Spalte 4 nochmals die kritischen Massen aus der Nominalrechnung wiedergegeben (siehe Tab. 2.8, Spalte 5). Spalte 5 zeigt die kritischen Massen für $k_{eff} = 1 - \sigma_{k_{eff},ND}$ in [kg] und Spalte 6 in [% M_k]. In den Spalten 7 und 8 sind diese Werte für $k_{eff} = 1 + \sigma_{k_{eff},ND}$ wiedergegeben. Für ^{229}Th und ^{250}Cm wird das System nicht mehr kritisch, und es kann keine kritische Masse

angegeben. In Abb. 2.17 ist für alle Nuklide die kritische Masse inkl. Unsicherheiten aufgrund von Unsicherheiten der nuklearen Daten gezeigt.

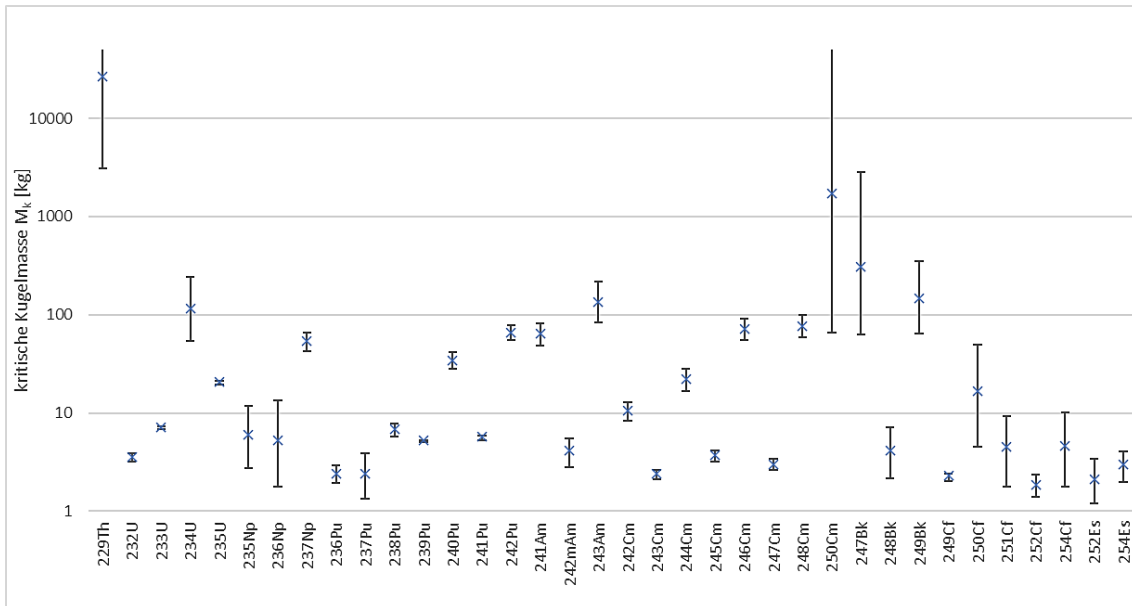


Abb. 2.17 Kritische Kugelmasse M_k [kg] der metallischen Systeme mit abgeschätzten Unsicherheiten aufgrund von Unsicherheiten der nuklearen Daten

2.2.6 Vergleich der kritischen Parameter mit historischen Daten

Die neu gerechneten kritischen Parameter von Actinoiden wurden mit den bislang im *Handbuch zur Kritikalität* dokumentierten historischen Daten verglichen. Bei den historischen Rechnungen ist nur eine begrenzte Anzahl an Nukliden vorhanden (siehe Kapitel 2.2.1). Für den Vergleich wurden die prozentualen relativen Abweichungen zwischen Neu- und Altrechnung entsprechend nachfolgender Relation ermittelt:

$$\text{Relative Abweichung (\%)} = 100 \times (\text{Wert}_{\text{neu}} - \text{Wert}_{\text{alt}}) / \text{Wert}_{\text{alt}}$$

Abweichungen größer als 10 % sind im Folgenden gelb hinterlegt, Abweichungen größer 20 % sind rot hinterlegt.

Während die neuen Rechnungen im Jahr 2024 mit der Version 6.2.3 des Kritikalitäts-codes SCALE und der Wirkungsquerschnittsbibliothek basierend auf ENDF/B-VII.1-Daten mit 252 Energiegruppen durchgeführt wurden, ist nicht mehr nachvollziehbar, wie die historischen Daten erzeugt wurden, da diese aus den diversen Quellen zusammengetragen wurden, die darauf nicht näher eingehen.

In Tab. 2.12 bis Tab. 2.14 sind die kritischen Kugelmassen M_k jeweils für das thermische System mit H₂O Reflektor, das unmoderierte metallische System ohne Reflektor, und die beiden unmoderierten metallischen Systeme mit H₂O, bzw. Stahl-Reflektor wiedergegeben.

Tab. 2.12 Vergleich der kritischen Kugelmassen für das thermische System mit H₂O Reflektor

	Thermisches System, H2O-Reflektor		
Nuklid	GRS alt	GRS neu	Abweichung
²³⁹ Pu	0,510	0,510	0%
²⁴¹ Pu	0,260	0,278	7%
^{242m} Am	0,023	0,023	1%
²⁴³ Cm	0,213	0,219	3%
²⁴⁵ Cm	0,042	0,064	53%
²⁴⁷ Cm	0,159	1,249	685%
²⁴⁹ Cf	0,032	0,064	99%
²⁵¹ Cf	0,010	0,030	200%

Tab. 2.13 Vergleich der kritischen Kugelmassen für das unmoderierte metallische System ohne Reflektor

Nuklid	Unmoderierte Metallkugel, ohne Reflektor		
	GRS alt	GRS neu	Abweichung
²³⁷ Np	60	59,03	-2%
²³⁸ Pu	7,2	8,22	14%
²³⁹ Pu	10,0	9,93	-1%
²⁴⁰ Pu	158,7	38,70	-76%
²⁴¹ Pu	12,18	12,72	4%
²⁴¹ Am	113,5	70,90	-38%
^{242m} Am	17,65	11,59	-34%
²⁴³ Cm	8,10	5,95	-27%
²⁴⁴ Cm	23,2	26,93	16%
²⁴⁵ Cm	12,28	11,79	-4%
²⁴⁷ Cm	7,87	7,45	-5%
²³⁷ Np	60	59,03	-2%

Tab. 2.14 Vergleich der kritischen Kugelmassen für die unmoderierten metallischen Systeme mit H₂O und Stahl-Reflektor

Nuklid	Unmoderierte Metallkugel, H ₂ O-Reflektor			Unmoderierte Metallkugel, Stahl-Reflektor		
	GRS alt	GRS neu	Abweichung	GRS alt	GRS neu	Abweichung
²³⁷ Np	64,9	54,21	-16%	43,1	35,54	-18%
²³⁸ Pu	5,6	6,87	23%	4,5	4,53	1%
²³⁹ Pu	5,42	5,39	0%	4,45	4,78	7%
²⁴⁰ Pu	148,4	34,82	-77%	96,4	22,05	-77%
²⁴¹ Pu	5,9	5,85	-1%			
²⁴¹ Am	105,3	64,37	-39%	71,4	42,22	-41%
^{242m} Am	3,8	4,29	13%			
²⁴⁴ Cm	22,0	22,319	1%	14,2	13,99	-1%

Es zeigen sich teils deutliche Abweichungen zwischen den alten Werten und den neu berechneten Größen. Die genaue Ermittlung der Herkunft der Unterschiede ist nicht möglich, da diese, wie erwähnt, aus unterschiedlichen Quellen stammen, in denen zum großen Teil nicht dokumentiert ist, wie die jeweiligen Werte ermittelt wurden. Zwischen den unterschiedlichen Systemen (z. B. schnelle Systeme, unterschiedliche Reflektoren) zeigen sich teils sehr ähnliche Abweichungen zwischen den alten und den neuen Werten. So wird, für z. B. ^{240}Pu , für alle betrachteten (schnellen) Systeme eine kritische Masse neu berechnet, die knapp 80 % unter der ursprünglich dokumentierten Masse liegt. Für thermische Systeme liegen die neuen Werte ausschließlich über den alten Werten. Damit ist die Verwendung der alten Werte konservativ.

2.2.7 Vergleich der kritischen Parameter mit aktuellen internationalen Werten

Die neu gerechneten kritischen Parameter von Actinoiden wurden mit den in /LAV 04/ dokumentierten Werten verglichen. In diesem Dokument wurden die Arbeiten verschiedener internationaler Arbeitsgruppen zur Bewertung von Grenzwerten kritischer Parameter von Actinoiden im Rahmen der Erstellung von Transportregularien zusammengefasst. Die in diesem Dokument dokumentierten kritischen Werte decken fast alle der Nuklide ab, die im Rahmen der aktuellen GRS-Rechnungen berücksichtigt wurden.

Für den Vergleich wurden die prozentualen relativen Abweichungen zwischen Neu- und Altrechnung entsprechend nachfolgender Relation ermittelt:

$$\text{Relative Abweichung (\%)} = 100 \times (\text{Wert}_{\text{GRS}} - \text{Wert}_{\text{LAV 04}}) / \text{Wert}_{\text{LAV 04}}$$

Während die neuen Rechnungen aus 2024 mit der Version 6.2.3 des Kritikalitätscodes SCALE und der Wirkungsquerschnittsbibliothek basierend auf ENDF/B-VII.1-Daten mit 252 Energiegruppen durchgeführt wurden, wurden die internationalen Vergleichswerte wurden mit unterschiedlichen Rechencodes bzw. Querschnittsbibliotheken durchgeführt, folgende Paarungen kamen dabei zum Einsatz:

- SCALE 4.4, CSAS1X, ENDF/B-V (238 Energiegruppen)
- MCNP4C2, ENDL-92
- MCNP4C2, ENDL-VI
- MCNP, JENDL-3.2

- MCNP, JENDL-3.3
- MCNP, ENDF/B-VI.8
- APOLLO2-Sn (CRISTAL V0.1), JEF2.2 (172 Energiegruppen)
- TRIPOLI4.1, JEF2.2

Dabei kamen für einzelne Nuklide unterschiedliche Rechencodes bzw. Querschnittsbibliotheken zum Einsatz, die zu teilweise beträchtlichen Unterschieden in den berechneten Werten führten. Für den Vergleich mit den neu gerechneten Werten wurde jeweils, soweit vorhanden, die Rechnung mit der neuesten ENDF/B Querschnittsbibliothek verwendet.

In Tab. 2.15 sind die in Tab. 2.8 wiedergegebenen Werte von k_{inf} der neuen Rechnungen wiederholt, und mit den Daten in /LAV 04/ verglichen. Für die Nuklide ^{244}Pu , ^{250}Cm , $^{247,248}\text{Bk}$, $^{248,254}\text{Cf}$, $^{252,254}\text{Es}$, ^{227}Ac , und $^{228,230,232}\text{Th}$ sind in den Vergleichswerten keine Daten vorhanden. Abweichungen größer als 10 % sind gelb hinterlegt, Abweichungen größer 20 % sind rot hinterlegt. Um diese Abweichungen zusätzlich einschätzen zu können, ist in der letzten Spalte markiert, ob sich die in /LAV 04/ angegebenen Werte innerhalb der Unsicherheiten der k_{inf} -Werte aufgrund der Unsicherheiten der nuklearen Daten befindet. Signifikante Abweichungen außerhalb dieser Unsicherheiten ergeben sich nur für die beiden Nuklide ^{235}Np (-26,08 %) und ^{242}Cm (-49,51 %).

Tab. 2.15 Vergleich von k_{inf} der Actinoide mit Vergleichsdaten aus /LAV 04/

Nuklid	k_{inf}		Abweichung	/LAV 04/ innerhalb der Unsicherheit (Abw. außerhalb der Unsicherheit)
	GRS	/LAV 04/	[%]	
229Th	1,07419	0,95	13,07 %	x
232U	3,10202	3,08	0,71 %	x
233U	2,55203	2,56	-0,31 %	x
234U	1,72669	1,52	13,60 %	! (-2,13 %)
235U	2,27657	2,28	-0,15 %	x
235Np	2,61063	1,75	49,18 %	- (-26,08 %)
236Np	2,51688	2,89	-12,91 %	x
237Np	1,71949	1,7	1,15 %	x
236Pu	3,02106	2,87	5,26 %	x
237Pu	2,98527	3,05	-2,12 %	x
238Pu	2,85750	2,76	3,53 %	x

Nuklid	kinf		Abweichung	/LAV 04/ innerhalb der Unsicherheit (Abw. außerhalb der Unsicherheit)
	GRS	/LAV 04/	[%]	
239Pu	2,97869	2,99	-0,38 %	x
240Pu	2,15272	2,27	-5,17 %	x
241Pu	2,89850	2,9	-0,05 %	x
242Pu	1,89468	1,87	1,32 %	x
241Am	1,87249	2	-6,38 %	x
242mAm	3,36188	3,55	-5,30 %	█ (-3,01 %)
243Am	1,66786	1,69	-1,31 %	x
242Cm	3,14494	1,5	109,66 %	█ (-49,51 %)
243Cm	3,57036	3,58	-0,27 %	x
244Cm	2,55465	2,64	-3,23 %	x
245Cm	3,53260	3,69	-4,27 %	█ (0,89 %)
246Cm	2,14916	2,4	-10,45 %	x
247Cm	3,95992	3,79	4,48 %	x
248Cm	2,21476	2,56	-13,49 %	x
249Bk	1,54649	1,54	0,42 %	x
249Cf	4,07577	4,04	0,89 %	x
250Cf	2,58416	3,67	-29,59 %	x
251Cf	4,03304	4,32	-6,64 %	x
252Cf	4,29722	3,63	18,38 %	x
231Pa	0,92324	0,94	-1,78 %	x
236U	0,71101	0,74	-3,92 %	x
238U	0,30616	0,34	-9,95 %	x

2.3 Kritische Parameterkurven von Uransilizid (U₃Si₂)

Aufgrund des Ausstiegs aus der kommerziellen Nutzung der Kernenergie zur Elektrizitätsgewinnung in Deutschland einerseits und dem Weiterbetrieb von Forschungsreaktoren wie des FRM II in München, des TRIGA Mark II Reaktor in Mainz sowie von vier Unterrichtsreaktoren andererseits, rücken die in Forschungsreaktoren zum Einsatz kommenden Spaltstoff-Systeme verstärkt in den Fokus der öffentlichen Diskussion. Zudem sind die in Forschungsreaktoren verwendeten, bzw. hierfür im Gespräch befindlichen Kernbrennstoffe ähnlich zu den sog. *Accident Tolerant Fuels* (ATFs), deren Einsatz als besonders unfallresistente Kernbrennstoffe auch für den Einsatz in kommerziellen Kernreaktoren im Ausland untersucht wird.

Ein Spaltstoff, der sowohl für den Einsatz in Forschungsreaktoren als auch im Zuge von ATFs diskutiert wird, ist Uransilizid (U_3Si_2). Uransilizid besitzt eine theoretische Dichte von $12,2 \text{ g/cm}^3$, was einer maximalen Urandichte von $11,3 \text{ g/cm}^3$ entspricht /IAEA 16/. Aufgrund der höheren Gesamtdichte und des vorteilhafteren stöchiometrischen Verhältnisses, liegt die Schwermetалldichte 18 % über der von UO_2 . In der technischen Anwendung hat sich gezeigt, dass es für die Bestrahlungsleistung von Vorteil ist, wenn der Siliziumgehalt etwas höher ist, als dies für stöchiometrisches U_3Si_2 erforderlich ist. Daher wurde der Siliziumgehalt bei der Berechnung der kritischen Kurven auf die üblicherweise verwendeten 7,5 Gew.% festgelegt /HUE 20/. Weitere Details zur Herstellung und Verarbeitung von Uransilizid und einige sicherheitstechnische Abwägungen findet sich in Kapitel 4.2.

2.3.1 Berechnung der kritischen Parameterkurven

Für die Berechnungen des Multiplikationsfaktors eines unendlich ausgedehnten Systems (k_{inf}) und der kritischen Parameter (Masse M_k , Volumen V_k , Zylinderdurchmesser D_k , Schichtdicke S_k) kam die Programmsequenz CSAS1 des vom Oak Ridge National Laboratory entwickelten Programmsystems SCALE 6.2.3 /REA 17/ zum Einsatz. Es wurde die im SCALE-Paket enthaltene und auf den ENDF/B-VII.1-Daten basierende 252-Gruppen-Wirkungsquerschnittsbibliothek /CHA 11/ verwendet. Im Zonensuchmodus des S_N -Verfahrens (Methode der diskreten Ordinaten) wurden die kritischen Parameter der Spaltstoffsysteme in Abhängigkeit von der Urankonzentration in der Lösung ermittelt. Dabei kam jeweils die Methode der Restwasserauffüllung zur Anwendung, indem die Konzentration des Spaltstoffs variiert wurde, das restliche Volumen mit H_2O aufgefüllt wurde, und die jeweiligen kritischen Werte ermittelt wurden. Die Lösungssysteme sind bei den Rechnungen vollständig reflektiert (30 cm H_2O -Reflektor). Aus den berechneten Daten wurden außerdem die kleinsten kritischen Urankonzentrationen und das maximale k_{inf} in Abhängigkeit der Anreicherung extrahiert und grafisch dargestellt.

Es wurden folgende Anreicherungen gerechnet: 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 15, 20, 25, 50, 75, 93 und 100 Gew.% ^{235}U . Abb. 2.18 zeigt beispielhaft den infiniten Multiplikationsfaktor und Abb. 2.19 die kritische Kugelmasse für die untersuchten Anreicherungen. Die kritische Kugelmasse gibt an, ab welcher Masse ein System in Kugelgeometrie bei gegebener Schwermetallkonzentration des Systems kritisch wird. Alle neu gerechneten Kurven werden in die aktuelle Veröffentlichung des *Handbuch zur Kritikalität* und in die digitale Version des Handbuchs übernommen /GRS 25b/.

01.12.2024

U235-SIL-HOM

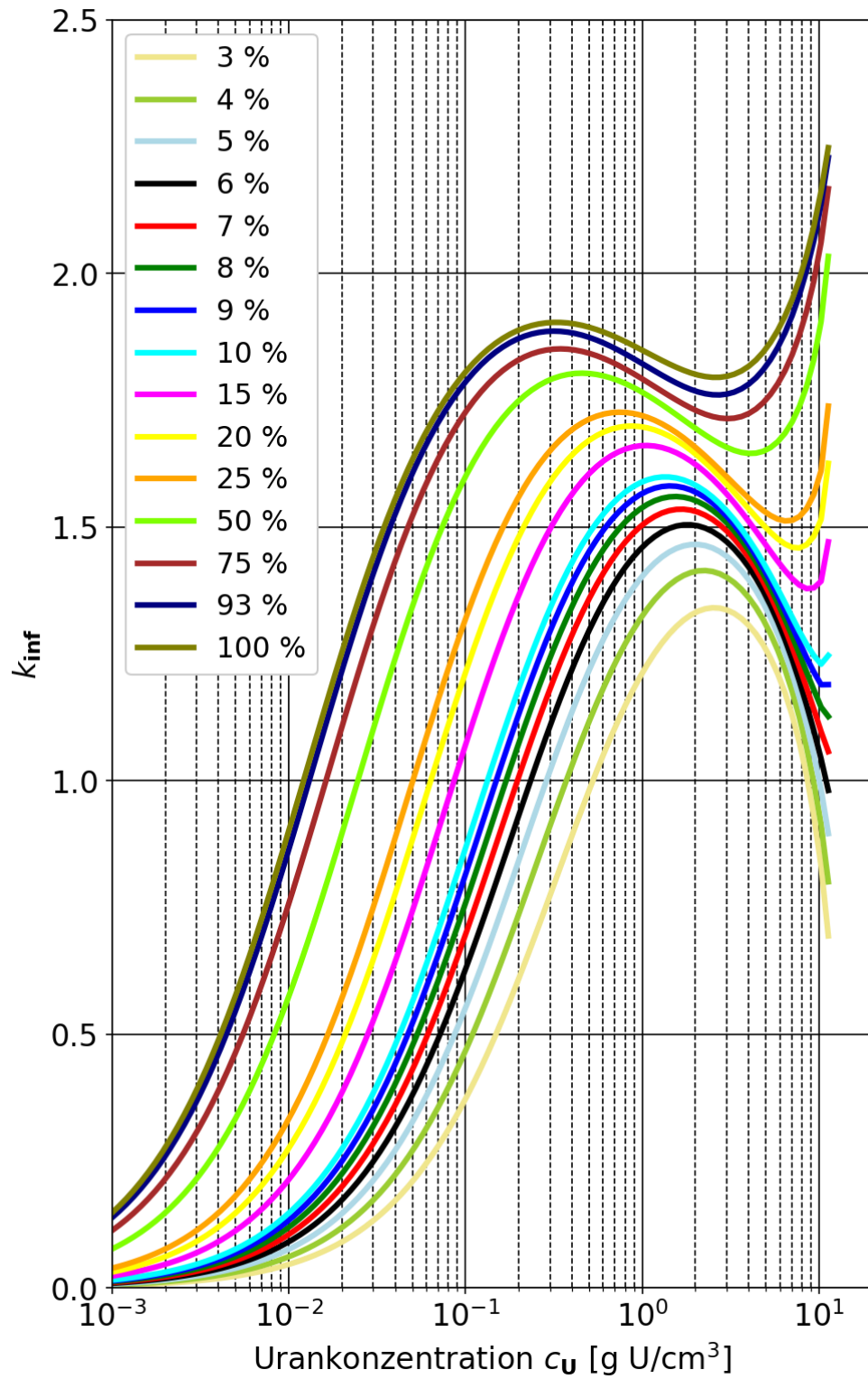


Abb. 2.18 Infiniter Multiplikationsfaktor k_{inf} für homogene Uransilizid-Wasser-Gemische

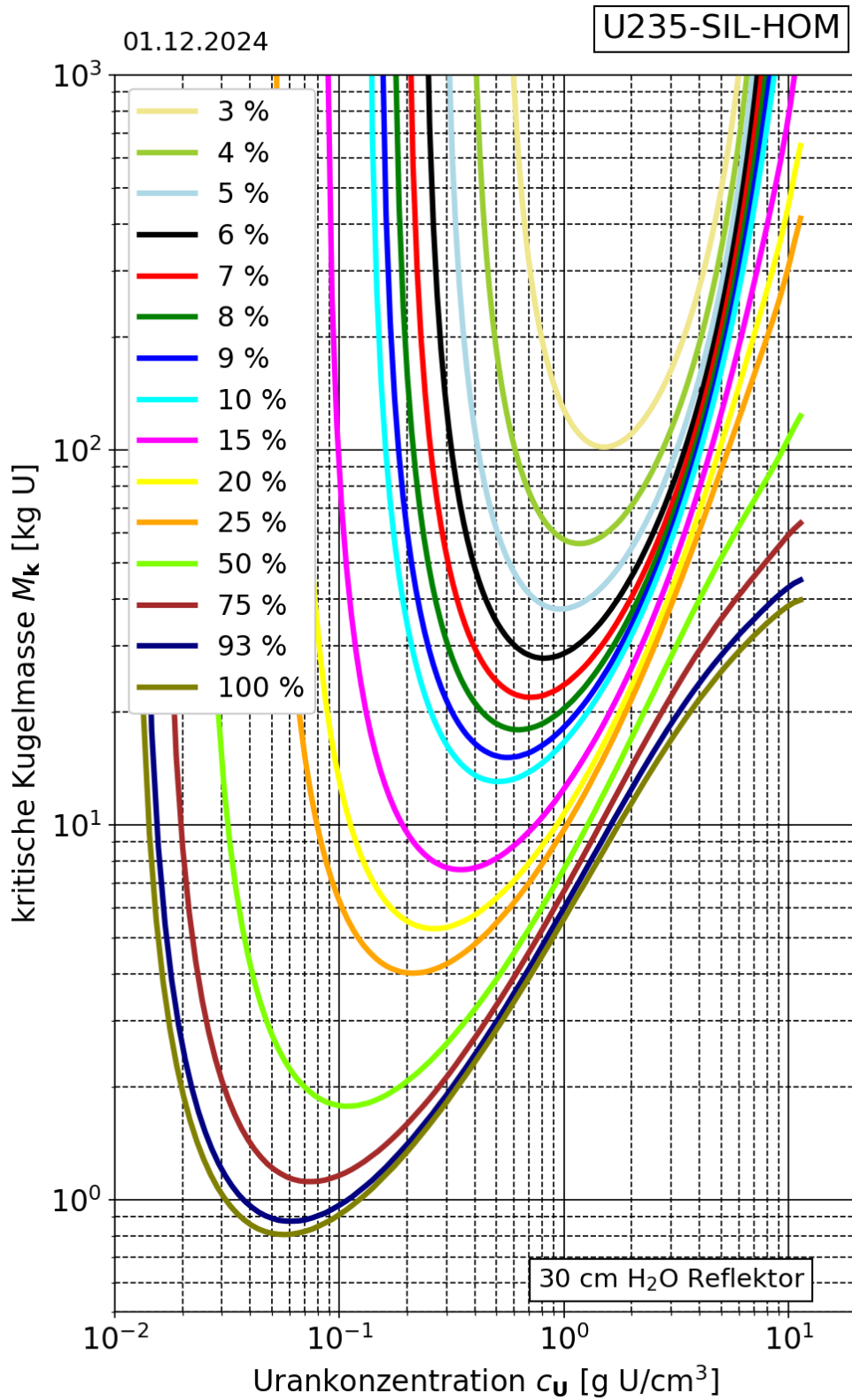


Abb. 2.19 Kritische Kugelmasse für homogene Uransilizid-Wasser-Gemische

2.3.2 Überprüfung der kritischen Parameterkurven durch Berechnung der Unsicherheit aufgrund Unsicherheit in den nuklearen Daten

Zur Überprüfung der gerechneten kritischen Parameter wurden für die Maxima der Kurven von k_{inf} und die Minima der Kurven M_k , V_k , D_k und S_k für alle gerechneten Anreicherungen Unsicherheitsanalysen aufgrund der Unsicherheit der nuklearen Daten durchgeführt. Hierfür wurde die Rechengesequenz TSUNAMI-1D aus dem SCALE 6.2.3 Paket verwendet. Bei allen hier angegebenen Unsicherheiten handelt es sich um normalverteilte 1σ -Unsicherheiten.

In Abb. 2.20 ist die Unsicherheit von k_{inf} für die Kurvenmaxima von Uransilizid in Abhängigkeit der Anreicherung gezeigt. Für Anreicherungen größer 20 Gew.% liegt diese um etwa 750 pcm¹. Bei höheren Anreicherungen macht sie einen Sprung auf über 5.000 pcm, was immerhin 5 % k_{inf} entspricht. Aus der Darstellung von k_{inf} in Abb. 2.18 ist ersichtlich, dass das Maximum der Kurven bis 20 Gew.% im Konzentrationsbereich mit thermischem Spektrum liegt. Für höhere Anreicherungen liegt das Maximum der Kurven jeweils beim letzten Datenpunkt ohne Moderation, also beim metallischen System mit schnellem Spektrum. Dieser grundlegende Unterschied der Kurven kann den deutlichen Unterschied der Unsicherheiten erklären.

¹ pcm (prozent mille \triangleq ein Tausendstel eines Prozents) wird in diesem Dokument synonym verwendet mit $10^{-5} k_{\text{eff}}$

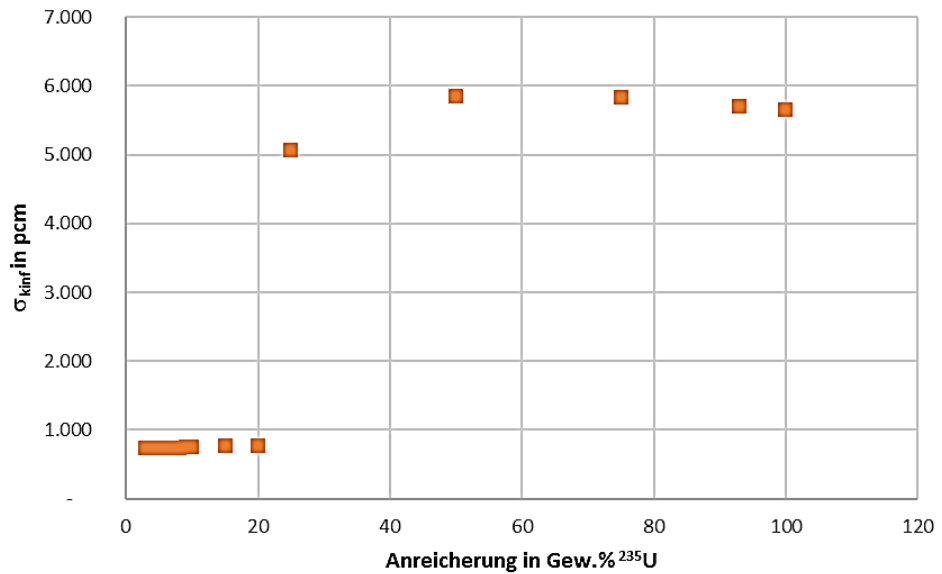


Abb. 2.20 Unsicherheit von k_{inf} aufgrund von Unsicherheiten in den nuklearen Daten für die Kurvenmaxima von Uransilizid

Außerdem wird die Unsicherheiten der vier kritischen Parameterkurven (M_k , V_k , D_k und S_k) an ihren jeweiligen Minima abgeschätzt. Dabei wird in zwei Schritten vorgegangen. Im ersten Schritt wird für jeden Parameter und jede Anreicherung die Unsicherheit von k_{eff} aufgrund der Unsicherheiten in den nuklearen Daten um $k_{eff}=1$ bestimmt. Der Verlauf der Unsicherheiten ist in Abb. 2.21 gezeigt.

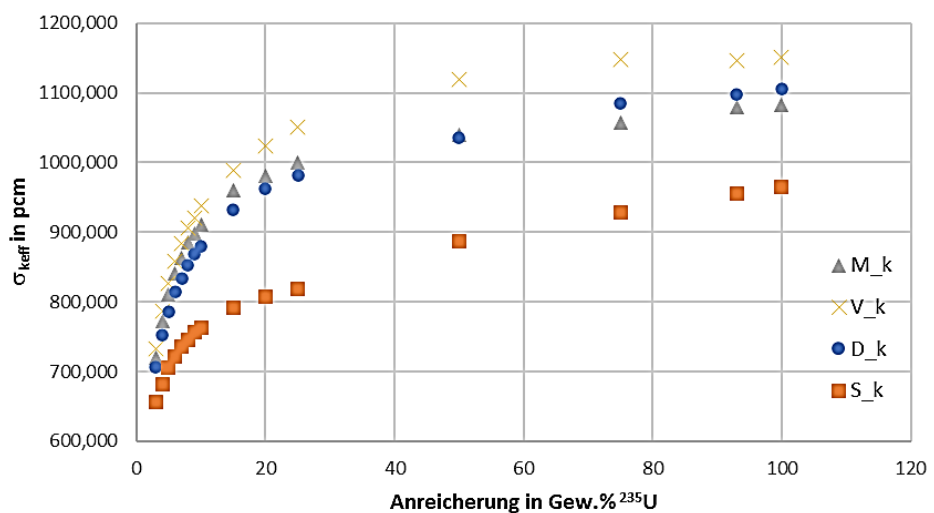


Abb. 2.21 Unsicherheit von k_{eff} für die Kurvenminima der vier kritischen Parameter (M_k , V_k , D_k und S_k) aufgrund von Unsicherheiten in den nuklearen Daten für Uransilizid

Die Abbildung zeigt, dass für alle kritischen Parameter die Unsicherheiten mit zunehmender Anreicherung ansteigen. Dies kann neben der unterschiedlichen Gewichtung der Unsicherheiten der Isotope aufgrund der unterschiedlichen Materialzusammensetzung, auch durch das unterschiedliche Neutronenspektrum bedingt sein, da die verschiedenen Minima der Kurven bei unterschiedlichen Urankonzentrationen auftreten.

Aus diesen Unsicherheiten werden im zweiten Schritt die Unsicherheiten der kritischen Parameter abgeschätzt. Dafür werden für jeden Parameter und jede Anreicherung zwei weitere Rechnungen mit CSAS1 im Zonensuchmodus durchgeführt, um den jeweiligen kritischen Wert für $k_{\text{eff}} = 1$ minus, bzw. plus der im ersten Schritt ermittelten Unsicherheit von k_{eff} aufgrund der Unsicherheiten der nukleare Daten zu bestimmen ($k_{\text{eff}} = 1 - \sigma_{k_{\text{eff},ND}}$, bzw. $k_{\text{eff}} = 1 + \sigma_{k_{\text{eff},ND}}$). Durch Teilen der Differenz dieser Zwei Rechnungen durch zwei erhält man die Unsicherheit der kritischen Größen aufgrund der Unsicherheit der nuklearen Daten abschätzen. In Abb. 2.22 sind diese Unsicherheiten aufgrund von Unsicherheiten der nuklearen Daten für alle vier Parameter für alle gerechneten Anreicherungen gezeigt.

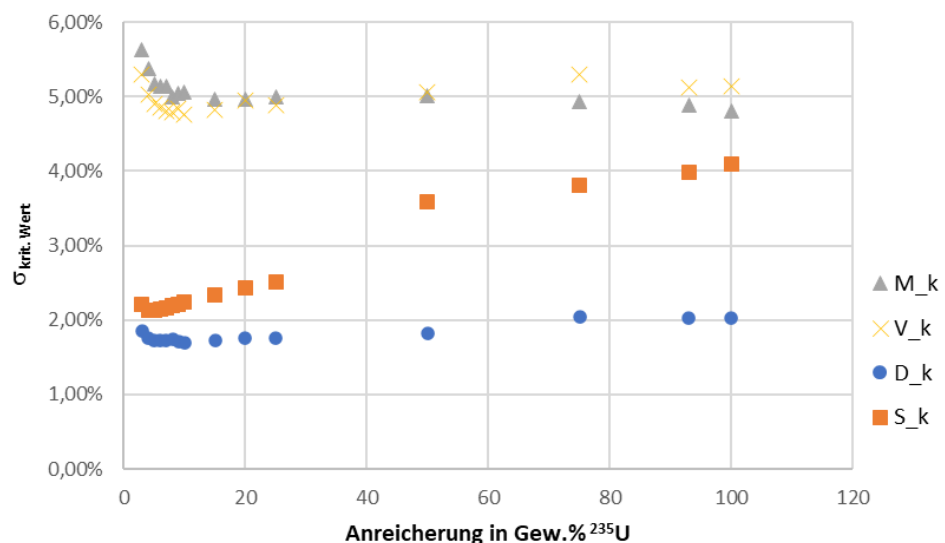


Abb. 2.22 Unsicherheiten der vier kritischen Parameter (M_k , V_k , D_k und S_k) aufgrund von Unsicherheiten in den nuklearen Daten für Uransilizid

Während der kritische Zylinderdurchmesser D_k mit Unsicherheiten unter 2 % die kleinsten Werte aufweist, ergibt sich für die kritische Kugelmasse M_k und das kritische Volumen V_k Werte von etwa 5 % über den gesamten Anreicherungsbereich. Dabei verlaufen die Unsicherheiten von M_k und V_k quasi parallel. Dies ist nicht weiter verwunderlich, da die kritischen Massen für Kugelvolumina berechnet werden. Die geringfügigen

Unterschiede ergeben sich, da die kritischen Kurven für M_k ihre Minima bei anderen Konzentrationen im Vergleich zu V_k besitzen.

2.3.3 Validierung der kritischen Parameterkurven mittels Experimentnachrechnungen

Die Rechnungen der kritischen Parameterkurven sollen für ausgewählt Fälle durch Nachrechnungen von kritischen Experimenten validiert werden. Dafür werden die Minima der Kurven der kritischen Masse für die drei Anreicherungen 3 Gew.%, 20 Gew.% und 93 Gew.% ^{235}U ausgewählt, im Folgenden Anwendungsfälle genannt.

In einem ersten Schritt wird über den Korrelationsparameter c_k , der mit TSUNAMI aus dem SCALE 6.2.3 Pakete berechnet wird, ermittelt, ob sich die Experimente und die Anwendungsfälle ähneln. c_k gibt an, inwieweit k_{eff} von zwei Systemen ähnlich auf die Unsicherheiten der nuklearen Wirkungsquerschnitte und die energieabhängigen Sensitivitäten reagiert.

Die Experimente werden aus dem ICSBEP Handbuch entnommen, in dem über 5.000 Experimente dokumentiert sind. In der GRS stand zum Zeitpunkt der Berichtserstellung eine Validierungsdatenbank von insg. 581 kritischen Experimenten aus 64 Serien zur Verfügung, die für die Berechnung mit Wirkungsquerschnittsdatenbanken in Gruppenstruktur geeignet sind. Bei den Arbeiten hat sich gezeigt, dass die Eingabedateien für TSUNAMI bei Verwendung der SCALE-Version 6.2.3 teilweise angepasst werden mussten. Für 39 Experimente war diese Anpassung aufgrund von notwendigen umfangreichen Anpassungen der Modellgeometrie im Rahmen dieses Projekts nicht möglich. Demnach stehen für die hier durchgeführte Validierung 542 Experimente zur Verfügung.

Im ICSBEP Handbuch sind viele Experimente mit sehr hoher Korrelation ($c_k > 0,99$) zu den hier betrachteten Fällen vorhanden:

- 3 Gew.% ^{235}U : 277 Experimente
- 20 Gew.% ^{235}U : 156 Experimente
- 93 Gew.% ^{235}U : 111 Experimente

In der GRS Datenbank sind weitaus weniger geeignete SCALE-Eingabedateien der Experimente aus dem ICSBEP Handbuch enthalten, sodass auch auf weniger restriktive

Werte von c_k zurückgegriffen werden muss. In Tab. 2.16 ist die Anzahl an Experimenten für die drei Anwendungsfälle wiedergegeben, je nach Wahl der Grenze von c_k .

Tab. 2.16 Anzahl an Experimenten für verschiedene Kriterien von c_k

Bedingung c_k	Anzahl an Experimenten		
	3 Gew.% ^{235}U	20 Gew.% ^{235}U	93 Gew.% ^{235}U
$\geq 0,95$	120	17	1
$\geq 0,90$	341	72	51
$\geq 0,80$	413	178	149

Daraus ist ersichtlich, dass Systeme mit niedrig angereichertem Uran von der Datenbank deutlich besser abgedeckt sind als Systeme mit hohen Anreicherungen. Eine Begrenzung von c_k auf Werte über 0,90 ergibt für alle drei Anreicherungen eine ausreichende Abdeckung mit mindestens 50 kritischen Experimenten. In Abb. 2.23 sind die c_k -Werte für alle drei Anwendungsfälle mit allen Experimenten dargestellt. Die Experimente sind mit vertikalen Linien in die Experimentgruppen LCT (LEU-COMP-THERM), LST (LEU-SOL-THERM), MCT (MIX-COMP-THERM), PST (PU-SOL-THERM), und U233ST (U233-SOL-THERM) unterteilt. Die Kennungen der Serien sind in Tab. 3.2 näher erläutert.

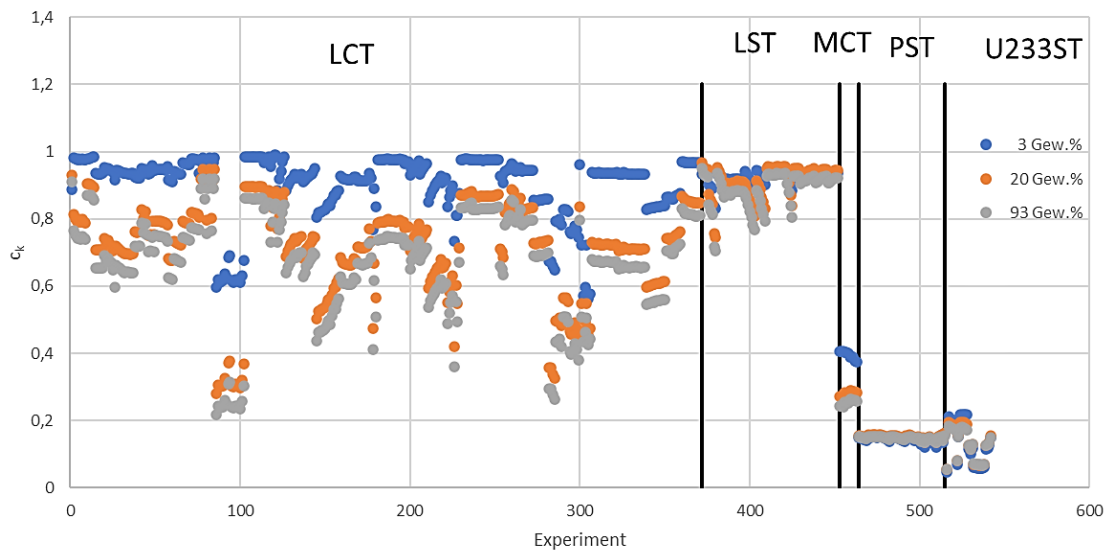


Abb. 2.23 Korrelation (c_k -Werte) zwischen den drei Anwendungsfällen (Uransilizid mit 3 Gew.%, 20 Gew.% und 93 Gew.% Anreicherung) und den kritischen Experimenten aus der Validierungsdatenbank

Aus dieser Abbildung ist ersichtlich, dass die c_k -Werte zwischen den drei Anwendungsfällen und den Experimenten der Serien MCT, PST und U233ST verschwindend gering ausfallen. Dies ist zu erwarten, da in Uransilizid weder Plutonium noch ^{233}U vorhanden sind. Außerdem zeigt sich dasselbe Bild wie in Tab. 2.16, dass bei niedriger Anreicherung die Abdeckung der GRS Validierungsdatenbank sehr gut ist, während bei höheren Anreicherungen immer weniger relevante Experimente zur Verfügung stehen.

In Abb. 2.24 ist die Abweichung zwischen Berechnung und Experimente (C-E) in Abhängigkeit der c_k -Werte für Uransilizid gezeigt für einen c_k -Bereich von 0,9 bis 1,0. Aus diesen Daten lässt sich kein eindeutiger globaler Trend erkennen. Für 3 Gew.% ist eine größere Gruppe an Experimenten mit einer Unterschätzung von k_{eff} um 1.000 bis 1.500 pcm vorhanden.

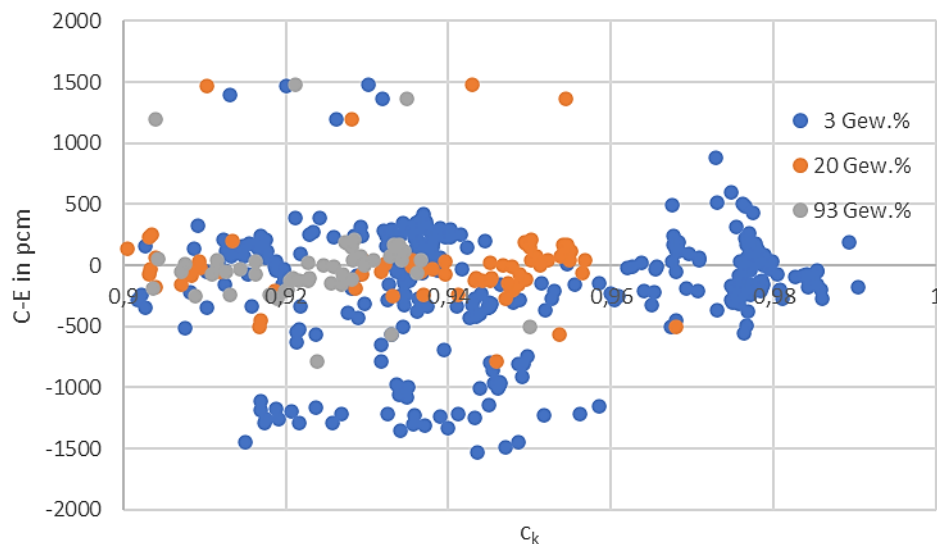


Abb. 2.24 Abweichung zwischen Berechnung und Experimente (C-E) in Abhängigkeit der c_k -Werte für Uransilizid

In Tab. 2.17 ist für die drei Anwendungsfälle die statistische Auswertung der Abweichung zwischen Berechnung und Experiment (C-E) für Uransilizid wiedergegeben. Neben der Anzahl der jeweils verwendeten Experimente ist die mittlere Abweichung von C-E, deren Standardabweichung und das jeweilige Minimum und Maximum gezeigt. Während für 20 Gew.% und 93 Gew.% die mittlere Abweichung unter 20 pcm liegt, ist diese für 3 Gew.% deutlich höher. Dieser Umstand hat sich ja bereits in Abb. 2.24 gezeigt.

Tab. 2.17 Statistische Auswertung der Abweichung zwischen Berechnung und Experiment (C-E) für Uransilizid

	3 Gew.% ²³⁵U	20 Gew.% ²³⁵U	93 Gew.% ²³⁵U
# Experimente	341	72	51
C-E in pcm			
Mittelwert	-158	20	19
Standardabweichung	486	379	382
Minimum	-1531	-781	-781
Maximum	1479	1479	1479

Vergleicht man diese Abweichungen mit den oben ermittelten typischen Unsicherheiten von k_{eff} bei den Minima der kritischen Massen zwischen 700 und 1.100 pcm (siehe Abb. 2.21), so spielen sie eine untergeordnete Rolle.

Allgemein zeigen diese Untersuchungen, dass der verwendete Rechencode SCALE 6.2.3 für die Berechnung von kritischen Kurven von Uransilizid geeignet ist.

2.4 Kritische Parameterkurven von Uran-Molybdän (U-Mo)

Einige Forschungsreaktoren werden aktuell mit hochangereichertem Uran (HEU) mit Anreicherungen bis 93 Gew.% ²³⁵U betrieben. Dies ermöglicht maximalen Neutronenfluss, während die thermische Leistung des Reaktors begrenzt bleibt. Aufgrund des internationalen Bestrebens das Proliferationsrisiko zu reduzieren, wird aktuell an alternativen Brennstoffen mit deutlich niedrigerer Anreicherung geforscht (< 20 Gew.% ²³⁵U), die einen gleichbleibend hohen Neutronenfluss ermöglichen. Neben Uransilizid ist Uran-Molybdän einer dieser untersuchten potenziellen Kandidaten, das sich durch seine hohe Gesamt-, bzw. Urandichte im Brennstoff auszeichnet. Da Uran-Molybdän eine Metalllegierung ist, kann das Gewichtsverhältnis der beiden Elemente in weiten Grenzen frei gewählt werden, wobei unterschiedliche Phasen auftreten können.

Im Folgenden wird von einer kubischen γ -Phasen-Legierung bei Raumtemperatur ausgegangen, da diese aufgrund ihrer höheren Bestrahlungsstabilität im Vergleich zur orthorhombischen Struktur der α -Phase, für nuklearen Brennstoff bevorzugt wird. Auch für die γ -Phasen-Struktur hängt die Dichte von U-Mo sowohl vom Verhältnis zwischen Uran und Molybdän als auch von der Anreicherung des Urans ab. Gleichung (2.3) beschreibt dabei die theoretische Dichte für U-Mo in Abhängigkeit dieses Verhältnisses für einen

Molybdänanteil x_{Mo} zwischen 5,5 und 16,8 Gew.%, unter der Annahme von Natururan mit einer Anreicherung von 0,7 Gew.% ^{235}U /IAEA 20/.

$$\rho_{U-Mo}^{e_1} = 18,74 - 0,151 \times x_{Mo} + 0,000875 \times x_{Mo}^2 \quad (2.3)$$

Die Berechnung der Dichte der Legierung für andere Anreicherungen e_2 erfolgt nach Gleichung (2.4) /IAEA 20/.

$$\rho_{U-Mo}^{e_2} = \frac{238,05 + 1,421 x_{Mo} - 0,0301 (1 - 0,01x_{Mo}) e_2}{238,05 + 1,421 x_{Mo} - 0,0301 (1 - 0,01x_{Mo}) e_1} \rho_{U-Mo}^{e_1} \quad (2.4)$$

Damit variiert die maximale Dichte von U-Mo für die durchgeführten Rechnungen zwischen 17,166 und 17,314 gU/cm³.

Weitere Details zur Herstellung und Verarbeitung von Uran-Molybdän und einige sicherheitstechnische Abwägungen sind unter Kapitel 4.3 beschrieben.

2.4.1 Berechnung der kritischen Parameterkurven

Die Berechnungen wurden äquivalent zu Uransilizid durchgeführt: Für die Berechnungen des Multiplikationsfaktors eines unendlich ausgedehnten Systems (k_{inf}) und der kritischen Parameter (Masse M_k , Volumen V_k , Zylinderdurchmesser D_k , Schichtdicke S_k) kam die Programmsequenz CSAS1 des vom Oak Ridge National Laboratory entwickelten Programmsystems SCALE 6.2.3 /REA 17/ zum Einsatz. Es wurde die im SCALE-Paket enthaltene und auf den ENDF/B-VII.1-Daten basierende 252-Gruppen-Wirkungsquerschnittsbibliothek /CHA 11/ verwendet. Im Zonensuchmodus des S_N -Verfahrens (Methode der diskreten Ordinaten) wurden die kritischen Parameter der Spaltstoffsyste-me Spaltstofflösungen in Abhängigkeit der spaltenden Urankonzentration in der Lösung ermittelt. Dabei kam jeweils die Methode der Restwasserauffüllung zur Anwendung, indem die Konzentration des Spaltstoffs U-Mo variiert wurde, das restliche Volumen mit H₂O aufgefüllt wurde, und die jeweiligen kritischen Werte ermittelt wurden. Die Lösungssysteme sind bei den Rechnungen vollständig reflektiert (30 cm H₂O-Reflektor). Aus den berechneten Daten wurden außerdem die kleinsten kritischen Urankonzentrationen und das maximale k_{inf} in Abhängigkeit der Anreicherung extrahiert und grafisch dargestellt.

Es wurden folgende Anreicherungen gerechnet: 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 15, 20, 25, 50, 75, 93 und 100 Gew.% ^{235}U . Abb. 2.25 zeigt beispielhaft den infiniten Multiplikationsfaktor, Abb. 2.26 die kritische Kugelmasse für die gerechneten Anreicherungen. Die kritische Kugelmasse gibt an, ab welcher Masse ein System in Kugelgeometrie bei gegebener Schwermetallkonzentration des Systems kritisch wird. Alle neu gerechneten Kurven werden in die aktuelle Veröffentlichung des *Handbuch zur Kritikalität* und in die digitale Version des Handbuchs übernommen /GRS 25b/.

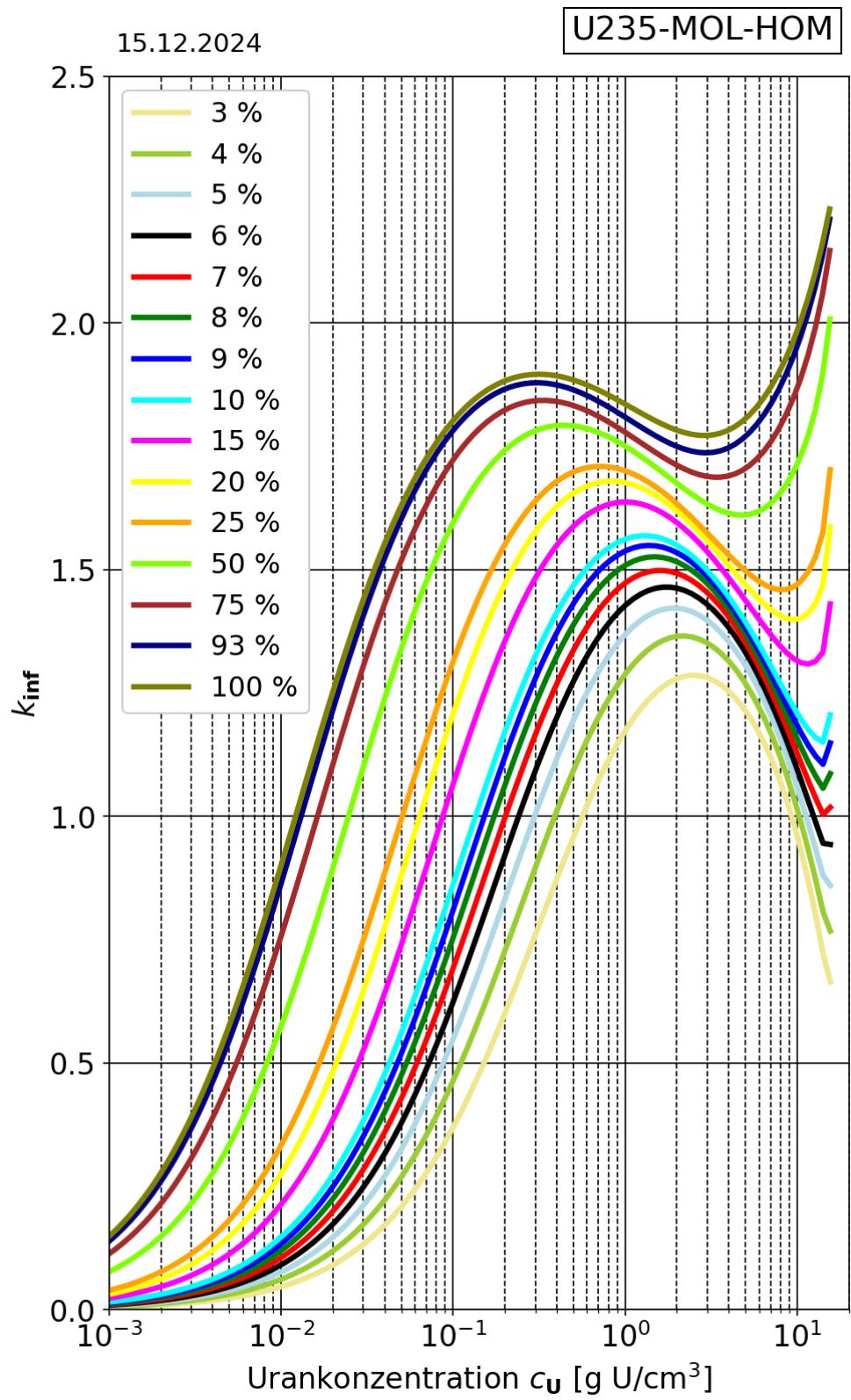


Abb. 2.25 Infiniter Multiplikationsfaktor k_{inf} für homogene Uran-Molybdän-Wasser-Systeme

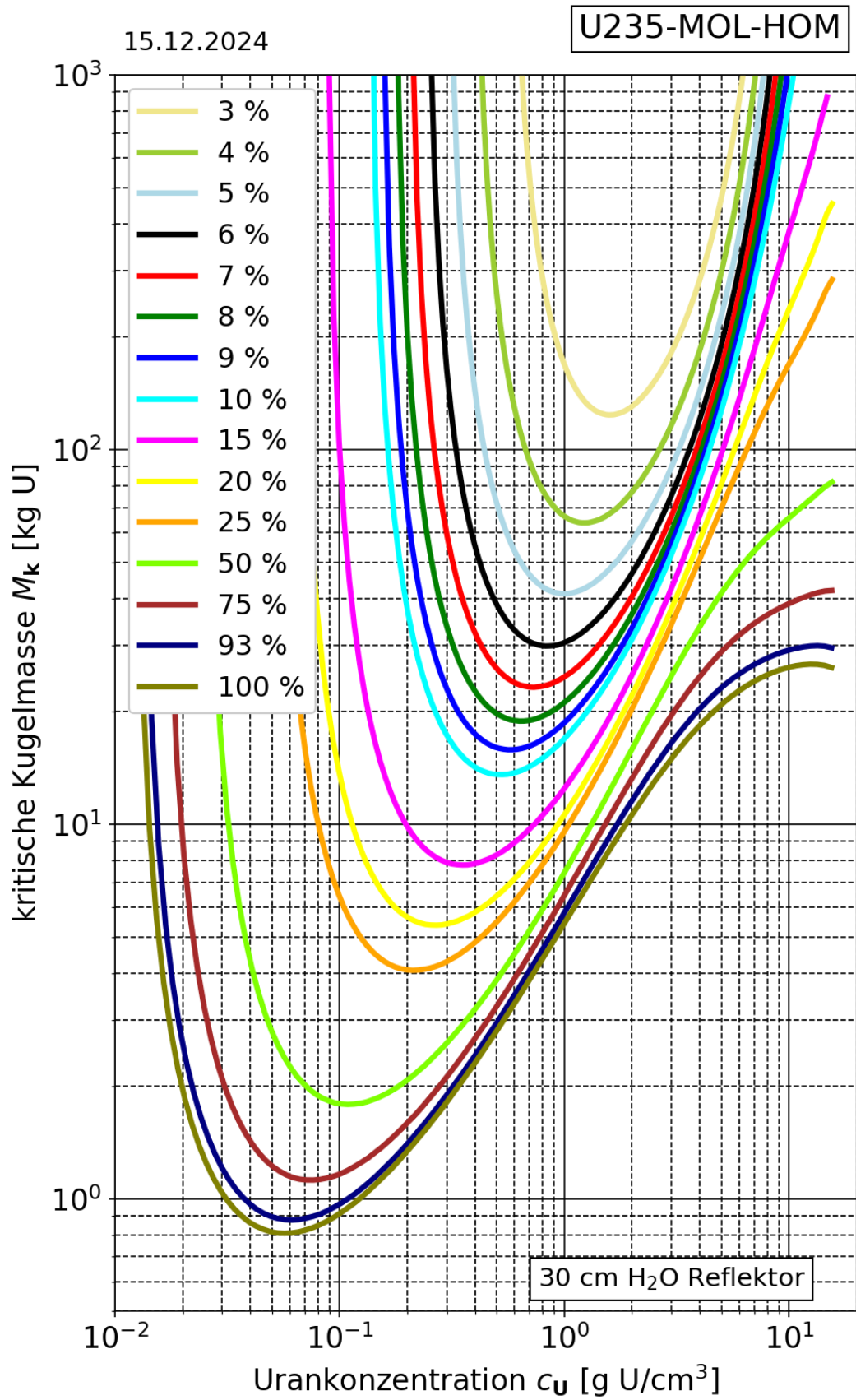


Abb. 2.26 Kritische Kugelmasse für homogene Uran-Molybdän-Wasser-Systeme

2.4.2 Überprüfung der kritischen Parameterkurven durch Berechnung der Unsicherheit aufgrund Unsicherheit in den nuklearen Daten

Zur Überprüfung der gerechneten kritischen Parameter wurden auch für Uran-Molybdän für die Maxima der Kurven von k_{inf} und die Minima der Kurven M_k , V_k , D_k und S_k für alle gerechneten Anreicherungen Unsicherheitsanalysen aufgrund der Unsicherheit der nuklearen Daten durchgeführt. Hierfür wurde die Rechensequenz TSUNAMI-1D aus dem SCALE 6.2.3 Paket verwendet. Bei allen hier angegebenen Unsicherheiten handelt es sich um normalverteilte 1σ -Unsicherheiten. Grundsätzlich zeigt die Überprüfung für U-Mo ähnliches Bild wie bei U_3Si_2 .

In Abb. 2.27 ist die Unsicherheit von k_{inf} für die Kurvenmaxima von Uran-Molybdän in Abhängigkeit der Anreicherung gezeigt.

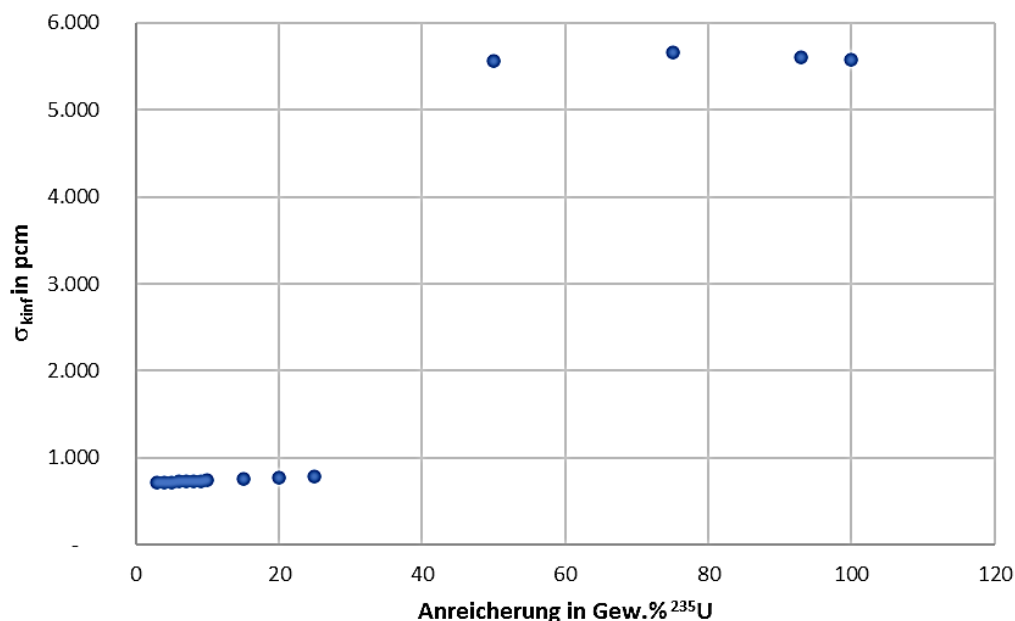


Abb. 2.27 Unsicherheit von k_{inf} für die Kurvenmaxima von Uran-Molybdän aufgrund von Unsicherheiten in den nuklearen Daten

Für Anreicherungen ab 50 Gew.% liegt diese um die 750 pcm. Bei höheren Anreicherungen macht sie einen Sprung auf über 5.500 pcm, was immerhin 5,5 % k_{inf} entspricht. Aus der Darstellung von k_{inf} in Abb. 2.25 ist ersichtlich, dass das Maximum der Kurven bis 25 Gew.% im Konzentrationsbereich mit thermischem Spektrum liegt. Für höhere Anreicherungen liegt das Maximum der Kurven jeweils beim letzten Datenpunkt ohne Moderation, also beim metallischen System. Dieser grundlegende Unterschied der Kurven kann den deutlichen Unterschied der Unsicherheiten erklären.

Auch für U-Mo wurden die Unsicherheiten der vier kritischen Parameterkurven (M_k , V_k , D_k und S_k) an ihren jeweiligen Minima abgeschätzt. Dabei wird wiederum in zwei Schritten vorgegangen. Im ersten Schritt wird für jeden Parameter und jede Anreicherung die Unsicherheit von k_{eff} aufgrund der Unsicherheiten in den nuklearen Daten um $k_{\text{eff}}=1$ bestimmt. Der Verlauf der Unsicherheiten ist in Abb. 2.28 gezeigt.

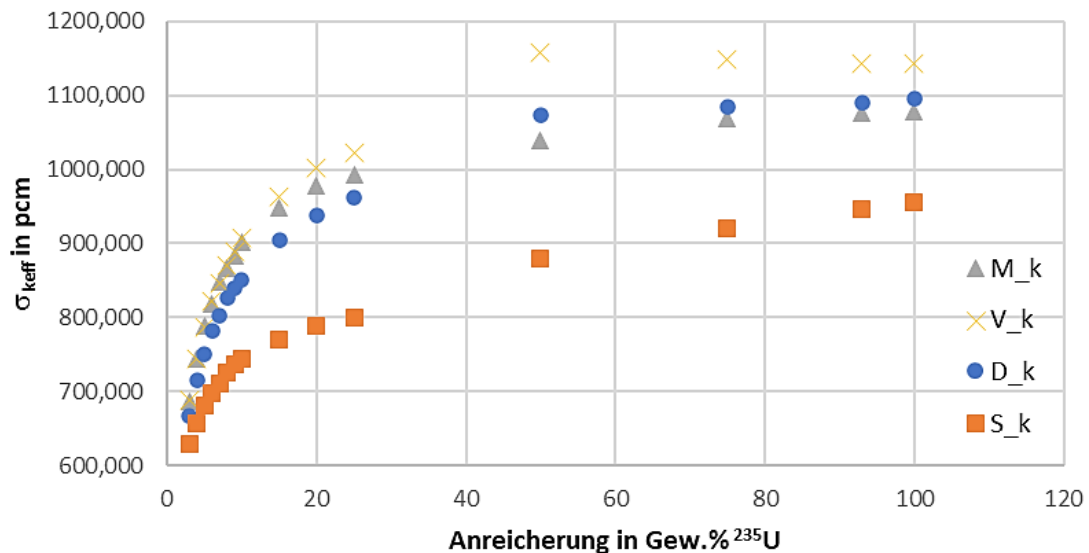


Abb. 2.28 Unsicherheit von k_{eff} für die Kurvenminima der vier kritischen Parameter (M_k , V_k , D_k und S_k) aufgrund von Unsicherheiten in den nuklearen Daten von Uran-Molybdän

Die Abbildung zeigt, dass für alle kritischen Parameter die Unsicherheiten mit zunehmender Anreicherung ansteigen. Dies kann neben der unterschiedlichen Gewichtung der Unsicherheiten der Isotope aufgrund der unterschiedlichen Materialzusammensetzung, auch durch das unterschiedliche Spektrum bedingt sein, da die verschiedenen Minima der Kurven bei unterschiedlichen Urankonzentrationen bedingt sein.

Aus diesen Unsicherheiten werden im zweiten Schritt die Unsicherheiten der kritischen Parameter abgeschätzt. Dafür werden für jeden Parameter und jede Anreicherung zwei weitere Rechnungen mit CSAS1 im Zonensuchmodus durchgeführt, um den jeweiligen kritischen Wert für $k_{\text{eff}} = 1$ minus, bzw. plus der im ersten Schritt ermittelten Unsicherheit von k_{eff} aufgrund der Unsicherheiten der nukleare Daten zu bestimmen ($k_{\text{eff}} = 1 - \sigma_{k_{\text{eff},\text{ND}}}$, bzw. $k_{\text{eff}} = 1 + \sigma_{k_{\text{eff},\text{ND}}}$). Durch Teilen der Differenz dieser Zwei Rechnungen durch zwei erhält kann man die Unsicherheit der kritischen Größen aufgrund der Unsicherheit der nuklearen Daten abschätzen. In Abb. 2.29 sind diese Unsicherheiten aufgrund von

Unsicherheiten der nuklearen Daten für alle vier Parameter für alle gerechneten Anreicherungen gezeigt.

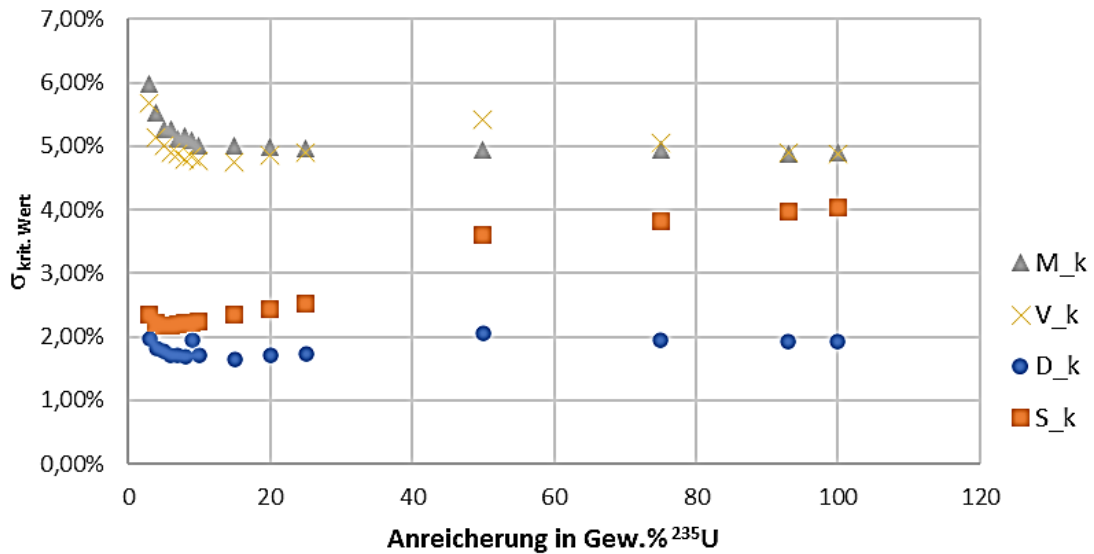


Abb. 2.29 Unsicherheiten der vier kritischen Parameter (M_k , V_k , D_k und S_k) aufgrund von Unsicherheiten in den nuklearen Daten für Uran-Molybdän

Während die kritische Schichtdicke S_k mit Unsicherheiten von unter 2 % die kleinsten Werte aufweist, ergibt sich für die kritische Kugelmasse M_k und das kritische Volumen V_k Werte von um die 5 %, bzw. bis über 6 % für niedrige Anreicherungen unter 10 Gew.% ²³⁵U.

2.4.3 Validierung der kritischen Parameterkurven mittels Experimentnachrechnungen

Für Uran-Molybdän wurden dieselben Validierungsrechnungen durchgeführt, wie für Uransilizid. Die Minima der Kurven der kritischen Masse für die drei Anreicherungen 3 Gew.%, 20 Gew.% und 93 Gew.% ²³⁵U ausgewählt, im Folgenden Anwendungsfälle genannt, sollen durch Nachrechnungen von kritischen Experimenten validiert werden.

In einem ersten Schritt wird über den Korrelationsparameter c_k ermittelt, ob sich die Experimente und die Anwendungsfälle ähneln. Für Uran-Molybdän werden dieselben 542 Experimente wie für Uransilizid verwendet.

Im ICSBEP Handbuch sind viele Experimente mit sehr hoher Korrelation ($c_k > 0,99$) zu den hier betrachteten Fällen vorhanden:

- 3 Gew.% ^{235}U : 264 Experimente
- 20 Gew.% ^{235}U : 156 Experimente
- 93 Gew.% ^{235}U : 112 Experimente

In der GRS Datenbank stehen weitaus weniger geeignete Experimente zur Verfügung, sodass auch auf weniger restriktive Werte von c_k zurückgegriffen werden muss. In Tab. 2.18 ist die Anzahl an Experimenten für die drei Anwendungsfälle wiedergegeben, je nach Wahl der Grenze von c_k .

Tab. 2.18 Anzahl an Experimenten für verschiedene Kriterien von c_k

Bedingung c_k	Anzahl an Experimenten		
	3 Gew.% ^{235}U	20 Gew.% ^{235}U	93 Gew.% ^{235}U
$\geq 0,95$	116	14	1
$\geq 0,9$	344	71	51
$\geq 0,8$	417	178	149

Auch für Uran-Molybdän ist ersichtlich, dass Systeme mit niedrig angereichertem Uran von der Datenbank deutlich besser abgedeckt sind als Systeme mit hohen Anreicherungen. Eine Begrenzung von c_k auf Werte über 0,9 ergibt für alle drei Anreicherungen eine ausreichende Abdeckung mit mindestens 50 kritischen Experimenten. In Abb. 2.30 sind die c_k -Werte für alle drei Anwendungsfälle mit allen Experimenten dargestellt.

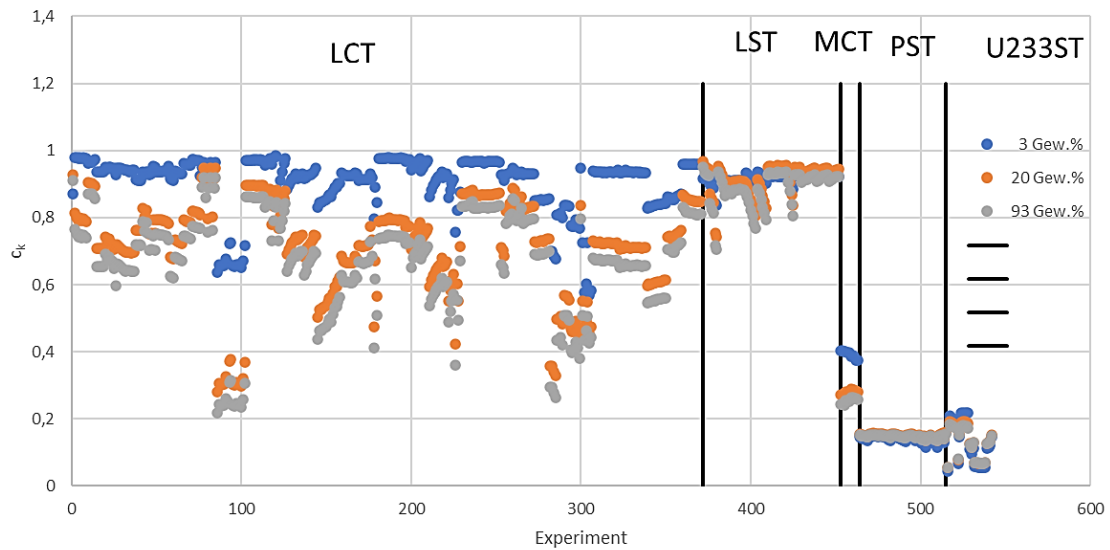


Abb. 2.30 Korrelation (c_k -Werte) zwischen den drei Anwendungsfällen (Uran-Molybdän mit 3 Gew.%, 20 Gew.% und 93 Gew.% Anreicherung) und den kritischen Experimenten aus der Validierungsdatenbank

Für Uran-Molybdän ergibt sich ein sehr ähnliches Bild, wie für Uransilizid. Die c_k -Werte zwischen den Anwendungsfällen und den Serien MCT, PST und 233ST fallen verschwindend gering aus. Dies ist zu erwarten, da in Uran-Molybdän weder Plutonium, noch ^{233}U vorhanden sind. Außerdem zeigt sich dasselbe Bild wie in Tab. 2.18, dass bei niedriger Anreicherung die Abdeckung der GRS Validierungsdatenbank sehr gut ist, während bei höheren Anreicherungen immer weniger relevante Experimente zur Verfügung stehen.

In Abb. 2.31 ist die Abweichung zwischen Berechnung und Experimente (C-E) in Abhängigkeit der c_k -Werte für Uran-Molybdän gezeigt für einen c_k -Bereich von 0,9 bis 1,0. Die Daten zeigen, dass Aus diesen Daten lässt sich kein eindeutiger globaler Trend erkennen. Für 3 Gew.% ist eine größere Gruppe an Experimenten mit einer Unterschätzung von k_{eff} um 1.000 bis 1.500 pcm vorhanden.

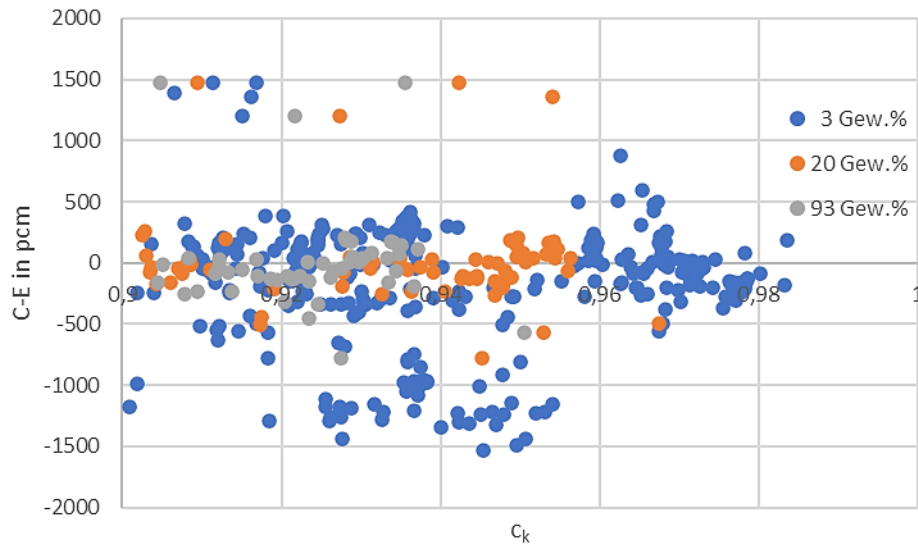


Abb. 2.31 Abweichung zwischen Berechnung und Experimente (C-E) in Abhängigkeit der c_k -Werte für Uran-Molybdän

In Tab. 2.19 ist für die drei Anwendungsfälle die statistische Auswertung der Abweichung zwischen Berechnung und Experiment (C-E) für Uran-Molybdän wiedergegeben. Neben der Anzahl der jeweils verwendeten Experimente ist die mittlere Abweichung von C-E, deren Standardabweichung und das jeweilige Minimum und Maximum gezeigt. Während für 20 Gew.% und 93 Gew.% die mittlere Abweichung unter 20 pcm liegt, ist diese für 3 Gew.% deutlich höher. Dieser Umstand hat sich bereits in Abb. 2.31 gezeigt.

Tab. 2.19 Statistische Auswertung der Abweichung zwischen Berechnung und Experiment (C-E) für Uran-Molybdän

	3 Gew.% ^{235}U	20 Gew.% ^{235}U	93 Gew.% ^{235}U
# Experimente	344	71	51
C-E in pcm			
Mittelwert	-163	18	19
Standardabweichung	489	381	382
Minimum	-1531	-781	-781
Maximum	1479	1479	1479

Vergleicht man diese Abweichungen mit den oben ermittelten typischen Unsicherheiten von k_{eff} bei den Minima der kritischen Massen zwischen ca. 700 und 1.100 pcm (siehe Abb. 2.28), so spielen sie eine untergeordnete Rolle.

Allgemein zeigen diese Untersuchungen, dass der verwendete Rechencode SCALE 6.3.2 für die Berechnung von kritischen Kurven von Uran-Molybdän geeignet ist.

2.5 Elektronische Version des *Handbuch zur Kritikalität*

Das Softwaretool HBcrit zur Visualisierung und Auswertung der in Band 2 des *Handbuch zur Kritikalität* (/GRS 19d/, /GRS 19e/) enthaltenen kritischen Parameterkurven wurde weiterentwickelt. Zunächst wurde die graphische Benutzeroberfläche HBcritGUI gestrafft, die Übersichtlichkeit der Bedienelemente erhöht und neue Optionen zur Anzeige und Auswertung implementiert. Weiterhin wurde die weiterführende Dokumentation und Qualitätssicherung der Software entsprechend der GRS QM-Richtlinie für die Entwicklung von Softwareprojekten durchgeführt.

2.5.1 Erweiterung der graphische Benutzeroberfläche HBcritGUI

Die grundlegenden Optionen und Funktionsweisen der GUI wurden bereits im Vorgängervorhaben implementiert und in /SOM 22/ vorgestellt. Im Folgenden wird daher auf die Änderungen, Optimierungen und Erweiterungen eingegangen.

Die graphische Oberfläche wurde gestrafft und die Übersichtlichkeit der Bedienelemente erhöht, indem die Auswahlflächen für Materialsystem, Detail des Materialsystems und kritischen Parameter aus einfachen Listen in Drop-Down-Menüs umgewandelt wurden.

Bei der Anzeige der kritischen Parameter wurden einige neue Optionen implementiert, bzw. vorhandene Optionen optimiert. Die aktuelle Ansicht der Steuerelemente ist aus Abb. 2.32 ersichtlich.

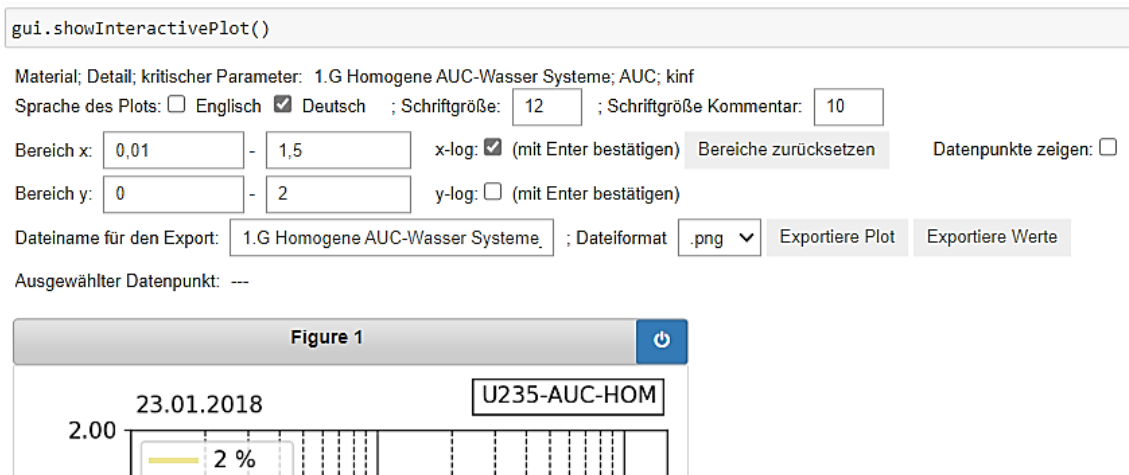


Abb. 2.32 HBcritGUI – Anzeigefenster und Kontrollen für die Anzeigeeoptionen

Die Zoomfunktion in Teilbereiche der Abbildung wurde überarbeitet. Die Werte des Anzeigebereichs, die sich bei Nutzung der manuellen Zoomfunktion ergeben, werden automatisch in die Felder von *Bereich x* und *Bereich y* übernommen. Das Umschalten von linearer Anzeige auf logarithmische Anzeige wurde überarbeitet, sodass diese Funktion fehlerfrei funktioniert. Dabei wird überprüft, dass bei logarithmischer Darstellung alle Werte größer 0 sind. Sollte der Bereich bei Umstellung auf logarithmischer Darstellung kleinere Werte aufweisen, wird der untere Wert des Bereichs auf 0,01 gesetzt, sowohl bei den Anzeigeeoptionen als auch in der Abbildung. Dies gilt auch, wenn der Bereich für eine Achse bei logarithmischer Darstellung auf Werte ≤ 0 geändert wird. Eine Option zur Schriftgrößenänderung, getrennt für die den Kommentar und alle anderen Schriftgrößen, wurde hinzugefügt.

In die Software wurde die Funktionalität implementiert, auf einfache Weise ein, oder mehrere Paare kritischer Kurven miteinander vergleichen zu können. Dabei erfolgt die Auswahl der Kurven über Drop-Down-Menüs auf analoge Weise, wie zu der Einzeldarstellung, aber für zwei Systeme, siehe Abb. 2.33. Die ermöglicht den Vergleich von Kritikalitätsrechnungen von unterschiedlichen Materialien oder gleichen Materialien, aber mit unterschiedliche Rechenparametern (Rechencode, Codeversion, Rechenjahr, Querschnittsbibliothek, Moderator, Reflektor, Anreicherung), sprich jeder zwei Kurven, die sich in der Datenbank befinden.

Für beide Systeme können mehrere Anreicherungen ausgewählt werden, wobei die Anzahl für System 1 und System 2 die gleiche sein muss. Es wird jeweils die oberste Auswahl aus jedem System miteinander verglichen, dann die zweite, dann die dritte, usw. Dabei ist irrelevant, welche Anreicherung zuerst ausgewählt wurde, es zählt nur die Position der jeweiligen Auswahl.

```
showComparisonPlot = True
gui.displayMaterialSystemsComparison(showComparisonPlot)
```

Liste der verfügbaren Materialsysteme, Details und verfügbaren kritischen Parameterkurven. Einfachauswahl.

Liste der verfügbaren Kurven, Mehrfachauswahl.

System 1	System 2
1.G Homogene AUC-Wasser Systeme	1.H Homogene ADU-Wasser Systeme
AUC	ADU
kinf	kinf
2 %	2 %
2,5 %	2,5 %
3 %	3 %
3,5 %	3,5 %
4 %	4 %
4,5 %	4,5 %
5 %	5 %
5,5 %	5,5 %
6 %	6 %
7 %	7 %
8 %	8 %
10 %	10 %
25 %	25 %
50 %	50 %
100 %	100 %

Abb. 2.33 HBcritGUI – Auswahl von zwei Systemen für den Vergleich

Die Kontrolloptionen und das Anzeigefenster der Vergleichsanzeige wurden weitgehend von der Einzelanzeige übernommen, mit wenigen Abweichungen, siehe Abb. 2.34. Es werden jeweils alle ausgewählten Kurven angezeigt, System 1 gestrichelt, System 2 gepunktet. Es werden jeweils die Farben aus System 1 verwendet, die in der Datenbank für die jeweilige Anreicherung hinterlegt sind. Die relative Abweichung zwischen den kritischen Kurven wird als durchgezogenen Linien angezeigt, wobei die zweite Skala auf der rechten Seite gilt.

Aufgrund der zusätzlichen Daten wurden Änderungen der Kontrollen implementiert. Da in dem Vergleichsplot die Kommentare nicht angezeigt werden, gibt es nur eine Auswahl der Schriftgröße für allen Text in der Abbildung. Außerdem wurden die Optionen zur Auswahl des y-Bereichs und zum An- und Ausschalten der logarithmischen Anzeige für die zweite Achse hinzugefügt. Beim Exportieren der Werte werden auch die Zahlenwerte der Differenzkurven mit exportiert.

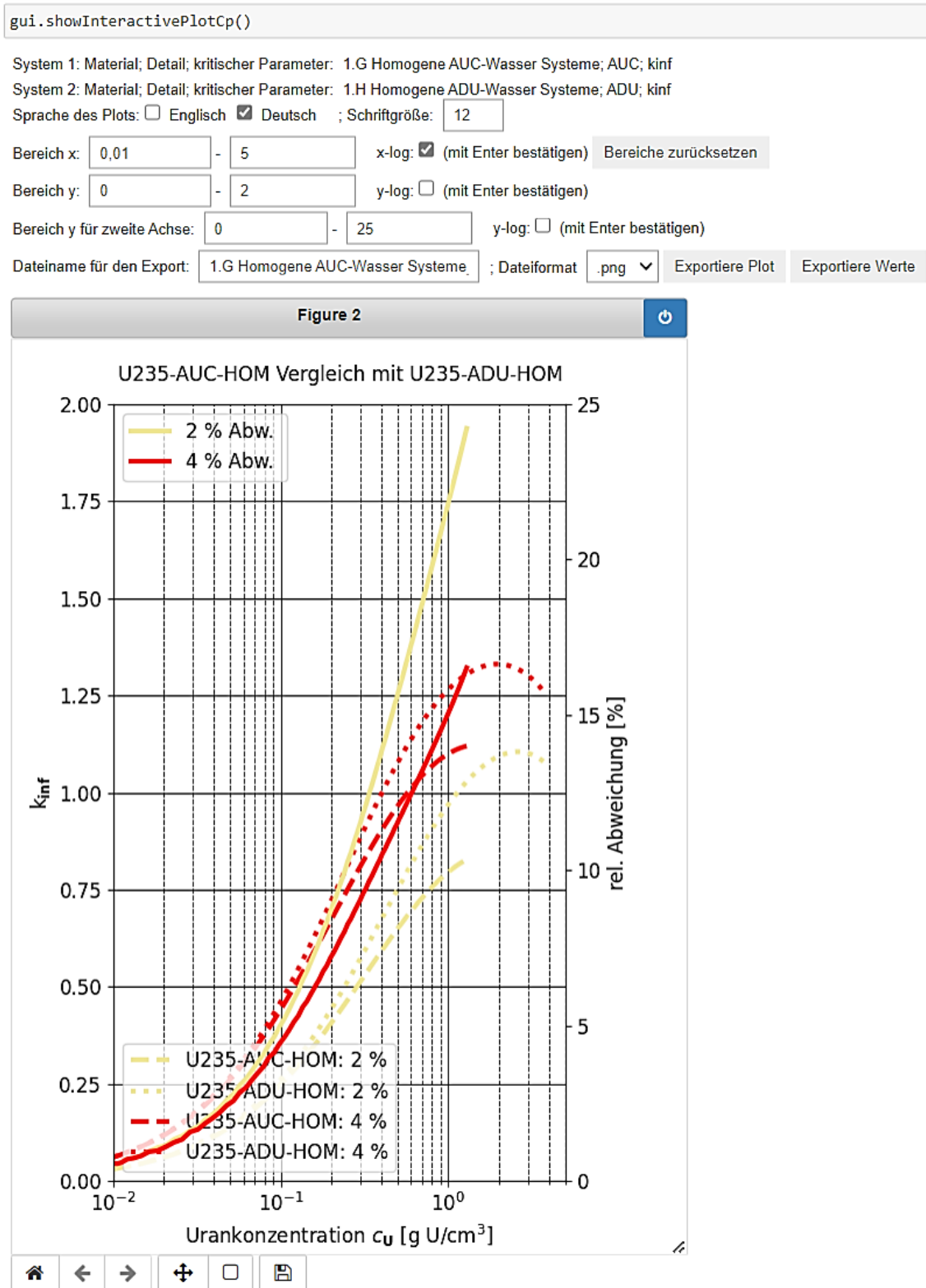


Abb. 2.34 HBcritGUI – Anzeigefenster und Kontrollen für die Vergleichsanzeige

Eine Ausführliche Erklärung und Dokumentation aller Funktionen der Software findet sich in der Programmdokumentation, die mit der Software ausgeliefert wird.

2.5.2 Weiterführende Dokumentation

Die weiterführende Dokumentation und Qualitätssicherung der Software wurde entsprechend der GRS QM-Richtlinie für die Entwicklung von Softwareprojekten durchgeführt. Diese besteht aus folgenden Dokumenten:

- QS-Plan
Dokumentation der gewählten Anwendung des GRS Teilkernprozesses zur Erstellung und Veröffentlichung von Software Entwicklungs-Projekten.
- Benutzerhandbuch, GRS-P-16, Band 1
Detaillierte Erklärung zur Anwendung der Software inklusive Installationshinweise und verwendeter Lizenzen von Programmteilen dritter.
- User's Manual, GRS-P-16, Band 2
Benutzerhandbuch auf Englisch
- Verification Report, GRS-P-16, Band 3
Dokumentation der durchgeführten Verifizierung der Software
- Code Structure, GRS-P-16, Band 4
Dokumentation der genauen Struktur der Software

Zudem wurden die neu gerechneten Daten zu Actinoiden (siehe Kapitel 2.2), zu Uransilizid (Kapitel 2.3) und zu Uran-Molybdän (Kapitel 2.4) der Datenbank hinzugefügt. Das Programm ist über die GRS Homepage www.grs.de zu beziehen.

3 Implementierung und Validierung moderner Rechenverfahren

In Kapitel 3.1 wird eine Übersicht der verfügbaren Rechencodes von Kritikalität, Abbrand und Aktivierung gegeben. In Kapitel 3.2 werden die Arbeiten zur Validierung von *SCALE 6.3* vorgestellt. Kapitel 3.3 behandelt die Analyse der Möglichkeiten und Optionen des Monte Carlo Codes *Shift* des *SCALE 6.3* Pakets, Kapitel 3.4 die Neuerungen von *TSUNAMI* in der Version 6.3 von *SCALE* und einen Vergleich mit Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalysen ähnlicher Werkzeuge. In Kapitel 3.5 werden die Arbeiten präsentiert, die im Rahmen der Subgroup 13 der WPNCs der OECD-NEA zum Methodenvergleich bei der Bestimmung der Kritikalität von Endlagerbehälter durchgeführt wurden. Die Arbeiten, die zur Erprobung der *fixed source* Option und der *weight window* Implementierung in *SERPENT* durchgeführt wurden, sind in /TRA 25/ dokumentiert. Arbeiten zur Anwendung von künstlichen Neuronalen Netzwerken auf die Berechnung von kritischen Parameterkurven sind in /REI 25/ veröffentlicht.

3.1 Übersicht der verfügbaren Rechencodes von Kritikalität, Abbrand und Aktivierung

Die nuklearen Rechencodes zu den Themen Kritikalität, Abbrand und Aktivierung sind in der Regel Teilaspekte bzw. Teilmodule von übergeordneten Framework-Paketen der großen Akteure auf diesem Gebiet. Auch bauen unterschiedliche Pakete auf gewissen gemeinsamen Grundpfeilern auf, wie z. B. den Bibliotheken der nuklearen Wirkungsquerschnitts- oder Zerfallsdaten, auch Wirkungsquerschnittsbibliotheken genannt. Die Berechnung der Einzelschritte für ein oft umfangreiches Gesamtrechnenproblem sind typischerweise auf mehrere Programme bzw. Programmmodule verteilt. Die Kopplungsschnittstellen der einzelnen Module lassen teilweise den alternativen Einsatz von verschiedenen Eigenprodukten oder auch von Rechencodes anderer Anbieter zu. Im Folgenden werden einige der wichtigsten Rechenprogramme vorgestellt.

3.1.1 SCALE

Das Programmpaket *SCALE* ist eine US-amerikanische Programmentwicklung des Oak Ridge National Laboratory (ORNL) zur Modellierung, Simulation und Analyse, mit Schwerpunkt auf den Bereichen Reaktorphysik, Kritikalitätssicherheit, Strahlenschutz sowie Charakterisierung abgebrannter Brennelemente [WIE 24]. Das Programm kann für verschiedenste nuklearen Systeme und Systemarten eingesetzt werden. Hinter der Programmentwicklung steht die US-amerikanische Nuclear Regulatory Commission (NRC), das US-amerikanische Department of Energy (DOE), sowie die National Nuclear Security Administration (NNSA). Das Paket unterliegt einer kontinuierlichen Weiterentwicklung und Validierung. Bekannte Probleme werden in sogenannten Maintenance Releases behoben, die typischerweise jährlich veröffentlicht werden und mit einer erweiterten Versionsbezeichnung (z. B. 6.3.x) versehen werden. Besonders für die Anwendungsbereiche der Kritikalitätssicherheit, Reaktorphysik und Abschirmung existieren umfangreiche Validierungsunterlagen, die Daten, Werkzeugbeschreibungen und Ergebnisse enthalten. Parallel dazu erfolgt, nicht zuletzt auch durch den weltweiten Einsatz des Rechencodes, eine kontinuierliche Validierung und Hinterfragung der dabei erzielten Rechenergebnisse. Dies stellt zusätzlich einen zentralen Bestandteil der Codepflege dar. Beispielhaft seien hier die Validierungen der Integralgröße k_{eff} zu spezifischen Leichtwasserreaktor- (engl.: light water reactor: LWR-) Anwendungen, Daten zu unterschiedlichen Abbränden bzw. zu abgebrannten Brennstoffisotopen, Nachzerfallswärmeleistung, durchgeführte Benchmarks der Physik während des Anfahrens von Kernreaktoren, iterative Reaktorphysik für Isotopen- und Vollkernvorhersagen, wie auch die Validierung von nuklearen Wirkungsquerschnittsbibliotheken für Kritikalitätssicherheitsanalysen zu nennen. Die Validierung von Abschirmanwendungen kann als ein in jüngerer Zeit neu hinzugekommenes Thema genannt werden.

Die aktuelle Versionsnummer (Stand: 2025) ist *SCALE 6.3.2*, basierend auf der 2022 veröffentlichten Version 6.3.0. Die nächste Hauptversion *SCALE 7.0* wird für das Jahr 2026 erwartet.

Die Zuordnung der einzelnen Programmteile von *SCALE* zu relevanten Schwerpunktthemen ist in Tab. 3.1 zusammengestellt.

Tab. 3.1 Zuordnung der *SCALE*-Programmteile zu relevanten Schwerpunktthemen

/OAK 24/

Thema	Programm-Teile
Reaktorphysik	<i>Polaris</i> einfach anzuwendende Gitterphysik
	<i>TRITON</i> Lösen gekoppelter Neutronentransport- und Neutronen-Abbrand-Rechnungen für unterschiedliche Kernreaktorsysteme
Kritikalitätssicherheit	<i>CSAS</i> Lösen von Kritikalitätsproblemen im Monte-Carlo- und deterministischen Verfahren
	<i>VADER</i> Trendanalyse
Inventar abgebrannten Brennstoffs	<i>ORIGAMI</i> schnelle Generierung von Prognosen zum Bestand an abgebrannten Brennelementen für Leichtwasserbrennstoffe
	<i>ORIGEN</i> allgemeine Abbrandrechnung
Aktivierung und Zerfall	<i>ORIGEN</i> allgemeine Abbrandrechnung
Strahlenschutz	<i>MAVRIC</i> Löser (engl.: solver) von Strahlungstransport mit Konstantquelle im Monte-Carlo-Verfahren mit automatischer Varianzreduzierung für schwierige Abschirmrechnungen
Sensitivität und Unsicherheit	<i>TSUNAMI</i> Sensitivitäts- und Experimentauswahlanalyse
	<i>Sampler</i> Allgemeine Unsicherheitsanalysen

3.1.1.1 nukleare Wirkungsquerschnittsbibliotheken in SCALE

SCALE 6.X nutzt ein eigenes Tool für die Aufbereitung der nuklearen Wirkungsquerschnittsbibliotheken von ENDF/B-VII.1 und JEFF, um dem Nutzer umfassende nukleare Daten für Neutronentransport-, Zerfalls- und von Transmutationsrechnungen zur Verfügung zu stellen. Auf Basis der mit AMPX generierten Mehrgruppen- und kontinuierliche-Energie-Daten der Neutronen- und gekoppelten Neutronen-Gamma-Daten wird eine breite Anwendbarkeit in den Bereichen Kritikalitätssicherheit, Reaktorphysik und Abschirmanalysen ermöglicht. Zerfallsdaten, Reaktionsquerschnitte, Spaltausbeuten und verzögerte Neutronen- und Gammainformationen für 2.200 Nuklide werden aus den Bibliotheken ENDF/B-VII.1 und JEFF zusammengestellt. Zusätzlich verfügbar sind Kovariationsdaten zu Neutronenquerschnitten zur weiteren Verwendung in Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalysetools. Dazu erfolgen im Folgenden einige kurze Charakterisierungen.

3.1.1.1.1 ENDF/B-VII.1, kontinuierliche Energie

Die mit SCALE veröffentlichte nukleare Wirkungsquerschnittsbibliothek mit kontinuierlichem Spektrum (engl.: continuous energy: CE-Bibliothek) dient den allgemeinen Neutronen-, Gamma- und gekoppelten Neutronen/Gamma-Rechnungen und wird mit AMPX generiert. Diese Neutronenquerschnittsbibliothek wird in allen Validierungsbänden mit den Anwendungen CSAS, TRITON und MAVRIC verwendet.

3.1.1.1.2 ENDF/B-VII.1, 252-Gruppen, thermisches System

Die nukleare Wirkungsquerschnittsbibliothek mit 252 Energiegruppen, basierend auf ENDF/B-VII.1, wird mit AMPX generiert und ist eine allgemeine Feingruppenbibliothek (engl.: multi groups: MG-Bibliothek, bzw. 252-Gruppen-Bibliothek). Durch den Einsatz können Verzerrungen in LWR-Anwendungen aus den früher verwendeten 238-Gruppen-Bibliotheken durch eine detailliertere Darstellung der ²³⁸U-Resonanzstruktur reduziert werden. Die Bibliothek ist dabei für thermische Systeme optimiert und wird in der Reaktorphysik und der Validierung der nuklearen Kritikalitätssicherheit, mit den Anwendungen CSAS, TRITON und Polaris verwendet.

3.1.1.1.3 ENDF/B-VII.1, 56-Gruppen, thermisches System

Die nukleare Wirkungsquerschnittsbibliothek mit 56 Energiegruppen, basierend auf ENDF/B-VII.1, wird mit AMPX generiert und ist eine optimierte Bibliothek mit breiteren Energiegruppen (engl.: broad-group library) für schnelle Sondierungsanalysen für LWRs und andere thermische Systemanwendungen (56-Gruppen-Bibliothek). Dabei wurden leichte Abstriche an der Genauigkeit zugunsten der Rechengeschwindigkeit gemacht. Diese Wirkungsquerschnittsbibliothek wird in der Reaktorphysik und der Validierung der nuklearen Kritikalitätssicherheit mit den Anwendungen *CSAS*, *TRITON* und *Polaris* verwendet. Aufgrund der reduzierten Genauigkeit sollte sie jedoch nicht für detaillierte Kritikalitätssicherheitsanalysen verwendet werden.

3.1.1.1.4 ENDF/B-VII.1, 200-Gruppen, Abschirmung

Diese gekoppelte Neutronen-Gamma-Abschirmungs-Wirkungsquerschnittsbibliothek, die mit AMPX aus ENDF/B-VII.1 generiert wird, verfügt über 200 Neutronenenergiegruppen sowie über 47 Gammaenergiegruppen. Die abgestimmte Gruppenstruktur deckt den schnellen Energiebereich für Abschirm- und schnelle Reaktoranwendungen ab. Diese Wirkungsquerschnittsbibliothek wird bei der Abschirmvalidierung mit der Anwendung *MAVRIC* verwendet.

3.1.1.1.5 ENDF/B-VII.1, Zerfalls- und Spaltausbeute

Mit Hilfe vom AMPX wird aus ENDF/B VII.1-Daten eine Wirkungsquerschnittsbibliothek zu nuklearen Zerfalls- und Spaltausbeute-Daten und zur Emission von Gammastrahlung entwickelt. Die Zerfallsdaten umfassen Grund- und metastabile Nuklide mit Halbwertszeiten von mehr als 1 Millisekunde, um 174 Actinoide, 1.149 Spaltprodukte und 974 Aktivierungsprodukte zu verfolgen. Diese Daten werden bei der Validierung der Reaktorphysik mit den Anwendungen *ORIGEN* und *ORIGAMI* verwendet.

3.1.1.1.6 JEFF/3.1-A-Reaktionsdaten

Wirkungsquerschnittsdaten für Materialien und Reaktionsprozesse, die in ENDF/B-VII.1 nicht enthalten sind, werden aus der speziellen Aktivierungsbibliothek JEFF-3.1-A übernommen. Diese Bibliothek enthält über 700 Materialien und 12.000 neutroneninduzierte Reaktionen unter 20 MeV. Diese Daten werden bei der Validierung der Reaktorphysik mit den Anwendungen *ORIGEN* und *ORIGAMI* verwendet.

3.1.1.2 Kurzcharakterisierung der *SCALE*-Pakete

Im Folgenden wird eine kurze Beschreibung der einzelnen *SCALE*-Pakete und ihrer Verwendung in den Validierungsvolumina gegeben.

3.1.1.2.1 CSAS

Die Anwendungen *CSAS5* und *CSAS6* führen 3D-Monte-Carlo-Eigenwert- und Kritikalitätsrechnungen unter Verwendung von MG- oder CE-Wirkungsquerschnittsdaten durch. Die ausgeführten Monte-Carlo-Codes *KENO V.a* und *KENO-VI* dienen dazu, die Zufallsbewegungen beim Neutronentransport, die zur Schätzung integraler Mengen erforderlich sind, zu simulieren. Die MG-Wirkungsquerschnitte werden verarbeitet, um problem-spezifische Wirkungsquerschnittsbibliotheken zu generieren und um Selbstabschirmungseffekte berücksichtigen zu können. Der Transport wird auf Basis einer konstruktiven Festkörpergeometrie (engl.: constructive solid geometry: CSG) durchgeführt, die mit dem allgemeinen Geometriepaket *SCALE* definiert wird. *CSAS5* und *CSAS6* werden im Validierungsvolumen der Kritikalitätssicherheit verwendet.

3.1.1.2.2 TRITON

Die Anwendung *TRITON* verwaltet gekoppelte ausgedehnte Neutronentransport- und punktweise Abbrandsimulationen mit einer ausgewählten *SCALE*-Neutronentransportanwendung und dem Lösungsalgorithmus (engl.: solver, im Folgenden auch nur kurz als Löser bezeichnet) für punktweise Abbrandrechnungen *ORIGEN* (siehe Kapitel 3.1.1.2.4). Es handelt sich um ein allgemeines Reaktorphysik-Tool, das auf viele Reaktorsystemtypen und -geometrien anwendbar ist. Die Neutronentransportanwendungen umfassen 1D-, 2D- und 3D-Geometrien, die gemäß der ausgewählten Neutronentransportanwendung definiert sind. Die häufigsten Anwendungen für *TRITON* umfassen:

- LWR-Gitterphysik mit der *NEWT-2D*-Diskrete-Ordinate-Anwendung, die die Methode der erweiterten Stufencharakteristik (engl.: extended step characteristic: ESC) verwendet.
- 3D-Reaktor- oder Einzelbrennelement-Abbrand mit den *KENO*-Monte-Carlo-Codes.

Die Anwendung von *NEWT* ist auf die Verwendung von MG-Wirkungsquerschnittsbibliotheken beschränkt. *TRITON* wird im Validierungsband zur Reaktorphysik verwendet.

3.1.1.2.3 Polaris

Die Anwendung *Polaris* dient einer, im Vergleich zu allgemeineren *TRITON*-Anwendungen, optimierten Anwendung der Bewertung der Gitterphysik von Siedewasser- (SWR) und Druckwasserreaktoren (DWR). *Polaris* verwendet eine eingebettete Methode zur Berücksichtigung der Selbstabschirmung und einen 2D-Transportlöser mit der *Methode der Charakterisierung* (engl.: method of characteristics: MOC). Der Vorteil von *Polaris* liegt darin, dass es LWR-Probleme im Vergleich zu *TRITON* in viel kürzerer Rechenzeit lösen kann. Ein weiterer Vorteil ist, dass die Eingabedateien erheblich kürzer und einfacher definiert werden können, da es für zahlreiche Größen vorgegebene Standardwerte gibt. Alle diese Werte können aber mit zusätzlichen Parametern durch den Nutzer individuell definiert werden.

Wie *TRITON* verwendet *Polaris* den Code *ORIGEN* für punktwisen Brennstoffabbau, um die Transmutation und den Zerfall von Nukliden zu berechnen. *Polaris* wird im Validierungsband zur Reaktorphysik verwendet.

3.1.1.2.4 ORIGEN

Die Anwendung *ORIGEN* löst die gekoppelten Bateman-Gleichungen, die den Abbau, die Aktivierung und den Zerfall eines Materials unter Bestrahlung beschreiben. Es stehen zwei Löser zur Verfügung: ein Algorithmus, der auf der Chebyshev Rational Approximation Method (CRAM) basiert, sowie ein traditioneller Algorithmus auf Basis von Matrix-Potenzreihen.

Beide Löser führen zu Rechenfehlern von weniger als 0,1 % im Vergleich zu analytischen Lösungen der zugrunde liegenden Gleichungen. *ORIGEN* generiert zeitabhängige Konzentrationen für die 2.200 Nuklide, die in der *ORIGEN*-Datenbank verfolgt werden. Diese Nuklidzusammensetzungen werden im Vergleich zu Messungen der Radioisotopenkonzentration und der Zerfallswärme verwendet. Letztere verwendet *ORIGEN*, um die zeitabhängige Wärmeentwicklung eines Materials zu berechnen. *ORIGEN* wird ebenfalls im Validierungsband zur Reaktorphysik verwendet.

3.1.1.2.5 ORIGAMI

Die Anwendung *ORIGAMI* dient der Berechnung detaillierter Isotopenzusammensetzungen für LWR-Brennelemente mit UO_2 -Brennstoff. Sie verwendet angenommene Leistungsverteilungen des Brennelements und mit *ORIGEN* vorgenerierte Reaktorbibliotheken. *ORIGAMI* kann mit der Anwendung *ORIGEN* gekoppelt werden, um Abbrandrechnungen für unterschiedliche Kernbereiche durchzuführen. Dies führt zu diskretisierten Zerfallswärmequellen und Isotopenzusammensetzungen für LWR-Brennelemente, die in nachfolgenden Brennelementoperationen verwendet werden können. *ORIGAMI* wird im Validierungsband zur Reaktorphysik verwendet.

3.1.1.2.6 MAVRIC

Die Anwendung *MAVRIC* führt bei der Rechnung 3D-Monte-Carlo-Abschirmsimulationen mit konstanter Strahlungsquelle und MG- oder CE-Wirkungsquerschnitten mit automatischer Varianzreduzierung für eine verbesserte Genauigkeit durch.

Mittels der CADIS-Methode (engl.: Consistent Adjoint Driven Importance Sampling), die zur Generierung von Gittern mit Gewichtungsfaktoren (engl.: weightwindows) und der Beeinflussung von konstanten Strahlungsquellen dient, können Flüsse und Dosisraten mit geringen Unsicherheiten in einer akzeptablen Laufzeit generiert werden. *MAVRIC* führt automatisch eine grobmaschige 3D-Transportrechnung mit diskreten Ordinaten mit *Denovo* durch, um den positions- und energieabhängigen adjungierten Neutronenfluss für die Gewichtungsfaktoren zu bestimmen. *MAVRIC* wird zur Abschirmvalidierung verwendet.

3.1.1.3 Typische Informationen aus dem Validierungsbericht von SCALE 6.2.4

Im Validierungsbericht von *SCALE 6.2.4* wird ausgeführt, dass die Rechnungen gut mit den Messungen einer Vielzahl von Anwendungen in den Bereichen Kritikalitätssicherheit, Reaktorphysik und Abschirmung übereinstimmen.

In nuklearen Kritikalitätssicherheitsanwendungen wurde *SCALE 6.2.4* anhand von 600 kritischen Experimenten mit einer Vielzahl von spaltbaren Materialarten und -anreicherungen, Energiespektren und Begleitmaterialien validiert. Die offensichtlich vorhandenen Abweichungen zwischen den Codes *KENO V.a* und *KENO-VI* wurden in den letzten

Jahren reduziert, da sich die nuklearen Daten und parallel dazu, deren Verarbeitung verbessert haben.

Bei Berücksichtigung aller untersuchter Systemkategorien beträgt die systematische Abweichung (engl.: Bias) der Rechnungen zu den experimentellen Werten (engl.: Calculation/Experiment: C/E) weniger als 2,2 % Δk_{eff} . Wenn die Systeme USI (²³³U-SOL-INTER: Lösungssysteme mit ²³³U mit mittlerem Spektrum) und USM (²³³U-SOL-MIXED: Lösungssysteme mit ²³³U mit gemischtem Spektrum) aufgrund von Anzeichen von Problemen mit der Leistungsperformance entfernt werden, beträgt die Gesamtabweichung für *KENO V.a* weniger als 0,91 % Δk_{eff} und für fast alle Einzelkategorien in *KENO V.a* weniger als 0,5 % Δk_{eff} . Die Abweichungen für *KENO-VI* betragen weniger als 0,9 % Δk_{eff} . Dies ist größtenteils auf mögliche höhere geometrische Komplexitäten der zu simulierenden Benchmark Experimente zurückzuführen.

In Reaktorphysikanwendungen wurde *SCALE 6.2.4* anhand von mehr als 160 LWR-Brennstoffisotopenmessungen, 230 Nachzerfallswärmemessungen, Nachzerfallswärmemessungen bei kurzen Abkühlzeiten in sechs Arten von spaltbaren Nukliden und anfänglichen kritischen Eigenwertmessungen des gesamten Kerns für einen LWR und zwei Nicht-LWRs validiert. Die *SCALE*-Rechnungen stimmen gut mit den 40 gemessenen Nukliden überein, die für Anwendungen in den Bereichen Abbrandkredit, Nachzerfallswärmeleistung und Strahlenschutz von Bedeutung sind.

Die Abweichung in der Nachzerfallswärmeleistung der Brennelemente beträgt bei den analysierten Brennelement-Experimenten im Durchschnitt weniger als 1 % für DWRs und weniger als 2 % für SWRs. Die Ergebnisse der Experimente mit spaltbarem Material bei Abkühlzeiten von bis zu ~100 s, wie sie für Szenarien bei Unfällen mit Kühlmittelverlust relevant sind, zeigen im Allgemeinen eine gute Übereinstimmung zwischen berechneten und gemessenen Werten der Energiefreisetzung durch Spaltvorgänge. Die Eigenwertabweichung beträgt weniger als 50 pcm² für WBN1 (Reaktor Watts Bar Unit 1), liegt innerhalb der Unsicherheit der Benchmark-Experimente (370 pcm) für den HTR-10 (Reaktortyp: Hochtemperatur Reaktor-10) und innerhalb von ~500 pcm der Kritikalität für HTTR (Reaktor High-temperature engineering test reactor).

² pcm wird in diesem Dokument synonym verwendet mit $10^{-5} k_{eff}$

In Abschirmanwendungen wurde *SCALE 6.2.4* anhand von acht Benchmark-Abschirmexperimenten validiert und mit zusätzlichen Verifizierungen anhand der begleitenden *MCNP*-Ergebnisse verglichen. Die *MAVRIC*-Rechnungen stimmen im Allgemeinen innerhalb von 50 % mit den experimentellen Ergebnissen und innerhalb von 20 % mit den *MCNP*-Ergebnissen überein. Für diese Art von Anwendung sind dies tolerable Abweichungen.

Die typischen experimentellen Ergebnisse, die anhand dieser Benchmarks analysiert wurden, umfassen Neutronenflüsse, Detektorzählraten, Energieantwortfunktionen der Detektoren, Neutronen- und Gammadosen, Aktivierungsraten und Aktivitäten von Folieneutronen, Neutronenleckageflüsse und Skyshine-Dosisraten. Auch wurden Tausende von Vergleichspunkten zwischen Experiment und Berechnung ausgewertet.

Auf der Grundlage von solchen notwendigen Validierungen erfolgt für jede Version eine spezifische Bewertung. Vor dem Hintergrund des zunehmenden Einsatzes von Brennstoffen mit höherer Anreicherung, Brennstoffen mit höherem Abbrand und modernen Reaktoren mit neuartigen Materialien und Geometrien sind diese Arbeiten jedoch künftig noch weiter zu fassen, um den erweiterten Anforderungen gerecht zu werden. Auch ist es für den Bereich der Kritikalitätssicherheit unerlässlich, dass besonders bei der Validierungen Ausreißer, also Fälle mit großer Abweichung zwischen Berechnung und Experiment, intensiv betrachtet und bewertet werden. Bei Abschirmanwendungen sollten zusätzliche Fälle aus validierten Benchmarks hinzugefügt werden, um die Betrachtungen abzurunden.

Bei Anwendungen in der Reaktorphysik sind die Quantifizierungen und Bewertungen von Abweichungen und Unsicherheiten bei Codevorhersagen wichtige Kennzahlen im Zusammenhang mit der Brennstoffausnutzung. Dies betrifft besonders die Genauigkeit der Codes, um nukleare Daten validieren zu können, die z. B. für die Zusammensetzung abgebrannter Kernbrennstoffe, die Berechnungen der Reaktorsicherheit und -lizenzierungen, eingesetzt werden.

3.1.2 MCNP

Der Code *MCNP*[®] (Monte Carlo N-Particle[®]) des Los Alamos National Laboratory wird für den allgemeinen Transport verschiedenster Teilchen wie Neutronen, Photonen, Elektronen, Ionen und viele andere Elementarteilchen mit einer Energie von bis zu 1 TeV/Nukleon verwendet [WER 17], [KUL 22]. Basierend auf einer konstruktiven

Festkörpergeometrie die durch benutzerdefinierte Oberflächen ersten, zweiten und vierten Grades (nur elliptische Toren) begrenzt sind, erfolgt der Transport dieser Teilchen durch eine dreidimensionale Darstellung von Materialien. Oberflächen ersten Grades werden durch zwei Geraden aufgespannt, Oberflächen zweiten Grades können durch zwei Potenzfunktionen aufgespannt werden. Auch können externe, strukturierte und unstrukturierte Gitter (engl.: mesh) zur Definition der betroffenen Geometrie in einem Hybridmodus verwendet werden, indem ein Gitter in eine Zelle der konstruktiven Festkörpergeometrie eingebettet wird. Dies stellt einen alternativen Weg zur Definition sehr komplexer Geometrien dar.

Zur Simulation der Kollisionsphysik, die ein Teilchen während des Transportprozesses erfährt, werden tabellierte Kern- und Atom-Wirkungsquerschnittsdaten und/oder Physikmodelle verwendet. Typischerweise werden tabellierte Kern- und Atomdaten im Niederenergiebereich für eine Teilmenge von Projektilteilchen (z. B. Neutronen, Photonen, leichte Ionen) und Zielkernen verwendet. Bei der Betrachtung von Neutronen werden die isotopenspezifischen Wirkungsquerschnittsdaten am häufigsten in einer kontinuierlichen Energieform dargestellt, die sämtliche möglichen Reaktionskanäle berücksichtigt. Dazu gehören auch zahlreiche Mechanismen zur Erzeugung sekundärer Teilchen. Ebenfalls können für thermische Neutronen zusätzliche materialbasierte thermische Streudaten benutzt werden, die zur Simulation verschiedener molekularer Effekte verwendet werden (z. B. chemische Bindung, Temperatur etc.).

Für Photonen berücksichtigt der Code Effekte, wie z. B. inkohärente und kohärente Streuung, die Möglichkeit der Fluoreszenzemission nach photoelektrischer Absorption und Absorption bei Paarbildung mit lokaler Emission von Annihilations- und Bremsstrahlung. In reinen Photonensimulationen steht ein Bremsstrahlungsmodell mit ausgedehntem Zieltarget zur Verfügung. Dies dient dazu, um einige der physikalischen Eigenschaften innerhalb der Photon-Elektron-Photon-Kaskade annähernd zu erfassen und gleichzeitig eine höhere Rechengeschwindigkeit als bei dem vollständigen expliziten und gekoppelten Photon-Elektron-Transport zu bieten.

Für Elektronen und Positronen können sowohl ein Algorithmus mit komprimierter Historie als auch ein Einzelereignisalgorithmus eingesetzt werden, um den Teilchentransport durch Materialien im betrachteten System zu verfolgen. Dabei wird ein Modell mit kontinuierlicher Abbremsung zur Abschätzung der Winkel- und Energiestreuung verwendet. Modelliert werden Knock-on-Elektronen, Röntgenstrahlung, Positronenvernichtung, Auger-Elektronen- und Photonenproduktion und Bremsstrahlungsphotonenproduktion.

Für die gekoppelte Photon-Elektronen-Physik stehen Elektron-Photon-Relaxationsdaten zur Verfügung, die detaillierte Simulationen der Ionisierung und des anschließenden Relaxationsprozesses ermöglichen.

Für Protonen und andere Ionen sind einige tabellarische Daten für leichte Projektile verfügbar. Im Vergleich zu Daten zu Neutronen, Photonen, Elektronen und Positronen, ist die Verfügbarkeit von Daten für Ionen für die Vielzahl an möglichen Targetzielen begrenzt. Für Protonen stehen mehrere Datentabellen zur Verfügung, die einen Großteil der Nuklidkarte abdecken. Für andere leichte Ionenprojektile ($1 \leq Z < 3$) liegen teilweise nur tabellarische Daten für Wechselwirkungen zwischen elektromagnetischer Strahlung und dem Targetziel ($Z < 4$) vor. Über die tabellarisch aufgeführten Energiebereiche hinaus und für Wechselwirkungen mit schwereren Zielmaterialien, basiert die Kollisionsphysik leichter Ionen auf Ereignisgeneratoren der Modellphysik, d. h. auf Softwarebibliotheken, die mithilfe simulierter Ereignisse in der hochenergetischen Teilchenphysik erzeugt werden. Wenn keine tabellarischen Daten verfügbar sind, wie etwa für schwere Ionen und / oder Teilchen im Hochenergiebereich, wird die Physik bei jeder Kollision mithilfe von Modellphysik simuliert. Die Schwelle zwischen niedriger und hoher Energie variiert je nach Teilchentyp und tabellarischer Wirkungsquerschnittsbibliothek. Je nach Projektilteilchen und dessen Energie, sowie dem Zielisotop und verwendetem Physikmodell können die Simulationen der Kernphysik verschiedene Phasen durchlaufen, darunter intranukleare Kaskaden, Vorgleichgewicht, Verdampfung, Koaleszenz und Restzerfall.

Um die Verfolgung der Teilchen, basierend auf der jeweils definierten Geometrie, der Wechselwirkungen der Kollisionsphysik und der Methoden zur Varianzreduzierung zu simulieren, werden Pseudozufallszahlen verwendet. Dies dient dazu, die zugrundeliegenden Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen adäquat abzutasten, die jeden der Ereignisprozesse beschreibt. Jeder Durchlauf der Simulation verwendet eine einzigartige Folge von Pseudozufallszahlen und kann daher als unabhängig von anderen Durchläufen in der Simulation betrachtet werden. Während der Laufzeit jedes rechnerischen Teilchens können die verschiedenen auftretenden Ereignisse gezählt werden. Dazu stehen in *MCNP* zahlreiche Zählwerte zur Verfügung, wie der Oberflächenstrom und -fluss, Volumenfluss (Spurlänge), Punkt- oder Ringdetektoren, Teilchenerwärmung, Spaltungserwärmung, Impulshöhenzählung für Teilchen-, Energie- oder Ladungsablagerung, Zähl-detektoren in einem Gitter (engl.: mesh tally), Radiographiezählungen, Störungs- bzw. Sensitivitätszählungen und eine Sammlung weiter spezialisierter Zählbehandlungen. Diese Zählwerte und ihre statistischen Unsicherheiten werden über die Gesamtzahl der unabhängigen Durchläufe der Simulation berechnet.

Als Standardfunktionen, die *MCNP* vielseitig und benutzerfreundlich einsetzbar machen, umfasst der Code eine Vielzahl an vorgefertigten Modulen:

- Eine leistungsstarke allgemein definierbare Quelle.
- Eine Quelle für Kritikalitätsrechnungen.
- Eine Oberflächenquelle.
- Einen Lösungsmodus für Konstantquellen und k-Eigenwerte.
- Ein Visualisierungsprogramm für die unterschiedlichen Zählwerte.
- Eine umfangreiche Sammlung an Techniken zur Varianzreduktion.
- Eine flexible Struktur der Zählwerte.
- Eine umfangreiche Sammlung von nuklearen Wirkungsquerschnittsdaten.

Alle Funktionen von *MCNP* können auf Windows-, Linux- und macOS-Plattformen verwendet werden. Die meisten Funktionen können bei entsprechender Rechnerinfrastruktur parallel ausgeführt werden. Die Anwendungsbereiche, die die Vorhersagen von *MCNP* verwenden, umfassen typischerweise Strahlenschutz, Dosimetrie, Radiographie, medizinische Physik, nukleare Kritikalitätssicherheit, kritische und unterkritische Experimentplanung und -auswertung, Detektorplanung und -analyse, Beschleunigerzielplanung, Planung von Kernspaltungs- und Fusionsreaktoren, Untersuchungen im Bereich der Dekontamination und Stilllegung sowie nukleare Sicherheitsvorkehrungen und nukleare Nichtverbreitung. Per Stand 2024 wird *MCNP 6.3.0* als aktuelle Version geführt.

Die vorhandene 4-teilige *MCNP*-Dokumentation ist besonders hervorzuheben /LANL 25a/. Teil 1 konzentriert sich auf die Theorie und basiert weitgehend auf dem *MCNP5*-Theoriehandbuch, Teil 2 konzentriert sich auf Benutzerführung und Eingabespezifikation und basiert weitgehend auf dem *MCNP6*-Benutzerhandbuch, Teil 3 konzentriert sich auf Einführungen und Beispiele und basiert weitgehend auch auf den Beispielen im *MCNP6*-Benutzerhandbuch, Teil 4 enthält Anhänge zu Details wie Dateiformate, Konstanten usw.

Die verwendeten Wirkungsquerschnittsbibliotheken bestehen aus ACE-Dateien („A Compact ENDF“), die mit dem nuklearen Datenverarbeitungscode *NJOY /GIT 24/* aufbereitete wurden. Ebenfalls können von der *MCNP*-Seite des Los Alamos National

Laboratory komprimierte Ordner mit vielen nuklearen Wirkungsquerschnittsbibliotheken heruntergeladen und in eigenen Anwendungen eingebaut werden /LANL 25b/.

Ein weiteres Anwendungsthema von *MCNP* stellt das Thema der Teilchenstöße dar. Dies wird in einer separaten Anwendung namens *MCNPX* bevorzugt behandelt, die auf dieses Arbeitsgebiet optimiert ist.

Das Programm *MCNPX* wurde zunächst parallel zum Programm *MCNP5* vom Los Alamos National Laboratory entwickelt. *MCNPX* steht als Abkürzung für *Monte Carlo N-Particle eXtended*. Die erste Version 2.7.x wurde im November 1999 freigegeben. Mit diesem Programm können Teilchenstöße von 34 verschiedenen Arten von Teilchen (Nukleonen und Ionen) und die von mehr als 2.000 schweren Ionen simuliert werden. Auch wurde die Obergrenze der kinetischen Energie der Teilchen signifikant erhöht. Der Schwerpunkt der Anwendungen liegt somit in der Beschleuniger- und Hochenergiephysik.

3.1.3 KRAKEN

Das Rechenframework *KRAKEN* ist ein relativ neues modulares Rechensystem für gekoppelte Kernphysikrechnungen, das vom VTT Technical Research Centre of Finland entwickelt wurde /VTT 24a/. Es ersetzt die veralteten Legacy-Codes, die zu Beginn für die deterministischen Sicherheitsanalysen finnischer Leistungsreaktoren verwendet wurden. Neben herkömmlichen großen DWR und SWR wird *KRAKEN* für die Modellierung von SMR (engl.: small modular reactors) und neuen Nicht-LWR-Technologien verwendet. Abb. 2.19 zeigt den prinzipiellen Aufbau des *KRAKEN*-Frameworks.

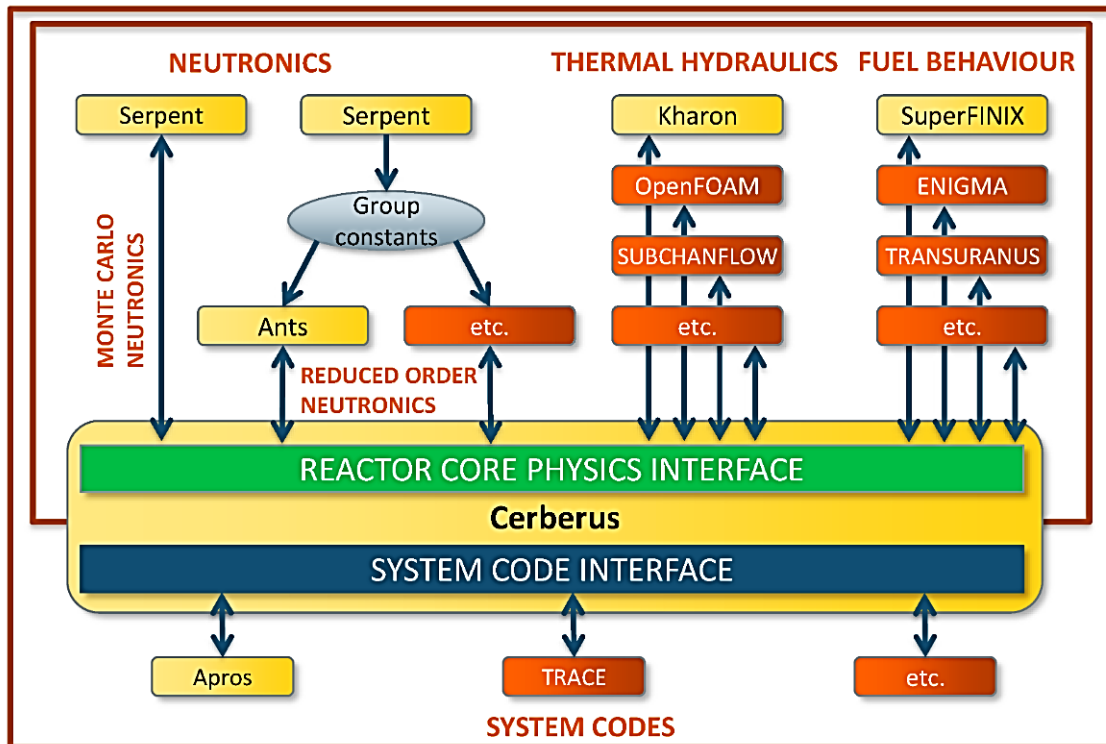


Abb. 3.1 Schematische Darstellung des KRAKEN-Frameworks

Die von VTT entwickelten Löser-Module sind gelb hinterlegt, während potenzielle Löser von Drittanbietern, die gekoppelt werden können, in orangeroter Farbe dargestellt sind /VTT 24a/.

Zu den wichtigsten Rechenmodulen gehören der *Ants Nodal Neutronics Solver*, das Modul für Brennstoffverhalten *SuperFINIX*, der Thermohydraulikcode *Kharon* und der Transportcode *Serpent*, die alle vom VTT entwickelt wurden bzw. werden. Der Löser für die Reaktorphysik kann mithilfe äußerer Randbedingungen mit systemskaligen Simulationen gekoppelt werden. Neben der Methoden- und Code-Entwicklung wurde auch auf die Verifizierung und Validierung der implementierten Methoden großer Wert gelegt. Der reduzierte Code *Ants* wurde erfolgreich für stationäre und transiente Zustände und für Abbrandsimulationen von Druckwasserreaktoren mit quadratischer und hexagonaler Kerngeometrie eingesetzt. Die Codefolge *Ants-Kharon-SuperFINIX* wird aktiv für die Kerndesignaufgaben im Fernwärmereaktorprojekt von VTT verwendet. Eine vollständige Beschreibung des Projekts steht auf der KRAKEN -Website zur Verfügung /VTT 24a/. *Ants* ist ein moderner Multigruppen-Knoten-Neutronik-Löser, der stationäre, transiente, und Abbrand-Rechnungen durchführen kann. Die Lösung basiert auf einer Kombination aus der analytischen Funktionserweiterungsknotenmethode (AFEN: analytic function expansion nodal) und der Flussenergieerweiterungsknotenmethode (FENM: flux expansion nodal method), die zur Lösung der Diffusionsgleichungen verwendet werden. *Ants* wird seit 2017 speziell für das KRAKEN-Framework entwickelt. Dabei verwendet es von *Serpent*

generierte Gruppenkonstanten-Wirkungsquerschnittsdaten. Der Hauptvorteil der Verwendung der CE-Monte-Carlo-Methode zur Erzeugung von Gruppenkonstanten besteht darin, dass die gleiche *Serpent-Ants*-Rechensequenz ohne anwendungsspezifische Einschränkungen, auf eine große Bandbreite von Brennstoff- und Reaktortypen angewendet werden kann.

3.1.3.1 FINIX

Das Modul für Brennstoffverhalten *FINIX* wird seit 2012 bei der VTT für Multiphysiksimulationen entwickelt. Der Code wurde ursprünglich für die interne Kopplung entwickelt, d. h. um beispielsweise veraltete Brennstoffmodelle in VTTs älteren Transientenanalysecodes zu ersetzen oder Temperaturfeedback für Simulationen mit *Serpent* bereitzustellen. Der Code hat eine kleine Anwenderbasis, wobei die meisten Anwender ihn als intern gekoppelten Löser für Brennstoffverhalten mit *Serpent* verwenden. *FINIX* löst das thermomechanische Verhalten eines einzelnen Brennstabs unter Neutronenstrahlung und berücksichtigt dabei sowohl thermische Effekte als auch Änderungen der Stabgeometrie. Die eingesetzten thermischen und mechanischen Modelle sind durch Innendruck und Wärmeleitfähigkeit des Spalts zwischen Brennstoff und Hüllrohr gekoppelt, die ihrerseits Funktionen der Stabtemperatur und der Stababmessungen sind. Sowohl die Wärmeleichung als auch das mechanische Verhalten werden radial in eindimensionaler zylindrischer Geometrie unabhängig für mehrere axiale Knoten gelöst. Die knotenweisen Lösungen sind über den Innendruck miteinander gekoppelt, der gleichzeitig für den gesamten Stab gelöst wird. Dieser Ansatz wird allgemein als 1,5-dimensionales Modell bezeichnet. Die Abhängigkeit physikalischer Größen von lokalen Parametern wie Temperatur und Abbrand basiert auf öffentlich verfügbaren Materialkorrelationen.

3.1.3.2 Kharon

Kharon ist ein stationäres zweiphasiges Thermohydraulikmodul für geschlossene Kanäle, das auf der Näherung für poröse Medien basiert. Da es sich um einen geschlossenen stationären Löser handelt, sind seine Anwendungen auf zeitunabhängige Simulationen mit einer geschlossenen Brennelementgeometrie oder ohne nennenswerte Querströmungen beschränkt. Die ursprüngliche Motivation für die Entwicklung von *Kharon* bestand darin, einen vereinfachten Thermohydraulik-Löser zu haben, um die Multiphysikkopplung während der frühen Entwicklungsphasen des KRAKEN-Frameworks zu vervollständigen. Obwohl *Kharon* im Wesentlichen als Platzhalter für eine fortgeschrittenere Methodik entwickelt wurde, hat der Code in routinemäßigen

Brennstoffkreislaufsimulationen in Verbindung mit *Ants* sowie *SuperFINIX* gute Ergebnisse gezeigt. *Ants* ist ein Modul zur Lösung reduzierter Neutronenordnung für das KRAKEN-Framework und Teil der zweistufigen Berechnungskette. *SuperFINIX* ist der übergeordnete Verteiler für die Lösung des Brennstoffverhaltens auf Kernebene, indem die Arbeiten auf einzelne FINIX-Löser verteilt werden.

Das Modul wurde beispielsweise in den Kerndesignanalysen des Fernwärmereaktorkonzepts LDR-50 des VTT verwendet.

3.1.3.3 Cerberus

Die Kommunikation zwischen den Löser-Modulen wird mithilfe des Python-Pakets *Cerberus* abgewickelt. *Cerberus* ist im Wesentlichen eine codeagnostische Schnittstelle auf hoher Ebene, die Methoden für Socket-basierte Kommunikation, Felddatenaustausch, Iterationsalgorithmen usw. bereitstellt. Die Python-basierte Funktionalität wird durch ein Modul zur Simulation eines Kernreaktors ergänzt, das eine Benutzeroberfläche für die Kontrolle der Reaktivität, Nachladevorgänge des Kerns und weitere Funktionalitäten bietet, die für die Durchführung routinemäßiger Simulationen des Brennstoffkreislaufs erforderlich sind. Das Modul sammelt auch die relevanten Ausgabedaten ein und wertet mehrere sicherheitsrelevante Parameter aus, wie z. B. Feedbackkoeffizienten der Reaktivität, Werte der Steuerstäbe (engl.: control rod worths), Abschalttoleranzen (engl.: shutdown margins) und Faktoren der Leistungsspitzen (engl.: power peaking factors).

3.1.3.4 Serpent

Serpent ist ein vielseitiger dreidimensionaler CE-Neutronen- und Photonentransportcode und wird seit 2004 am VTT entwickelt. Bis Oktober 2008 firmierte diese Entwicklung unter dem Arbeitstitel *PSG*. Der Code wird mit verschiedenen Lizenzoptionen für nicht-kommerzielle Forschungs- und Bildungszwecke sowie für kommerzielle Zwecke vertrieben /VTT 24b/.

Die verwendete CE-Monte-Carlo-Methode kann für eine breite Palette von Teilchen-transportanwendungen verwendet werden. Das Physikmodell in *Serpent* umfasst Neutronen-, Photonen- und gekoppelte Neutronen-Photonen-Simulationen und wurde ursprünglich als Reaktorphysikcode entwickelt. Im Laufe der Jahre kamen umfangreiche Erweiterungen hinzu. Einer der Nachteile der Monte-Carlo-Methode ist ihr hoher Rechenbedarf, was die Bedeutung einer parallelen Rechnung unterstreicht. *Serpent* bietet

einen hybriden MPI/OpenMP-Ansatz, der auf CPU-Kern- und Clusterknoten-Ebene arbeitet. Dadurch sind moderne Arbeitsrechner mit Mehrkernprozessoren für die meisten Anwendungen ausreichend. Bei großen (Vollkern-) Abbrandrechnungen, dynamischen Simulationen und gekoppelten Multiphysikrechnungen können größere Computercluster erforderlich sein, um eine akzeptable Gesamtlaufzeit zu erreichen.

3.1.3.4.1 Reaktormodellierung

Serpent wird seit Beginn des Projekts für die Modellierung verschiedener Arten von Kernspaltungsreaktoren verwendet. Das Standardgeometriemodell basiert auf einem universumsbasierten Typ der konstruktiven Körpergeometrie (engl.: constructive solid geometry: CSG), der für die meisten Reaktortypen mit regulärer Geometrie ausreichend ist. Zusätzliche Geometrieoptionen umfassen ein explizites Modell für Partikel-/Haufenreaktorbrennstoff für gasgekühlte Hochtemperaturreaktoren und einen CAD-basierten Geometrietyt für komplizierte unregelmäßige Strukturen. Die Monte-Carlo-Methode ist von Natur aus dreidimensional und auf ein beliebiges Maß an räumlicher Detailliertheit skalierbar.

Die Neutronenwechselwirkungsphysik in *Serpent* basiert dabei auf der klassischen Kollisionskinematik und den ENDF/B-Reaktionsgesetzen. Nukleare Wirkungsquerschnitte werden aus Wirkungsquerschnittsbibliotheken im ACE-Format gelesen. Das Format wurde ursprünglich für *MCNP* entwickelt und wird auch von anderen Monte-Carlo-Codes wie z. B. *OpenMC* und *Geant4* verwendet. Die Daten zur CE-Wechselwirkung werden aus evaluierten Wirkungsquerschnittsdaten ohne größere Näherungen erstellt. Dies stellt sicher, dass das beste verfügbare Wissen über Neutronenwechselwirkungen unverändert in die Simulationen einfließt. Monte-Carlo-Codes können mit jeder Reaktortechnologie ohne anwendungsspezifische Einschränkungen verwendet werden. Die Daten in Wirkungsquerschnittsbibliotheken im ACE-Format sind auf wenige bestimmte Temperaturen vorverarbeitet. Die Temperaturen können mithilfe einer integrierten Routine, die die Doppler-Verbreiterung berücksichtigt, näher angepasst werden.

Serpent verfügt für Abbrandrechnungen über eine integrierte Funktion zur Verfolgung der Nuklidkonzentrationen, die den Neutronenwechselwirkungen und dem radioaktiven Zerfall unterliegen. Die Methode ist auf Kernbrennstoff und auf abzubrennende, oder auf zu aktivierende Materialien anwendbar. Die Aufteilung der Abbrandzonen und die Bildung von Transmutations- und Zerfallspfaden erfolgt automatisch und mit minimalen Eingabeanforderungen an den Anwender. *Serpent* verwendet die Chebyshev Rationale

Approximationsmethode zur Lösung der Bateman-Abbrandgleichungen und bietet verschiedene Methoden der Zeitintegration zur Durchführung der Iterationen zwischen der Lösung der Neutronen- und der Abbrandrechnung.

Um den Speicherbedarf bei Abbrandrechnungen zu reduzieren, bietet *Serpent* verschiedene Optionen zur Optimierung, um die Speichereffizienz zu verbessern. So können gewisse Funktionen des Codes zur Beschleunigung der Transportsimulation ausgeschaltet werden. Die Standardmethode ist bis hin zu SMR-Abbrandrechnungen des gesamten Kerns anwendbar. Ein kollisionsbasiertes Schema zur Zerlegung der Rechenomänen ermöglicht die Durchführung von Abbrandrechnungen in herkömmlichen großen LWRs. Dies ist allerdings mit einem hohen Rechenaufwand verbunden.

Standard-Zähl-detektoren (engl.: tally) in *Serpent* ermöglichen die Berechnung von Verteilungen von Fluss-, Leistungs- und Reaktionsraten in Geometriezellen und Materialien sowie in regulären Strukturen wie einfachen, aber auch überlappenden Gittern. Zusätzlich zu den standardmäßigen (raumdiskretisierten) volumen- und oberflächenintegrierenden Detektoren, bietet *Serpent* eine Methode zur Rekonstruktion räumlicher Verteilungen in funktionaler Form. Ein solcher Ansatz basiert auf den sogenannten *Functional Expansion Tallies* (FET), die auf orthonormalen Polynomen basieren. Die FET-Methodik verleiht Monte-Carlo-Rechnungen eine deterministisch-hybride Fähigkeit.

Zusammenfassend kann festgehalten werden, dass die Reaktormodellierung mit *Serpent* ein breites Anwendungsspektrum mit unterschiedlichen Methoden abdeckt. Weitere relevante Funktionen in diesem Bereich umfassen einen dynamischen Simulationsmodus, der die Physik von verzögerten Neutronen abbildet, Methoden für Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalysen und erweiterte Modi, die die Wärmeablagerung unter Berücksichtigung von Gammastrahlung berechnen. Auch die Kopplung an andere Physiklöser ist möglich.

3.1.3.4.2 Generierung von Gruppenkonstanten

Eine der ursprünglich vorgesehenen Verwendungen von *Serpent* war die Generierung von Gruppenkonstanten für deterministische Simulationen des Brennstoffkreislaufs und für transiente Analysen. *Serpent* kann alle Eingabeparameter, die für Knotendiffusionsrechnungen erforderlich sind, erzeugen. Dies beinhaltet z. B. homogenisierte makroskopische Wirkungsquerschnitte, mikroskopische Wirkungsquerschnitte für alle beteiligten Isotope, Diffusionskoeffizienten, Diskontinuitätsfaktoren von Brennelementen,

Wirkungsquerschnitte für Neutronengifte, Punktkinetikparameter und Parameter für verzögerte Neutronen. Die Berechnung der meisten Parameter basiert dabei auf Standard-Monte-Carlo-Tallies. Für Diffusionskoeffizienten verwendet *Serpent* die kumulative Migrationsmethode (engl.: Cumulative Migration Method: CMM). Effektive Anteile verzögerter Neutronen werden mithilfe der Methode der iterierten Spaltwahrscheinlichkeiten (engl.: iterated fission probability: IFP) ermittelt. Die Generierung von Gruppenkonstanten kann als Berechnung des unendlich ausgedehnten Gitters oder des kritischen Spektrums durchgeführt werden.

Die Generierung von Gruppenkonstanten erfordert die Wiederholung der Rechnung für eine große Anzahl von Abbrandpunkten und Variationen der thermohydraulischen Bedingungen und der Reaktivitätsbedingungen. Die Verwaltung der Rechenkette mit Tausenden von Durchläufen ist eine herausfordernde Aufgabe, die durch integrierte Funktionen erheblich vereinfacht wird. Zusätzlich bietet *Serpent* eine Verzweigungsfunktion, um kleine Variationen der Parameter hervorrufen zu können, die den Betrieb definieren.

Die Programmfunktion *Casematrix* ermöglicht die optimale Organisation der laufenden Rechnung inkl. möglicher Neustartrechnungen für die Ausführung auf Computerclustern. Bei ausreichenden Rechenressourcen kann der Monte-Carlo-Code auch als praktikable Option für die Generierung von Gruppenkonstanten betrachtet werden.

Die für die Generierung von Gruppenkonstanten verwendete Methodik wurde so angelegt, dass sie mit dem knotenbasierten Neutronikcode *Ants* des VTT kompatibel ist, der als Teil des *KRAKEN*-Rechenframeworks verwendet wird. *Serpent* wird auch häufig zur Erzeugung von Eingabedaten für andere knotenbasierte Codes wie *DYN3D* und *PARCS* verwendet.

3.1.4 FISPACT-II

FISPACT-II 5.X ist ein erweitertes Codesystem, das zur Berechnung von Multiphysik-, Inventar- und Quellterm-Fragestellungen von der britischen Atomenergiebehörde UKAEA entwickelt wurde /FIS 23/, /SUB 17/, /UKA 24/. Es bietet eine große Vielfalt an fortschrittlichen Simulationsmethoden, die unter anderem spektral und zeitlich aufgelöste Rechnungen erlauben. Dabei kommen die aktuellen und vollständigen nuklearen Wirkungsquerschnittsbibliotheken für Wechselwirkungen von Neutronen und geladenen Teilchen zum Einsatz. Als umfassender, moderner objektorientierter Fortrancode, verarbeitet *FISPACT-II* alle ENDF/B-VI-Wirkungsquerschnittsdaten vollständig, einschließlich

aller TENDL-Daten mit allen zur Verfügung stehenden Kovarianzdateien. Zu den Codefunktionen gehören Faktoren zur Selbstabschirmung in Form von Wahrscheinlichkeitstabellen wie auch Temperaturabhängigkeiten über einen sehr breiten Bereich, Zählraten in dünnen und dicken Messtargets, eine robuste Analyse der Transmutations- und Zerfallspfade von nuklearen Kernreaktionen, Monte-Carlo-basierte Bestimmung der Sensitivitäten und Unsicherheit und deren Ausbreitung unter Verwendung vollständiger Kovarianzdaten.

Die neuesten Versionen der Codes *PREPRO*, *NJOY* und *CALENDF* zur Datenvorbehandlung werden dazu eingesetzt, um dem Anwender die aktuellen Daten für nuklearen Teilchen aus den internationalen Wirkungsquerschnittsbibliotheken TENDL-2017, HEIR-0.1, ENDF/B-VIII.0, JEFF-3.3, JENDL-4.0 und CENDL-3.1 bereitzustellen. Diese werden durch die aktuellen Daten zu Zerfall- und Spaltausbeute ergänzt, einschließlich der aktuellen GEFY-6.1-Daten. Nach Herstellerangaben ist ein hoher Reifegrad an modernen nuklearen Daten gegeben, einschließlich TENDL und GEFY, und bietet eine umfassende Datensammlung für alle Simulationsanforderungen. Somit steht dem Anwender eine umfassende Multiphysikplattform zur Verfügung. Darin werden zahlreiche Anforderungen umfangreicher nuklearen Anwendungsfälle abdeckt. Inbegriffen sind u.a. Themen zur Aktivierung, Transmutation, Abbrand, abbrennbaren Absorbern (z. B. Gallium), Zerfall, Quellendefinition, vollständige Inventartberechnungen, (engl: full inventories), Verschiebungen pro Atom (engl.: displacements per atom: DPA), freigesetzte kinetische Energie pro Masseneinheit (engl.: kinetic energy released per unit mass: Kerma), Primärschadensspektren (engl.: primary knock-on atom spectrum: PKA spectrum), Gas- und Radionuklidproduktion und mehr.

FISPACT-II benutzt einige nukleare Wirkungsquerschnittsdaten, darunter teilcheninduzierte Reaktionen, teilcheninduzierte und spontane Spalterträge, Zerfallsdaten sowie Wahrscheinlichkeitstabellen, um eine umfassende Simulation für eine Vielzahl von Anwendungen zu ermöglichen. Bestandteil davon sind moderne vorverarbeitete Wirkungsquerschnittsbibliotheken und die vollständigen Bibliotheken TENDL und GEFY. Die neueste TENDL-2015-Bibliothek beinhaltet einen vollständigen Datensatz für 2809 Zielnuklide. Dies ist in Relation zu den nur 423 Nukliden der ENDF/B-VII.1-Bibliothek. Dies ist besonders dahingegen interessant da die ENDF-Bibliothek nicht alle stabilen Nuklide enthält. Als Abhilfe dient eine erweiterte Zerfallsbibliothek, in der mehrere hunderttausend Reaktionskanäle kombiniert sind. Damit wird eine stabile Simulation ohne fehlende Nuklide ermöglicht. TENDL ist das Ergebnis der fortschrittlichsten *TALYS*-basierten Codesuite, die umfangreiche Bibliotheken für nukleare Parameter benutzt, um alle

Reaktionskanäle zu simulieren. Allgemein ist noch zu erwähnen, dass die aktuellen Wirkungsquerschnittsbibliotheken mehrere Verifizierungs- und Validierungsprozeduren durchliefen, die in internationaler Zusammenarbeit mit der UKAEA.

Das Grundkonzept von *FISPACT-II* basiert darauf, dass es an das Format der fortschrittlichen TENDL-Wirkungsquerschnittsbibliothek angepasst ist, die die vollständigen Energiekovarianzen aller Reaktionskanäle enthält. Für weitere Wirkungsquerschnittsbibliotheken kann *FISPACT-II* auch unterschiedliche Dateiformate für Kovarianzdaten verwenden und Projektilflussspektren mittels Flussspektrengewichtung zu energieunabhängigen Werten für die Inventarberechnungen kollabieren (engl.: collapse), um für alle Reaktionen Ein-Gruppen-Unsicherheiten der Reaktionsraten zu generieren. In Verbindung mit Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalysen oder pfadbasierten Unsicherheiten der Reaktionsraten können so zuverlässige Werte der Unsicherheiten von zahlreichen observablen Größen erzeugt werden.

Die Unsicherheiten von Reaktions- und Zerfallspfaden in *FISPACT-II* beruhen auf einem Digraphen-theoretischen Ansatz zur Identifizierung der Reaktions- und Zerfallspfade, die zur Produktion einiger wesentlicher Nuklide führen. Die dominanten Nuklide für jede erforderliche Beobachtung (Wärme, Aktivität usw.) werden während der Lösungsphase besetzt und an einen Algorithmus zur Bereinigung übergeben, der alle Kombinationen von Pfadverbindungen identifiziert, die wesentlich zum endgültigen Nuklid beitragen. Die Unsicherheiten für jede Halbwertszeit des Zerfalls und jede Reaktionsrate werden kombiniert, um die Unsicherheiten für jeden Pfad zu bestimmen. Somit kann eine robuste Unsicherheit für das Inventar des endgültigen Nuklids bestimmt werden.

Diese Unsicherheiten können durch weitere Methoden ergänzt werden, wie z. B. Sensitivitätsanalysen, die mithilfe einer integrierten Sampling-Methodik durchgeführt werden können. Dabei werden die Unsicherheiten der Wirkungsquerschnitte direkt eingelesen und effektiv durch die gesamte Simulation verfolgt. Als weitere Methode steht die totale Monte-Carlo-Methode zur Verfügung, die Sätze von Wirkungsquerschnittsdaten verwendet, die aus gesampelten Eingangsgrößen für Kernparameter generiert wurden. Das Sampling konsistenter und vollständiger Wirkungsquerschnittsbibliotheken liefert einen vollständigen Satz an Korrelationseffekten zwischen Reaktionskanälen, Energien und jedem anderen Aspekt der zugrundeliegenden Daten.

3.1.4.1 Rückstöße, PKA-Spektren und Eingangsgrößen zu Materialsimulationen

Die Berechnung der Energieverteilung von verbleibenden und emittierten Teilchen, die aus Kernreaktionen resultieren, ist eine wichtige Eingangsgröße für die Modellierung von Strahlenschäden in Materialien. Die zurückstoßenden „Spezies“ oder primären Knock-on-Atome (PKA) können Kaskaden von Atomverschiebungen auslösen, die zur Ansammlung von Strukturschäden mit lebensbegrenzenden Folgen für Bauteile führen können (Rückstöße engl. recoil). Innerhalb von *FISPACT-II* wird die Ausgabe dieser Verteilungen für ein Inventar von Nukliden, das einem Eingangsneutronenspektrum und -fluss ausgesetzt ist, über eine speziell geschriebene Routine erreicht. Diese kollabiert das Eingangsneutronenspektrum mit dem vollständigen Satz aus Wirkungsquerschnittsmatrizen für Einfallenergie- gegen Rückstoßenergie für jedes Nuklid im aktuellen Inventar, das zum Zeitpunkt $t = 0$ oder zu einem späteren Zeitpunkt vorliegt. Dieses Verfahren kann auch nach einer Bestrahlungs- und Abkühlphase angewendet werden. Die resultierenden Verteilungen des Rückstoßes, eine für jeden möglichen Reaktionskanal jedes Nuklids im Inventar, wird anschließend entsprechend den Inventar-Nuklidfraktionen skaliert und als Funktion von Nuklid und Element summiert. Besonders letzteres ist dabei relevant für die computergestützte atomistische Modellierung von Materialien.

3.1.4.2 Selbstabschirmung

Faktoren der Selbstabschirmung (engl.: self-shielding factors: SSF) für die energiegruppenweisen Wirkungsquerschnitte können mithilfe der Wahrscheinlichkeitstabellen berechnet werden, die in ENDF/B-6 formatierte Wirkungsquerschnittsbibliotheken bereitgestellt werden. Diese decken sowohl die nicht-aufgelösten als auch die aufgelösten Resonanzbereiche ab und bieten eine Vielzahl von Optionen für die SSF-Rechnung. Die Faktoren können beispielsweise auf alle relevanten Reaktionskanäle und gegen jeden Satz von Nukliden oder Reaktionen, gegen die Gesamt- oder Makropartialwirkungsquerschnitte, als multiplikative Faktoren oder als direkt abgeleitete selbstabschirmende Wirkungsquerschnitte angewendet werden. Einschränkend ist dazu zu erwähnen, dass Wahrscheinlichkeitstabellen nur für ausgewählte Wirkungsquerschnittsbibliotheken innerhalb der Standardversionen bereitgestellt werden.

Die SSF berücksichtigen durch ihre Konstruktion temperatur- und materialabhängige Effekte. Diese können mithilfe von Schlüsselwörtern direkt angesteuert werden. Dies Beinhaltet die Anzeige der Wahrscheinlichkeitstabelle (PROBTABLE), der einzu-

beziehenden Nuklide (SSFFUEL), die einzubeziehenden Reaktionen (SSFCHOOSE) und eine Option zum Überschreiben von Verdünnungswerten auf energiegruppenabhängiger Basis (SSFDILUTION).

Ältere EAF-Wirkungsquerschnittsbibliotheken enthalten keine Selbstabschirmungsoptionen oder Temperaturabhängigkeiten und sind daher für nicht schwellenartige Reaktionen korrekt verwendbar. Daher sollte auf eine Wirkungsquerschnittsbibliothek ohne diese Einschränkungen ausgewichen werden.

3.1.4.3 Validierung

Eine Reihe von Verifizierungs- und Validierungsberichten (V&V), die auf der offiziellen Dokumentationsseite verfügbar sind, decken die gesamte Bandbreite der Aspekte von *FISPACT-II* ab. Darunter fallen unter anderem die direkte Validierung der nuklearen Daten, die Verifizierung der internen Datenverarbeitung und die Benchmark-Vergleichsrechnungen anhand anerkannter experimenteller Ergebnisse /FIS 23/.

Für *FISPACT-II* verwendet V&V eine Reihe von Werkzeugen mit integralen und differentiellen Daten:

- Differentielle und integrale Validierung der verwendeten nuklearen Daten.
- Verifizierung technologischer nuklearer Daten mithilfe systematischer und statistischer Prüfungen.
- Verifizierung der Verarbeitung der nuklearen Wirkungsquerschnittsdatendateien durch *FISPACT-II* und der Hilfscodes.
- Validierung von Code-Simulationen anhand experimenteller Daten.

Dies stellt einen vollständigen und konsistenten Ansatz dar, der die gesamte Bandbreite des Simulationsprozesses abdeckt, angefangen von den grundlegenden Bestandteilen bis zum Endprodukt. Jeder V&V-Durchgang verwendet die möglichst vollständigen und robusten Datensätze zum Vergleich, z. B. unter Verwendung aller EXFOR Experimente, aller Fusions-Aktivierungsexperimente oder aller Messungen der Zerfallswärme bei der Kernspaltung. Jedes dieser Themen ist Gegenstand eines eigenständigen Berichts und wird in den folgenden Kapiteln knapp umrissen.

3.1.4.3.1 Zerfallswärme

Zerfallswärme- und Inventarrechnungen für bestrahlten Kernbrennstoff sind zwei der grundlegenden Aufgaben in der Kerntechnik für zeitabhängige Bateman-Löser. Detaillierte und genaue Kenntnisse dieser zeitabhängigen Größen sowie deren zuverlässige Unsicherheitswerte sind von größter Bedeutung für die Reaktorsicherheit und den Umgang mit bestrahltem Brennstoff.

FISPACT-II beinhaltet neue Simulationsmethoden für eine Vielzahl von nuklearen Beobachtungsgrößen, darunter Zerfallswärme- und Inventarrechnungen bei der Kernspaltung. Um diese Simulationen durchführen zu können, müssen umfangreiche Wirkungsquerschnittsbibliotheken, die die vollständigen Wahrscheinlichkeitsverteilungen für die Bildung von Spaltprodukten sowie die vollständigen Zerfallsdaten für alle diese Produkte enthalten, mit hochwertiger und robuster Simulationssoftware gepflegt und validiert werden. Dies umfasst Isotope mit einer sehr großen Spanne von Halbwertszeiten von weniger als einer Sekunde bis hin zu sehr großen Werten von 100.000en von Jahren. Die gesamte Physik der nuklearen Wechselwirkungen, Spaltungen und Zerfälle ist bereits in den Wirkungsquerschnittsdateien enthalten. Somit ist die eine Hälfte der Gesamtsimulation innerhalb der Auswertungsmethoden in diesen Dateien hinterlegt.

Während die meisten zeitabhängigen Codes zu den Berechnungen von Inventaren und anderen Observablen auf einer maßgeschneiderten Wirkungsquerschnittsbibliothek basieren, kann mit *FISPACT-II* jeder Datensatz genutzt werden. Dies liefert die Möglichkeit, Daten zu überprüfen und den Codeentwicklern Feedback zu geben, was letztlich das Code-/Datensystem verbessert. Durch die Durchführung einer Verifizierung und Validierung von *FISPACT-II* mit allen wichtigen internationalen Wirkungsquerschnittsbibliotheken geht diese Vorgehensweise über die Demonstration der Fähigkeiten des Code-/Datensystems bei der Simulation von Zerfallswärme und Inventaren hinaus. Somit kann ermittelt werden, für welche Nuklide die Spaltausbeute oder die Zerfallsdaten neu bewertet werden sollten, bzw. in welcher Bibliothek dies angebracht wäre.

3.1.4.3.2 Integral-Differenzial-Validierung

Für eine große Anzahl an Zielnuklide und Reaktionen gibt es nur wenige experimentelle Messungen, auf die man sich beim Auswerteprozess von nuklearen Daten stützen kann. Viele Energiebereiche lassen sich nicht adäquat untersuchen, beispielsweise Resonanzbereiche oder Energien zwischen wenigen MeV und 14 MeV für Neutronen.

Diese Einschränkungen der Daten erzwingt bei der Validierung ein proaktives Vorgehen und ein Zurückgreifen auf verschiedene, sich ergänzende Quellen, um relevante Schlussfolgerungen ziehen zu können, wenn einzelne Reihen differentieller Messungen nicht zur Verfügung stehen.

Um die Qualität und den Umfang der Schlussfolgerungen am besten zu beurteilen, die aus den verfügbaren integralen Messungen gezogen werden können, werden Differenzdaten von EXFOR mit den ausgewerteten Wirkungsquerschnitten verglichen, die sämtliche Isomer-Produktionen enthalten, sofern diese verfügbar sind. Die Kombination dieser Daten ist sehr hilfreich, um Bereiche für eine Neubewertung hervorzuheben oder die zuverlässigste Aktivierungsvalidierung bereitzustellen.

3.1.5 Helios-2

Helios-2 ist ein verallgemeinerter Gitterphysik-Transportcode des schwedischen Unternehmens Studsvik Scandpower (SSP) mit zweidimensionaler Geometrie /STU 11/, /STU 24a/. Das Unternehmen befindet sich im Besitz des schwedischen Staates, kommunaler und privater Energieversorger sowie Industrieunternehmen und steht unter der Aufsicht des schwedischen Ministeriums für Handel und Industrie.

Der Code *Helios* kann Brennstoffe analysieren, die sowohl in konventionellen als auch in nicht-konventionellen zivilen Kernreaktorconcepten verwendet werden. Er kann für komplexe physikalische Berechnungen für nicht-LWR-Gitter (z. B. CANDU, PHWR, Magnox, RBMK) aber auch für Versuchsreaktoren wie MTR und TRIGA eingesetzt werden. Zusätzlich wurde der Code in der Vergangenheit zur Analyse von Hunderten von WWER-Betriebszyklen eingesetzt.

Die verallgemeinerten Geometrie- und Rechenoptionen des Programms ermöglichen die Modellierung universeller Brennstoffdesigns, ohne dass Einschränkungen hinsichtlich der Gitter- oder Geometrietypen vorhanden sind. Ein in *Helios* enthaltenes interaktives Rendering-Modul für die Geometrie unterstützt dabei die Eingabeentwicklung. Dieses Modul ist in der Lage, einzelne Komponenten oder das gesamte System darzustellen und kann zur Unterstützung der Eingabephase Bearbeitungsbereiche sowie Geometrie-, Material- und Temperaturzuweisungen anzeigen. Die Eingabedatensätze können dabei in eine zentrale Datenbankstruktur geschrieben werden, sodass feste, oder gemeinsame Daten zentral verfügbar sind. Die Datenkommunikation zwischen den Modulen erfolgt ebenfalls über eine Datenbankstruktur, und erleichtert dadurch die Datenhaltung bzw.

den Datenabruf bereits durchgeführter Arbeiten. Ebenfalls unterstützt die Datenbankarchitektur die gleichzeitige Analyse von Ergebnissen aus mehreren Rechenfällen.

Ebenfalls unterstützt wird die Erstellung von Datenbanken mit abgebrannten Brennelementen für die Analyse von Lagerbecken mit abgebrannten Brennelementen und deren Umschichtung, bzw. das Kernmanagement, sowie die Wiedereinsetzung in den Kern.

HELIOS-2 wurde anhand von gemessenen kritischen Experimenten, Monte-Carlo-Rechnungen mit kontinuierlichem Energiespektrum und internationalen Benchmarks zur Isotopenrechnung umfassend validiert und bietet somit eine hohe Genauigkeit sowohl für etablierte, aber auch für nicht-traditionelle, sowie für experimentelle Brennstoffkonzepte.

Das Programm ist vollständig in Fortran-90 geschrieben und wird von allen Standard-Computerplattformen mit modernen 32- und 64-Bit-Betriebssystemen unterstützt. Die Programmversion *HELIOS-2* ist unter Linux-, Windows- und UNIX-Architekturen einsetzbar.

3.1.6 CASMO

HELIOS und *CASMO* sind zwei Gittercodes, die von Studsvik und Scandpower entwickelt wurden /STU 24b/. Beide Unternehmen fusionierten in den 1990er Jahren. Beide Codes haben die vergleichbare Funktion, Wirkungsquerschnitte aus ENDF/B-Daten zu generieren und diese für die Verwendung in Kernsimulatoren zusammenzufassen. Beide Codes verwenden unterschiedliche mathematische Modelle und Algorithmen, was bei Reaktorsimulationen zu leicht unterschiedlichen Ergebnissen führen kann /PHY 24/. Durch die schlüsselwortgesteuerten Eingabeformate wird eine einfache Handhabung des Codes unterstützt.

Das Programm wurde als Gitterphysikcode zur Modellierung von DWR- und SWR-Reaktoren entwickelt. Die Version *CASMO5* wurde für die Modellierung heterogener Brennstoffdesigns optimiert, d. h. wie hohe Mischoxidkonzentrationen (MOX) oder hohe Konzentrationen abbrennbarer Neutronengifte. Das Programm basiert auf der Methode der Charakteristiken mit einer linearen Näherung der Quellterme und liefert eine hohe Genauigkeit mit Laufzeiten auf Produktionsniveau, selbst bei längeren Brennstoffzyklen.

Unter Verwendung der verfügbaren Wirkungsquerschnittsdaten von ENDF/B-VII stellt Studsvik eine hochauflösende Neutronenbibliothek mit 586 Energiegruppen zur Verfügung, die eine verbesserte Genauigkeit und reduzierte Abhängigkeit von approximierenden Resonanzbehandlungen liefert. Das Programm enthält außerdem eine aktualisierte 18-Energiegruppen-Gammabibliothek für die Modellierung von gamma-empfindlichen Detektoren im Reaktorkern und für die Berechnung deren Deposition der Gammaenergie.

Es stehen Wirkungsquerschnittsdaten für über 450 Nuklide und Materialien zur Verfügung, darunter mehr als 250 explizit definierte Spaltprodukte und 60 schwere Nuklide. Ebenfalls verfügt das Programm über Funktionalitäten wie die resonante Aufwärtsstreuung (engl.: upscattering), P_n -Streuung höherer Ordnung, erweiterte Abbrandketten und ein Modell zur Berechnung der lokalisierten Energiefreisetzung pro Kernspaltung.

Typische Einsatzgebiete für *CASMO5* sind folgende Modellierungen:

- alle kommerziell erhältlichen Brennstoffdesigns
- Einzelgitterbetrachtungen bis zu Effekten von mehreren Brennelementen
- hohe Mischoxidkonzentrationen (MOX)
- kritische Konfigurationen kleiner Reaktoren
- hohe Konzentrationen abbrennbarer Gifte
- Konfigurationen von Brennstofflagerbecken und -gestellen
- Kritikalitätsanalysen
- Generierung von Wirkungsquerschnittsdaten

Zur umfassenden Validierung von *CASMO5* wurden gemessene kritische Experimente, Monte-Carlo-Rechnungen mit kontinuierlichem Energiespektrum und vergleichende Benchmarks nach der Bestrahlung betrachtet.

3.1.7 SNF

Das Programm SNF (Spent Nuclear Fuel) ist ein Produkt von Studsvik Scandpower und dient der Analyse abgebrannter LWR-Brennelemente /STU 25/. Für seine Berechnungen greift es auf die Programme CASMO5 (mit Fokus Isotopenkonzentrationen, -flüsse und -querschnitte) sowie SIMULATES5 (mit Fokus Daten der Bestrahlungshistorie) und tabellierten Isotopenzerfallsdaten (typischerweise im Rahmen des In-Core-Management, ICFM) zurück. Ziel ist es, eine schnelle Bewertung von Isotopenkonzentrationen, Strahlungsquellentermen, Neutronen- und Photonenspektren sowie der Zerfallswärme der abgebrannten Brennelemente zu ermöglichen.

Durch die Nutzung detaillierter Leistungsverläufe und der expliziten Knotendarstellung der Brennelemente gewährleistet das Programm eine gute Genauigkeit. Jede in CASMO modellierbare Konfiguration von Leichtwasserreaktorbrennstoffen kann somit mit SNF analysiert werden.

Typische Anwendungen von SNF liegen im Bereich der Behälterbeladung und deren Optimierung für seine Berichtsgenerierung zu Radioaktivität, Photonen- und Neutronenspektren sowie zum Verhalten der Nachzerfallswärme. Somit kann sichergestellt werden, dass die von den Behälterlieferanten vorgegebenen Beladungskriterien eingehalten werden.

Ebenfalls kann das Programm für den ähnlich gelagerten Anwendungsfall der Bewertung der Nachzerfallswärme von Brennelementen im Reaktor während der Abschaltung, oder zu deren Verhalten im Abklingbecken verwendet werden. Eine weitere Kopplung von SNF wurde mit GARDEL, der Online-Kernüberwachungssoftware von Studsvik eingeführt, um so Echtzeitberechnungen der Nachzerfallswärme für den laufenden Kern oder des Beckens durchzuführen. Die vorhandene intuitive grafische Benutzeroberfläche ermöglicht dabei die schnelle und effektive Erzeugung gestaffelter Eingabegeometrien. Mehrere internationale Standards sind in SNF integriert, um ergänzende Informationen zum Vergleich zu den erhaltenen SNF-Berechnungen zu bekommen

3.1.8 CRISTAL

Das Programm CRISTAL V2 ist eine französische Gemeinschaftsentwicklung von IRSN, CEA/DES sowie Orano, Framatome und EDF /CEA 24/, /ASNR 24/. Das Software-Paket ermöglicht Neutronenberechnungen zur Gewährleistung der Kritikalitätssicherheit in kerntechnischen Anlagen im Brennstoffkreislauf (Herstellung, Wiederaufarbeitung etc.) sowie beim Transport und der Lagerung von Kernmaterial. Das Cristal-Paket bietet dazu verschiedene Berechnungsarten. Der zentrale Einstiegspunkt des CRISTAL-Paket ist die grafisch orientierte Software-Plattform LATEC die für die verschiedenen Methoden einerseits das Eingabemanagement (z. B. Geometrie, Materialzusammensetzungen etc.) dient, andererseits die weiteren Steuerungsfunktionen übernimmt. Mittels einer Client-Server-Architektur wird eine Parallelisierung der Berechnungen über eine Verteilung auf einem Remote-Server oder Cluster erreicht. Als Methoden stehen neben der iterativen APOLLO S_n Methode, eine mehrgruppendedeterministische Methode (M.D.) basierend auf Mehrgruppenquerschnitten unter Verwendung von APOLLO2 S_n -Berechnungen, eine mehrgruppen Monte Carlo-Methode (M.M.C.) basierend auf den Codes APOLLO2 und MORET 5, sowie eine punktweise Monte Carlo-Methode (P.W.M.C.) unter Verwendung des Codes TRIPOLI-4 zur Verfügung. Als Querschnittsbibliothek findet alleinig CEAV5.1.2 Verwendung.

LATEC unterstützt dabei auch die Verwendung validierter Berechnungssequenzen mit Hilfe der Bibliotheksprozeduren APROC und APROC_CRISTAL. Der CRISTAL-Validierungsbericht vom Januar 2024 stellt Ergebnisse zwischen den CRISTAL-Ergebnissen und verfügbaren Experimenten dar. Intergral wurden umfangreiche Validierungen u. a. mit experimentellen Daten, wie z. B. für die Gruppen der Spaltmaterialien Pu, LEU, HEU IEU, ^{233}U , MIX (U und Pu) und SPEC (Spezielle Isotope) durchgeführt. Dabei ergab sich in den meisten Fällen eine gute Übereinstimmung zwischen experimentellem und berechnetem k_{eff} . In einigen wenigen Fällen treten jedoch Abweichungen auf. Besonders wurde für die UO_2 -Anordnungen mit Absorbern und metallischen Reflektoren im Zusammenhang mit der Mehrgruppenbehandlung eine signifikante Verzerrung festgestellt. Hier sollten bei der Verwendung von CRISTAL zur weiteren Betrachtung Kontrollrechnungen durchgeführt werden.

Die Folgeversion CRISTALV 2.1 befindet sich Stand 2025 zur weiteren Validierung bei den beteiligten Entwicklungspartnern. Nach dieser Phase soll die Veröffentlichung stattfinden.

3.1.9 MONK

MONK ist ein bekanntes Monte-Carlo-Softwaretool für die nukleare Kritikalitätssicherheit und die Analyse der Reaktorphysik der britischen Firma ANSWERS. Es wird seit 1969 für Anwendungen der Kritikalitätssicherheit weltweit eingesetzt, besonders mit Fokus des Brennstoffkreislaufes. Innerhalb der britischen Kritikalitäts-Community gilt der Code als De-facto-Standard und wird häufig für die Erstellung von Sicherheitsnachweisen bei Aufsichtsbehörden eingesetzt. Die aktuelle Version MONK 12A, wurde Anfang 2024 veröffentlicht /AME 25/, /JAC 23/. Viele Code-Teile von MONK werden auch im Programm MCBEND, einem Monte-Carlo-Code für allgemeine Strahlungstransportanalysen in Abschirmungs- und Dosimetrie-Anwendungen verwendet und vergrößern somit die Anwenderzahl.

Die Software zeichnet sich durch eine allgemeine Beständigkeit und Betriebsbewährung aus. Es wurde mit der aktuellen Version in vielen Teilen aktuellen Anforderungen an Ergonomie und Technik angepasst /FIL 24/. Besonderer Fokus wurde dabei auf die Themen stochastische Mischung gebundener thermischer Streudaten, Korrektur der Doppler-Verbreiterungsunterdrückung und einer verbesserten Unterstützung für Tieftemperaturanalysen gelegt. Ebenfalls wurde ein neuer Lösungsansatz auf dem Gebiet des Abbrandkredits entwickelt, in Form einer Übertragung bestrahlter Geometrie Komponenten zwischen Modellen. Im Arbeitsbereich für die subkritischen Analysen wurde eine Listenmodus-Funktion (Simulation von Detektorsignalen für die Analyse unterkritischer Systeme), einschließlich eines Modells für die vollständige Verteilung der Neutronenmultiplikationen hinzugefügt.

3.1.10 ERANOS

ERANOS (European Reactor ANalysis Optimized calculation System) ist ein modulares System von Neutronen- und Gammacodes, das in einem europäischen Rahmen entwickelt wurde und mittlerweile in der Version 2.0 vorliegt /RIM 22/, /KIT 24/. Es umfasst verschiedene Module, die es schnell ermöglichen, Reaktorkerne zu entwerfen, Reaktorabschirmungen zu bewerten und Analysen des Brennstoffkreislaufs durchzuführen. *ERANOS* ist ein deterministisches Codesystem: Neutronenrechnungen werden in zwei getrennten Schritten durchgeführt: zuerst auf Ebene der Rechenzellen, im Anschluss auf Ebene des Reaktorkerns.

Das Zellpaket *ECCO* ermöglicht es, genaue Berechnungen auf Zellebene durchzuführen. Das Modul hat Zugriff auf Wirkungsquerschnittsbibliotheken, die aus JEFF-2.2 und ENDF/B durch Verarbeitung mit *NJOY* und *CALENDF* generiert wurden. Im Detail sind dies eine 1968-Energiegruppen-Bibliothek für die 37 wichtigsten (resonanten) Nuklide, eine 33-Energiegruppen-Bibliothek für Anwendungen mit schnellem Spektrum, eine 175-Energiegruppen-Bibliothek für Abschirmrechnungen und eine 172-Energiegruppen-Bibliothek für Anwendungen im thermischen Spektralbereich. Auch sind verbesserte *ERLIB1*-Neutronenquerschnittsbibliotheken verfügbar. Wahrscheinlichkeitstabellen sind für die 37 wichtigsten resonanten Nuklide enthalten. Daten wie Spaltausbeute und Spaltenenergien, Zerfallskonstanten, Gamma-Produktion, Wechselwirkungs-Bibliotheken usw. werden in weiteren Dateien vorgehalten. Diese verarbeiteten Wirkungsquerschnittsdaten werden verwendet, um den Neutronentransport auf Kernebene zu lösen.

ERANOS bietet mehrere Neutronenlöser, von denen jeder die Transportgleichung mit einem anderen Ansatz diskretisiert.

Dazu gehören der Zell- und Gittercode *ECCO* zur Behandlung von resonanten Selbstabschirmungseffekten, der die *Collision Probability Methode* in vielen Energiegruppen unter Verwendung der Untergruppenmethode anwendet. Das gleiche Rechenschema kann für thermische Reaktorprobleme sowie für Anwendungen zur Abschirmung verwendet werden. Die von *ECCO* erzeugten effektiven Wirkungsquerschnittsdaten und Matrizen können anschließend in Vollkern-Rechnungen mit *ERANOS* verwendet werden, beispielsweise mit dem S_n -Transportmodul *BISTRO 2*. Dabei handelt es sich um einen Finite-Differenzen-Code mit einem hocheffizienten Konvergenzalgorithmus bei dem sowohl Optionen für den S_n -Transport, als auch Diffusionsoptionen verfügbar sind. Der Nodal Variational Transport-Code *TGV/VARIANT 3-D* ist als Modul verfügbar, sowie ein spezielles Verfahren zur Erstellung äquivalenter homogener Wirkungsquerschnittsdaten für Steuerstäbe.

Ein weiteres in *ERANOS* verfügbares Paket, der Kinetiktreiber *KIN3D*, wurde um das Modul *VARIANT* entwickelt, um zeitabhängige zweidimensionale Analysen für transiente Effekte in schnellen Reaktoren zu ermöglichen. Damit können grundlegende Aspekte der Sicherheit schneller Reaktoren untersucht werden. Es ist damit auch zur Modellierung moderner schneller Reaktorkerne, quellengetriebener unterkritischer Medien und gasgekühlter schneller Reaktoren geeignet. Der Kinetiktreiber enthält mehrere kleinere Module und Dienstprogramme zur Nachbearbeitung der Daten. Dabei erlaubt das Modul *VARIANT* die Verwendung von heterogenen Knoten. Dies sind Knoten, bei denen die

Materialeigenschaften innerhalb des Knotens selbst räumlich variieren können. In einigen Fällen reduziert diese Technik die Gesamtzahl der Knoten in den Rechnungen, wodurch diese signifikant schneller werden. Dies ist ein wichtiger Aspekt insbesondere für transiente Analysen.

Eine Zusammenfassung der umfassenden Validierung von *ERANOS* ist ebenfalls verfügbar /RIM 22/. Diese zeigt, dass *ERANOS 2.0* die Hauptmerkmale konventioneller, sowie moderner flüssigmetallgekühlter schneller Reaktoren nach Stand von W&T vorhersagen kann.

3.1.11 OpenMC

Der Start der OpenMC Entwicklung geht auf das Jahr 2011 der Computational Reactor Physics Group am Massachusetts Institute of Technology zurück. Seitdem wird die Weiterentwicklung durch die vorhandene User-Community vorangetrieben. Bei OpenMC handelt es sich um einen Monte-Carlo-Code für die partikelweise Berechnung zum Transport von Neutronen und Photonen /MAS 25/, /WIL 25/. Zielsetzung war ein voll-funktionaler Monte-Carlo-Partikelcode mit den Besonderheiten von umfangreichen, erweiterbaren Python- und C/C++-Programmierschnittstellen. Damit erhält der Anwender die Möglichkeit auf die Vor- und Nachbearbeitung, die Generierung von Mehrgruppenquerschnitten, die Automatisierung von Arbeitsabläufen, Abbrandrechnungen, multiphysikalische Kopplungen sowie die Visualisierung von Geometrie- und Tally-Ergebnissen, gemäß seinen jeweiligen Bedürfnissen Einfluss zu nehmen. Auch soll mit dem Programm auf die in Zukunft immer dringlicher werdenden Anforderung auf das Exascale-Computing für Hard- aber auch für Software reagiert werden. Zur Modellierung von beliebig komplexen geometrischen Objekten wird eine konstruktive Festkörpergeometrie verwendet in der jedes geschlossene Volumen als Vereinigung, Schnittmenge aber auch als Differenz mehrerer Halbräume dargestellt werden kann.

Das Programm OpenMC ermöglicht Berechnungen mit Fixquellen, k-Eigenwerte und subkritische Multiplikation von Modellen, die entweder mit konstruktiver Festkörpergeometrie oder CAD-Darstellung erstellt wurden. Das hinterlegte flexible Tally-System ermöglicht die Zählung wie auch die Analyse umfangreicher physikalischer Größen. Das HDF5-Format, das aus von NJOY erstellten ACE-Dateien generiert wird, bildet die Basis der Daten zur kontinuierlichen Energieteilcheninteraktion. Das ACE-Formats wurde aufgrund seiner Zuverlässigkeit und die geringe Anzahl an Näherungsschritten in der unterlegten Kollisionsphysik ausgewählt. Dieses Format wird auch von MCNP sowie Serpent

genutzt. OpenMC kann parallel mit einem hybriden MPI- und OpenMP-Programmiermodell ausgeführt werden und wurde im Einsatz auf Supercomputern erfolgreich getestet.

Zusätzlich zum zentralen Monte-Carlo-Transportlöser und den zugehörigen APIs enthält OpenMC eine pythonbasierte Kerndatenschnittstelle. Mittels dieser Schnittstelle können unterschiedliche Arten von Kerndatenverarbeitung der ENDF-, ACE- und OpenMC-nativen HDF5-Dateien geprüft und modifiziert werden.

Eine Validierung von OpenMC wurde durch einen Vergleich der wichtigsten Ergebnisgrößen mit MCNP5 durchgeführt. Zur Sicherstellung einer weiterhin ausreichenden Qualität und Genauigkeit des Codes wurde eine unterstützende Infrastruktur entwickelt. Diese enthält kontinuierliche Integrationstests, automatisierte kritische Benchmark-Simulationen, Code-übergreifende Vergleiche sowie einen integrierten Leistungstest.

Auch im Bereich der magnetischen Fusion findet OpenMC mittlerweile Anwendung, bedingt durch seine guten Leistungsdaten im Bereich des Neutronen- und Photonentransports. Es kann in einzelnen Bereichen in den Leistungsfähigkeitsbereich des dort am gängigsten und häufigsten benutzten Programms DEGAS2 vorstoßen.

3.1.12 Diverse Code-Pakete des Argonne National Laboratory

Entsprechend den Zielsetzungen und Möglichkeiten verfügt das US-amerikanische Argonne National Laboratory über einen umfangreichen Fundus von Analyse und Designprogrammen für die wissenschaftlichen und technischen Anwendungen der Nukleartechnik /ANL 24a/. Diese Codes werden für die Anwendung in einer Vielzahl von Forschungsprogrammen auf einem entsprechend aktuellen wissenschaftlichen Stand gehalten und validiert. Im Folgenden werden dazu einige relevante Softwarepakete des Argonne National Laboratory umrissen.

3.1.12.1 Diffusions- und Transporttheorie-Codes

3.1.12.1.1 DIF3D

DIF3D (DIFfusion 3D) ist ein Code zur Lösung von Neutronendiffusion und -transport Problemen im stationären Zustand. Der Quellcode ist in der Programmiersprache Fortran geschrieben und es stehen Versionen für Computerplattformen Linux, Macintosh und Microsoft Windows zur Verfügung.

Zielsetzung

DIF3D wurde in erster Linie als Löser der dreidimensionalen Diffusionsgleichungen in Mehrgruppenstruktur für halbstrukturierte Gittergeometrien entwickelt, und stellt ein wichtiges Werkzeug bei der Analyse von schnellen Kernreaktoren dar. Die Diffusionsgleichung erweist sich mit geeigneten Wirkungsquerschnittsdaten als ein zuverlässiger Code zur Vorhersage des Verhaltens des Brennstoffkreislaufs von thermischen und schnellen Kernreaktoren. *DIF3D* wurde unter Verwendung der Methode der räumlichen Differenzierung mit finiten Differenzen entwickelt, die auf die Diffusionsgleichungen angewendet wird. Auch wurde eine transversal integrierte Knotenmethodik, *DIF3D-Nodal* mit in *DIF3D* integriert, um die Codeperformance bei großskaligen Reaktorproblemen zu verbessern. Zur Unterstützung des Designs von Reaktoren mit schnellem Spektrum, die aus Nichtverbreitungsgründen ohne Blanket-Brennelemente auskommen, wurde der Löser *DIF3D-VARIANT* hinzugefügt, der das Konzept von *DIF3D-Nodal* zu einem funktionalen dreidimensionalen Transportcode erweitert, der auf Kugelflächenfunktionen mit Winkelabhängigkeit basiert.

Bei Validierungsprojekten mit experimentellen Messungen zeigte *DIF3D* eine gute Leistung und lieferte Ergebnisse mit gleichbleibender Genauigkeit im Vergleich zur Monte-Carlo-Methode, zu einem Bruchteil des Rechenaufwands. Als Schwachpunkt von *DIF3D* gilt eine beschränkte allgemeine Verwendung für geometrisch unregelmäßige Systeme. Die aktuellen *DIF3D* Möglichkeiten beinhalten die Behandlung von plattenförmigen und zylindrischen 1D-Domänen, kartesischen-, hexagonalen- und R-Z-zweidimensionalen Domänen sowie kartesischen-, hexagonalen-Z-, dreieckigen-Z- und R-Z- θ -dreidimensionalen Domänen. Der Löser *DIF3D-FD* basiert auf der finiten Differenzenapproximation der Diffusionsgleichung. Dieser Löser kann auf jeden Geometrietyp in *DIF3D* angewendet werden, mit Ausnahme von hexagonalen und hexagonalen-Z-Geometrien. Der Löser *DIF3D-VARIANT* bietet eine Transportfunktion mit gerader Parität, die für Reaktorkonfigurationen mit hoher Neutronenleckage nützlich ist. *DIF3D-VARIANT* kann nur auf kartesische und hexagonale Geometrien angewendet werden.

Die Lösung von Eigenwert-, Adjungierten-, Festquellen- und Kritikalitätssuchproblemen (Konzentration und Geometrie) sind ebenso möglich wie die Erzeugung von anisotropen Diffusionskoeffizienten. Es können Fluss- und Leistungsdichtedaten in Gitterzellen und regionsweise mithilfe von Gleichgewichtintegralen erstellt werden. Obwohl in erster Linie für schnelle Reaktorprobleme entwickelt, können Upscattering und interne schwarze

Randbedingungen verwendet werden. Dabei werden die Teilchen an der Grenze der Rechendomäne vernichtet.

Typische Laufzeiten des Codes für Testfälle bewegen sich im Bereich von weniger als einer Minute. Die Berechnung der kompletten kombinierten Testsuite benötigt auf einem modernen Arbeitsrechner weniger als 10 Minuten. *DIF3D* ist ein serieller Code, der keine Parallelität oder Threading enthält.

3.1.12.1.2 DIF3D-K

DIF3D-K ist ein Kinetikcode zum Lösen der zeitabhängigen Diffusionsgleichung. Er ist in der Programmiersprache Fortran programmiert und für die Computerplattform Linux erhältlich.

Zielsetzung

DIF3D-K löst die zeitabhängigen Neutronendiffusionsgleichungen in Mehrgruppenstruktur mit oder ohne externe Neutronenquelle. Er basiert auf dem Code *DIF3D-Nodal* und kann somit zwei- und dreidimensionale hexagonale und kartesische Geometrien behandeln. Mit *DIF3D-K* können die Punktkinetik- oder Raumkinetikgleichungen gelöst werden. *DIF3D-K* wurde entwickelt, um auch als Teil eines integrierten Dynamikcodes eingesetzt werden zu können.

Die zeitabhängigen Mehrgruppen-Neutronendiffusionsgleichungen werden dabei sowohl räumlich als auch zeitlich diskretisiert. Die resultierenden Gleichungen sind zeitabhängige Knotengleichungen für die Neutronenflussmomente und die Vorläuferkonzentrationen und die Antwortmatrixgleichungen, die die Flussmomente mit den oberflächengemittelten Teilströmen über Knotenschnittstellen in Beziehung setzen. Die zeitabhängigen Knotengleichungen werden mit der Theta-Methode oder der Methode der Raum-Zeit-Faktorisierung gelöst.

Die jeweils eingesetzte Faktorisierungsmethode ermöglicht die Verwendung der verbesserten quasistatischen, adiabatischen oder herkömmlichen Punktkinetikoptionen zur Behandlung der Zeitabhängigkeit. Bei all diesen Faktorisierungsoptionen wird die Flussamplitude aus der Lösung der Punktkinetikgleichungen unter Verwendung zeitabhängiger kinetischer Parameter erzeugt, die vom Code ausgewertet werden.

Typische Laufzeiten sind problemabhängig und werden stark von der Anzahl der Neutronen-Energiegruppen und –gittermaschen, der verursachten Störung, der Menge der angeforderten Bearbeitungsdaten und der Dauer der Transienten beeinflusst. Ein Rechenproblem mit zwei Neutronengruppen, sechs Vorläuferfamilien und 1910 Gittermaschen (aufgeteilt in 10 axiale Ebenen) in hexagonal-Z-Geometrie unter Verwendung der Theta-Methode mit 100 Zeitschritten dauert auf aktuellen Arbeitsplatzcomputern weniger als eine Minute.

3.1.12.1.3 GAMSOR

GAMSOR ist ein Hilfsprogramm zur Unterstützung bei der Berechnung gekoppelter Neutronen- und Gammadiffusions- und -transportrechnungen. Die Programmiersprache ist Fortran. Es stehen Versionen für Linux und Macintosh zur Verfügung.

Zielsetzung

Kernreaktoren, die auf Kernspaltungsreaktionen beruhen, verfügen über zwei Formen der thermischen Energiedeposition im Reaktorsystem: Neutronenabsorption und Gammaabsorption. Die Gammastrahlung wird typischerweise durch Neutroneneinfangreaktionen oder während des Kernspaltungsprozesses erzeugt. Damit beruht der Hauptantrieb der Energieerzeugung auf natürlicher Neutronenwechselwirkung. In herkömmlichen Methoden zur Berechnung der Reaktorphysik wird die Heizkomponente durch Gammastrahlung ignoriert, sodass die Gammaabsorption rechnerisch zwangsweise an der Gammaemissionsstelle erfolgt. Bei experimentellen Reaktorsystemen, wie EBR-II und FFTF führt die Platzierung von Strukturstiften und Bauteilen im Inneren des Kerns zu Problemen bei der Vorhersage der Heizleistung, da es im Inneren der Bauteile keine Energiequellen durch Kernspaltung gibt, die eine räumliche Verteilung der Leistung vorgibt.

Die typische Laufzeit hängt stark von der Rechenzeit von *DIF3D* ab. Die *GAMSOR*-spezifischen Rechnungen selbst dauern weniger als ein paar Sekunden, nachdem die beiden *DIF3D*-Rechnungen für Neutronen und Gammaphotonen abgeschlossen sind.

3.1.12.1.4 CSAPI

Die *Cross Section API (CSAPI)* ist ein eigenständiges Funktionsmodul zur Generierung von Mehrgruppen-Wirkungsquerschnittsdaten für thermische und schnelle Reaktoren mithilfe der Untergruppen- oder Resonanztabellenmethode. Das Modul *CSAPI* kann an jeden Transportcode mit einer festen Löserfunktion für Quellen angepasst werden. *CSAPI* ermöglicht es Transportlösern, selbstabgeschirmte Mehrgruppen-Wirkungsquerschnitte im laufenden Betrieb zu generieren und dabei die Auswirkungen heterogener Geometrien, Temperaturen oder Materialzusammensetzungen zu berücksichtigen. Die Wirkungsquerschnittsbibliothek wird mithilfe der Codes *MC²-3* und *NJOY* für den betreffenden Reaktorspektrumtyp generiert. *CSAPI* wird direkt in die S_N - und MOC-Transportlöser von *PROTEUS* implementiert (MOC: method of characteristics). *MC²-3* generiert exakte Mehrgruppen-Neutronen- und Gammawirkungsquerschnitte für schnelle Reaktoranwendungen, einschließlich der Auswirkungen räumlicher Heterogenität. Auch wurden die Funktionen erweitert, um thermische Wirkungsquerschnitte und 3D-MOC-Rechnungen zu ermöglichen.

Das System *MC²-3/DIF3D* wurde umfassend geprüft und mittels Nachrechnung zahlreicher Experimente von schnellen Reaktoren validiert und wird so für die Konstruktion und Analyse schneller Reaktoren verwendet.

3.1.12.1.5 GenISOTXS

GenISOTXS ermöglicht Anwendern die Verwendung von Mehrgruppen-Wirkungsquerschnittsdaten, die aus den Monte Carlo-Codes *Serpent* und *OpenMC* für *PROTEUS* sowie dem herkömmlichen Analysecode für schnelle Reaktoren *DIF3D* generiert wurden.

3.1.12.2 PROTEUS und darauf basierende Neutronentransportlöser

PROTEUS ist ein Simulations-Werkzeugset für hochpräzise Reaktorphysikanalysen. Es umfasst eine Reihe fortschrittlicher Neutronen-Modellierungs- und Simulationstools, wie Codes zur Generierung von Wirkungsquerschnittsdaten, Transportlöser und Erzeugungstools für Rechengitter. Das Einsatzgebiet des Toolsets *PROTEUS* reicht von kleinen thermischen Testreaktoren bis hin zu großen natriumgekühlten schnellen Reaktoren. Es wurden unterschiedliche Heterogenitätsgrade modelliert und mit Monte-Carlo-Lösungen verglichen.

Auf *PROTEUS* basierende einige Neutronentransportlöser, die im Folgenden kurz beschrieben sind.

3.1.12.2.1 PROTEUS-SN (SN2ND)

PROTEUS-SN (SN2ND) ist ein massiv parallelisierter Neutronentransportcode, der die diskrete Ordinatenformulierung der geradzahligen Transportgleichung löst. Die räumliche Diskretisierung basiert auf einem vollständig unstrukturierten konformen Finite-Elemente-Gitter und kann durch Parallelisierung in Raum- und Winkelbereiche mehr als 10^{12} Freiheitsgrade verarbeiten. Der Code beinhaltet stationäre und adiabatische quasi-statische Kinetikformulierungen, einen Löser für stationäre Strahlungsquellen und es können Vorwärtsrechnung sowie adjungierte Rechnungen durchgeführt werden. Das Einsatzgebiet ist die Modellierung von Kernen, die vom *Advanced Test Reactor (ATR)* über den *Zero Power Reactor (ZPR-6/7)* bis hin zu verschiedenen natriumgekühlten schnellen Reaktordesigns (ABTR, ASTRID, MONJU) reichen.

3.1.12.2.2 PROTEUS-MOC (MOCEX)

PROTEUS-MOC (MOCEX) kombiniert die 2D-MOC-Methode auf einem unstrukturierten Rechengitter mit der diskontinuierlichen Galerkin-Finite-Elemente-Methode in axialer Richtung, um axial ausgedehnte Geometrien in 3D effizient zu lösen. *MOCEX* ist ein vielversprechendes Werkzeug zur Lösung axial komplexer Geometrie Probleme ohne die Einschränkungen des 2D/1D-Ansatzes (wie z. B. bei *DeCART /CHO 07/*). Es wurde zur Modellierung von Kernreaktorkernen wie TREAT, RPI-Reaktor, VHTR und C5G7 verwendet und zeigte selbst bei Rechenproblemen von Reaktorkernen mit signifikanter Neutronenströmung (engl.: neutron streaming) eine hervorragende Genauigkeit.

3.1.12.2.3 PROTEUS-NODAL

PROTEUS-NODAL stellt eine modernisierte Form von *DIF3D-VARIANT* dar. Es basiert auf homogenisierten Brennelementen und der Äquivalenztheorie und löst 3D-Reaktorkerne in kartesischen oder hexagonalen Geometrien für stationäre und transiente Bedingungen.

3.1.12.3 Gitter-Codes

PROTEUS enthält einen umfangreichen Satz an Verarbeitungstools für Rechengitter, die Anwender bei der Erstellung unstrukturierter Finite-Element-Gitter unterstützen, ohne dass lizenzierte externe Software erforderlich ist. Sowohl hexagonale als auch kartesische Geometrien werden unterstützt. Explizite Brennstäbe, Hüllrohre und Wasserkanäle können problemlos mit unterschiedlichen Gitterkonstanten modelliert werden.

3.1.12.4 SHARP

SHARP ist ein Multiphysik-Simulations-Toolkit für die Analyse von Kernreaktoren. Es ist eine im Rahmen des DOE-NEAMS-Programms entwickelte Software für die gekoppelte Multiphysik-Analyse von Kernreaktorphänomenen. Es verwendet derzeit den Neutronik-Code *PROTEUS*, den Thermohydraulik-Code *Nek5000* /ANL 24b/ und den Strukturmechanik-Code *Diablo* /FER 05/, um gekoppelte Online-Analysen durchzuführen.

3.1.12.5 Brennstoffkreislauf / Abbrandcodes

3.1.12.5.1 RCT

RCT ist ein Hilfsprogramm, das die Überwachung von Leistung und Abbrand auf Brennstab-Ebene erleichtert. Es ist in Fortran programmiert und steht für die Computerplattformen Linux und Macintosh zur Verfügung.

Zielsetzung

RCT ist ein Nachfolgeprogramm für den Brennstoffkreislaufanalysecode *REBUS* und den darin integrierten Code *DIF3D*. Es wurde speziell dazu entwickelt, um Brennstabanalysen für laufende EBR-II-Messungen durchzuführen. Im EBR-II-Rechenprozess wird jeder Zyklus (Betriebszeitraum, in dem kein Brennstoffwechsel durchgeführt wurde) als einstufige Rechnung des Brennstoffkreislaufs in *REBUS* modelliert. *REBUS* ermittelt den durchschnittlichen Neutronenfluss in jeder Region und erhält so die durchschnittliche Transmutation einer bestimmten Region (oder eines bestimmten Gitterknotens) über den Zyklus. Es verwendet die Informationen zum Brennelement- und Brennstabdesign als Eingabe. Die Flusslösungen von *DIF3D-Nodal* oder *DIF3D-VARIANT* werden verwendet, um ein räumliches Interpolationsschema niedriger Ordnung des Neutronenflusses in jeder *DIF3D*-Region (oder jedem *DIF3D*-Gitterknoten) zu konstruieren. *RCT* führt den Abbrand der Koeffizienten des räumlichen Flussinter-

polationsschemas in jedem *DIF3D*-Gitterpunkt durch und stellt sicher, dass das Integral die durchschnittliche Reaktionsratenleistung beibehält, die ursprünglich von *REBUS* für jeden *DIF3D*-Gitterpunkt erzeugt wurde. Da *REBUS* den expliziten Brennstoffzyklus eines bestimmten Reaktors modellieren kann, besteht die Notwendigkeit, dass für jeden gegebenen Zyklus alle vorherigen Zyklen gelöst werden müssen, um die Lösung für den gewünschten Zyklus zu erhalten. Daher wird der Code für jeden Zyklus verwendet, um den EOC (end of cycle: Ende eines Bestrahlungszyklus)-Zustand zu erhalten, gefolgt von *RCT*, um den EOC-Zustand auf Brennstab-Level zu erhalten. Der Code kann allerdings nur Vollkern-, 60-Grad-periodische und 120-Grad-periodische hexagonale Reaktorgeometrien modellieren.

Zur typischen Laufzeit ist anzumerken, dass alle bereitgestellten Testfälle zuerst *REBUS* ausführen. Dies dauert auf modernen Arbeitsrechnern mehrere Minuten. Die eigentlichen *RCT*-Rechnungen sind in weniger als einer Minute abgeschlossen. Die kombinierte Testsuite benötigt auf einem modernen Arbeitsrechner weniger als 15 Minuten. *RCT* ist ein serieller Code, der keine Parallelität oder Threading enthält.

3.1.12.5.2 ORIGEN-RA

ORIGEN-RA ist ein Code zur Durchführung von Berechnungen von Nuklidtransmutationen. Er ist eine modifizierte Version des Codes *ORIGEN*, der vom Oak Ridge National Laboratory zur Berechnung der Nuklidtransmutation entwickelt wurde (siehe Kapitel 3.1.1.2.4). Er aktualisiert die Reaktionsraten für Actinoide der *ORIGEN*-Bibliothek mit Werten, die entweder mit *REBUS* oder *RCT* berechnet wurden, sodass die *ORIGEN*-Rechnung mit dem analysierten Reaktorsystem übereinstimmt. Zusätzlich zu den Nuklidinventaren wird dieser Code zur Abschätzung der Charakteristik der Strahlungsemission und der Zerfallsleistung bestrahlter Reaktorbestandteile verwendet.

3.1.12.5.3 ADDER

ADDER (Advanced Dimensional Depletion for Engineering of Reactors) ist ein Code, der eine Schnittstelle zwischen externen Neutronikcodes und Abbrandlösern liefert, um Analysen der Reaktorperformance über deren gesamte Lebensdauer durchführen zu können. Der Code wurde zur Verwendung auf Arbeitsrechnern und Rechenclustern entwickelt.

Zielsetzung

ADDER ist ein flexibles, leistungsfähiges und modernes Rechenwerkzeug für das Brennstoffmanagement sowie für Abbrandrechnungen. Der Code ist im Wesentlichen eine Schnittstelle zwischen dem Anwender, externen Neutronendifusions- oder Transporttheorie-Lösern und einem Abbrandlöser. Der Anwender definiert den Reaktor mit den erforderlichen Eingaben für den Neutronendifusions- bzw. Transportlöser. *ADDER* bietet dem Anwender die Möglichkeit, den Reaktor bei einer bestimmten Leistung oder mit einer definierten Flusshistorie abzubrennen, Brennstoff im Kern umzuschichten und Brennstoff aus dem Brennstoffkreislauf zu laden. Zusätzlich zu diesen Fähigkeiten wird der noch in der Entwicklung befindliche Code in der Lage sein, weitere Analysen durchzuführen, die für die Berechnung eines Reaktors erforderlich sind. Dies können z. B. Kritikalitätssuchen und Zweigrechnungen für mehrere Xenonbedingungen oder Betriebstemperaturen sein.

Als Schnittstellencode werden die Einschränkungen von *ADDER* hauptsächlich durch die Neutronen- und Abbrandlöser bestimmt, mit denen es interagiert.

Da *ADDER* selbst nicht besonders rechenintensiv ist, ist eine individuelle Ausführungszeit im Bereich von Sekunden bis Minuten zu erwarten. Jedoch ist die Gesamtlaufzeit durch die Anzahl und Dauer der Neutronik-Läufe bestimmt (z. B. mit *MCNP*), die durchgeführt werden müssen. Die Analyse eines gesamten Lebenszyklus eines Reaktors mit *ADDER* kann daher Wochen dauern.

Das Programm verfügt über die Besonderheit, dass externe Brennstoffmanagement- und Abbrandprogramme über Schnittstellen verwendet werden, die die zur Verfügung stehenden Lösertypen (im Allgemeinen *MCNP*) oder die möglichen Reaktortypen (z. B. ein bestimmter Testreaktor) begrenzen, mit denen das Tool verwendet werden kann. *ADDER* hingegen ist so unabhängig wie möglich von speziellen Löser- und Reaktortypen. Es liest die Neutronik-Eingabedatei und entnimmt aus dieser Eingabe alles Wissenswerte über das Reaktordesign. Alle zusätzlichen Informationen, die der Code benötigt, werden in einer *ADDER*-spezifischen, menschenlesbaren Eingabe definiert. Dies sind z. B. die Leistungshistorie für den Abbrand oder das Schema des Brennstoffmanagement.

3.1.12.6 Störungstheorie-Codes

3.1.12.6.1 VARI3D

VARI3D ist ein auf *DIF3D-FD* basierender Code, der zur Generierung von kinetischen Parametern und störungstheoretischen Reaktivitätskoeffizienten verwendet wird, die in einer konventionellen punktkinetischen Sicherheitsanalyse für Reaktoren Verwendung finden können. Der Code kann auch R-Z-basierte Sensitivitätskoeffizienten für die Verwendung in Unsicherheitsbewertungen generieren.

3.1.12.6.2 PERSENT

PERSENT ist ein Code für Störungs- und Sensitivitätsrechnungen für konventionelle, homogenisierte Diffusions- und Transportprobleme. Er ist in Fortran geschrieben und für Linux und Macintosh erhältlich.

Zielsetzung

Eine der derzeit am häufigsten verwendeten Methoden zur Reaktoranalyse ist die Diffusionsnäherung. Diese Näherung wird typischerweise auf der Gesamtkernebene unter Verwendung homogener nuklearer Wirkungsquerschnitte in einem nodalen Framework verwendet, wie dies bei *DIF3D* der Fall ist. Störungstheoriemethoden wurden für eine breite Palette von Anwendungen in der Reaktoranalyse entwickelt, von denen viele noch immer häufig für Berechnungen der Reaktivität und für Sensitivitätskoeffizienten verwendet werden. Die Reaktivitätsänderung aufgrund von Störungen (d. h. die Änderung des Eigenwerts der Neutronentransportgleichung), die in das System eingebracht werden, kann durch eine herkömmliche Störungsgleichung ausgedrückt werden, die eine Kombination aus dem ungestörten oder gestörten Vorwärtsfluss und dem ungestörten oder gestörten adjungierten Fluss erfordert. Die Lösung der Störungsgleichung liefert den Beitrag einer gegebenen Störung zur Reaktivitätsänderung für den gesamten Phasenraum der Transportgleichung (Raum, Winkel und Energie).

PERSENT stellt aktuell einen Ersatz für die Software *VARI3D* dar, die hauptsächlich verwendet wurde, um Reaktivitätskoeffizienten für Sicherheitsanalysen zu erzeugen. *VARI3D* wurde um den *DIF3D-FD*-Löser herum entwickelt, der auf Diffusionstheorie und dreieckige Z-Gitter in hexagonaler Geometrie beschränkt war. Die Hauptmotivation für die Entwicklung von *PERSENT* besteht darin, dass für Problemstellungen mit erheblichen Leckagen, sämtliche Reaktivitätskoeffizienten, die zu Änderungen der Leckage

führen, aufgrund der Verwendung der Diffusionstheorie Fehler aufwiesen. In der Vergangenheit wurden zweidimensionale Transportrechnungen verwendet, um die Ergebnisse der 3D-Diffusionstheorie-Störung zu korrigieren. Ebenfalls problematisch war, dass die Sensitivitätsanalyse größtenteils mit 2D-R-Z-Transportrechnungen durchgeführt wurde, wobei relativ wenig 3D-Funktionen zur Verfügung standen. Bei mehreren Reaktivitätskoeffizienten, wie Steuerstäbe oder Probenwerte, war bekannt, dass die Verwendung von R-Z erhebliche Fehler in die Sensitivitätsanalyse einführt. Der *PERSENT*-Code löst diese Probleme, indem er auf dem *DIF3D-VARIANT* Löser aufbaut.

PERSENT kann derzeit kinetische Parameter und störungstheoretische Reaktivitätskoeffizienten für die Verwendung in einer herkömmlichen punktkinetischen Sicherheitsanalyse eines Reaktors generieren. Für Sensitivitätsrechnungen können Eigenwert, Reaktionsrate, Reaktionsratenverhältnis, Leistungsbruchteil, Reaktivitätswert, die Lebensdauer prompter Neutronen und Beta-Effektiv Sensitivitäten für die mikroskopischen Reaktionen Gamma, Alpha, Proton, Deuteron, Tritium, Spaltung, Nu und P0- und P1-Streuquerschnitte berechnet werden. Der Code kann diese Sensitivitätskoeffizienten zusammen, mit denen in externer Software berechneten verwenden. Die nachfolgende Unsicherheitsbewertung kann anhand der Basisunsicherheitsinformationen zu den nuklearen Wirkungsquerschnittsdaten durchgeführt werden.

Die Rechenlaufzeit wird primär durch die Zeit bestimmt, die zum Lösen von *DIF3D-VARIANT* erforderlich ist. Eine einzelne Störungsrechnung oder Berechnung des Sensitivitätskoeffizienten erfordert weniger Rechenzeit als eine äußere Iteration an Rechenzeit im *DIF3D-VARIANT*-Löser.

3.1.12.7 Reaktordynamik und Sicherheitsanalysecodes

3.1.12.7.1 SAS4A/SASSYS-1

SAS4A/SASSYS-1 ist ein Reaktordynamik- und Sicherheitsanalysecode für fortschrittliche schnelle Reaktordesigns. Der Code bewertet die Sicherheitsmargen bei Auslegungsstörfällen (engl: design based accident: DBA) und die Folgen von auslegungsüberschreitenden Störfällen (engl: beyond design-basis accidents: BDBA). Es werden die Folgen schwerer Unfälle mit Kühlmittelsieden und/oder Brennstoffausfällen analysiert, die durch ein sehr unwahrscheinliches Zusammentreffen eines Unfallvorläufers und des Ausfalls eines oder mehrerer Sicherheitssysteme ausgelöst werden. Als besondere Features seien hier exemplarisch einige Funktionen genannt:

- Charakteristik-Kanalmodelle für Einzelbrennstäbe zur schnellen Auswertung von Transienten.
- Detaillierte thermohydraulische Unterkanalmodelle für Brennelemente.
- Unterstützung für Flüssigmetallkühlmittel wie Natrium, NaK, Blei und LBE (engl.: lead-bismuth eutectic) sowie andere einphasige Kühlmittel.
- Modelle für das gesamte Anlagenkühlsystem zur Simulation der passiven Wärmeabfuhr und der inhärenten Sicherheit.
- Oxid- und Metallbrennstoffmodelle für Brennstoffschmelzen, Bewegungen innerhalb eines Brennstabs, Brennstabversagen und Brennstoffverteilung und -gefrieren außerhalb des Brennstabs.
- Zusätzliche Modelle von Metallbrennstoffen für die Bildung von Brennstoffummantelungseutektika und Ummantelungsversagen.
- Reaktorpunktkinetik mit umfassender Behandlung von Reaktivitäts-Rückkopplungs-Effekten gemäß Störungstheorie erster Ordnung.
- Hochpräzise Nachzerfallswärmemodelle.
- Integrierte Unterstützung für Standard-ANS-Nachzerfallswärmeeigenschaften.
- Integrierte Unterstützung für alternative Kühlmittel in Kühlkreisläufen zur Abfuhr von Nachzerfallswärme.
- Unterstützung für die Kopplung mit Fluid Dynamics-Rechensystemen von Drittanbietern (wie *STAR-CCM+*) zur Darstellung der thermischen Schichtung in großen Volumina.
- Unterstützung für die Kopplung mit *DIF3D-K* für räumliche Reaktorkinetik.
- Detaillierte Reaktor- und Anlagensteuerungssysteme.

3.1.12.7.2 SAM

SAM (engl.: system analysis module) ist ein Code für ein modernes Systemanalysetool für fortschrittliche Sicherheitsanalysen von nicht-LWR. Der Fokus zielt darauf ab, schnell ablaufende transiente Analysen der gesamten Anlage mit verbesserter Genauigkeit für verschiedene Reaktortypen zu ermöglichen, darunter flüssigmetallgekühlte, salzschmelzgekühlte (mit/ohne Spaltstoff in der Schmelze), gasgekühlte und Heatpipe-gekühlte Reaktoren. Der Code verwendet ein objektorientiertes Anwendungsframework (*MOOSE /DOE 25/*) sowie seine zugrunde liegende Gitter- und Finite-Elemente-Bibliothek (*libMesh /KIR 06/*) inklusive linearer und nichtlinearer Löser (*PETSc /DAL 11/*), um die darin enthaltenen fortschrittlichen Softwareumgebungen und numerischen Methoden nutzen zu können. Die wichtigsten Codefunktionen umfassen:

- Eindimensionale Rohrnetze für allgemeine Flüssigkeitssysteme wie die Kühlkreisläufe des Reaktors.
- Flexible Integration von Flüssigkeits- und Feststoffkomponenten, die komplexe und generische technische Systeme modellieren können.
- Mehrkanaldarstellung der Modellierung des Wärmeübertrags innerhalb von Brennelementen und zwischen ihnen.
- Punktkinetikmodell mit verschiedenen Reaktivitätsrückkopplungen, einschließlich thermischer Ausdehnung.
- Rechnerisch effizientes mehrdimensionales Strömungsmodell für thermische Misch- und Schichtungsphänomene in großen Umschließungen für Sicherheitsanalysen.
- Allgemeine Simulationsfähigkeit des Massentransports zur Verfolgung einer beliebigen Anzahl von Teilchenarten, die vom Flüssigkeitsstrom für verschiedene Anwendungen transportiert werden.
- Allgemeines Systemmodell für Steuerungs- und Meldeanlagen.
- Die allgemeine Fähigkeit zum Einfrieren und Auftauen von Flüssigkeiten, die besonders wichtig ist für Sicherheitsbewertungen von Reaktoren mit geschmolzenem Salz.

- Eine Infrastruktur, die eine Kopplung mit externen Codes zulässt. Dabei stehen folgende Codes zur Verfügung: *Mammoth*, *Proteus*, *Nek5000*, *BISON*, *STAR-CCM+*, *SAS4A/SASSYS-1* und *TRACE*.

Des Weiteren sind folgende Besonderheiten entwickelt worden:

- Thermofluidmodellierung ganzer Systeme für ein mehrdimensionales Strömungsmodell reduzierter Ordnung für thermische Misch- und Schichtungsphänomene in großen Umschließungen für den Einsatz in Sicherheitsanalysen.
- Flexible Kernmodellierung für eine pseudo-3D-Vollkern-Modellierung für konjugierte Wärmeübertragung.
- Integration von Multiphysik- und Multiskalen Modellen.

3.1.13 Codebewertungen

Neben dem Rechencode mit seiner jeweiligen Aufgabenstellung, stellt die Frage der Bewertung des Rechenergebnisses eine zentrale Frage dar. Bedingt durch die extrem hohe Komplexität der Rechnungen, aber auch der zugrunde zu legenden Eingabeparameter, ist eine einfache, binäre und globale Klassifizierung der Ergebnisse in richtig oder falsch nicht möglich. Daher sind umfangreiche Validierungsarbeiten, wie auch die dazugehörige Dokumentation notwendig. Idealerweise sollten Rechenergebnisse an der Realität, d. h. an Messergebnissen validiert werden. Daneben sind eine Validierung mit Programmergebnissen von Rechenodes anderer Hersteller, sowie entsprechende Unsicherheitsbetrachtung weitere Bausteine, um die Zuverlässigkeit von Programmergebnissen einschätzen zu können. Dazu werden im Folgenden eine größere Auswahl von Validierungs-Ergebnissen vorgestellt. Bedingt durch den enormen Umfang sind dabei nur kleine Teilausschnitte darstellbar. Allgemein gilt, je leistungsfähiger die hinter dem Programm stehende Organisation ist, desto mehr ist von einer tiefergehenden Validierung auszugehen. Ebenfalls ist der Verbreitungsgrad des Codes und damit die Anzahl der Einsätze und Einsatzvariationen ein gewisser Hinweis auf eine zu erwartende Qualität der Ergebnisse. Dies befreit jedoch den Nutzer nicht von einer kritischen Bewertung der Programm-Ausgabe.

3.1.13.1 Vergleich der Codes HELIOS-2.1 und SCALE-6.1 am Pin-Cell-Modell

Ein Vergleich des deterministischen Codes HELIOS-2.1 mit dem Monte-Carlo-Code SCALE-6.1 hinsichtlich ihrer Performance wurde anhand von Pin-Cell-Modellen für

Leichtwasserreaktoren (LWR) und Schwerwasserreaktoren (engl.: heavy water reactor: HWR) durchgeführt /MAH 18/. Das Hauptziel dieser im Jahr 2018 durchgeführten Studie bestand darin, die Ursprünge etwaiger Diskrepanzen zwischen den verglichenen Codes zu ermitteln. Dazu wurden folgende Wert untersucht und verglichen:

- unendlicher Multiplikationsfaktor k_{inf}
- Neutronenflussverteilung
- Absorption
- Spaltung
- Produktionsreaktionsraten
- die Konzentrationen der wichtigsten Brennstoffisotope abhängig vom Abbrand

Der Vergleich von k_{inf} hat gezeigt, dass die Codes sowohl für den LWR- als auch den HWR-Fall gut übereinstimmen. Die Codes zeigten bei den Kernzahldichten der betrachteten Isotope Unterschiede von bis zu 6 % für prominente Isotope wie ^{235}U und ^{239}Pu bei 60 GWd/tU im LWR-Fall. Diese Unterschiede betragen etwa 20 % für ^{235}U und 30 % für ^{239}Pu im HWR-Fall.

Die Schlussfolgerung dieser Studie war, dass diese Diskrepanzen auf Unterschiede in der Modellierung der Prozesse bei der Neutronen-Thermalisierung im HWR-Fall zurückzuführen sind, es jedoch weiterer Untersuchungen zur Ermittlung der Grundursache bedarf. Als mögliche Ursachen wurden Unterschiede in der Neutronengruppenstruktur, der Kondensation der Wirkungsquerschnitte, der Behandlung der Aufwärtsstreuung, der Winkelabhängigkeit der Streuung und der räumlichen Homogenisierung während der Iteration über mehrere Quellen genannt.

3.1.13.2 Generierung von Gruppenkonstanten für PARCS unter Verwendung von Helios und Serpent und Vergleich mit dem Serpent-3D-Modell

Ein Vergleich der Generierung von Gruppenkonstanten für das *Serpent-PARCS*-Code-System unter Verwendung von *Helios* und dem *Serpent-Code* und einem Vergleich mit dem *Serpent-3D-Modell* wurde 2016 von der VTT durchgeführt /BAI 16/.

Das Ziel dieser Vorgehensweise ist, die Methodik der Generierung von homogenisierten Konstanten aufzuzeigen, die Ergebnisse des deterministischen und des MC-

Gitterphysik-Codes zu vergleichen und die mit einem Knotencode erzielten Vollkern-Ergebnisse gegenüber einem Vollkern MC-Modell zu validieren.

Das dazu gewählte Reaktorkerndesign ist ein kleiner Druckwasserreaktor aus 9 Brennelementen (3x3). Jedes Brennelement verfügt über ein 17x17-Gitter, das mit UO₂ (Anreicherung: 4 Gew.% ²³⁵U) Brennstäben bestückt ist. Die Abstandsgitter bestehen aus Inconel-718 und befinden sich auf 5 verschiedenen Höhen. Drei der Gitter befinden sich im aktiven Kernbereich. Die thermische Reaktorleistung beträgt 21 MW.

Helios wurde in der Version 1.11 verwendet, die Transportmethode basiert auf Flusskopplung und Kollisionswahrscheinlichkeiten, und es wurde ein unstrukturiertes 2D-Gitter verwendet. Bei den *Helios* Rechnungen wurde eine nukleare Wirkungsquerschnittsdatenbank mit 190 Energiegruppen basierend auf ENDF/B-VI verwendet.

Serpent wurde in der Version 2.1.26 verwendet. Die *Serpent*-3D-Rechnung wird mit einer Neutronenhistorie von 5 Milliarden ausgeführt. Für die *Serpent* Rechnung wurde eine nukleare Wirkungsquerschnittsdatenbank mit kontinuierlicher Energie im ACE-Format basierend auf ENDF/B-VI verwendet.

PARCS ist ein 3D-Reaktorkernsimulator, der die Gleichung der stationären und zeitabhängigen Neutronendiffusion mehrerer Energiegruppen löst. *PARCS* kann an Codes für thermohydraulische Systeme gekoppelt oder als eigenständiger Code verwendet werden. Die Ausgaben von *Serpent* und *Helios* werden mithilfe des Codes *GenPMAXS* in das von *PARCS* verwendete Format *PMAXS* konvertiert.

Insgesamt werden fünf verschiedene Wirkungsquerschnittsdatensätze generiert

- Brennelement 1a: Brennelement ohne abbrennbaren Absorber, ohne Gitter
- Brennelement 1b: Brennelement ohne abbrennbaren Absorber, mit Gitter
- Brennelement 2a: Brennelement mit abbrennbarem Absorber, ohne Gitter
- Brennelement 2b: Brennelement mit abbrennbarem Absorber, mit Gitter
- Reflektor

Die Steuerstäbe werden in dieser Rechnung als vollkommen ausgezogen betrachtet. Es erfolgt eine eigenständige Neutronen-Rechnung, d. h. ohne eine thermohydraulische Rückkopplung. Die anfängliche Isotopenzusammensetzung bei Abbrand = 0 GWd/tU wird vorgegeben.

Die Rechenergebnisse zeigen, dass Im Allgemeinen der Unterschied zwischen den homogenisierten Wirkungsquerschnittsdaten der *Helios*- und *Serpent*-Brennelemente weniger als 1 % betrug. Die Unterschiede bei den Diffusionskoeffizienten und Unstetigkeitsfaktoren der Anordnung (assembly discontinuity factors: ADFs) lagen unter 2,5 %. In Bezug auf den Reflektor waren die Unterschiede bei den Diffusionskoeffizienten und den ADFs etwas höher.

Zusammenfassend wurde festgestellt, dass die Vollkernrechnungen gute Ergebnisse in Bezug auf k_{eff} und radiale Leistungsverteilung zeigten. In Bezug auf die axiale Leistungsverteilung wurden ziemlich große Unterschiede zwischen den *PARCS*-Rechnungen und der *Serpent*-Referenz beobachtet. *PARCS* scheint die axiale Leistung in Gegenden zu unterschätzen, die in Übereinstimmung mit den Abstandsgitterpositionen stehen.

3.1.13.3 Neutronenanalyse eines schnellen natriumgekühlten Reaktorkerns mit HELIOS-2, Serpent und dem DYN3D Code

Der Monte Carlo-Reaktorphysikcode *Serpent* stellt ein äußerst Werkzeug dar und kombiniert die Vorteile der Monte Carlo-Methode mit den Fähigkeiten eines typischen deterministischen Gittercodes. Somit kann *Serpent* für die Simulation nahezu jeglicher Art von Reaktordesigns eingesetzt werden.

HELIOS-2 ist ein für Leichtwasserreaktoren entwickelter, deterministischer Gittertransportcode mit flexiblen Geometriemodellierungsmöglichkeiten. Der Einsatz bei der

Analyse von schnellen natriumgekühlten Reaktorkernen (Sodium Fast Reactors, SFR) unter Verwendung von Wirkungsquerschnitten mit wenigen Energiegruppen ist möglich.

Dazu wurden wenig-Energiegruppen-Wirkungsquerschnitten für den Brennstoffbereich und den nicht-multiplizierenden Bereichen eines SFR-Kerns generiert. Mit *HELIOS-2*, *Serpent*, den bereitgestellten Wenig-Energiegruppen-Konstanten und dem Knotendiffusionscode *DYN3D* (Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf, erweitert zur Generierung homogenisierter Wenig-Energiegruppen-Konstanten) wurden Analysen eines SFR-Kerns durchgeführt.

Die Ergebnisse wurden auf Basis der MC-Lösung durch *Serpent* für den gesamten Kern verifiziert, d. h. die Anwendbarkeit von *HELIOS-2* zur Analyse von SFR-Gittern und die Generierung von Wirkungsquerschnitten mit wenigen Energiegruppen für SFR-Analysen mit dem *DYN3D*-Code gezeigt werden kann /RAC 13/.

Das Ergebnis der durchgeführten Überprüfung wurde anhand der Betriebsparameter k_{eff} , radialer Leistungsverteilung, Kühlmittelreaktivitätskoeffizient (coolant void reactivity, CVR), Dopplerkonstante k_D und dem Gesamtwert der Steuer- und Abschaltvorrichtungen (control and shutdown devices, CSD-Wert) verglichen.

Die Ergebnisse der MC-Berechnungen des Gesamtkerns mit *Serpent* dienten als Referenz für die Verifizierung der *DYN3D*-Performance. Die *DYN3D*-Ergebnisse, die mit den von *Serpent* generierten Wenig-Energiegruppen-Wirkungsquerschnitten erzielt wurden, liegen sehr nahe an denen der MC-Berechnungen des Gesamtkerns mit *Serpent*. Die Werte von k_{eff} stimmen innerhalb von 40 pcm überein, die Differenzen bei CVR und k_D betragen etwa 18 bzw. 7 pcm. Der prognostizierte CSD-Wert stimmt innerhalb von weniger als 50 pcm überein. Es wurden jedoch etwas größere Unterschiede zwischen der MC-Berechnung des Gesamtkerns mit *Serpent* und der Rechnung mit *DYN3D* unter Verwendung von auf *HELIOS-2* basierenden Wenig-Energiegruppen-Wirkungsquerschnitten beobachtet. In diesem Fall überschätzt *DYN3D* den Wert von k_{eff} um mehr als 840 pcm, während k_D und CVR um etwa 220 bzw. 270 pcm unterschätzt werden.

Diese Ergebnisse decken sich mit den Ergebnissen der Gitterberechnungen. Für den Kern mit vollständig entfernten CSDs stimmt die mit der *Serpent-DYN3D*-Codefolge berechnete radiale Leistungsverteilung recht gut mit der Referenz MC-Lösung überein, während die maximalen durchschnittlichen relativen Abweichungen etwa 2,1 % bzw. 0,6 % betragen.

Durch die Verwendung der von *HELIOS-2* generierten Wirkungsquerschnitte mit wenigen Energiegruppen verringerte sich die Übereinstimmung zwischen den Ergebnissen von Referenz-MC-Rechnung und Rechnung mit *DYN3D* leicht. In diesem Fall betragen die maximalen durchschnittlichen relativen Abweichungen bis zu 3,9 % bzw. 1,0 %.

Für den gesamten Kern beträgt die maximale Abweichung zwischen der Referenzlösung von *Serpent* und den *DYN3D*-Ergebnissen, die sowohl mit *Serpent*- als auch mit *HELIOS-2*-basierten Wirkungsquerschnitten mit wenigen Energiegruppen erzielt wurden etwa 5,3 % und wurde in einigen leistungsschwachen Unterbaugruppen in der Nähe der CSDs beobachtet, Der durchschnittliche Unterschied liegt jedoch immer noch unter 1,5 %.

Die Ergebnisse der mit *HELIOS-2* durchgeführten Gitterabbrandrechnungen stimmen zufriedenstellend mit denen von *Serpent* überein, was die Anwendbarkeit von *HELIOS-2* für Scoping-Studien von SFR-Gittern belegt. Die mit den von *Serpent* erzeugten Wenig-Energiegruppen-Konstanten für den gesamten Kern erzielten *DYN3D*-Ergebnisse stimmten sehr gut mit denen der Referenz-MC-Simulationen für den gesamten Kern überein. Die Verwendung der auf *HELIOS-2* basierenden Wenig-Energiegruppen-Konstanten führte zu einer etwas geringeren Übereinstimmung zwischen den Referenz-MC- und den *DYN3D* Ergebnissen.

3.1.13.4 Erzeugung makroskopischer Wirkungsquerschnittsdaten durch den Monte-Carlo-Code MCS für schnelle Reaktoranalysen

In jüngeren Forschungen steht die Machbarkeit der Verwendung von Monte-Carlo-Codes (MC) zur Generierung von Mehrgruppen (MG)-Wirkungsquerschnitten (engl.: cross section: XS) (MG-XS) für die Analyse schneller Reaktoren unter Verwendung von Knotendiffusionscodes zunehmend im Vordergrund. Im Folgenden wird kurz die Methodik zur Generierung von MG-XS mit dem internen UNIST-MC-Code *MCS* vorgestellt, der kompatibel mit den Knotendiffusionscodes *PARCS* und *RAST-K* verwendet werden kann /NGU 21/. Die Anwendbarkeit der Methodik wird anhand des Designs des schnellen, natriumgekühlten Reaktors (engl.: sodium fast reactor: SFR) ABR-1000 mit einem metallischen Brennstoff aus dem OECD/NEA-SFR-Benchmark quantifiziert /NSC 16/. Die von *MCS* mit einer zweidimensionalen Brennelementgeometrie generierten XS mit wenigen Gruppen stimmen gut mit denen von *SERPENT 2* überein.

Darüber hinaus wird die Simulation des stationären dreidimensionalen Gesamtkernproblems am Anfang des Zyklus (engl.: begin of cycle: BOC) mit *PARCS* und *RAST-K* unter Verwendung der von *MCS* generierten 24-Gruppen-XS durchgeführt. Die Knotendifusionslösungen, einschließlich k_{eff} des Kerns, Leistungsprofilen und verschiedenen Reaktivitätsparametern, werden mit Referenzergebnissen für den gesamten Kern verglichen, die mit dem MC-Code *MCS* erzielt wurden. Insgesamt zeigt der Code-zu-Code-Vergleich eine angemessene Übereinstimmung zwischen deterministischen und stochastischen Codes, wobei der Unterschied bei k_{eff} weniger als 100 pcm und der quadratische Mittelwertfehler (RMS) bei der Brennelementleistung weniger als 1,15 % beträgt.

Zu der Verwendung des MC-Codes *MCS* zur Generierung von MG-XS bei BOC für die schnelle 3D-Spektrumsimulation mit den Simulatoren *R2* und *PARCS* wurde folgendes festgestellt: Die 4-Gruppen-XS von *MCS* konnten mit den Ergebnissen von *SERPENT 2* gut verglichen, und zeigten eine große Übereinstimmung. Der letzte Schritt besteht darin, eine stationäre Analyse mit *PARCS* unter Verwendung der von *MCS* generierten 24-Gruppen-XS-Daten durchzuführen und einen Vergleich von k_{eff} , Leistungsverteilungen, Steuerstabwert und Reaktivitätskoeffizienten durchzuführen. Die Ergebnisse weisen auf eine ausreichende Konsistenz hin, die hauptsächlich durch den Unterschied zwischen deterministischem und stochastischem Code erklärt werden kann. Das Ergebnis dieser Betrachtung zeigt, dass *MCS* als ein vielversprechendes Werkzeug zur Generierung von MG-XSs für die Analyse schneller Reaktoren eingesetzt werden kann. Zukünftige Arbeiten sollen sich auf die SPH-Methode für die XS der Steuerstäbe und der benachbarten Brennelemente, die Anwendung von *MCS* für temperaturabhängige und von der Kühlmitteldichte abhängige MG-XSs für die thermohydraulische Rückkopplung für schnelle Reaktoren konzentrieren.

3.1.13.5 Vergleich der berechneten und gemessenen Nachzerfallswärme abgebrannter Kernbrennstoffe mit CASMO5, SNF und Standardmethoden

In Referenz /ROC 23/ wird ein Vergleich zwischen gemessenen und berechneten Werten der Zerfallswärme für 160 Brennelemente mit 256 Messungen aus den Anlagen Clab und GE-Morris und EMAD mit den beiden Codes *CASMO5* und *SNF* durchgeführt. Dabei kamen unterschiedliche Wirkungsquerschnittsbibliotheken (JEF-2.2, JEFF-3.1.1, JEFF-3.2, ENDF/B-VII.1 und ENDF/B-VIII.0) und unterschiedliche Codeversionen zur Verwendung. Ebenfalls wurden Werte aus vier Standards und Leitfäden zur Berechnung von Nachzerfallswärme (ANS 2014, DIN 2014, ISO 2022 und RG-3.54 2018) zum

Vergleich mit den Messungen herangezogen. Die Simulationen mit unterschiedlichen Codes, Codeversionen und Methoden basieren auf derselben Geometrie und denselben Bestrahlungsbeschreibungen für ein einzelnes Brennelement. Dadurch wird eine bessere Ausgangsbasis für den Vergleich der Ergebnisse ermöglicht. Die Auswirkungen von unterschiedlichen Wirkungsquerschnittsbibliotheken und Rechenmethoden werden im Vergleich zur Streuung der C/E-Werte (Berechnung/Experiment) zwischen den 256 berücksichtigten Messungen betrachtet. Ebenfalls wird ein Vergleich der wichtigsten Nuklide, die zur Zerfallswärme beitragen, zwischen gemessenen Anordnungen und neueren Fällen einbezogen, die einem höheren Abbrand, einer höheren Anfangsanreicherung und längeren Abkühlzeiten entsprechen.

Bei *CASMO5* und *SNF* konnten aufgrund von nuklearen Daten (Bereich 1 bis 2 %) und Änderungen bei den Methoden zum Abbrand und zur Transportlösung (Bereich 1 %) eine Reihe von Abweichungen in Bezug auf C/E beobachtet werden. Diese Abweichungen waren jedoch kleiner als die Streuung der 256 C/E-Werte und lagen insgesamt zwischen 4 und 5 % (1σ).

Mit Hilfe der Standardmethoden wurden höhere Werte der berechneten Zerfallswärme ermittelt, was insgesamt auf ein gewisses Maß an Konservativität hinweist. Auch wurde eine Verschiebung der gemessenen Eigenschaften der für die meisten Validierungsarbeiten in der Vergangenheit betrachteten Kernbrennstoffe der Anlagen Clab, GE-Morris und EMAD zur neueren Brennstoffart der Anlage Clab berücksichtigt. Dieser beinhalten unter anderem eine höhere Brennstoffanreicherung, höheren Abbrand, längere Abklingzeit und zusätzliche Einzelfälle mit MOX-Brennstoff (für die keine öffentlichen Informationen verfügbar sind). Für die Zerfallswärme kann jedoch festgestellt werden, dass sich die gleichen 10 Nuklide mit dem wichtigsten Beitrag zwischen den früheren und dem neueren Brennstoff überschneiden.

3.1.13.6 Validierung SERPENT durch Vergleich mit MCNP

Zur weiteren Validierung des Programms *Serpent* (VTT 24b/) wurden auch Vergleiche mit dem Programm *MCNP* durchgeführt, auf Basis des selben Neutronenphysikmodells, bzw. der Anwendung der gleichen ENDF-Reaktionsgesetzen. Bei Einsatz derselben ACE-Wirkungsquerschnittsbibliotheken liegen die Abweichungen im Vergleich beider Programme im Bereich der statistischen Genauigkeit. In der Regel sind die Abweichungen zu anderen Monte-Carlo-Codes (z. B. *Keno*, *OpenMC*) als gering einzustufen. In einigen Fällen konnten jedoch statistisch signifikante Abweichungen beobachtet werden.

Das Photonenphysikmodell in *Serpent* unterscheidet sich in gewissem Maße von dem in *MCNP*. Ein ähnliches Maß an Übereinstimmung wie bei Neutronentransportsimulationen kann somit nicht erwartet werden, die Unterschiede sind demnach durch die Methoden erklärbar.

Als wesentlich komplexer stellt sich die Verifizierung von Abbrandrechnungen dar, aufgrund des Fehlens eines belastbaren Referenzcodes. In ähnlicher Weise gilt dies auch für Multiphysiksimulationen, bei denen *Serpent* mit Thermohydraulik- und / oder Brennstoffleistungs-codes gekoppelt werden. Weitere Abweichungen beim Thema Transportphysik sind im Zusammenhang mit den in den Rechnungen verwendeten Daten, Kopplungsalgorithmen, den in externen Lösern verwendeten Methoden, und weiteren zu sehen. Die größten Unsicherheiten bei Abbrandrechnungen stammen oft aus den grundlegenden Wirkungsquerschnittsdaten und den Näherungen, die bei der Formulierung der Transmutationsketten als methodisch erklärbar angewendet werden. Die betrachteten Rechenfälle decken jedoch bereits ein breites Anwendungsspektrum ab. Dabei liegen bei einigen Benchmarks experimentelle Daten zum Vergleich vor.

3.1.13.7 Bewertung von SCALE, Serpent und MCNP für Flüssigsalzreaktoranwendungen unter Verwendung des MSRE-Benchmarks

Für den Molten Salt Research Reactor (MSRR), der von Natura Resources entworfen wurde, sollte ein vorläufiger Sicherheitsanalysebericht zur Unterstützung einer Baugenehmigung eingereicht werden /CLA 23/. Für die Lizenz eines Forschungsreaktors ist keine NQA-1-Software (Nuclear Quality Assurance-1) erforderlich. Etablierte nukleare Analyse-codes werden jedoch von der US-amerikanischen Nuklearaufsichtsbehörde NRC als gute Unterstützung für die Beschreibung der Reaktorneutronik angesehen. Zur Begründung der Auswahl spezieller Softwarepakete bzw. Wirkungsquerschnittsbibliotheken, bieten sich als gute Basis für die Begründung der Entscheidungsfindung existierende Benchmark-Vergleiche an, z. B. der im Folgenden beschriebene MSRE-Benchmark.

Das Molten Salt Reactor Experiment (MSRE) war ein experimenteller Flüssigsalzreaktor, der am Oak Ridge National Laboratory (ORNL) in den Jahren von 1965 bis 1969 betrieben wurde. Der dazu vorhandenen Benchmark stelle eine umfassende Informationssammlung zu den Materialzusammensetzungen und der Geometrie des MSRE, sowie Referenzergebnisse für den Neutronentransport am Kritikalitätspunkt dar. Dieser Benchmark kann dabei nicht als direktes Spiegelbild des damals in Betrieb befindlichen

Reaktors angesehen werden, stellt jedoch eine international vereinbarte bestmögliche Näherung der Details dar, wie sie heute öffentlich verfügbar sind. Die Beschreibung des Benchmarks liefert die Isotopenkonzentrationen und Temperaturen für alle Materialien. Eine gewisse Unsicherheit bleibt jedoch bestehen, da mehrere Materialien anhand von Elementen definiert sind, die in der Rechnung folglich in ihrer natürlich vorkommenden Häufigkeit und nicht anhand spezifischer Isotopenkonzentrationen verwendet werden. In einigen Fällen enthalten die verfügbaren Daten keine Isotope, d. h. Materialien könnten mit dem einen oder anderen Isotop angereichert sein. Diese Arbeit beschreibt die detaillierten Modellierungsbemühung der anfänglichen Kritikalität des MSRE unter Verwendung von drei unabhängigen Softwarepaketen, die von drei verschiedenen Institutionen entwickelt und verwendet wurden:

- *SCALE* (Version 6.3 β 11), ausführlich verwendet von der University of Texas, Austin (UT).
- *Serpent* (Version 2.1.29 mit ENDF/B-VII.1 Wirkungsquerschnittsdaten), von der Abilene Christian University (ACU).
- *MCNP* (Version 6.1), verwendet von der Texas A&M University (TAMU).

Die besonderen Zielsetzungen dieser Benchmarkbemühungen waren es u. a., folgende Punkte zu klären:

- Quantifizieren der Genauigkeit der drei Codes, einschließlich ihrer nuklearen Daten, unter Verwendung des MSRE als Validierungsdaten.
- Quantifizieren der Variabilität bei Vorhersagen von Kritikalitäts- und Reaktivitätskoeffizienten aufgrund der Wahl des Codes und der Wirkungsquerschnittsbibliothek.

Der MSRE-Benchmark des International Reactor Physics Benchmark Experiment bietet kritische Validierungsdaten bei Nullleistung an, die zur Bewertung der Konsistenz von den Programmen *SCALE*, *MCNP* und *Serpent* untereinander und der Übereinstimmung mit den experimentellen Daten für die Entwicklung und Lizenzierung eines modernen MSR verwendet wurden. Bedingt durch die veränderte Technik stellen MSR viele einzigartigen Herausforderungen in Bezug auf Neutronik, Thermofluiddynamik, Thermochemie und Sicherheit dar. Die Codes wurden verwendet, um den Benchmark zu modellieren und ein breites Spektrum an geometrischen Variationen, Wirkungsquerschnittsbibliotheken, Codeversionen und unterschiedlichen Problemspezifikationen durchzuführen.

Dabei konnte bestätigt werden, dass die meisten der untersuchten Fälle eine Konsistenz innerhalb von zwei Standardabweichungen des stochastischen Fehlers für die Reaktivität und den damit verbundenen Reaktivitätswert der Variation besitzen.

Hinsichtlich der anfänglichen Kritikalität des MSRE haben die Programme den Wert um 3 % überschätzt. Dies stellt einen größeren Wert dar als die angegebene experimentelle Unsicherheit. Als Ergebnis wurde u. a. festgehalten, dass darauf geachtet werden muss, dass die Streubehandlung mit den Vergleichscodes übereinstimmt. Ein weiteres Ergebnis ist, dass für das MSRE die Verwendung der ENDF/B-VII.0-Wirkungsquerschnittsbibliothek eine signifikante Erhöhung der Reaktivität (> 200 pcm) mit sich bringt.

Die Codevorhersagen für zwei Reaktivitätskoeffizienten (Brennstoff und isothermisch) wurden dabei mit Daten aus dem MSRE validiert und lagen gut innerhalb der experimentellen Unsicherheit. Somit liegen quantifizierbare Abschätzungen der Rechenabweichungen vor, die man aufgrund der Wahl eines dieser Codes oder einer bestimmten Wirkungsquerschnittsbibliothek sowohl für die anfänglichen Kritikalitäts- als auch die Reaktivitätskoeffizienten erwarten kann.

3.2 Nachrechnung kritischer Experimente zur Validierung der Rechensequenz CSAS5 von SCALE 6.3

Die Validierung von technischen bzw. wissenschaftlichen Rechensystemen erfolgt in der Regel durch Nachrechnungen von experimentellen Messungen und dem Vergleich der errechneten Resultate mit gemessenen Werten. Anstelle von experimentellen Messungen, z. B. wenn diese nicht geeignet zur Verfügung stehen, werden ggf. auch Vergleiche zu anderen Rechensystemen oder Problemstellungen herangezogen, deren Lösungen auf analytischem Weg bekannt sind /DIN 21/.

Internationale Rechenverfahren, wie sie bereits in der GRS bei Analysen zur nuklearen Sicherheit angewendet werden, unterliegen einer fortlaufenden Weiterentwicklung, Verbesserung und Erweiterung. Neuerungen wichtiger Verfahren werden stetig in der GRS implementiert und validiert, um auf dem neusten Stand der Entwicklung zu bleiben, diesen bewerten und von ihm profitieren zu können. Zu diesen Codes gehört maßgeblich das amerikanische Softwarepaket *SCALE*, das aktuell in der Version 6.3.2 /WIE 24/ vorliegt. Der Einfachheit halber wird im Folgenden für Version 6.3.2 nur 6.3 verwendet.

Im Folgenden werden umfangreiche Vergleichsrechnungen bzw. Experimentnachrechnungen zur Validierung der routinemäßig in der GRS eingesetzten Rechensequenz CSAS5 der SCALE Version 6.3 dokumentiert, die in der GRS durchgeführt wurden. Diese Experimente werden aus der bestehenden Validierungsdatenbank an kritischen Experimenten entnommen, die in den letzten Jahrzehnten in der GRS erstellt, gepflegt und erweitert wurde. Die Experimente entstammen dem *International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments* (ICSBEP) /NEA 24/, einer internationalen Sammlung von insgesamt über 5.000 kritischen und unterkritischen Experimenten.

Im Eigenforschungsvorhaben 3611R03330 /BEH 14/ wurde eine exemplarische Validierung der Sequenz CSAS5 des SCALE-Softwarepakets in der damaligen Version 6.1.2 /ORNL 12/ mithilfe der Nachrechnungen von mehr als 500 kritischen Experimentkonfigurationen aus den LEU-COMP-THERM-, LEU-SOL-THERM- und MIX-COMP-THERM-Serien des ICSBEP Handbuchs durchgeführt. Diese Experimente wurden im Eigenforschungsvorhaben 4716E03350 mit der zu dieser Zeit aktuellen, modernisierten SCALE-Version 6.2.1 /REA 17/ erneut nachgerechnet /SOM 19/.

Diese Arbeiten werden fortgeführt, und die Rechnungen mit der zum Zeitpunkt der Berichtserstellung aktuellen Version 6.3 von SCALE und der erweiterten und überprüften Validierungsdatenbank an kritischen Experimenten wiederholt, um Auswirkungen der Weiterentwicklung des Rechenprogramms SCALE und der verwendeten Wirkungsquerschnittsdaten auf die Übereinstimmung mit experimentellen Messungen und damit auf eine Validierung bzw. konkrete Bias-Bestimmungen zu evaluieren.

Der Wechsel der SCALE-Version von 6.2 nach 6.3 ist dabei insofern besonders, da für die Version 6.3 umfangreiche Überarbeitungen und Neuimplementierungen stattgefunden haben. Prominent gehören dazu der neue Monte Carlo Code Shift zur hochauflösenden, effizienten Berechnung des Neutronenflusses in ausgedehnten, komplexen Systemen, der eine Alternative zu KENO darstellt (siehe Kapitel 3.3) sowie die Integration der evaluierten ENDF/B-VIII.0 Wirkungsquerschnittsdaten einschließlich ihrer assoziierten Kovarianzdaten. Das Vorgehen bei der Analyse der Experimentnachrechnungen in dieser Arbeit wurde so gewählt, dass mögliche Auswirkungen des Wechsels der SCALE Version bzw. der Wirkungsquerschnittsdaten unabhängig voneinander identifiziert werden können, indem bei den einzelnen Nachrechnungen in jedem Schritt nur ein Parameter geändert wird. Dies erlaubt auch Vergleiche zu den Rechnungen, die im Eigenforschungsvorhaben 4716E03350 durchgeführt wurden. Im Folgenden werden die üblichen

Abkürzungen der Experimentserien verwendet. Deren Definition und weiterführende Erklärungen sind aus Tab. 3.2 ersichtlich.

Tab. 3.2 Abkürzungen der Experimentserien von kritischen Experimenten und deren Systemerklärung

Serie	Abkürzung		System	Erklärung
HEU-SOL-THERM	HST		HEU-	Hochangereichertes Uran
LEU-COMP-THERM	LCT		LEU-	Niedrigangereichertes Uran
LEU-MISC-THERM	LMCT		MIX-	Uran und Plutonium
LEU-SOL-THERM	LST		PU-	Plutonium
MIX-COMP-THERM	MCT		U233-	²³³ U
MIX-MISC-THERM	MMCT		-SOL-	Lösung
PU-SOL-THERM	PST		-COMP-	Zusammengesetzter Aufbau, meist Brennstäbe in Wasser
U233-SOL-INTER	U233SI		-MISC-	Sonstige Systeme
U233-SOL-THERM	U233ST		-THERM	Thermisches Neutronenspektrum
			-INTER	Mittleres Neutronenspektrum

3.2.1 Beschreibung der Experimente

Die in der GRS vorhandene Validierungsdatenbank mit kritischen Experimenten aus dem ICSBEP Handbuch wurde in den letzten Jahren stetig erweitert. Aktuell beinhaltet sie insgesamt 637 kritische Experimente unterteilt in insg. 72 Serien. Es wurde eine Prüfung der Eingabedateien auf Korrektheit und direkte Verwendbarkeit in der aktuellen Version (Aufwärtskompatibilität) von *SCALE* durchgeführt. Dabei wurden einige Eingabedateien identifiziert, die nicht direkt verwendbar waren, da vor allem in den Geometriedefinitionen der aktuellen *KENO* Version Inkonsistenzen identifiziert wurden, die ein reibungsloses Durchlaufen des Rechenlaufs verhindern. Bei einem Großteil dieser Inkonsistenzen handelte es sich um Formatierungsprobleme, die schnell identifiziert und behoben werden konnten. Bei einem Teil der Eingabedateien sind die notwendigen Modifikationen tiefgreifender, sodass deren Behebung im Rahmen dieses Eigenforschungsvorhabens nicht möglich war. Diese Fälle wurden aus der folgenden Analyse ausgeschlossen.

Tab. 3.3 listet die restlichen für die Validierungsrechnung verwendeten Experimentserien mit den jeweilig gerechneten Fällen auf. Es wurden insg. 606 Experimente aus 66 Serien betrachtet. Zwei Experimentserien (LCT-097 und MMCT-004) mit insgesamt

25 Experimente wurden aufgrund ihrer sehr komplexen Geometrie nur mit kontinuierlicher Energiedarstellung (CE) gerechnet. Um für alle Kombinationen dieselbe Datenbasis zu haben, werden diese 25 Experimente im Folgenden nicht berücksichtigt. Somit erfolgt die Validierung mit 581 Experimenten aus 64 Serien, für die alle Rechenkombinationen vorliegen.

Tab. 3.3 Zusammenstellung der mit CSAS5 modellierten experimentellen Konfigurationen aus dem ICSBEP Handbuch

/NEA 24/

Experiment	Konfigurationen	Experiment	Konfigurationen	Experiment	Konfigurationen
HST-012	1	LCT-050	9	LST-023	1 – 9
LCT-001	1 – 8	LCT-052	1 – 6	LST-024	1 – 7
LCT-002	1 – 5	LCT-062	1 – 15	LST-025	1 – 7
LCT-003	1 – 23	LCT-065	1 – 17	MCT-004	1 – 11
LCT-004	1 – 20	LCT-070	1 – 12	(MMCT-004)	1
LCT-006	1 – 18	LCT-091	1 – 9	PST-003	1 – 8
LCT-007	1 – 10	(LCT-097)	1 – 24	PST-004	1 – 13
LCT-008	1 – 17	LMCT-005	1 – 12	PST-005	1 – 9
LCT-009	1 – 9, 26, 27	LST-002	1 – 3	PST-006	1 – 3
LCT-010	1 – 30	LST-003	1 – 9	PST-020	1 – 3, 5 – 16
LCT-011	1 – 15	LST-007	1 – 5	PST-021	4 – 6, 10
LCT-012	1 – 10	LST-008	1 – 4	U233SI-001	1
LCT-013	1 – 7	LST-009	1 – 3	U233ST-001	1 – 5
LCT-014	1, 2, 5 – 7	LST-010	1 – 4	U233ST-002	4
LCT-016	1 – 14, 31, 32	LST-011	1 – 13	U233ST-005	2
LCT-017	1 – 29	LST-016	1 – 7	U233ST-008	11
LCT-033	3, 13, 19, 22	LST-017	1 – 6	U233ST-009	1 – 4
LCT-034	1 – 8, 10 – 15, 17 – 26	LST-018	1 – 6	U233ST-012	1
LCT-035	1 – 3	LST-019	1 – 6	U233ST-013	1, 18
LCT-039	1 – 17	LST-020	1 – 4	U233ST-014	1 – 16
LCT-043	1 – 9	LST-021	1 – 4	U233ST-016	1, 7, 12, 13, 19, 22, 25, 29, 33
LCT-049	1 – 18	LST-022	1 – 4	U233ST-017	1, 3, 4, 7

3.2.2 Beschreibung der Rechenfälle

Es wurden im Zuge dieses Eigenforschungsvorhabens insgesamt fünf Rechenkombinationen (K4 bis K8) für verschiedene Versionen von *SCALE* und für verschiedene Versionen der mit *SCALE* ausgelieferten, prozessierten ENDF/B-Wirkungsquerschnittsdaten Evaluierungen durchgeführt. Dabei wurden Wirkungsquerschnittsdaten in Gruppenstruktur, als auch Bibliotheken mit kontinuierlichem Energiespektrum gerechnet. Aus vorhergehenden Arbeiten stehen zusätzlich drei Rechenkombinationen (K- bis K3) mit älteren Versionen von *SCALE* und der ENDF/B-Wirkungsquerschnittsdaten zur Verfügung, allerdings nur für einen Teil der kritischen Experimente. Tab. 3.4 listet sämtliche gerechneten Kombinationen auf.

Tab. 3.4 Übersicht aller gerechneten Kombinationen aus *SCALE* Version und ENDF/B-Wirkungsquerschnittsdaten-Bibliothek

Kombination	SCALE Version	Version ENDF/B	# Gruppen/CE	Anzahl Experimente
K1 (2014)	6.1.2	VII.0	238 Gr.	485
K2 (2019)	6.2.1	VII.0	238 Gr.	450
K3 (2019)	6.2.1	VII.1	252 Gr.	446
K4	6.2.3	VII.1	252 Gr.	581
K5	6.3	VII.1	252 Gr.	581
K6	6.3	VII.1	CE	606
K7	6.3	VIII.0	252 Gr.	581
K8	6.3	VIII.0	CE	606

Kombination K1 wurden im Zuge des Eigenforschungsvorhaben 3611R03330 bis zum Jahr 2014 gerechnet, die Kombinationen K2 und K3 in dem Eigenforschungsvorhaben 4716E03350 bis zum Jahr 2019. Um einen möglichst repräsentativen Vergleich zwischen Rechnungen mit verschiedenen *SCALE* Versionen und verschiedenen Wirkungsquerschnittsdaten ziehen zu können, wurden die Rechnungen mit *SCALE* 6.2.3 und ENDF/B-VII.1 in 252 Energiegruppen aus 2019 in Kombination K3 mit allen im aktuellen Eigenforschungsvorhaben zur Verfügung stehenden Experimenten in Kombination K4 wiederholt. Die mittlere Abweichung zwischen diesen beiden Kombinationen liegt bei nur $-2 \pm 14 \text{ pcm}^3$ für die 441 Experimente, die beiden Kombinationen gemein sind. Dies zeigt,

³ pcm steht für *per cent mille*, also ein hunderttausendstel oder 1×10^{-5}

dass die älteren Rechnungen mit *SCALE 6.2.1* in K3 und die neuen Rechnungen mit *SCALE 6.2.3* in K4 äquivalente Ergebnisse liefern. Der Einfachheit halber wird im Folgenden für Version 6.2.3 nur 6.2 verwendet.

Der Vergleich zwischen *SCALE 6.1.2* und *6.2.1* wurde bereits in /SOM 19/ dokumentiert, daher werden im Folgenden nur die Kombinationen K4 bis K9 betrachtet, für die folgende Monte-Carlo Parameter verwendet wurden:

- 100.000 Neutronen pro Generation
- 100 weggelassene Neutronengenerationen
- statistische Monte Carlo Unsicherheit σ_{MC} für Wirkungsquerschnittsdaten in Gruppenstruktur: $2,0 \times 10^{-05}$ (2 pcm)
- statistische Monte Carlo Unsicherheit σ_{MC} für Wirkungsquerschnittsdaten mit kontinuierlichem Energiespektrum: $5,0 \times 10^{-05}$ (5 pcm)

3.2.3 Vergleich der Rechnungen untereinander und mit experimentellen Werten

In Abb. 3.2 sind die Abweichungen aller berechneten k_{eff} -Werte mit den experimentell ermittelten Werten für die Kombinationen K4 bis K8 für alle 581 gemeinsamen Experimente dargestellt ($k_{eff,calc} - k_{eff,exp}$ in pcm). Als Fehlerbalken um die Null-Linie sind die jeweiligen experimentellen Unsicherheiten angetragen.

Die einzelnen Kombinationen wurden statistische ausgewertet und die mittlere Abweichung der berechneten k_{eff} -Werte von den experimentellen Werten und deren Standardabweichung STD berechnet. Diese Werte in pcm sind in Tab. 3.5 für die Kombinationen K4 bis K8 zusammengefasst.

Tab. 3.5 Vergleich der Rechnungen mit den experimentellen Werten

Kombination	Mittlere Abweichung zu den Experimenten in pcm	Zugehörige Standardabweichung in pcm
K4: 6.2; ENDF/B-VII.1, 252 g	-117	491
K5: 6.3; ENDF/B-VII.1, 252 g	-115	520
K6: 6.3; ENDF/B- VII.1, CE	-55	522
K7: 6.3; ENDF/B-VIII.0, 258 g	-134	513
K8: 6.3; ENDF/B-VIII.0, CE	-147	510

Aus Abb. 3.2 und den Werten in Tab. 3.5 lassen sich einige grundlegende Erkenntnisse ziehen. Während die Rechnungen für einzelne Experimente, oder meist ganze Experimentserien teils deutlich außerhalb der experimentellen Unsicherheit liegen, liegt die mittlere Abweichung für alle Rechenkombinationen von -50 bis -150 pcm innerhalb der typischen experimentellen Unsicherheit, die im Bereich von 70 pcm bis 1260 pcm liegt und im Mittel 287 pcm beträgt.

Die k_{eff} -Werte von Experimenten mit festem Uran-Brennstoff (LCT) werden tendenziell unterschätzt, die k_{eff} -Werte der meisten Experimente mit Uranlösung als Spaltstoff (LST) eher überschätzt. Bei Experimenten mit Plutonium zeigt sich für Rechnungen von mit ENDF/B-VII.1 eine Überschätzung (K4, K5, K6), bei Rechnungen mit ENDF/B-VIII.0 (K7, K8) eine Unterschätzung der k_{eff} -Werte. Auf diesen Punkt wird weiter unten näher eingegangen. Die Experimente mit ^{233}U weisen eine große Spannweite an Über- und Unterschätzungen auf, allerdings sind bei diesen Experimenten die experimentellen Unsicherheiten auch deutlich größer. Die unterschiedlichen Vorhersagen können verschiedene Ursachen haben. 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*). Während die Experimente mit festem Brennstoff typischerweise EALF-Werte um 0,1 eV bis 0,5 eV aufweisen, haben die Uranlösungen typischerweise EALF-Werte unterhalb von 0,05 eV. Damit ist an dieser Stelle anhand der vorliegenden Datenbasis nicht zu entscheiden, woher die beobachteten Unterschiede in den berechneten k_{eff} -Werten kommt.

Beim Übergang von SCALE 6.2 zu 6.3 bei Beibehaltung der Wirkungsquerschnittsdaten aus ENDF/B-VII.1 (K4 → K5) bleibt die Vorhersagegenauigkeit der experimentellen Werte weitgehend gleich. Während die mittlere Abweichung nahezu dieselben Werte annimmt, steigt deren Standardabweichung leicht an. Dieser Umstand zeigt sich auch beim Vergleich der mittleren Abweichungen von K5 – K4 von 5 ± 85 pcm mit einem Bereich von -69 bis 614 pcm. Abweichungen von über 300 pcm entstammen dabei alle einer einzelnen Experimentserie, U233ST-014. Wird diese Serie nicht betrachtet, reduziert sich die Abweichung auf -5 ± 50 pcm mit einem Bereich von -69 bis 299 pcm.

Innerhalb von SCALE 6.3 kann bei dem Übergang von der Gruppen-Darstellung zur CE-Darstellung der Wirkungsquerschnittsdaten (K5 → K6) eine leichte Verbesserung der Vorhersagegenauigkeit von etwa 60 pcm beobachtet werden, während die Standardabweichung mit einem Wert von gut 500 pcm gleich bleibt. Diese Verbesserung tritt trotz

einer größeren statistischen MC-Unsicherheit von $s_{k_{\text{eff}}} = 5,0 \times 10^{-05}$ (5 pcm) auf, da die Rechnungen mit CE-Wirkungsquerschnittsdaten eine deutlich längeren Rechendauer aufweisen.

Beim Übergang von der Wirkungsquerschnittsdaten-Bibliothek ENDF/B-VII.1 zur Version ENDF/B-VIII.0 zeigt sich sowohl für die Gruppendarstellung (K5 → K7), als auch für die CE-Darstellung der Wirkungsquerschnittsdaten (K6 → K8) eine leichte Verschlechterung der Vorhersagegenauigkeit. Dies ist vor Allem auf die Änderungen der Wirkungsquerschnitte von Plutonium in ENDF/B-VIII.0 zurückzuführen. Für die 51 PST Experimente werden die k_{eff} -Werte bei Verwendung von ENDF/B-VIII.0 im Mittel etwa 500 pcm niedriger vorhergesagt als mit ENDF/B-VII.1. Werden diese Serien aus dem Vergleich entfernt, erhält man mit ENDF/B-VIII.0 vergleichbare Vorhersagen der Experimente, wie mit ENDF/B-VII.1. Die durch diese Analysen bestätigte Unterschätzung der k_{eff} -Werte von Plutoniumsystemen ist ein bekanntes Problem von ENDF/B-VIII.0 /PAR 19/, das in ENDF/B-VIII.1 adressiert wurde /NOB 24/. Die für SCALE prozessierte Version der ENDF/B-VIII.1 Wirkungsquerschnittsdaten-Bibliothek wird mit der Veröffentlichung von SCALE 7.0 für 2026 oder 2027 erwartet.

Die Rechnungen haben zusammenfassend gezeigt, dass der Umstieg von SCALE 6.2.3 auf SCALE 6.3.2 die Berechnung von k_{eff} für die Rechnungen mit der Validierungsdatenbank der GRS nur marginal beeinflusst. Die Verwendung der Wirkungsquerschnittsdaten mit kontinuierlichem Spektrum bringt eine Verbesserung der Vorhersagegenauigkeit, die allerdings mit einer deutlich längeren Laufzeit erkauft wird. Die Verwendung der Wirkungsquerschnittsdaten-Bibliothek ENDF/B-VIII.0 kann, vor allem für Plutoniumsysteme, aufgrund der deutlich niedriger berechneten k_{eff} -Werte, nicht empfohlen werden.

3.3 Analyse von SHIFT in SCALE 6.3

SCALE stellt eine umfassende Sammlung rechentechnischer Werkzeuge für Kritikalitätssicherheitsanalysen mit der Rechensequenz CSAS (engl.: *Criticality Safety Analysis Sequence*) bereit. Mithilfe von CSAS werden Eigenwertberechnungen für den Neutronentransport hauptsächlich zur Bestimmung des Multiplikationsfaktors (k_{eff}) und der Neutronenflussverteilungen in spaltbaren Systemen durchgeführt. In SCALE 6.2 /REA 17/ basierte CSAS primär auf den Monte-Carlo-Codes KENO-V.a und KENO-VI. Des Weiteren gibt es die deterministischen Rechensequenzen CSAS1 und SCAS1, die aber nicht Gegenstand dieser Untersuchung sind. In SCALE 6.3 /WIE 24/ wurde CSAS um den hoch performanten Monte-Carlo-Code *Shift* erweitert.

Shift wurde speziell für die effiziente parallele Ausführung und GPU-Nutzung auf Hochleistungsrechnern entwickelt und unterstützt verschiedene Geometriespezifikationsmethoden, darunter *ORANGE* (*Oak Ridge Adaptable Nested Geometry Engine*), die Partikeltransport sowohl auf Basis von *KENO-V.a*- als auch auf *KENO-VI*-Geometrien ermöglicht. Des Weiteren können über die *Fulcrum*-Benutzeroberfläche die modellierten Geometrien visualisiert werden.

Mit beiden *KENO*-Geometrievarianten können mit *Shift* Eigenwertberechnungen sowohl im kontinuierlichen Energie- als auch im Multigruppenmodus durchgeführt werden. Analog zu *CSAS-KENO* Rechnungen, automatisiert *CSAS-Shift* im Multigruppenmodus die Verarbeitung der Wirkungsquerschnitte hinsichtlich Temperaturkorrekturen und problemabhängiger Resonanz-Selbstabschirmung. Diese Verarbeitung erfolgt über das Wirkungsquerschnittsmodul *XSProc* des *SCALE*-Systems und dient der Vorbereitung der Daten für die Multigruppen-Neutronentransportberechnungen. Wird der kontinuierliche Energiemodus gewählt, entfällt die Resonanzverarbeitung. Die kontinuierlichen Wirkungsquerschnitte werden dann direkt im *Shift*-Code verwendet, wobei Temperaturkorrekturen beim Laden der Daten berücksichtigt werden.

Zusätzlich unterstützt *Shift* die am häufigsten genutzten Funktionalitäten der *KENO*-Codes, sodass der Umstieg von *KENO* zu *Shift* sehr einfach vollzogen werden kann. Die einzige notwendige Änderung besteht darin, in der Eingabedatei den Sequenznamen zu ändern. Davon abgesehen können Eingabedateien, die in *KENO*-Geometrie erstellt wurden, ohne Änderung von *Shift* gelesen und ausgeführt werden. Die Sequenznamen richten sich nach der unterstützten *KENO*-Geometrie: *CSAS5-Shift* für Modelle mit *KENO-V.a* und *CSAS6-Shift* für Modelle mit *KENO-VI*.

Darüber hinaus ermöglicht die in *Shift* verwendete Geometriespezifikationsmethode *ORANGE* neue Rechenzeitoptimierungen und Anwendungen: die parallele Volumenabschätzung für *KENO-VI* Geometriespezifikationen und die Modellierung von zufällig angeordneten Medien, z. B. Kugelpartikel in einfachen geometrischen Begrenzungen. Letztere Funktionalität ermöglicht eine einfache Modellierung von *TRISO*-Partikeln.

Obwohl der Monte-Carlo-Code *Shift* mit zahlreichen fortschrittlichen Funktionen entwickelt wurde, unterstützt er derzeit nicht alle Funktionen, die in den *KENO*-Codes verfügbar sind. Unter Verwendung des Multigruppenmodus kann es bei inhomogenen Brennelementanordnungen zu räumlichen Effekten kommen, da die Wirkungsquerschnitte so verarbeitet werden, als ob sich die Stäbe in einem unendlichen Gitter identischer Stäbe

befänden. Dies geschieht z. B., wenn bestimmte Positionen mit Führungsrohren für Steuerstäbe, abbrennbaren Stäben mit Neutronengiften oder Brennstäben mit unterschiedlichen Anreicherungen besetzt sind.

Eine vorhandene Multigruppen-Eingabedatei kann im Grunde einfach durch Angabe der kontinuierlichen Energiebibliothek in eine Rechnung im kontinuierlichen Energiemodus konvertiert werden. Hierbei werden unter Verwendung von *Shift* alle Zellinformationen in der Eingabedatei ignoriert, es existieren allerdings einige Einschränkungen. So dürfen in der konvertierten Eingabedatei keine sogenannten *CELLMIX* und *DOUBLEHET* Zell-Informationen vorkommen, da diese nicht kompatibel mit *Shift* sind.

Um die Verwendung von *Shift* in der GRS-Rechenkette zu analysieren, werden für einige ausgewählte Kritikalitätsexperimente aus dem *International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments* (ICSBEP) /NEA 24/ Nachrechnungen mit *CSAS-Shift* durchgeführt und mit *CSAS-KENO-V.a* Ergebnissen verglichen. Die Untersuchung beschränkt sich auf die in *SCALE 6.3* bereitgestellten 252 Multigruppen-, und die kontinuierliche Wirkungsquerschnittsbibliotheken basierend auf der ENDF/B-VII.1 Evaluierung. Als Kritikalitätsexperimente wurden folgende fünf Serien berücksichtigt, die ein weites Feld an Experimenten abdecken:

- LEU-COMP-THERM-039
- LEU-SOL-THERM-003
- MIX-COMP-THERM-004
- PU-SOL-THERM-003
- U233-SOL-THERM-009

Dabei handelt es sich um 4,738 Gew.% angereicherte UO_2 Brennstäbe mit Wasserreflektor, Halbkugeln und Kugeln mit einer 10 % angereichertem Uranyl Nitrat-Wasserlösung, einer Mischung aus Plutonium und Uran Brennstäben mit verschiedenen Wasser zu Brennstoff-Verhältnissen, wasserreflektierte Kugeln mit einer Plutoniumnitratlösung bzw. einen unreflektierten Zylinder mit einer ^{233}U -Uranyl Nitratlösung. Zur Übersicht sind die verschiedenen Systeme in Tab. 3.6 aufgelistet. Als Abbruchkriterium der Monte-Carlo-Rechnungen wurde sowohl für die *KENO*- als auch die *Shift*-Rechnungen unter Verwendung der kontinuierlichen Wirkungsquerschnittsbibliothek das Erreichen einer statistischen Unsicherheit von $\sigma=5 \times 10^{-5}$ gewählt. Für die Rechnungen mit der

Multigruppenwirkungsquerschnittsbibliothek wurde mit Ausnahme des Systems LCT-039 eine statistische Unsicherheit von $\sigma=2\times 10^{-5}$ gewählt, für LCT-039 $\sigma=5\times 10^{-5}$.

Tab. 3.6 Zusammenstellung der mit CSAS5 modellierten experimentellen Konfigurationen aus dem ICSBEP Handbuch

Experiment	Kurzform	Konfigurationen
LEU-COMP-THERM-039	LCT-039	1-17
LEU-SOL-THERM-003	LST-033	1-9
MIX-COMP-THERM-004	MCT-004	1-11
PU-SOL-THERM-003	PST-003	1-8
U233-SOL-THERM-009	U233ST-009	1-4

Für diese Systeme werden die Kritikalitätsrechnungen sowohl mit *KENO* als auch mit *Shift* auf dem GRS-Rechencluster durchgeführt. Die resultierenden Neutronenmultiplikationsfaktoren werden auf ihre Ähnlichkeit hin untersucht.

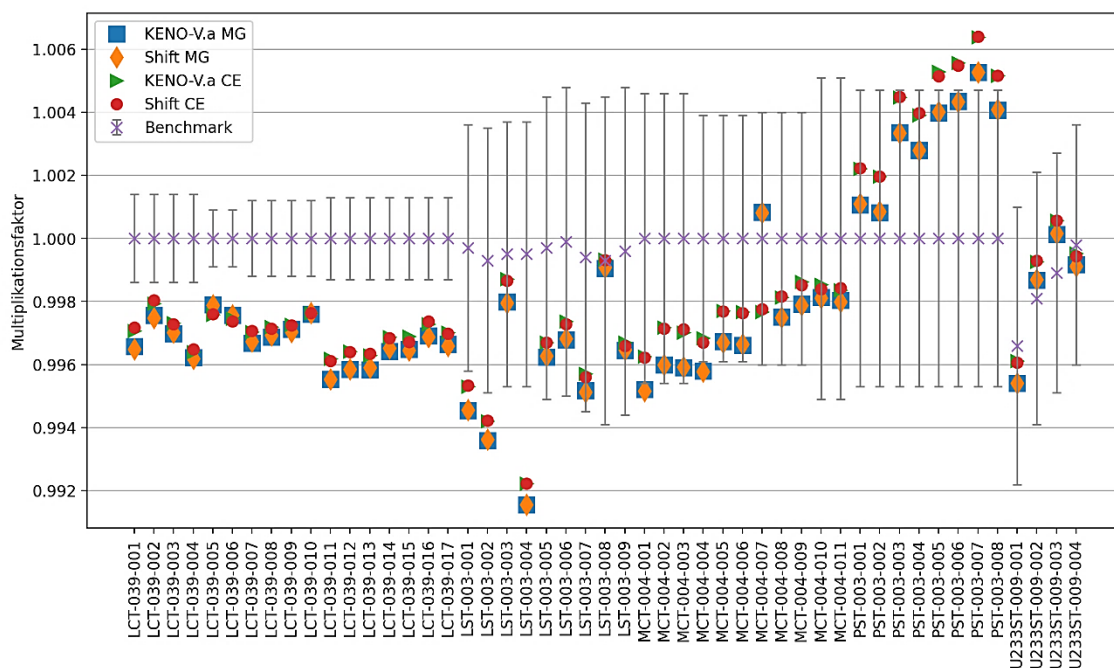


Abb. 3.3 Berechnete Multiplikationsfaktoren im Vergleich zu den gemessenen Benchmark-Ergebnissen

In Abb. 3.3 sind die berechneten Multiplikationsfaktoren k_{eff} für die betrachteten Experimente aufgetragen. Dabei wurden die Rechnungen sowohl mit *KENO-V.a* als auch mit *Shift* der Version 6.3.2 durchgeführt. Für beide Rechencodes wurden die Rechnungen mit Wirkungsquerschnitten in Multigruppendarstellung (MG) und auch in kontinuierlicher

Energiedarstellung (CE) ausgeführt. Zum Vergleich sind die Benchmark-Ergebnisse und deren experimentellen Unsicherheit dargestellt.

Der beobachtete Unterschied zwischen den Rechenergebnissen mit MG- und CE-Wirkungsquerschnitten ist sehr gering. Daher ist er in Abb. 3.4 nochmals detailliert als Abweichung zwischen den Rechnungen mit *Shift* und *KENO* dargestellt. Es werden für die meisten gerechneten Fälle Abweichungen zwischen den Rechnungen von -10 bis +10 pcm beobachtet, was unter Berücksichtigung der statistischen Unsicherheit (~5 pcm) der Monte-Carlo-Rechnungen einer sehr guten Übereinstimmung entspricht. Nur für die CE-Rechnungen (gelbe Punkte) zeigen ein paar Fälle etwas größere Abweichungen.

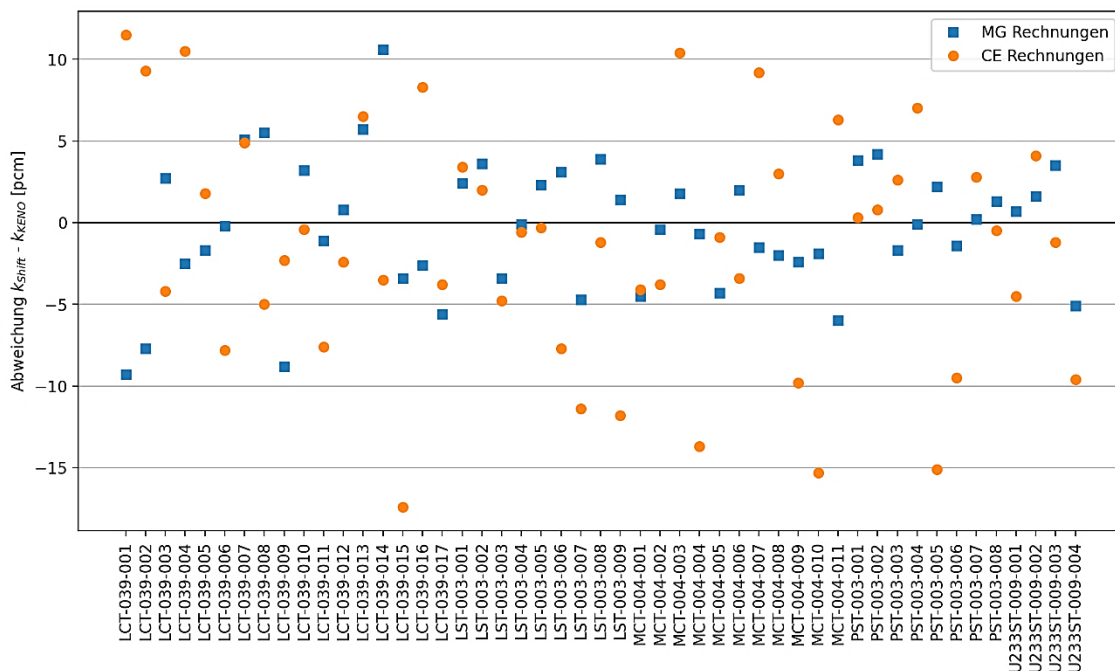


Abb. 3.4 Vergleich der Multiplikationsfaktoren zwischen *Shift*- und *KENO-V.a*-Rechnungen unter Betrachtung von Multigruppen- und kontinuierlichen Wirkungsquerschnitten (MG bzw. CE)

Der in *SCALE 6.3* neu eingeführte Rechencode *Shift* liefert für die betrachteten Experimente vergleichbare Ergebnisse wie *KENO-V.a*. Da *Shift* vor allem in Hinblick auf eine verbesserte Rechenperformanz entwickelt wurde, werden im Folgenden auch die Rechenlaufzeiten der beiden Rechenmethoden miteinander verglichen. Da der GRS zum Zeitpunkt der Durchführung dieser Arbeiten das *SCALE*-Anwendungspaket nur in der Single-Core-Variante zur Verfügung steht, kann *Shift* nicht von dessen massiver Parallelisierung Gebrauch machen. Die Rechenzeitvergleiche beziehen sich also auf die

Durchführung von Single-Core-Rechnungen der jeweiligen Rechenmethoden. Die Rechnungen wurden mit denselben Eingabedaten und Einstellungen auf derselben Recheninfrastruktur durchgeführt. Die relativen Laufzeitunterschiede, $(t_{\text{shift}} - t_{\text{KENO}}) / t_{\text{KENO}}$, für die betrachteten Benchmark-Experimente sind sowohl für MG- als auch CE-Rechnungen in Abb. 3.5 aufgetragen.

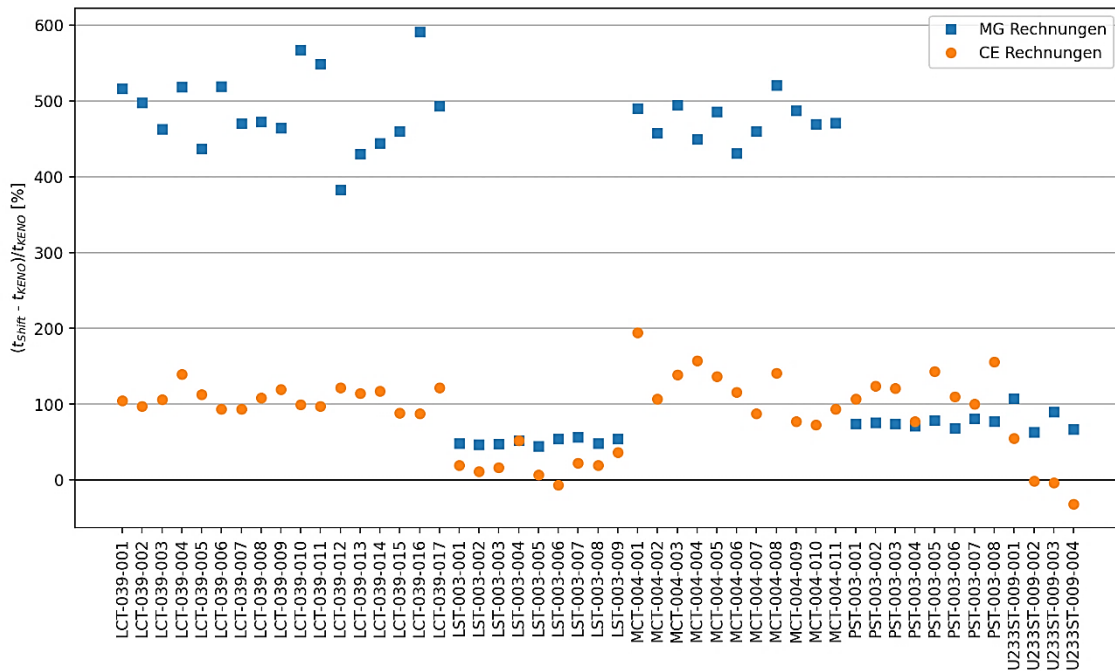


Abb. 3.5 Relative Laufzeitunterschiede zwischen *Shift*- und *KENO-V.a*-Rechnungen unter Betrachtung von Multigruppen- und kontinuierlichen Wirkungsquerschnitten (MG bzw. CE)

Für CE-Rechnungen (gelbe Punkte) liegen die Laufzeiten mit *Shift* für viele Systeme etwa doppelt so hoch wie mit *KENO-V.a*. Für die Systeme LST-003 und U233ST-009 ist die Laufzeit von *Shift* vergleichbar zu *KENO-V.a*.

Für MG-Rechnungen (blaue Quadrate) ist die Laufzeit von *Shift* bei allen betrachteten Systemen höher als bei *KENO-V.a*. Vor allem für die betrachteten Systeme mit festem Brennstoff (LCT-039 und MCT-004) ist der Laufzeitunterschied signifikant erhöht. *Shift* benötigt für diese Rechnungen zwischen 400 – 600 % längere Rechenlaufzeiten.

Die im Allgemeinen längeren Rechenzeiten von *Shift* sind nicht überraschend, da massiv parallelisierte Rechencodes, wenn sie wie hier nur auf einem Rechenkern ausgeführt werden, oftmals eine schlechtere Performanz im Vergleich zu weniger auf Parallelisierung optimierte Rechencodes aufweisen. Zudem beeinflusst die allgemeine Auslastung

des Rechenclusters Laufzeitmessungen, sodass auch dadurch Verzerrungen in den Vergleichen auftreten können. Der Grund für die signifikant erhöhten Laufzeiten für Systeme mit festem Brennstoff mit Multigruppen-Wirkungsquerschnitten ist jedoch unklar und konnte im Zuge dieser Arbeiten nicht eindeutig geklärt werden.

Zusätzlich wurde der Bedarf an Arbeitsspeicher der *KENO-V.a* Rechnungen und *Shift* Rechnungen für die betrachteten Systeme bestimmt. Der relative Unterschied des Speicherbedarfs ist in Abb. 3.6 dargestellt. *Shift* benötigt für die berechneten Systeme sowohl für Multigruppen-Spektren als auch für kontinuierliche Energiespektren deutlich weniger Arbeitsspeicherressourcen als *KENO-V.a*. Konkret benötigt *Shift* ca. 5 % bis 40 % weniger Speicher als *KENO-V.a* und eignet sich daher besser für speicherintensive Systeme.

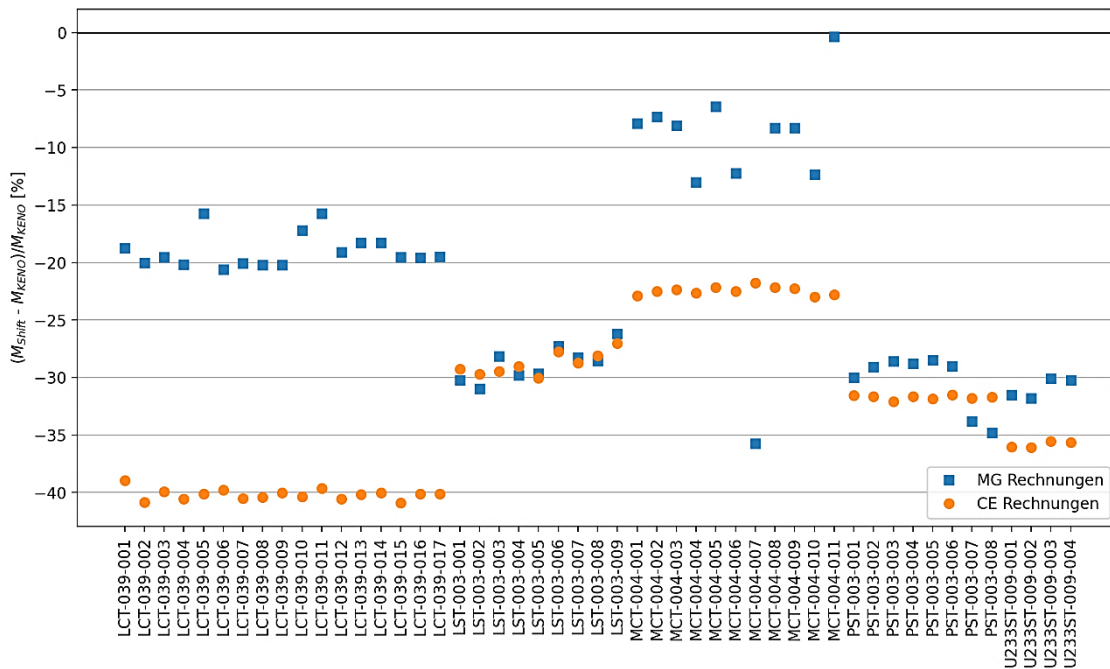


Abb. 3.6 Relative Bedarfsunterschiedes des Arbeitsspeichers zwischen *Shift*- und *KENO-V.a*-Rechnungen unter Betrachtung von Multigruppen- und kontinuierlichen Wirkungsquerschnitten (MG bzw. CE)

Mit *Shift* wird im *SCALE*-Codepaket ein für große Rechencluster optimierter Monte-Carlo Code zur Verfügung gestellt. Die Ergebnisse der Vergleichsrechnungen mit dem etablierten Monte-Carlo Code *KENO-V.a* zeigen eine sehr gute Übereinstimmung der k_{eff} -Werte mit einer mittleren Abweichung von ca. ± 10 pcm auf. Da *Shift* derzeit auf dem GRS-Rechencluster nicht parallelisiert genutzt werden kann, ist *KENO-V.a* für zeitintensive Rechnungen zu bevorzugen, da dieser bei Rechnungen auf nur einem Rechenkern eine bessere Performanz, sprich geringere Rechenzeit, aufweist. Andererseits ist für

Arbeitsspeicherintensive Rechenfälle *Shift* gegenüber *KENO-V.a* vorzuziehen. Die Benutzeransteuerung von *Shift* ist analog zur Ansteuerung von *KENO* gestaltet, sodass ein Wechsel zwischen den Codes sehr einfach ist.

3.4 Analyse von TSUNAMI in SCALE 6.3 und Vergleich mit Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalysen ähnlicher Werkzeuge

Bei der Berechnung von numerischen Neutronentransportsimulationen, die relevante Größen wie z. B. k_{eff} , Reaktionsraten oder Reaktionskoeffizienten eines Systems mit Spaltstoff ermitteln, sind eine Vielzahl von Parametern beteiligt, wie z. B. Materialien, Geometrien, Temperaturen und nukleare Wirkungsquerschnittsdaten. Die Kontrollsequenz *TSUNAMI* (*Tools for Sensitivity and Uncertainty Analysis Methodology Implementation*) ist Bestandteil des Codepakets *SCALE*, auch in seiner aktuellsten Version 6.3.2 /WIE 24/. Es erlaubt die Durchfügung von Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalysen (S/U) aufgrund von Unsicherheiten der nuklearen Daten. *TSUNAMI* verwendet Störungstheorie erster Ordnung, um für ein betrachtetes spaltstoffhaltiges Rechensystem energieabhängige Sensitivitätsprofile für alle enthaltenen Nuklide für die beteiligten Nuklidreaktion zu berechnen. Diese sind z. B. Spaltung, Absorption oder Streuung. Die bestimmten Sensitivitätsprofile werden sowohl in Tabellenform als auch graphisch ausgegeben.

Es stehen eine eindimensionale (*TSUNAMI-1D*) und zwei dreidimensionale (*TSUNAMI-3D-K5*, *TSUNAMI-3D-K6*) Rechensequenzen zur Verfügung. In *TSUNAMI-1D* wird die 1D-Neutronen-Transportrechnung mit der deterministischen Rechensequenz *XSDRNPM* durchgeführt, die nur nukleare Wirkungsquerschnittsbibliotheken in Energiegruppen-Struktur verwendet. In *TSUNAMI-3D* übernimmt *KENO V.a* oder *KENO-VI* die Neutronen-Transportrechnung mit dem Monte-Carlo Verfahren. Für *KENO* ist die Verwendung von nuklearen Wirkungsquerschnittsbibliotheken in Energiegruppen-Struktur und mit kontinuierlichem Spektrum möglich. Neu ist in der Version 6.3.2 von *SCALE* die Möglichkeit, in *TSUNAMI-3D* bei Rechnungen mit kontinuierlichem Spektrum den Monte-Carlo Code *Shift* für die Neutronen-Transportrechnung einzusetzen.

Die Rechensequenz *TSUNAMI-IP* erlaubt den integralen Vergleich zweier Systeme (z. B. eines Anwendungsfalls mit einem oder mehreren Validierungsexperimenten) sowohl global als auch spezifisch für bestimmte Nuklidreaktionen. Die mit dieser Sequenz erzeugten Korrelationskoeffizienten erlauben die Quantifizierung der Ähnlichkeit von Kritikalitätsexperimenten für Sicherheitsanwendungen unter der Annahme, dass systematische Abweichungen des Rechencodes (Code bias) hauptsächlich durch Abweichungen in

den nuklearen Querschnittsdaten verursacht werden. *TSUNAMI-IP* erzeugt außerdem die Eingabedateien für die Trendingsoftware *USLSTATS*.

In Kapitel 3.4.1 werden die Neuerungen von *TSUNAMI* in *SCALE 6.3.2* erläutert und deren Einfluss auf die Rechenergebnisse untersucht. In Kapitel 3.4.2 werden die Rechenergebnisse der aktuellen (Stand 2025) Version von *TSUNAMI* (aus *SCALE 6.3.2*) mit der bisherig verwendeten Version aus *SCALE 6.2.3* und mit dem GRS-Werkzeug zur S/U-Analyse aufgrund von Unsicherheiten in den nuklearen Daten *XSUSA* verglichen. In Kapitel 3.4.3 werden die in *TSUNAMI-IP* zur Verfügung stehenden Korrelationsgrößen einer vertieften Analyse unterzogen. In Kapitel 3.4.4 werden *TSUNAMI-IP* Beispielrechnungen zur Untersuchung der Neuerungen präsentiert.

3.4.1 Neuerungen von *TSUNAMI* in *SCALE 6.3*

Die Programmversion 6.3.2 von *SCALE* bietet einige Neuerungen in der Rechensequenz *TSUNAMI*. So steht für *TSUNAMI-3D*-Rechnungen unter der Verwendung von kontinuierlichen Energiedaten der Monte-Carlo-Code *Shift* als Alternative zu *KENO-V.a* und *KENO-VI* zur Verfügung. Für Rechnungen in Multigruppendarstellung kann *Shift* derzeit noch nicht eingesetzt werden. Durch die massive Parallelisierung dieses Codes wird auf großen Rechenclustern im Vergleich zu den *KENO*-Varianten eine verbesserte Rechenlaufzeit erreicht. Insbesondere bietet die sogenannte *Iterated Fission Probability (IFP)* Methode in *Shift* eine bessere Performanz als die *IFP* und *Contributon-Linked eigenvalue sensitivity/Uncertainty estimation via Tracklength importance Characterization (CLUTCH)* Methoden der *KENO*-Varianten. Die *CLUTCH*-Methode ist in *SCALE 6.3.2* unter Verwendung von *Shift* als Transportlöser nicht einsetzbar.

Im Rahmen der Weiterentwicklung der Datenverarbeitung von *TSUNAMI* wurde neben dem textbasierten Format für Sensitivitätsdatendateien (*SDF*-Dateien), ein neues auf *HDF5* basierendes Format eingeführt (Dateiendung: *.sdf.h5*.) Dieses Format bietet signifikante Vorteile gegenüber dem bisherigen textbasierten Ansatz, insbesondere in Bezug auf die Leistung der Schreib- und Einlese-Routinen. Vor allem bei *TSUNAMI-IP*-Rechnungen, bei denen eine große Anzahl von *SDF*-Dateien eingelesen wird, wird erwartet, dass durch das *HDF5*-basierte Format die Dateneingabegeschwindigkeit verbessert wird. Darüber hinaus unterstützt *Fulcrum* auch die *HDF5*-basierten *SDF*-Dateien und ermöglicht deren grafische Darstellung. Auch Standardwerkzeuge zur Verarbeitung von *HDF5*-Dateien wie *h5dump*, *h5py* und *HDFview* werden unterstützt.

Im folgenden Kapitel wird *TSUNAMI* der *SCALE*-Version 6.3.2 mit *TSUNAMI* aus *SCALE* 6.2.3 und mit dem GRS-Werkzeug für Unsicherheitsanalysen *XSUSA* /ZWE 09/ verglichen.

3.4.2 Vergleich von *TSUNAMI* aus *SCALE* 6.3.2 mit *TSUNAMI* aus *SCALE* 6.2.3 und *XSUSA*

Die größte Neuerung von *TSUNAMI* in *SCALE* 6.3.2 ist die Möglichkeit in *TSUNAMI-3D*, unter der Verwendung von kontinuierlichen Energiedaten den MC-Code *Shift* einzusetzen. Daher wurden Vergleiche zwischen *TSUNAMI-3D* der *SCALE* 6.2.3 Version unter Verwendung von *KENO-V.a* und *TSUNAMI-3D* der *SCALE* 6.3.2 Version unter Verwendung von *Shift* durchgeführt. Alle Simulationen wurden unter Verwendung von kontinuierlichen Wirkungsquerschnittsdaten (CE-Bibliothek) durchgeführt, da *Shift* in *TSUNAMI-3D* in der Version 6.3.2 nur in der kontinuierlichen Energiedarstellung verwendet werden kann. Zudem wird für alle Fälle die *IFP*-Methode angewandt. Für alle Vergleichsrechnungen wurden identische Modellparameter gewählt. Lediglich die verwendete Berechnungssequenz wurde ausgetauscht.

Analog zu den Arbeiten in Kapitel 3.3, dem Vergleich zwischen *Shift* und *KENO*, wurden Experimentnachrechnungen aus dem ICSBEP-Handbuch durchgeführt. Als Abbruchkriterium der Monte-Carlo-Rechnungen wurde sowohl für die *KENO*- als auch für die *Shift*-Rechnungen das Erreichen einer statistischen Schwankung von $\sigma=10^{-4}$ gewählt. Die ausgewählten Experimente sind in Tab. 3.7 aufgetragen. Zusätzlich zu den bereits in Kapitel 3.3 untersuchten Systemen wurden die Testrechnungen um die hochangereicherte Metallkugel Godiva HEU-MET-FAST-001, die *Flattop*-Experimente HEU-MET-FAST-028, PU-MET-FAST-006 und U233-MET-FAST-006, die Uranlösungen HEU-SOL-THERM-009 und LEU-SOL-THERM-002, die Plutoniumkugel Jezebel PU-MET-FAST-002, sowie das U9 *Benchmark Assembly* IEU-MET-FAST-010 erweitert. Die zusätzlichen Systeme wurden auch ausgewählt, da für diese Systeme bereits *XSUSA*-Ergebnisse für den Vergleich vorliegen. Die *XSUSA*-Ergebnisse wurden mit der *XSUSA*-Variante mit kontinuierlichem Energiespektrum berechnet /AUR 25/. Da das stichprobenbasierte Verfahren *XSUSA* sehr rechenintensiv ist, konnten im Rahmen dieser Arbeiten nicht für alle untersuchten Systeme *XSUSA*-Ergebnisse bereitgestellt werden.

Tab. 3.7 Zusammenstellung der mit *TSUNAMI-3D* modellierten experimentellen Konfigurationen aus dem *ICSBEP*

Experiment	Kurzform	Konfigurationen
HEU-MET-FAST-001	HMF-001	1
HEU-MET-FAST-028	HMF-028	1
HEU-SOL-THERM-009	HST-009	1-4
IEU-MET-FAST-010	IMF-010	1
LEU-COMP-THERM-039	LCT-039	1-17
LEU-SOL-THERM-002	LST-002	1-3
LEU-SOL-THERM-003	LST-003	1-9
MIX-COMP-THERM-004	MCT-004	1-11
PU-MET-FAST-002	PMF-002	1
PU-MET-FAST-006	PMF-006	1
PU-SOL-THERM-003	PST-003	1-8
U233-MET-FAST-006	U233MF-006	1
U233-SOL-THERM-009	U233ST-009	1-4

Die Abweichungen von k_{eff} zwischen *TSUNAMI-3D-Shift* und *TSUNAMI-3D-KENO-V.a* sind in Abb. 3.7 dargestellt. Mit einer mittleren absoluten Abweichung von 12 pcm und dessen Standardabweichung von ebenso 12 pcm ergibt sich eine im Allgemeinen gute Übereinstimmung zwischen den beiden Rechencodes. Lediglich für das System IMF-010-001 liegt das Ergebnis von *Shift* um 58 pcm niedriger als das *KENO-V.a* Ergebnis.

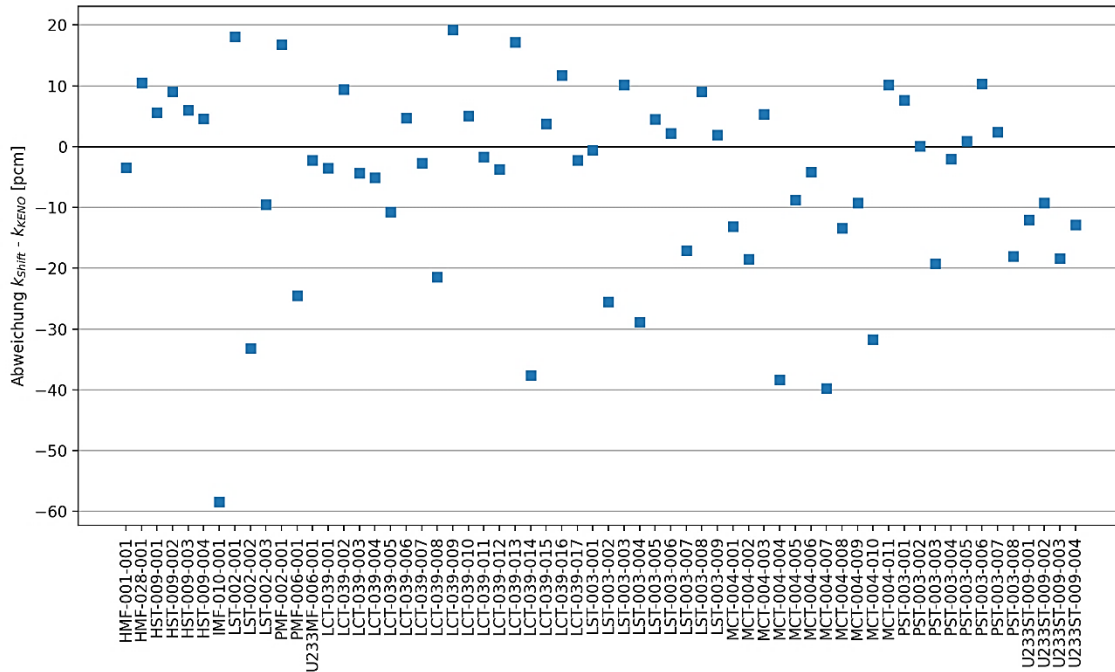


Abb. 3.7 Vergleich der absoluten Abweichung der Multiplikationsfaktoren zwischen den *Shift*- und *KENO-V.a*-Rechnungen (CE-Bibliothek)

In Abb. 3.8 sind die aus den Unsicherheiten in den nuklearen Daten resultierenden Unsicherheiten von k_{eff} aufgetragen. Sowohl die mit *KENO-V.a* als auch *Shift* gerechneten *TSUNAMI-3D*-Rechnungen liefern nahezu identische Ergebnisse. Für jene Systeme, für die *XSUSA*-Ergebnisse vorliegen, sind auch diese samt derer Konfidenzintervalle in der Abbildung dargestellt. Innerhalb dieser decken sich die Ergebnisse weitgehend mit denen von *TSUNAMI-3D*. Einzige Ausnahme bildet das System der hochangereicherten Uranlösung HST-009, bei der *XSUSA* eine um ca. 8% kleinere Unsicherheit als *TSUNAMI-3D* liefert. Das entsprechende Ergebnis von *TSUNAMI-3D* liegt dabei knapp außerhalb des Konfidenzintervalls. Unter Berücksichtigung der minimalen Unsicherheit von k_{eff} aufgrund von Unsicherheiten in den nuklearen Daten von über 600 pcm, sind die im vorherigen Abschnitt gefundenen maximalen Abweichungen zwischen *Shift* und *Keno* von maximal 60 pcm zu vernachlässigen.

Die numerischen Werte der Unsicherheiten sind zusätzlich in Tab. 3.8 dokumentiert. Für *XSUSA* wurden die oberen und unteren 95 %-Konfidenzintervalle in Klammern hinzugefügt.

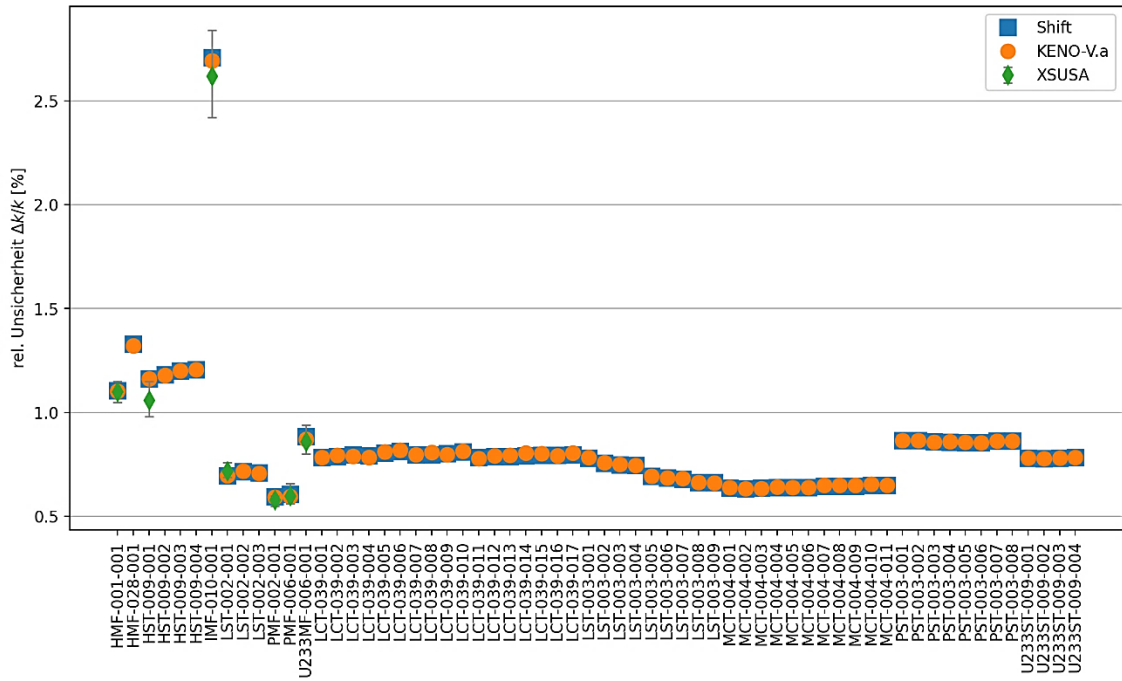


Abb. 3.8 Relative Unsicherheiten des Multiplikationsfaktors aufgrund von Unsicherheiten in den nuklearen Daten

Berechnet mit *TSUNAMI-3D* unter Verwendung von Shift oder *KENO-V.a* und mit *XSUSA*.

Tab. 3.8 Mit *TSUNAMI* und *XSUSA* berechnete relative Unsicherheiten $\Delta k/k$ in %

Experiment	TSUNAMI-3D KENO-V.a	TSUNAMI-3D Shift	XSUSA
HMF-001-001	1,10	1,11	1,10 (1,05 / 1,15)
HMF-028-001	1,32	1,33	-
HST-009-001	1,16	1,16	1,06 (0,98 / 1,15)
HST-009-002	1,18	1,18	-
HST-009-003	1,20	1,20	-
HST-009-004	1,21	1,21	-
IMF-010-001	2,69	2,71	2,62 (2,42 / 2,84)
LCT-039-001	0,78	0,79	-
LCT-039-002	0,79	0,79	-
LCT-039-003	0,79	0,80	-
LCT-039-004	0,78	0,79	-
LCT-039-005	0,81	0,81	-
LCT-039-006	0,82	0,81	-
LCT-039-007	0,80	0,80	-
LCT-039-008	0,81	0,80	-

Experiment	TSUNAMI-3D KENO-V.a	TSUNAMI-3D Shift	XSUSA
LCT-039-009	0,80	0,80	-
LCT-039-010	0,82	0,81	-
LCT-039-011	0,78	0,78	-
LCT-039-012	0,79	0,79	-
LCT-039-013	0,80	0,79	-
LCT-039-014	0,81	0,79	-
LCT-039-015	0,80	0,79	-
LCT-039-016	0,79	0,80	-
LCT-039-017	0,81	0,80	-
LST-002-001	0,70	0,70	0,72 (0,69 / 0,76)
LST-002-002	0,72	0,72	-
LST-002-003	0,71	0,71	-
LST-003-001	0,78	0,78	-
LST-003-002	0,76	0,76	-
LST-003-003	0,75	0,75	-
LST-003-004	0,75	0,75	-
LST-003-005	0,69	0,69	-
LST-003-006	0,69	0,69	-
LST-003-007	0,68	0,68	-
LST-003-008	0,66	0,66	-
LST-003-009	0,66	0,66	-
MCT-004-001	0,64	0,64	-
MCT-004-002	0,64	0,64	-
MCT-004-003	0,64	0,64	-
MCT-004-004	0,64	0,64	-
MCT-004-005	0,64	0,64	-
MCT-004-006	0,64	0,64	-
MCT-004-007	0,65	0,65	-
MCT-004-008	0,65	0,65	-
MCT-004-009	0,65	0,65	-
MCT-004-010	0,65	0,65	-
MCT-004-011	0,65	0,65	-
PMF-002-001	0,59	0,60	0,58 (0,55 / 0,60)
PMF-006-001	0,60	0,61	0,60 (0,56 / 0,66)
PST-003-001	0,87	0,87	-
PST-003-002	0,87	0,87	-
PST-003-003	0,86	0,86	-
PST-003-004	0,86	0,86	-
PST-003-005	0,86	0,86	-

Experiment	TSUNAMI-3D KENO-V.a	TSUNAMI-3D Shift	XSUSA
PST-003-006	0,85	0,85	-
PST-003-007	0,86	0,86	-
PST-003-008	0,86	0,86	-
U233MF-006-001	0,87	0,88	0,86 (0,80 / 0,94)
U233ST-009-001	0,78	0,78	-
U233ST-009-002	0,80	0,80	-
U233ST-009-003	0,78	0,78	-
U233ST-009-004	0,79	0,79	-

Betreffend der Ergebnisvorhersagen liefern *TSUNAMI-KENO-V.a* aus *SCALE 6.2.3* und *TSUNAMI-Shift* aus *SCALE 6.3.2* eine gute Übereinstimmung. Im Mittel weichen die relativen Unsicherheiten beider Methoden um 0,4 % voneinander ab. Die maximale relative Abweichung liefert das System PMF-006 mit 2 % Abweichung.

Um zu untersuchen, ob *TSUNAMI-Shift* mit dem neuen *IPF*-Algorithmus aus *SCALE 6.3* eine bessere Nutzung der Rechenressourcen bedingt, wurden für beide Rechen-codes sowohl die Rechendauer als auch die Speicherauslastung gemessen. Außerdem wurde festgestellt, dass die effiziente Ausgabe der Sensitivitätsdaten (*sensitivity data file, SDF*) im *HDF5*-Format mit *TSUNAMI-Shift* in der *SCALE*-Version 6.3.2 nicht möglich ist bzw. der entsprechende Eingabeparameter ignoriert wird und die Daten dennoch im ursprünglichen Textformat ausgegeben werden. Um dennoch *SDF*-Daten im *HDF5*-Format erzeugen zu können, wurden die *TSUNAMI-KENO* Rechnungen mit *SCALE 6.3.2* wiederholt. Hiermit werden die *SDF*-Daten in *HDF5*-Format ausgegeben, es scheint sich demnach um einen Bug zu handeln, der durch das Zusammenspiel von *TSUNAMI* in *SCALE 6.3.2* mit *Shift* hervorgerufen wird.

Die Laufzeitunterschiede zwischen den *TSUNAMI-KENO*- und *TSUNAMI-Shift*-Rechnungen sind in Abb. 3.9 aufgetragen. Die hier durchgeführten Rechnungen wurden analog zu Kapitel 3.3 bloß auf einem Rechenkern ausgeführt. Sie zeigen, dass *TSUNAMI-Shift*-Rechnungen, limitiert auf einen Rechenkern, eine ähnliche Rechenperformanz wie *TSUNAMI-KENO-V.a*-Rechnungen aufweisen. Tendenziell benötigten die hier beobachteten *TSUNAMI-Shift*-Rechnungen im Durchschnitt etwa 30 % weniger Rechenzeit.

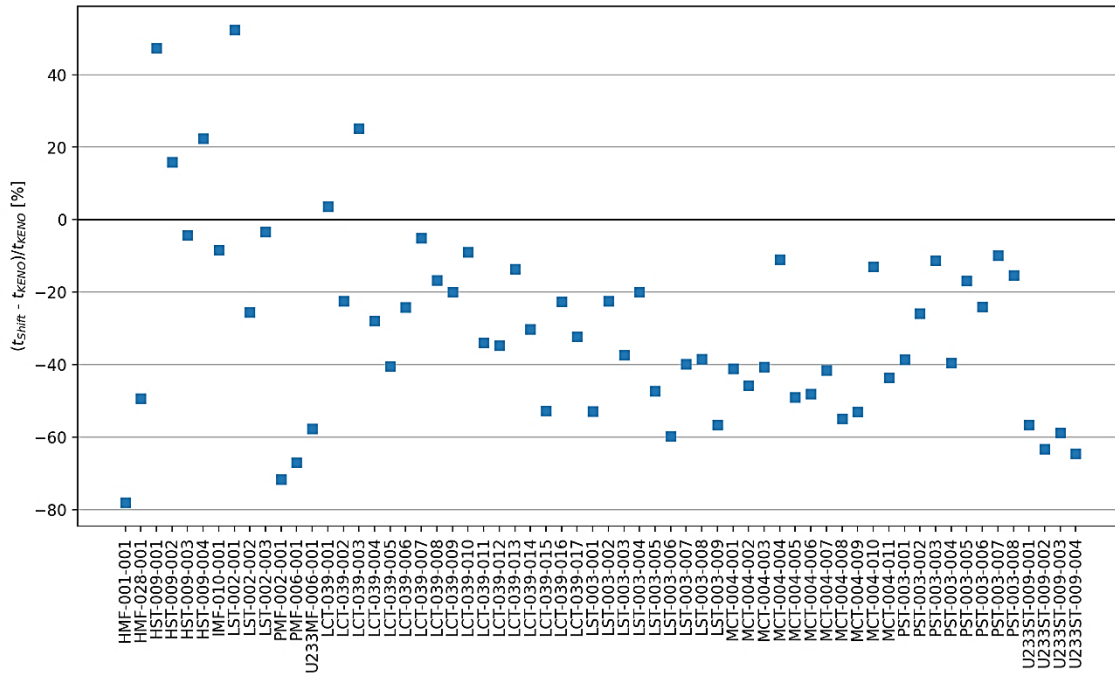


Abb. 3.9 Relative Laufzeitunterschiede zwischen *TSUNAMI-Shift*- und *TSUNAMI-KENO-V.a*-Rechnungen (CE-Bibliothek)

Da die *IFP*-Methode im Allgemeinen einen sehr großen Bedarf an Arbeitsspeicher aufweist, der je nach Problemstellung auch mehrere zehn bis über hundert Gigabyte umfassen kann, wurde für die vorliegenden Systeme der verwendete Arbeitsspeicher der Rechenläufe analysiert. Für alle Rechnungen wurde die Anzahl weggelassener Generationen (latent generations) auf fünf gesetzt. Dieser Wert beeinflusst den Speicherbedarf deutlich und sollte für akkurate Sensitivitätswerte auf einen Wert zwischen fünf und zehn gesetzt werden. Der Bedarf an Arbeitsspeicher der *KENO-V.a*- und *Shift*-Rechnungen für die verschiedenen Systeme ist in Abb. 3.10 dargestellt.

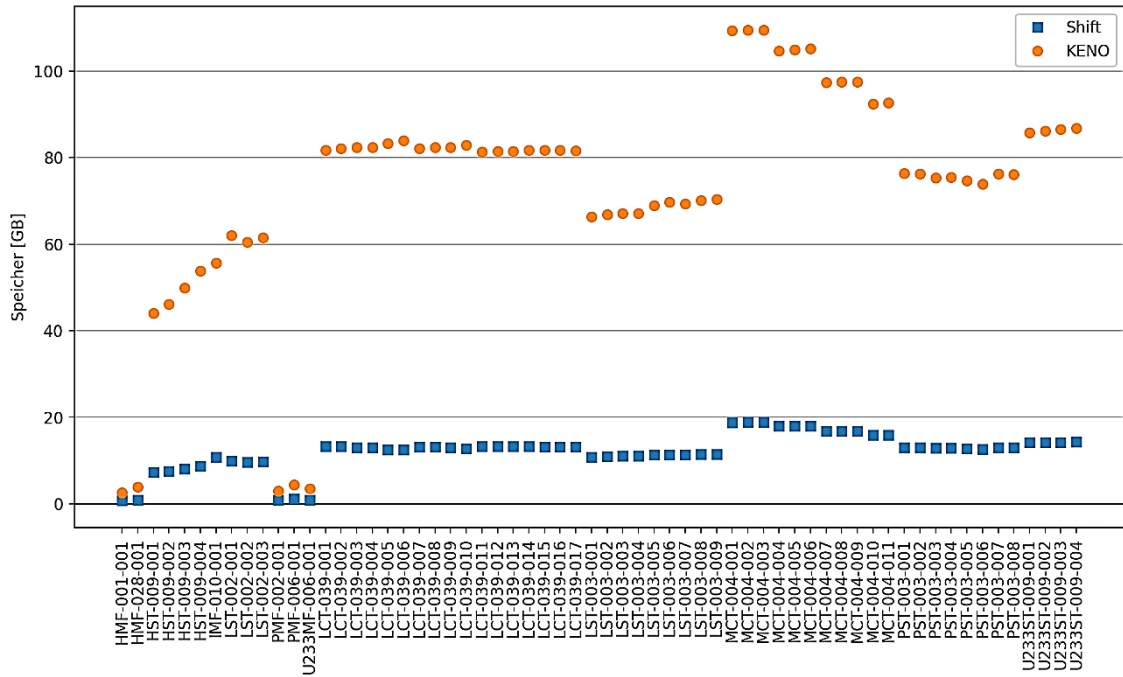


Abb. 3.10 Arbeitsspeicherbedarf der *TSUNAMI-Shift*- und *TSUNAMI-KENO-V.a*-Rechnungen

Die relativen Unterschiede im Speicherbedarf zwischen *Shift* und *KENO-V.a* für die betrachteten Systeme sind in Abb. 3.11 dargestellt. Der *Shift*-Code mit dessen performanten *IFP*-Methodik bietet eine deutlich optimierte Nutzung der Arbeitsspeicherauslastung gegenüber dem *KENO*-Code von typischerweise über 80 %.

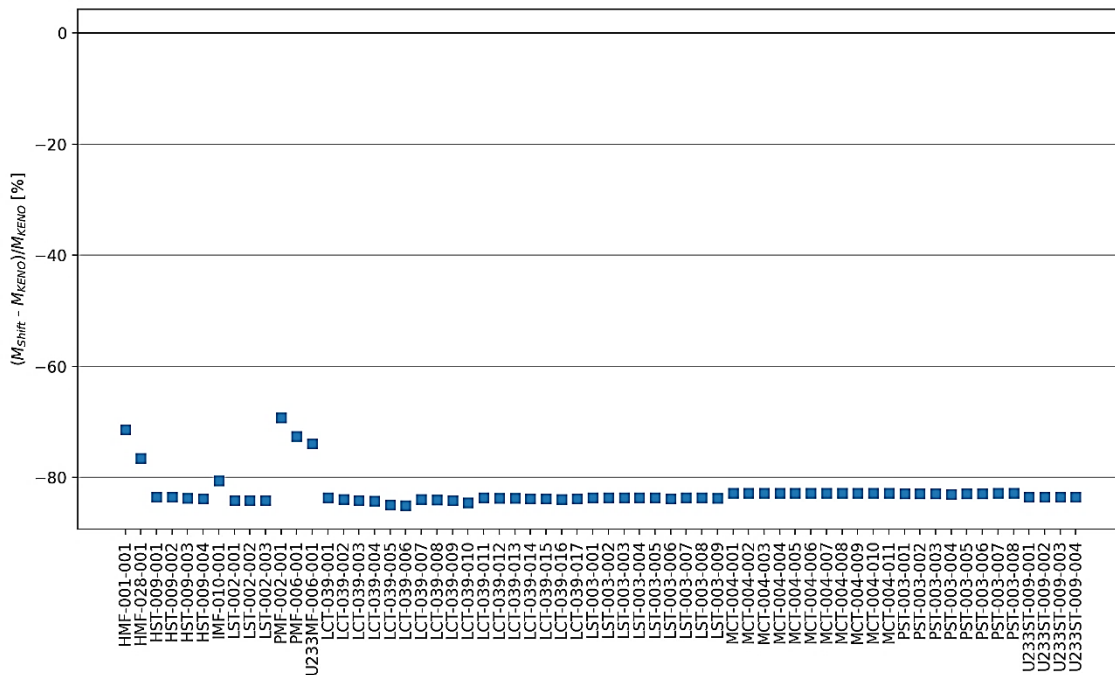


Abb. 3.11 Relative Speicherbedarfsunterschiede zwischen *TSUNAMI-Shift*- und *TSUNAMI-KENO-V.a*-Rechnungen

Die Vergleiche zeigen, dass die Verwendung von *TSUNAMI-Shift* bei Rechnungen mit kontinuierlichen Energiedaten unter Verwendung der *IPF*-Methodik eine bessere Performance aufweisen als *TSUNAMI-KENO*-Rechnungen aus *SCALE 6.2*. Die Rechnungen erfordern deutlich weniger Speicherressourcen und die Rechenlaufzeiten sind für die hier untersuchten Fälle bei gleicher Ergebnisgenauigkeit meist etwas kürzer.

3.4.3 Analyse der in *TSUNAMI-IP* zur Verfügung stehenden Korrelationsgrößen

Mit *TSUNAMI* können Sensitivitäts- und Unsicherheits-Parameter für einzelne Systeme berechnet werden. Die Rechensequenz *TSUNAMI-IP* ermöglicht anschließend den Vergleich dieser Systeme untereinander oder mit Benchmark-Experimenten, um ähnliche Systeme zu identifizieren. *TSUNAMI-IP* generiert aus den angegebenen Systemen eine Reihe integraler Indizes, deren Werte Aufschluss über Ähnlichkeiten und Unterschiede zwischen den Systemen geben. Die theoretische Herleitung dieser Indizes ist in weiterführender Literatur beschrieben, beispielsweise in /REA 02/ oder /BRO 04/.

Im Folgenden sind einige der wichtigsten integralen Parameter sowie deren Bedeutung aufgeführt.

- Integraler Index c_k :

c_k misst die Ähnlichkeit zweier Systeme mithilfe der Wirkungsquerschnittunsicherheiten und der energieabhängigen Sensitivitäten von k_{eff} bezüglich der verschiedenen neutroneninduzierten Prozesse. Formal beschreibt der c_k -Index den Korrelationskoeffizienten zwischen den Unsicherheiten zweier Systeme. Diese Korrelationen entstehen, da die Unsicherheiten der Neutronenmultiplikationsfaktoren beider betrachteten Systeme eine Funktion gemeinsamer, zugrundeliegender Zufallsvariablen sind (d. h. der Wirkungsquerschnittunsicherheiten). Somit werden für c_k unsicherheitsgewichtete Sensitivitätsvektoren zur Bestimmung der Ähnlichkeit zweier Systeme verwendet. Bei einem Wert von $c_k > 0,8$, besser $> 0,9$, spricht man von einer für eine Validierung akzeptablen Ähnlichkeit zweier Systeme.

Mögliche Werte: -1 (vollständig antikorreliert) $\leq c_k \leq 1$ (vollständig korreliert). Ein Wert von Null entspricht keiner Korrelation zwischen den Daten.

- Integraler Index c_r :

c_r dient der investigativen Analyse und ist genauso definiert wie der integrale Index c_k mit der Möglichkeit für den Anwender, einzelne ausgewählte Reaktionen von der Analyse auszuschließen. Ohne Ausschluss von Reaktionen, d. h. bei einem vollständigen Satz, sind die Werte von c_r und c_k identisch.

- Integraler Index E:

Wenn gruppenweise Sensitivitätsdaten für alle Nuklide und Reaktionen als Vektor interpretiert werden, ist der Index E das Skalarprodukt, bzw. der Kosinus des Winkels, zwischen den Sensitivitätsvektoren der beiden betrachteten Systeme. Damit gibt er die Ähnlichkeit der jeweiligen Sensitivitätskurven wieder. E ersetzt den früheren Parameter E_{sum} aus SCALE 5.

Mögliche Werte: 0 (völlig verschieden) $\leq E \leq 1$ (identisch). (Mathematisch sind auch die Werte $-1 \leq E < 0$ möglich.).

- Integraler Index G („groß-G“):

Der Index G bemisst die Ähnlichkeit zweier Systeme basierend auf normalisierten Differenzen in den energieabhängigen Sensitivitätsdaten für Spaltung, Einfang (Absorption) und Streuung für alle Nuklide. Das Ähnlichkeitsmaß von G basiert auf dem Konzept der Abdeckung einer Anwendung durch ein Experiment.

Mathematisch ist G das Verhältnis der Summe über die Differenzen der Sensitivitätskoeffizienten einer Anwendung und eines Experiments zu der Summe sämtlicher Sensitivitätskoeffizienten der Anwendung. Der G-Index ist so normiert, dass 0 *völlig nicht abgedeckt* und 1 *völlig abgedeckt* entspricht.

Mögliche Werte: $0 \leq G \leq 1$.

- Nuklid-Reaktionsspezifischer integraler Index g („klein-g“):

Der Nuklid-Reaktionsspezifische integrale Index g entspricht dem Index G, außer dass die Summation über alle Nuklide und Reaktionen entfällt, und g somit ein Maß für die Abdeckung einer Anwendung durch ein Experiment hinsichtlich einer speziellen Nuklid-Reaktion, z. B. ^{235}U -Spaltung oder ^{16}O -Streuung, darstellt.

- Extended c_k :

Extended c_k misst den Beitrag einer Nuklid-Reaktion des Anwendungsfall und einer Nuklid-Reaktion des Experiments zum integralen Index c_k . Der integrale Index c_k kann durch Summation über alle Nuklid-Reaktion-Kombinationen von Anwendungsfall und Experiment berechnet werden. Zusätzlich zum extended c_k wird auch der individuelle c_k Index ausgegeben, der eine analoge Interpretation wie der extended c_k hat, jedoch auf Werte zwischen -1 und 1 normalisiert ist.

- Extended c_r :

Extended c_r dient der investigativen Analyse und ist genauso definiert in Relation zu c_r wie der extended Index c_k zu c_k mit der Möglichkeit für den Anwender Reaktionen von der Analyse auszuschließen.

- „Completeness-Parameter“ R:

Dieser definiert die „Completeness“, also die Vollständigkeit eines Satzes von Benchmarkexperimenten hinsichtlich derer Validierungs-Abdeckung einer bestimmten Anwendung. Dieser Vollständigkeitsparameter gibt den effektiven Bruchteil der totalen Sensitivität für einen Anwendungsfall an, der von den Benchmarkexperimenten abgedeckt ist. Die Abdeckung ist definiert über den Größenvergleich der gruppenweisen Sensitivitätskoeffizienten für jede Nuklid-Reaktion des Anwendungsfalls zu den entsprechenden Sensitivitäten der Benchmarkexperimente. Der Benutzer kann einen minimalen Abdeckungsfaktor definieren (Parameter *senfac* in der Eingabedatei), der bestimmt, ob die

Anwendungssensitivität als hinreichend abgedeckt eingestuft wird (Voreinstellung $senfac=0,9$; d. h. bei $> 90\%$ Abdeckung wird die Abdeckung als hinreichend eingestuft). Zudem kann angegeben werden, wie viele Experimente notwendig sind, sodass die mit dem Abdeckungsfaktor als hinreichend eingestuften Sensitivitätsabdeckungen als ausreichend angesehen werden (Voreinstellung $nixlim=10$; d. h. 10 Experimente mit hinreichend eingestufte Abdeckung reichen aus, um für eine Nuklid-Reaktion in einer Energiegruppe eine positive Abdeckung zu definieren). Die Summation über alle Nuklidreaktionen und Energiegruppen liefert den integralen Wert R . Die Schätzung der optimalen Werte für die Parameter $senfac$ und $nixlim$ ist jedoch nicht trivial und bestimmt maßgeblich den Vollständigkeitsparameter R .

Mögliche Werte: $0 \leq R \leq 1$.

- Composite sensitivity:

Dies ist ein Verbund der besten zur Verfügung stehenden Sensitivitäten von allen berücksichtigten Experimenten basierend auf dem G-Index für alle Nuklid-Reaktions-Paare.

TSUNAMI-IP vergleicht Systeme paarweise miteinander. In der Eingabe werden eine Liste von Benchmarkexperimenten und eine Liste von einem oder mehreren Anwendungssystemen definiert, zu denen die Sensitivitätsinformationen als *SDF*-Datei vorliegen müssen. Neben den einzelnen Indizes für jedes Benchmark- und Anwendungspaar werden zusätzlich Parameterlisten bezüglich Abdeckung jedes Anwendungssystems hinsichtlich der Benchmarksysteme erstellt. Dies liefert Hinweise darauf, ob der Satz von Benchmarkexperimenten zur rechnerischen Validierung der Anwendungssysteme geeignet ist. Am häufigsten werden die Indizes c_k , E und G verwendet, um ähnliche Systeme zu identifizieren. Diese Indizes ergänzen sich gegenseitig und quantifizieren verschiedene Aspekte der Ähnlichkeit. Während der c_k -Index eine integrale Korrelation zweier Systeme beschreibt, liefert E die Übereinstimmung der jeweiligen Sensitivitätskurven und G liefert ein Maß für die Abdeckung des Anwendungsfalls durch das Benchmarkexperiment.

3.4.4 TSUNAMI-IP Beispielrechnungen zur Untersuchung der Neuerungen

Neben den neu zur Verfügung stehenden Korrelationsgrößen weist *TSUNAMI-IP* in *SCALE 6.3.2* eine bessere Performanz gegenüber der Version in 6.2.3 auf. Die höhere Performanz beruht neben dem deutlich reduzierten Speicherbedarf auf der neu

hinzugekommenen Möglichkeit mit *TSUNAMI-IP* die mit *TSUNAMI* erzeugten Sensitivitätsdaten im effizienten HDF5-Format einlesen zu können.

Dies wurde anhand von Beispielrechnungen nachvollzogen. Hierfür wurden die bereits zuvor betrachteten 62 Systeme betrachtet (siehe Tab. 3.7), da *TSUNAMI-IP* die *TSUNAMI*-Ergebnisse in Form der *SDF*-Dateien als Eingabe benötigt, die bereits für diese Systeme vorliegen. Insgesamt wurden drei Rechnungen durchgeführt. Eine auf Basis von *SCALE 6.2.3* und zwei auf Basis von *SCALE 6.3.2*. Die *SCALE 6.2.3*-Rechnung wurde unter Verwendung der *TSUNAMI-KENO-V.a*-Ergebnisse aus *SCALE 6.2.3* durchgeführt und die *SCALE 6.3.2* Rechnungen unter Verwendung der *TSUNAMI-Shift*- und der *TSUNAMI-KENO-V.a*-Ergebnisse aus *SCALE 6.3.2*. Letztere wurden in die Analyse mitaufgenommen, da es mit *TSUNAMI-Shift* in *SCALE 6.3.2* nicht möglich ist, Sensitivitätsdaten im effizienten *HDF5*-Format zu erzeugen – mit *TSUNAMI-KENO-V.a* ist dies möglich.

Im Folgenden werden zunächst die verschiedenen integralen Ähnlichkeitsparameter c_k , E und G auf Basis von *TSUNAMI-IP*-Rechnungen mit *SCALE 6.3.2* und den Sensitivitätsdaten aus *TSUNAMI-Shift* untersucht. Im Anschluss werden die c_k -Werte der verschiedenen *SCALE*-Versionen auf Unterschiede untersucht.

In Abb. 3.12 sind die resultierenden c_k -Indizes dargestellt. Eine sehr hohe Korrelation wird vor allem unter den verschiedenen Konfigurationen der jeweiligen Systeme beobachtet. Auch thermische Systeme mit ähnlicher ^{235}U -Brennstoffzusammensetzung wie HST-009, LST-002, LCT-039, LST-003 weisen eine mittlere Korrelation von $c_k > 0,5$ auf. Analog dazu lässt sich auch für die thermischen Plutonium-Systeme MCT-004 und PST-003 eine hohe Korrelation beobachten, während diese zu den LCT-Experimenten eine sehr niedrige Korrelation zeigen.

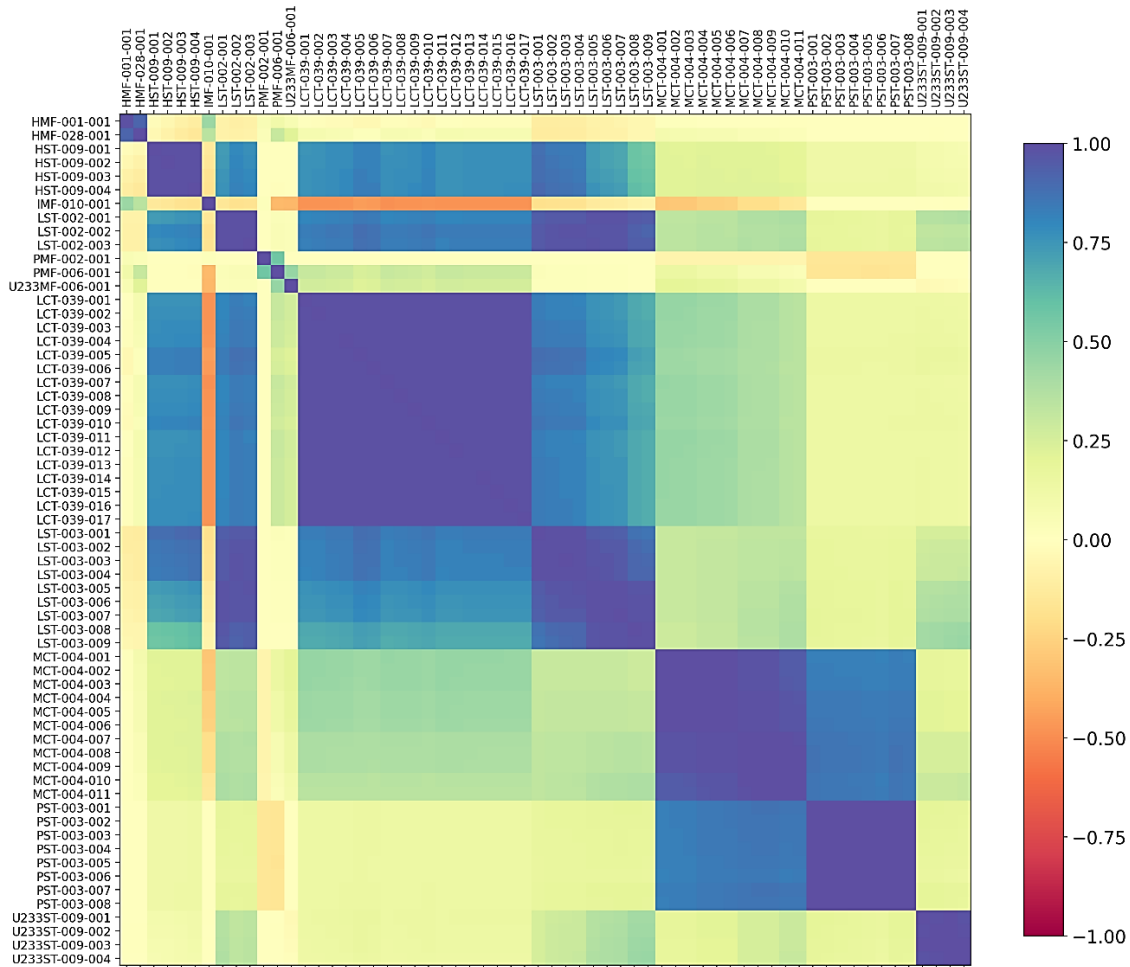


Abb. 3.12 Resultierende Korrelationsparameter c_k der TSUNAMI-IP Rechnung

In Abb. 3.13 sind die resultierenden integralen E-Indizes dargestellt. Wie ersichtlich, konnte für einige Experiment-Anwendungs-paare wie HMF-001 und PMF-002 der Ähnlichkeitsindex E nicht bestimmt werden, da diese Paare aufgrund der komplett unterschiedlichen Stoffzusammensetzungen keine Sensitivitätsvektoren miteinander teilen und somit diese Methodik nicht angewandt werden kann.

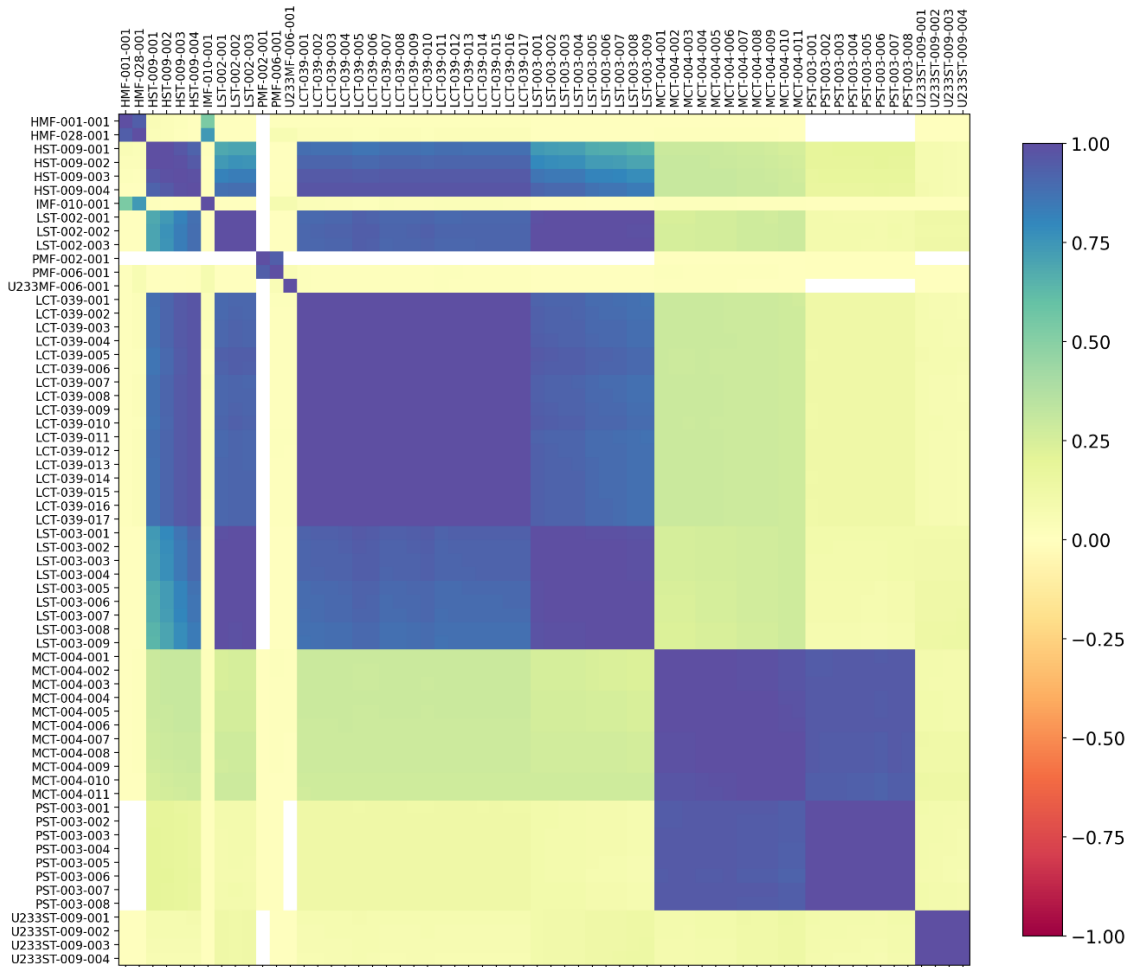


Abb. 3.13 Resultierende integrale E-Indizes der TSUNAMI-IP Rechnung

Die Ergebnisse der c_k - und E-Indizes sind qualitativ ähnlich. Um den Unterschied der Ergebnisse zu quantifizieren, wird die *Zero Mean Normalized Cross-Correlation ZNCC* /BRO 92/ der Matrizen bestimmt:

$$ZNCC = \frac{\sum_x \sum_y (p_{xy} - \bar{p})(q_{xy} - \bar{q})}{\sqrt{\sum_x \sum_y (p_{xy} - \bar{p})^2 \sum_x \sum_y (q_{xy} - \bar{q})^2}} \quad (3.1)$$

Die Parameter p_{xy} und q_{xy} sind die jeweiligen Matrixelemente der zwei Testmatrizen und \bar{p} und \bar{q} deren Mittelwerte. Der mögliche Wertebereich der ZNCC ist zwischen -1 und 1, wobei bei -1 die Daten vollständig antikorreliert, bei 0 unkorreliert und bei 1 vollständig korreliert sind. Um den Vergleich durchführen zu können, werden die fehlenden E-Indizes mit Null aufgefüllt, entsprechend einer vollständigen Unabhängigkeit dieser

Systeme. Der resultierende ZNCC-Wert ist 0,83, was einer guten Übereinstimmung der c_k - und E-Indizes entspricht.

In Abb. 3.14 sind die resultierenden integralen G-Indizes dargestellt. Für die Diagonalelemente, also die G-Indizes der Anwendung mit sich selbst berechnet TSUNAMI-IP keine Werte. Darum bleiben diese Elemente in der Darstellung leer. Aus der Berechnungsmethode des G-Index folgt, dass die resultierende Matrix nicht zwingend symmetrisch ist. Die qualitativen Ergebnisse sind denen der c_k - und E-Indizes ähnlich. Für die Berechnung des ZNCC-Werts wurden die Diagonalelemente auf 1 gesetzt, was einer perfekten Übereinstimmung entspricht. Der ZNCC-Wert zwischen den c_k und G-Indizes beträgt 0,79. Im Allgemeinen liefern die Parameter c_k , E und G qualitativ übereinstimmende Ergebnisse.

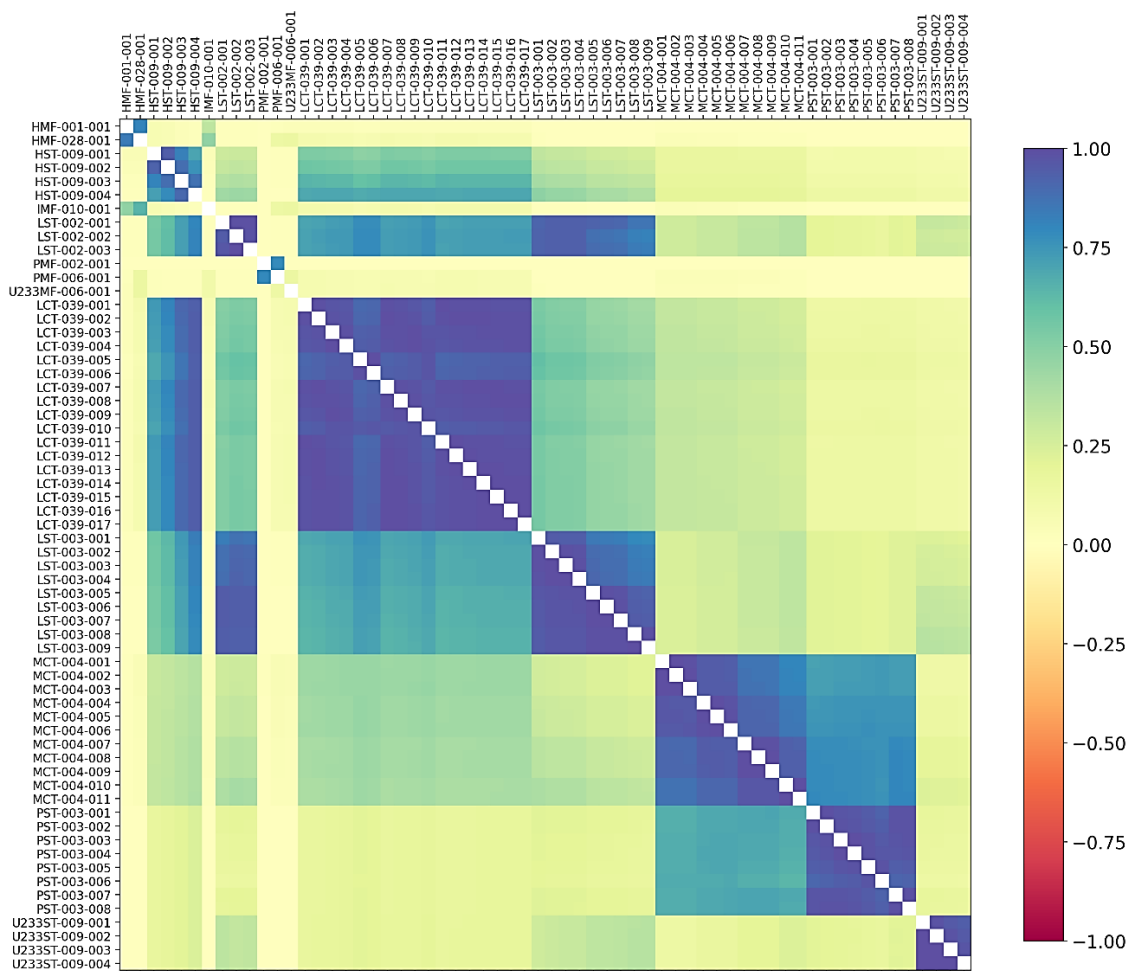


Abb. 3.14 Resultierende integrale G-Indizes der TSUNAMI-IP Rechnung

Um Unterschiede zwischen den Ergebnissen der Rechnungen mit *SCALE* 6.2.3 und *SCALE* 6.3.2 zu identifizieren, wurde der ZNCC-Wert für die verschiedenen integralen Indizes c_k , E und G zwischen den jeweiligen Rechnungen mit verschiedenen *SCALE* Versionen berechnet. Hierbei wurde für die *SCALE* 6.2.3-Rechnung auf die *TSUNAMI-KENO-V.a* Ergebnisse zurückgegriffen, während für die *SCALE* 6.3.2-Rechnung auf die *TSUNAMI-Shift* Ergebnisse zurückgegriffen wurde. Für c_k wurde zwischen beiden *SCALE*-Versionen ein ZNCC-Wert von 0,9999 berechnet, für E und G wurden ZNCC-Werte noch näher an 1 berechnet. Diese Werte entsprechen einer nahezu perfekten Übereinstimmung, sodass in die Berechnungsroutinen von *SCALE* 6.2.3 und 6.3.2 für praktische Belange identische Ergebnisse liefern.

Zwischen der *SCALE* 6.2.3- und der *SCALE* 6.3.2-Rechnung auf Basis der textbasierten Sensitivitätsdaten ergibt sich erwartungsgemäß ein nur geringer Laufzeitunterschied von ca. 3%. Im Gegensatz dazu bietet die *TSUNAMI-IP*-Rechnung auf Basis der Sensitivitätsdaten im *HDF5*-Format eine Laufzeitverbesserung von ca. 50%. Dies stellt eine deutliche Laufzeitverbesserung dar.

Bezüglich der Rechengenauigkeit gibt es in *TSUNAMI-IP* der *SCALE*-Version 6.3.2 keine festgestellten Änderungen im Vergleich zur Version 6.2.3. Die in der praktischen Anwendung größte Neuerung tritt durch die Einführung des effizienten *HDF5*-Dateiformats auf, mit dem die *TSUNAMI-IP*-Rechnungen deutlich beschleunigt werden.

3.5 Rechenbenchmark zum Methodenvergleich bei der Bestimmung Kritikalität von Endlagerbehälter im Rahmen der SG 13 der WPNCs der OECD-NEA

Die OECD-NEA *Working Party on Nuclear Criticality Safety* (WPNCs) beschäftigt sich seit ihrer Gründung mit einer Vielzahl von unterschiedlichen Themen im Bereich der nuklearen Kritikalitätssicherheit, die jeweils im Mittelpunkt eigener Arbeitsgruppen, sogenannter subgroups (SG), stehen. Diese umfassen unter anderem die Verifizierung und Validierung von k_{eff} -Rechnungen, den Vergleich von Kritikalitätsrechnungen unter Verwendung verschiedener Rechenprogramme und nuklearer Wirkungsquerschnittsdaten-Bibliotheken, sowie Studien zu Abbrandkredit. Die Arbeiten der *phase I* und *phase V* der WPNCs *Expert Group on Uncertainty Analysis for Criticality Safety Assessment* (EG UACSA /STU 23/) konzentrierten sich auf den systematischen Fehler (Bias) von k_{eff} und dessen Unsicherheit für generische Anwendungen. Das Ziel der WPNCs *subgroup 11* (SG 11) bestand darin, einen Vergleich der um den Bias korrigierten k_{eff} -Werte und

ihrer Unsicherheiten für die gegebenen Testfälle durchzuführen und verschiedene Methoden und Validierungsansätzen zu vergleichen (Bayes, Maximum Likelihood, Trendanalyse, usw. /HOE 21/). Die oben aufgeführten Studien erforderten den Einsatz geeigneter Werkzeuge und Methoden, die jedoch ohne Modifikation nicht direkt auf konkrete praktische Anwendungen angewendet werden können, bzw. für diese entwickelt wurden.

Der direkte Vergleich bestehender wissenschaftlicher Ansätze für die nukleare Kritikalitätssicherheit in der Endlagerung war bisher kein dediziertes Thema der WPNCS. Eine solche Studie ist nützlich, insbesondere um den Entwicklungsstand und die Zuverlässigkeit der Kritikalitätssicherheitsbewertungen unter der Einbeziehung von Abbrandkredit für Endlagerbehälter zu bewerten, die mit abgebranntem Kernbrennstoff beladen sind. Die Durchführung einer solchen Studie als internationaler Rechenbenchmark unter der Schirmherrschaft der OECD-NEA WPNCS bietet die Möglichkeit, Lösungsansätze unterschiedlicher Methoden aus den vertretenen Mitgliedsländern und von verschiedenen Organisationen, einschließlich Industrie-, Forschungs- und technischen Supportorganisationen (TSO), zu sammeln und zu vergleichen.

Aus diesen Überlegungen wurde im Rahmen der WPNCS ein internationaler Rechenbenchmark definiert, der im Rahmen der neu gegründeten *subgroup 13* (SG 13) bearbeitet wird /VAS 23/. Darin wird für eine stark vereinfachte Endlagerkonfiguration die Beladungskurve berechnet. Die dafür notwendigen Kritikalitätsrechnungen werden mithilfe vorgegebener Kritikalitätsexperimente validiert. Diese Experimente sind dem „International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments“ (ICSBEP, /NEA 16/) entnommen.

In Kapitel 3.5.1 und Kapitel 3.5.2 werden kurz die Hintergründe des Benchmarks gegeben und das Problem beschrieben. Die Benchmark-Spezifikation ist in Kapitel 3.5.3 zusammengefasst. Bei der von der GRS für die Bearbeitung eingesetzte Methode handelt es sich um ein Bayes-Verfahren. Die Methode basiert auf der MOCABA-Methode, die in /HOE 15/ vorgestellt und in /STU 16/ von der GRS implementiert und weiterentwickelt wurde. In Kapitel 3.5.4 wird die verwendete Methode skizziert. In Kapitel 3.5.5 wird deren Anwendung auf die Benchmark-Spezifikation diskutiert und die Resultate der Rechnungen vorgestellt.

3.5.1 Hintergrund

Verschiedene numerische Methoden im Rahmen der Kritikalitätssicherheit, einschließlich ihrer Validierung, können je nach Anwendungsfall unterschiedliche Grade an Vollständigkeit aufweisen und verschiedene Stufen an Konservativitäten einführen. Einige Methoden basieren auf allgemeinen Akzeptanzkriterien. In anderen Methoden können für eine spezielle Anwendung fallspezifische Kriterien definiert werden, die beispielsweise angepasste nukleare Streuquerschnittsdaten oder einen bereinigten systematischen Berechnungsfehler (Bias) und dessen Unsicherheit berücksichtigen, basierend z. B. auf frequentistischer Statistik, Bayes'scher Statistik, oder einer Kombination davon.

Der meist problemabhängig optimale Komplexitätsgrad einer Methodik ist derzeit eine international offene Frage. Dies trifft, im Gegensatz zu eher akademischen Überlegungen, insbesondere auf sicherheitsrelevante Anwendungen zu. Ein Beispiel ist die Kritikalitätssicherheit von Endlagerbehältern von abgebrannten nuklearen Brennstäben. Beispielsweise würde die Verwendung eines einzigen generischen oberen unterkritischen Grenzwerts (upper subcritical limit: USL) die Erstellung einer Beladekurve für abgebrannte nukleare Brennstäben in der praktischen Anwendung stark vereinfachen, auf Kosten großer, unquantifizierter Sicherheitsmargen. Andererseits können fallspezifische Ansätze (z. B. Abbrand-abhängige USLs) effizienter sein, um die Anzahl der erforderlichen Behälter zu reduzieren oder um Einsparungen beim Behälterdesign zu erreichen, ohne dabei die Einhaltung essenzieller Sicherheitskriterien zu gefährden. Die Auswirkungen von solchen potenziellen methodischen Unterschieden auf eine Beladekurve sind oftmals nicht offensichtlich und nicht-trivial.

3.5.2 Problembeschreibung

Ziel dieses Benchmarks ist es, Auswirkungen von potenziellen methodischen Unterschieden auf die Beladekurve durch einen direkten Vergleich der Teilnehmerergebnisse für einen vereinfachten, wohldefinierten Pseudo-Anwendungsfall zu untersuchen. Zu diesem Zweck werden sowohl der Rechenbedarf als auch potenzielle Quellen von unterschiedlichen Umsetzungen der Teilnehmer so gering wie möglich gehalten. Daher beschränkt sich die Studie auf folgende Punkte:

- Verwendung eines viertelsymmetrischen 3D-Modells für die Kritikalitätsrechnung, das vier identische Druckwasserreaktor-Brennelemente darstellt, die von Wasser bedeckt sind und von einem Wasserreflektor umgeben sind.

- Berücksichtigung einer begrenzten Anzahl anfänglicher Anreicherungen frischer Brennelemente: 2, 3, 4, 5 Gew.% ^{235}U .
- Explizite Berücksichtigung nur einer einzelnen Quelle von Unsicherheiten (abhängig von den jeweilig individuell implementierten Methoden der Teilnehmer): Unsicherheiten in den nuklearen Daten, nur für die Kritikalitätsrechnung und nicht bei der Inventarberechnung.
- Verwendung eines festen Satzes international üblicher Actinoide und Spaltprodukte.
- Vorgabe des Satzes an Validierungsexperimenten zur Definition des USLs.
- Die Inventare für mehrere Abbrandwerte sind vorgegeben: 0, 10, 20, 30, 40, 50, 60, 70 GWd/tSM.

Der Umfang der Berechnungen die erforderlich sind, um die im Benchmark geforderten Ergebnisse zu erzielen, beschränkt sich auf Kritikalitätsrechnungen zu der generischen Lagerkonfiguration für alle Anreicherungen und Abbrände, Kritikalitätsrechnungen zu den Validierungs-Experimenten, und je nach Wahl der Teilnehmer optional ergänzt durch die Fortpflanzung der Unsicherheiten der nuklearen Daten. Das im Benchmark zu vergleichendes Endergebnis ist eine Beladekurve für den Anwendungsfall in Form von erforderlichem Mindestabbrand gegen anfänglicher ^{235}U -Anreicherung. Die Aufgabe des Benchmarks besteht demnach darin, die Abbrandwerte für jede anfängliche Anreicherung zu bestimmen, bei denen der k_{eff} -Wert des Modells der Lagerkonfiguration das Kritikalitätssicherheits-Kriterium entsprechend ihrer jeweiligen Methodik erfüllt. Basierend auf diesen Rechnungen erhalten die Teilnehmer eine Beladekurve, indem sie die Kurve aus k_{eff} zu Abbrand für jede Anfangsanreicherung auf das jeweilige USL interpolieren. Die Kritikalitätssicherheitskriterien werden von den Teilnehmern individuell definiert, wobei ein gemeinsamer administrativer Grenzwert von $\Delta_{k_{\text{eff}}} = 0,05$ für die Sicherstellung der Unterkritikalität zu berücksichtigen ist. Insgesamt sind zwei unterschiedliche Beladekurven zu ermitteln:

- Fall 1: Eine Beladekurven unter Berücksichtigung eines vordefinierten USL von 0,95, wenn der Bias der Kritikalitätsberechnungen und dessen Unsicherheit vernachlässigt werden und nur der administrative Grenzwert berücksichtigt wird.
- Fall 2: Eine Beladekurven auf Basis des von den Teilnehmern definierten USLs, d. h. wenn die Validierungsrechnungen des Teilnehmers unter Verwendung der empfohlenen zehn Kritikalitätsbenchmarkexperimenten berücksichtigt werden.

3.5.3 Benchmark-Spezifikationen

Ziel dieses Benchmarks ist die Bestimmung der Beladekurve eines vereinfachten Endlagerbehälters für abgebrannten Kernbrennstoff unter Einbeziehung der Validierung des Kritikalitätscodes durch Nachrechnung von Kritikalitätsexperimenten. Im Folgenden sind die aus /VAS 23/ entnommenen Spezifikationen zusammengefasst.

3.5.3.1 Validierungsexperimente für die Kritikalitätsrechnungen

Die Validierungsexperimente wurden entsprechend der folgenden Kriterien ausgewählt:

- Brennstab-Mittenabstand (pitch) < 2 cm
- ²³⁵U Anreicherung < 5 Gew.%
- Experimentelle Unsicherheit in k_{eff} < 0,5 %
- Quadratisches Brennstabgitter
- Fehlen von Neutronenabsorbern
- Präsenz eines Wasserreflektors

In Tab. 3.9 werden einigen grundlegenden Daten zu den vorgegebenen Validierungsexperimenten zusammengefasst. Die genauen Experimentbeschreibungen können aus /NEA 16/ entnommen werden.

Tab. 3.9 Liste der vorgegebenen Validierungs-Experimente

Nr.	Benchmark	BM-Fall	Spaltstoff	Isotopen-Zusammensetzung
1	LEU-COMP-THERM-006	001	UO ₂	2,596 Gew.% ²³⁵ U
2	LEU-COMP-THERM-007	001	UO ₂	4,738 Gew.% ²³⁵ U
3	LEU-COMP-THERM-011	001	UO ₂	2,459 Gew.% ²³⁵ U
4	LEU-COMP-THERM-014	001	UO ₂	4,306 Gew.% ²³⁵ U
5	LEU-COMP-THERM-039	001	UO ₂	4,738 Gew.% ²³⁵ U
6	LEU-COMP-THERM-062	001	UO ₂	Pellet: 2,60 Gew.% ²³⁵ U Powder: 2,58 Gew.% ²³⁵ U
7	MIX-COMP-THERM-001	002	19,70 Gew.% PuO ₂ + 80,30 Gew.% UO ₂	11,5 Gew.% ²⁴⁰ Pu; natürliches U
8	MIX-COMP-THERM-002	002	2 Gew.% PuO ₂ + 98 Gew.% UO ₂	7,76 Gew.% ²⁴⁰ Pu; 0,708 Gew.% ²³⁵ U
9	MIX-COMP-THERM-003	006	6,6 Gew.% PuO ₂ + 93,4 Gew.% UO ₂	8,57 Gew.% ²⁴⁰ Pu; natürliches U
10	MIX-COMP-THERM-004	001	3,01 Gew.% PuO ₂ + 96,99 Gew.% UO ₂	22,02 Gew.% ²⁴⁰ Pu; natürliches U

3.5.3.2 Anwendungsfall

Der betrachtete Pseudo-Anwendungsfall besteht aus einer Anordnung von vier Brennelementen (BE), die in einen Wasserzylinder von 50 cm Durchmesser eingetaucht sind, siehe Horizontaler Schnitt in Abb. 3.15. Der Abstand der Brennelemente zueinander (Abstand zwischen den BE-Gitterflächen) ist mit 4 cm gegeben (der Abstand zwischen den BE-Mittelpunkten beträgt 25,505 cm). Das Brennelementdesign basiert auf einem Druckwasserreaktor-Brennelement-Design mit einer 17 × 17 Brennstab-Anordnung und UO₂-Brennstoff. Die BE-Geometrie ist weitgehend aus dem OECD-NEA Benchmark *Burn-Up Credit Criticality Safety Benchmark – Phase VII* übernommen /NEA 12/. Dazu gehören die BE-Seitenlänge von 17 × 1,265 = 21,505 cm, Führungsrohrpositionen und Brennstab- und Führungsrohrgeometrien, siehe Abb. 3.15 und Abb. 3.16.

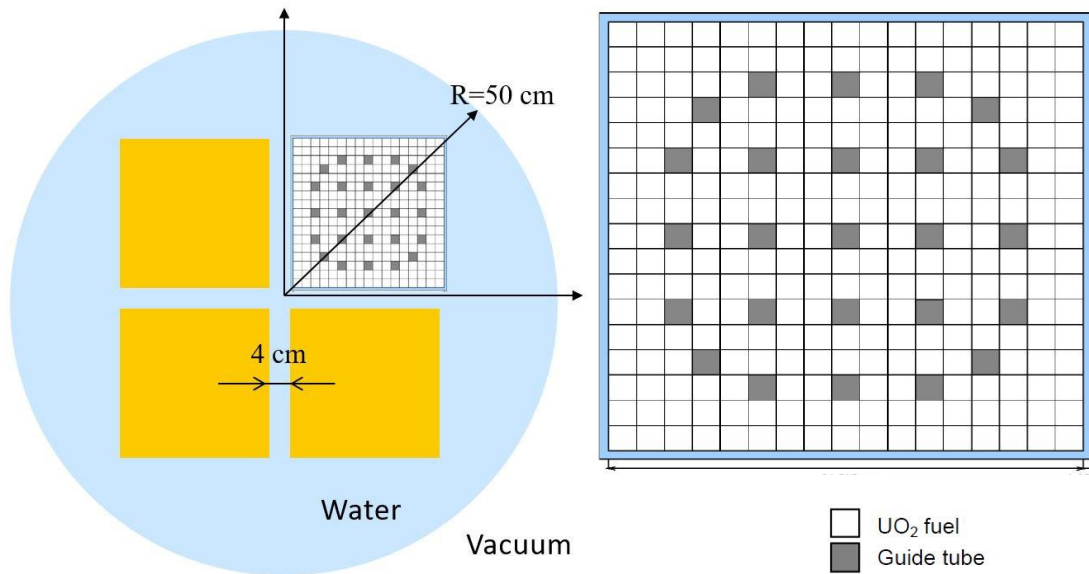


Abb. 3.15 Horizontaler Schnitt des Anwendungsfalls und Anordnung der Brennstäbe und Führungsrohre im Brennelement

/VAS 23/

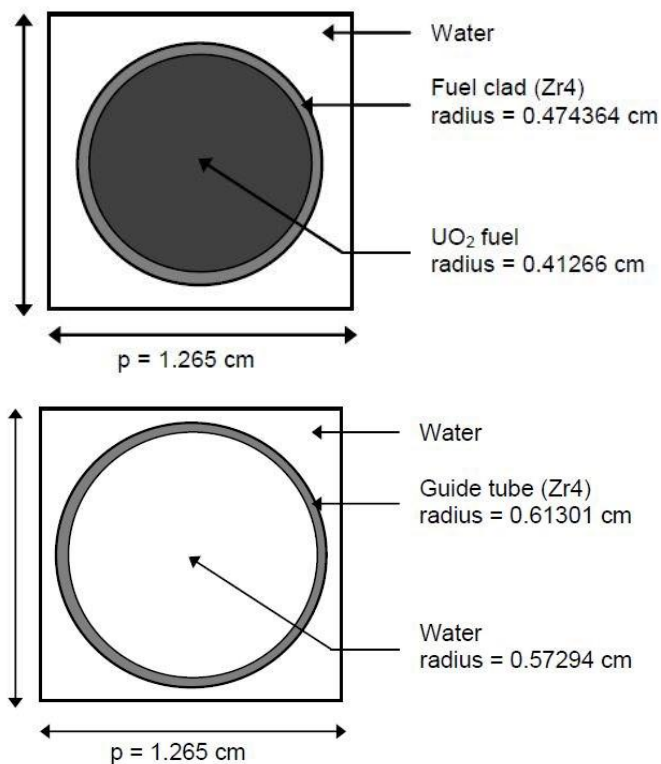


Abb. 3.16 Brennstab- und Führungsrohrgeometrien

/VAS 23/

Das 3D-Modell des Anwendungsfalls hat eine axiale Ausdehnung von 370 cm, ohne axiale Unterteilung. Die Brennstäbe sind in radialer Richtung von Wasser bedeckt, nicht an

der Ober- und Unterseite. Die Randbedingungen des Modells an der Ober- und Unterseite sowie an der Außenfläche des Wasserreflektors wird als Vakuum definiert. Alle geometrischen Größen sind in Tab. 3.10 zusammengefasst.

Tab. 3.10 Zusammenfassung aller geometrischen Größen des Anwendungsfalls

Wasserzylinder	
Radius	80 cm
Höhe	370 cm
Brennelement-Position (4 BE)	4 cm Abstand
Brennelement	
Brennstabgitter (BS)	17 × 17 (264 BS, 25 Führungsrohre)
Größe	21,505 cm x 21,505 cm x 370 cm
Moderator	Wasser
Führungsrohre Radius innen	0,57294 cm
Führungsrohre Radius außen	0,61301 cm
Führungsrohre Länge	370 cm
Brennstab Radius innen	0,41266 cm
Brennstab Radius außen	0,474364 cm
Brennstab Radius Länge	370 cm
UO ₂ Brennstoff Radius	0,41266 cm

Die Temperatur sämtlicher Materialien im Rechenmodell wird auf 293,6 K gesetzt.

Um weitere, hier nicht zu untersuchende Unterschiede zwischen den Teilnehmern des Benchmarks zu minimieren, soll möglichst die ENDF/B-VII.1 Bibliothek für nukleare Querschnittsdaten verwendet werden, einschließlich der darin enthaltenen Kovarianzen /CHA 11/. Diese wird auch in den vorliegend durchgeführten Rechnungen eingesetzt.

3.5.3.3 Materialzusammensetzungen

Die Materialzusammensetzungen der BE-Komponenten werden aus /NEA 12/ übernommen, mit Ausnahme des frischen und abgebrannten Kernbrennstoffs. Diese sind in der Benchmarkbeschreibung für die Anreicherungen von 2, 3, 4, und 5 Gew.% ²³⁵U für die Abbrände 0, 10, 20, 30, 04, 50, 60, und 70 GWd/tSM vorgegeben (siehe /VAS 23/). Auch die Materialzusammensetzungen für die Hüllrohre, die Führungsrohre und den Moderator sind nach Isotopen aufgeschlüsselt in Atomzahldichten [atoms/b*cm] vorgegeben.

3.5.4 Mathematisches Modell

Die im Rahmen dieser Arbeit verwendete Methode beruht auf der Anwendung der Bayesschen Statistik, und wurde bereits in /SOM 22/ beschrieben. Die grundlegenden Konzepte werden hier ohne weitere Details wiederholt. Für weiterführende Lektüre wird auf eine Vielzahl von Publikationen zu diesem Thema, wie z. B. die Anwendung der Bayesschen Statistik im Rahmen von Kritikalitätssicherheitsbewertungen in /NEU 09/ und /HOE 11/ verwiesen.

Mithilfe des Satzes von Bayes lässt sich die Wahrscheinlichkeit, dass das Ereignis A unter der Bedingung, dass das Ereignis B eingetreten ist, wie folgt berechnen:

$$P(A|B) = \frac{P(B|A)P(A)}{P(B)} \quad (3.2)$$

Dabei ist $P(A)$ die A-priori-Wahrscheinlichkeit (Prior) für das Ereignis A und $P(A|B)$ die A-posteriori-Wahrscheinlichkeit (Posterior) für das Ereignis A , wenn das Vorwissen B gegeben ist. $P(B)$ wird als Evidenz bezeichnet und kann, als Normierungsfaktor bestimmt werden. $P(B|A)$ wird in der Literatur oft als inverse Wahrscheinlichkeit, Likelihood oder Plausibilität bezeichnet und gibt die Wahrscheinlichkeit für das Ereignis B an, unter der Annahme, dass A eingetreten ist. Für Wahrscheinlichkeitsdichten folgt der Satz von Bayes analog.

Für den hier vorliegenden Anwendungsfall wird, aufgrund von Unsicherheiten in den nuklearen Daten, eine multivariate Normalverteilung für die Beobachtung der k_{eff} -Werte angenommen. Somit folgt für die Prior-Verteilung:

$$p(k_{\text{eff}}) \propto \exp\left(-\frac{1}{2}(k_{\text{eff}} - k_{\text{eff},0})^T \Sigma_{k_{\text{eff}}}^{-1}(k_{\text{eff}} - k_{\text{eff},0})\right) \quad (3.3)$$

Dabei ist $k_{\text{eff},0}$ der Erwartungswertvektor und $\Sigma_{k_{\text{eff}}}$ die Kovarianzmatrix. Für die inverse Wahrscheinlichkeitsverteilung werden auch die experimentellen Messungen e unter der Bedingung, dass k_{eff} beobachtet wurde, durch eine multivariate Normalverteilung ausgedrückt:

$$p(e|k_{\text{eff}}) \propto \exp\left(-\frac{1}{2}(e - Uk_{\text{eff}})^T \Sigma_e^{-1}(e - Uk_{\text{eff}})\right) \quad (3.4)$$

Dabei ist U eine Rechteckmatrix und repräsentiert eine lineare Transformation des Multiplikationsfaktor-Vektors und Σ_e ist die Kovarianzmatrix.

Da sowohl die Prior-Verteilung als auch die inverse Wahrscheinlichkeitsverteilung Normalverteilungen sind, ist auch die Posterior-Verteilung normalverteilt:

$$p(k_{\text{eff}}|e) \propto \exp\left(-\frac{Q^*}{2}\right) \quad (3.5)$$

Dies beinhaltet das Argument $Q^* = (k_{\text{eff}} - k_{\text{eff}}^*)^T \Sigma^{*-1}(k_{\text{eff}} - k_{\text{eff}}^*)$, wobei k_{eff}^* der Erwartungswert und Σ^* die Kovarianzmatrix ist. Andererseits gilt für Q^* , aufgrund des Satzes von Bayes, $p(k_{\text{eff}}|e) \propto p(e|k_{\text{eff}}) \cdot p(k_{\text{eff}})$:

$$Q^* = (e - Uk_{\text{eff}})^T \Sigma_e^{-1}(e - Uk_{\text{eff}}) + (k_{\text{eff}} - k_{\text{eff},0})^T \Sigma_{k_{\text{eff}}}^{-1}(k_{\text{eff}} - k_{\text{eff},0}) \quad (3.6)$$

Da bei einer Normalverteilung der Erwartungswert und der Modus identisch sind, lässt sich der Erwartungswert k_{eff}^* und die Kovarianzmatrix Σ^* durch das Bestimmen des Maximums von $p(k_{\text{eff}}|e)$ berechnen, oder analog durch die Berechnung des Minimums von Q^* . Eine detaillierte Herleitung kann in /HOE 19/ eingesehen werden. Nach einigen Umformungen folgen für den Erwartungswert und die Kovarianzmatrix somit die Korrekturvorschriften:

$$k_{\text{eff}}^* = k_{\text{eff},0} + \Sigma_{k_{\text{eff}}} U^T (U \Sigma_{k_{\text{eff}}} U^T + \Sigma_e)^{-1} U (U^{-1} e - k_{\text{eff},0}) \quad (3.7)$$

$$\Sigma^* = \Sigma_{k_{\text{eff}}} - \Sigma_{k_{\text{eff}}} U^T (U \Sigma_{k_{\text{eff}}} U^T + \Sigma_e)^{-1} U \Sigma_{k_{\text{eff}}} \quad (3.8)$$

Um zwischen dem Anwendungsfall und den Benchmark-Variablen zu unterscheiden, werden die Vektor- und Matrix-Größen in den obigen Korrekturvorschriften in einen Beitrag des Anwendungsfalls und einen Beitrag der Validierungs-Experimente aufgeteilt:

$$k_{eff}^* = \begin{pmatrix} k_{eff}^{A,*} \\ k_{eff}^{B,*} \end{pmatrix}, \quad k_{eff,0} = \begin{pmatrix} k_{eff,0}^A \\ k_{eff,0}^B \end{pmatrix}, \quad e = \begin{pmatrix} e^A \\ e^B \end{pmatrix}, \quad U = \begin{pmatrix} U_A & 0 \\ 0^T & U_B \end{pmatrix} \quad (3.9)$$

$$\Sigma^* = \begin{pmatrix} \Sigma_A^* & \Sigma_{AB}^* \\ \Sigma_{AB}^{*T} & \Sigma_B^* \end{pmatrix}, \quad \Sigma_{k_{eff}} = \begin{pmatrix} \Sigma_{k_{eff},A} & \Sigma_{k_{eff},AB} \\ \Sigma_{k_{eff},AB}^T & \Sigma_{k_{eff},B} \end{pmatrix}, \quad (3.10)$$

$$\Sigma_e = \begin{pmatrix} \Sigma_{e,A} & 0 \\ 0^T & \Sigma_{e,B} \end{pmatrix}.$$

Hierbei wurden die Messungen für den Anwendungsfall und den Validierungsexperimenten als statistisch unabhängig angenommen, $\Sigma_{e,AB} = 0$. Unter der Annahme, dass es sich um direkte experimentelle Messungen der Validierungs-Experimente handelt, vereinfacht sich die Transformationsmatrix U_B zur Einheitsmatrix, $U_B = I$. Da keine experimentelle Messung für den Anwendungsfall vorliegt wird sowohl die Kovarianzmatrix $\Sigma_{e,A}$, als auch die Transformationsmatrix U_A gleich der Nullmatrix gesetzt, $\Sigma_{e,A} = U_A = 0$. Durch Einsetzen dieser Definitionen in die obige Korrekturvorschrift, erhalten wir für den Anwendungsfall folgende modifizierte Korrekturvorschriften:

$$k_{eff}^{A,*} = k_{eff,0}^A + \Sigma_{k_{eff},AB} (\Sigma_{k_{eff},B} + \Sigma_{e,B})^{-1} (e^B - k_{eff,0}^B) \quad (3.11)$$

$$\Sigma_A^* = \Sigma_{k_{eff},A} - \Sigma_{k_{eff},AB} (\Sigma_{k_{eff},B} + \Sigma_{e,B})^{-1} \Sigma_{k_{eff},AB}^T \quad (3.12)$$

Der korrigierte Multiplikationsfaktor $k_{eff}^{A,*}$ des Anwendungsfalls hängt somit vom Prior $k_{eff,0}^A$ ab, von der Ähnlichkeit des Anwendungsfalls und der Benchmark-Rechnungen $\Sigma_{k_{eff},AB}$, von der Kovarianzmatrix der Benchmark-Rechnungen $\Sigma_{k_{eff},B}$, von den Unsicherheiten bei der experimentellen Bestimmung der Multiplikationsfaktoren der Benchmark-Experimente $\Sigma_{e,B}$ und von der Differenz zwischen den experimentell bestimmten und den berechneten Werten der Multiplikationsfaktoren der Validierungs-Experimente $e^B - k_{eff,0}^B$. Der korrigierte Multiplikationsfaktor $k_{eff}^{A,*}$ des Anwendungsfalls kann somit, je nach

Vorzeichen der Differenz von $e^B - k_{\text{eff},0}^B$, größer oder kleiner als der unkorrigierte Multiplikationsfaktor werden. Die Größe des Korrekturterms nimmt mit höheren Korrelationen zwischen dem Anwendungsfall und den Benchmark-Rechnungen $\Sigma_{k_{\text{eff},AB}}$ zu. Hohe Unsicherheiten bei den Benchmark-Rechnungen (Diagonalwerte von $\Sigma_{k_{\text{eff},B}}$) sowie bei den experimentellen Messungen (Diagonalwerte von $\Sigma_{e,B}$) tragen zu einer Verringerung des Korrekturterms bei.

Die korrigierte Unsicherheit des Anwendungsfalls Σ_A^* kann nur kleiner werden oder gleichbleiben. Dabei führt eine hohe Korrelation zwischen dem Anwendungsfall und den Benchmark-Rechnungen zu einer niedrigeren Unsicherheit der Posterior-Verteilungsfunktion. Andererseits führen hohe Unsicherheiten bei den Benchmark-Rechnungen (Diagonalwerte von $\Sigma_{k_{\text{eff},B}}$) sowie bei den experimentellen Messungen (Diagonalwerte von $\Sigma_{e,B}$) zu einer Verringerung des Korrekturterms.

3.5.5 Anwendung der Bias-Methode auf den Benchmark und Ergebnisse

Das Modell des generischen Lagerbehälters und die zehn Validierungsexperimente wurden für TSUNAMI-3D-K5 aus dem Softwarepaket SCALE 6.2.3 in KENO-Va Geometrie implementiert und gerechnet. Für den Lagerbehälter wurde dafür eine Templatedatei erstellt, in die mit Hilfe eines Pythonscripts die vorgegebenen Nuklidzahldichten des Brennstoffs für die insgesamt 36 Rechnungen mit unterschiedlichen Anreicherungen und Abbränden eingefügt werden. Diese Rechnungen stellen die Anwendungsfälle dar. In Tab. 3.11 sind die in den Rechnungen verwendeten Parameter wiedergegeben. Es wurde sowohl die nukleare Datenbibliothek ENDF/B-VII.1, als auch ENDF/B-VIII.0 verwendet. Die Ergebnisse, die mit diesen beiden Bibliotheken erzielt wurden, liegen sehr eng beieinander, sodass im Folgenden die Zwischenergebnisse nur für die Rechnung mit ENDF/B-VII.1 gezeigt werden. Am Ende des Kapitels wird auch die Beladekurve wiedergegeben, die mit ENDF/B-VIII.0 berechnet wurde.

Tab. 3.11 Parameter der TSUNAMI Rechnungen

Parameter	Keyword	Wert
SCALE Version	-	6.2.3
Nukleare Datenbibliothek	-	ENDF/B-VII.1 ENDF/B-VIII.0
Anzahl Neutronen/Generation	npg	10.000
Anzahl ausgelassener Generationen	nsk	50
Statistische Unsicherheit der Rechnung	sig	$5,0 \times 10^{-4}$
Anzahl ausgelassener Generationen der adjungierten Rechnung	ansk	150
Statistische Unsicherheit der adjungierten Rechnung	asig	$1,0 \times 10^{-3}$

Neben der Berechnung des effektiven Multiplikationsfaktors (k_{eff}) liefert die TSUNAMI Rechnung auch die Unsicherheit von k_{eff} aufgrund der Unsicherheiten der nuklearen Daten, $\sigma_{k_{\text{eff}}}$. Außerdem wird mithilfe der SCALE Sequenz TSNUNAMI-IP die Korrelation c_k zwischen den Experimenten untereinander, zwischen den Anwendungsfällen untereinander und zwischen den Experimenten und den Anwendungsfällen berechnet. Dieses c_k gibt z. B. Aufschluss über die Ähnlichkeit der Validierungsexperimente mit den Anwendungsfällen und damit über deren Eignung zur Validierung der Kritikalitätsrechnungen des Anwendungsfalls. In Tab. 3.12 sind die Ergebnisse der Rechnungen zu den Validierungsexperimenten wiedergegeben. Abb. 3.17 zeigt die C/E-1 Werte von k_{eff} aller Validierungsexperimente, Abb. 3.18 die Unsicherheiten $\sigma_{k_{\text{eff}}}$.

Tab. 3.12 Ergebnisse aller Validierungs-Experimente

Experiment	k_{eff} Exp.	$\sigma_{k_{\text{eff}}, \text{Exp.}}$ [%]	k_{eff} Rechn.	C/E-1 [%]	$\sigma_{k_{\text{eff}}, \text{ND}}$ [%]
LCT-006-001	1,000	0,200	0,9991	-0,086	0,700
LCT-007-001	1,0000	0,140	0,9966	-0,339	0,777
LCT-011-001	1,0010	0,180	0,9976	-0,343	0,700
LCT-014-001	1,0000	0,190	1,0000	-0,003	0,714
LCT-039-001	1,0000	0,140	0,9966	-0,339	0,784
LCT-062-001	1,0000	0,160	1,0022	0,218	0,712
MCT-001-002	1,0000	0,260	0,9988	-0,123	0,698
MCT-002-002	1,0009	0,450	1,0013	0,044	0,599
MCT-003-006	1,000	0,197	1,0042	0,419	0,738
MCT-004-001	1,0000	0,460	0,9956	-0,440	0,637

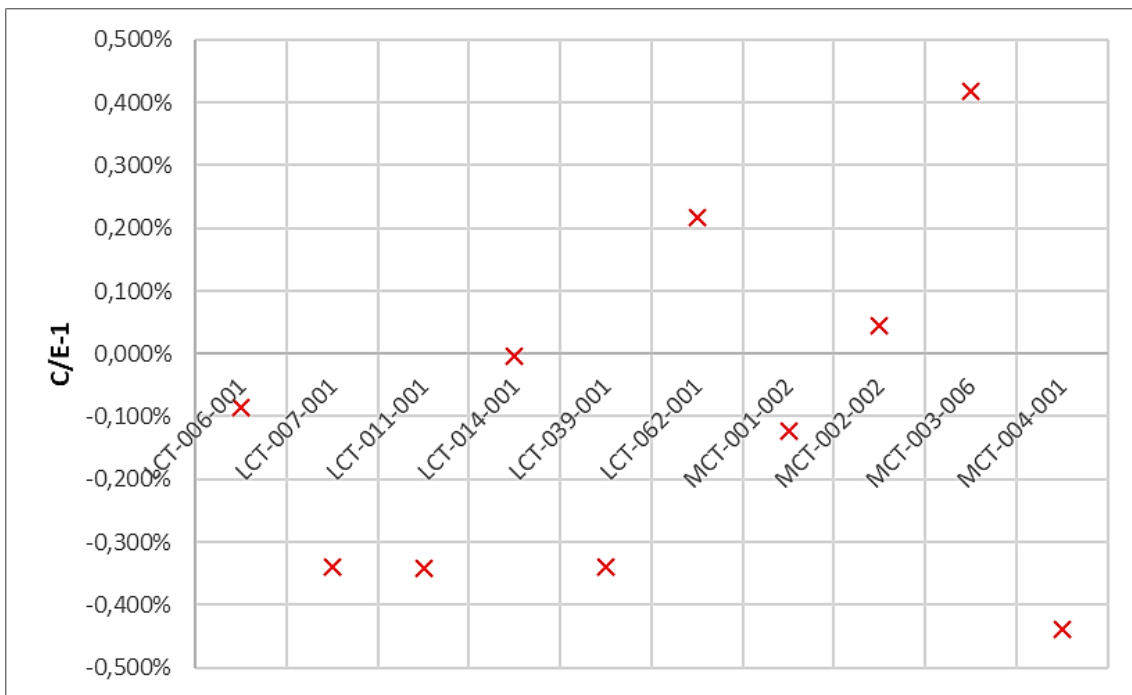


Abb. 3.17 C/E-1 Wert von k_{eff} aller Validierungsexperimente

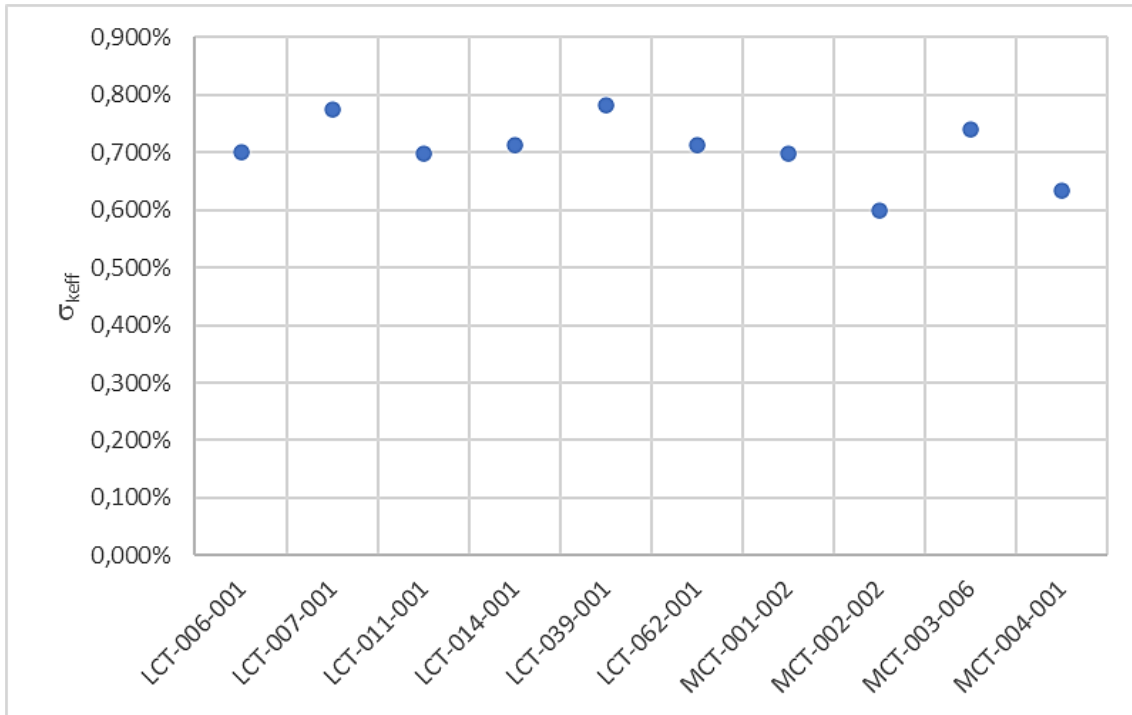


Abb. 3.18 σ_{keff} der Validierungsexperimente

Die Ergebnisse der Kritikalitätsrechnungen zum Lagerbehälter sind in Tab. 3.13 angegeben und in Abb. 3.19 und Abb. 3.20 visualisiert.

Tab. 3.13 Ergebnisse der Kritikalitätsrechnungen zum Lagerbehälter

Anreicherung [Gew.% ²³⁵ U]	Abbrand [Gwd/tSM]	k_{eff} calc.	$\sigma_{keff, ND}$ [%]
2	0	0,97887	0,610
	0	0,97631	0,609
	10	0,90653	0,525
	20	0,84784	0,542
	30	0,80410	0,576
	40	0,77433	0,606
	50	1,08462	0,628
	60	1,08276	0,642
	70	1,00646	0,650
	3	0	0,94231
0		0,88624	0,575
10		0,83927	0,496
20		0,80193	0,488
30		1,14831	0,508
40		1,14636	0,539

Anreicherung [Gew.% ²³⁵ U]	Abbrand [Gwd/tSM]	k _{eff} calc.	σ _{k_{eff}} , ND [%]
	50	1,07359	0,573
	60	1,01338	0,601
	70	0,95826	0,623
4	0	0,90711	0,557
	0	0,86147	0,557
	10	0,82223	0,488
	20	1,19048	0,466
	30	1,18951	0,468
	40	1,12123	0,488
	50	1,06642	0,517
	60	1,01496	0,549
	70	0,96635	0,581
5	0	0,91917	0,546
	0	0,87559	0,546
	10	0,83687	0,485
	20	0,97887	0,459
	30	0,97631	0,451
	40	0,90653	0,457
	50	0,84784	0,476
	60	0,80410	0,502
	70	0,77433	0,534

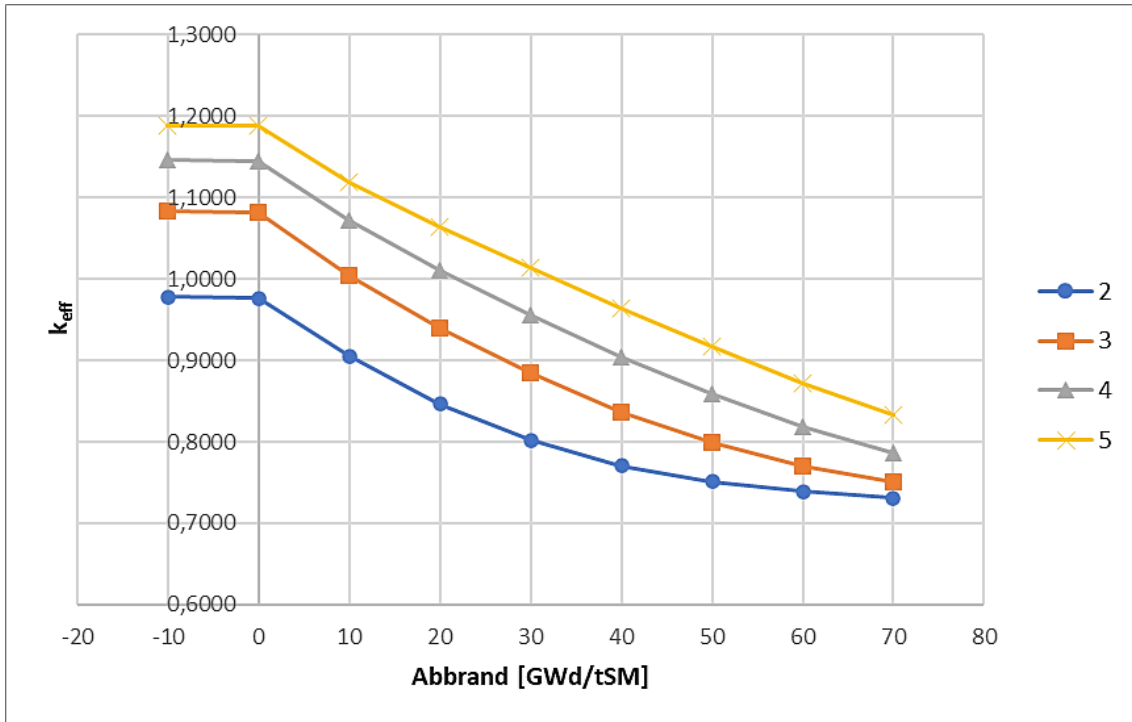


Abb. 3.19 k_{eff} Werte der Kritikalitätsrechnungen zum Lagerbehälter

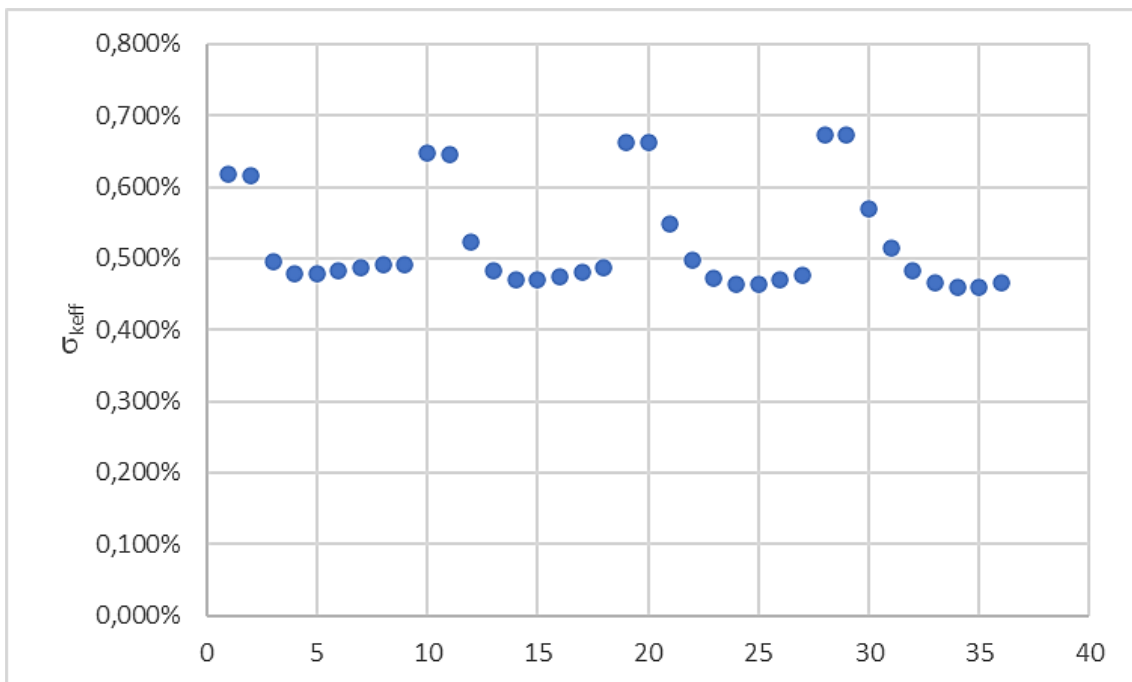


Abb. 3.20 $\sigma_{k_{\text{eff}}}$ der Kritikalitätsrechnungen zum Lagerbehälter

Der Datenpunkt beim Abbrandwert von -10 GWd/tSM in Abb. 3.19 entspricht zur Visualisierung, dem unbestrahlten Brennstoff, der Datenpunkt bei 0 GWd/tSM dem ersten Rechenpunkt mit nur 0,1 MWd/kg Abbrand. Man erkennt deutlich eine Abnahme des berechneten k_{eff} mit fortschreitendem Abbrand bzw. eine zunehmende Kritikalität mit

zunehmender Anreicherung. Aus Abb. 3.20 ist ersichtlich, dass die Unsicherheit von k_{eff} aufgrund der Unsicherheiten in den nuklearen Daten bei frischem Brennstoff im Bereich von 615 – 675 pcm liegt, sich mit zunehmendem Abbrand aber für alle Anreicherungen bei knapp 500 pcm einpendelt.

Die c_k -Werte zwischen allen Validierungsexperimenten untereinander ist in Abb. 3.21 gezeigt. Deutlich tritt eine Zweiteilung der Experiment-Serien hervor. Sämtliche LCT-Experimente haben sehr hohe Korrelation untereinander von mehr als 0,96. Auf der anderen Seite stehen die MCT-Experimente, die untereinander Korrelationen größer 0,79 aufweisen. Zwischen diesen zwei Gruppen treten niedrige bis mittlere Korrelationen von 0,26 – 0,53 auf. Dieser Umstand ist auf das zusätzliche Vorhandensein von Plutonium bei den MCT-Experimenten zurückzuführen, wodurch eine unterschiedliche Sensitivität von k_{eff} bedingt ist.

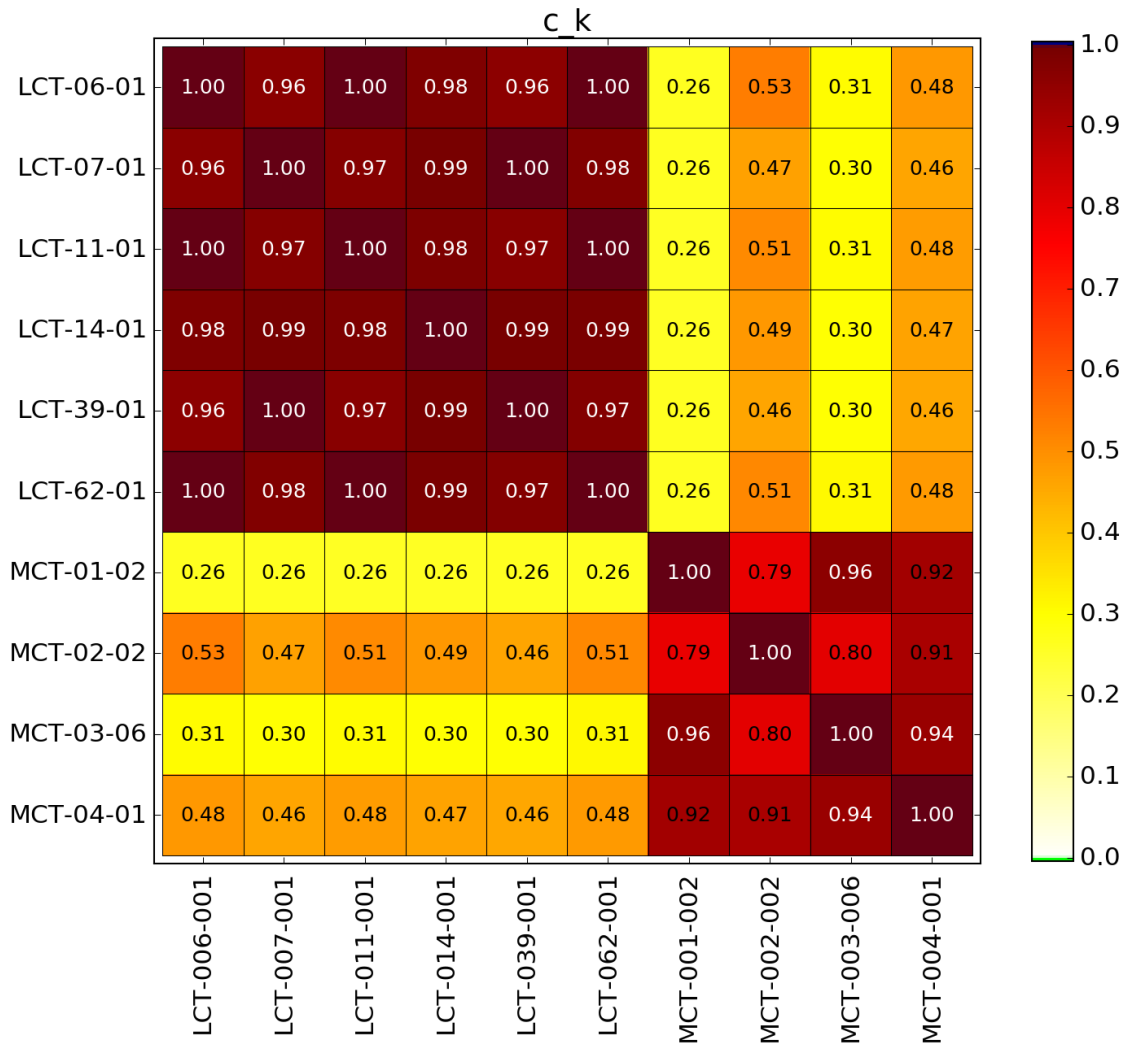


Abb. 3.21 c_k -Werte zwischen allen Validierungsexperimenten

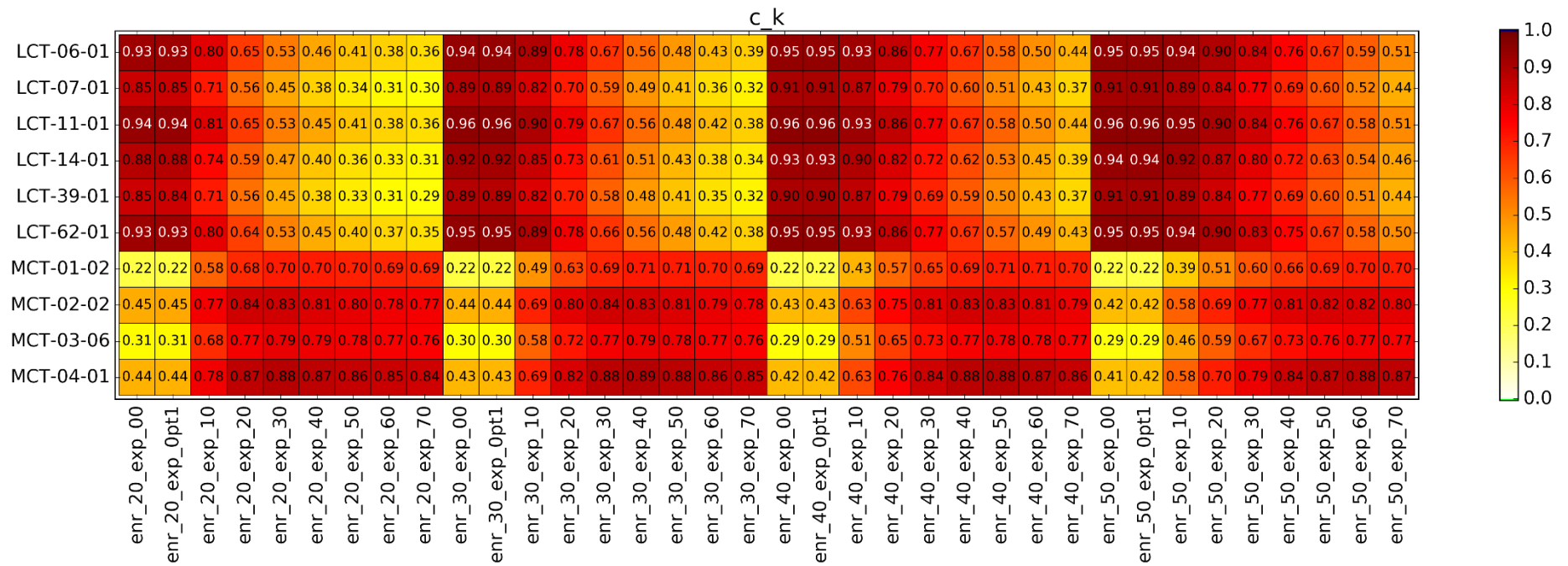


Abb. 3.22 c_k-Werte zwischen den Anwendungsfällen und den Validierungsexperimenten

Abb. 3.22 zeigt die c_k -Werte zwischen den Anwendungsfällen und den Validierungsexperimenten. Hier zeigt sich, dass für alle Anreicherungen die beiden Anwendungsfälle mit frischem Brennstoff (..._exp_00), bzw. der erste Rechenschritt ohne nennenswerten Abbrand (..._exp_0pt1) sehr hohe c_k -Werte mit den LCT-Experimenten aufweisen ($c_k > 0,84$), während die Korrelationen mit den MCT-Experimenten nur niedrige Werte aufweisen ($c_k < 0,5$). Dies kann damit begründet werden, dass bei diesen beiden Rechnungen fast ausschließlich Uran im Brennstoff vorhanden ist, und kein, bzw. kaum Plutonium. Somit ähneln sich die Sensitivitäten von k_{eff} auf Unsicherheiten in den nuklearen Daten denen der LCT-Experimente. Für sämtliche Anreicherungen ist zu beobachten, dass mit steigendem Abbrand die c_k -Werte mit den LCT-Experimenten niedriger werden, während die c_k -Werte mit den MCT-Experimenten zunehmen, da die Sensitivitäten von k_{eff} auf die Unsicherheiten der nuklearen Daten für Plutonium einen immer größeren Einfluss erfahren. Man sieht auch, dass für mittlere Abbrände kaum Experimente in der gewählten Validierungsbasis sind, die hier aufgrund des Parameters c_k ($> 0,9$) hinreichend ähnlich und damit gut passend sind.

Es lässt sich zudem feststellen, dass die Korrelationen zwischen den LCT-Experimenten und den Anwendungsfällen für höhere Anreicherungen zunehmen, vor allem für die Experimente LCT-007, -014 und -039. Da diese Experimente eine Anreicherung von ca. 4,5 Gew.% besitzen, im Gegensatz zu ca. 2,5 Gew.% bei den restlichen LCT-Experimenten, ist eine höhere Ähnlichkeit bei höheren Anreicherungen des Anwendungsfalls zu erwarten. Außerdem besitzen die Korrelationen zwischen den LCT-Experimenten und den Anwendungsfällen bei höheren Anfangsanreicherungen auch bei höheren Abbränden noch höhere Werte, da die Unsicherheit von Uran weiterhin den dominanten Beitrag zur Gesamtunsicherheit liefert.

Im ersten Schritt wird die Beladekurve ermittelt mit einem festgelegten USL von 0,95, ohne Berücksichtigung der Code-Validierung der Kritikalitätsrechnung und Unsicherheiten der Rechnungen (Fall 1). Dafür wurden für jede Anreicherung die Kurven aus k_{eff} und Abbrand (siehe Tab. 3.12 und Abb. 3.19) auf den Punkt $k_{\text{eff}} = 0,95$ interpoliert. Hierfür wurde eine Spline-Interpolation mit Grad drei verwendet, die mithilfe der Pythonroutine *scipy.interpolate.splrep* implementiert wurde. Dabei wurde das Punktepaar bei frischem Brennstoff für die Interpolation weggelassen. In Abb. 3.23 ist die k_{eff} -Entwicklung mit dem Abbrand für eine Anreicherung von 2 Gew.% ^{235}U gezeigt, in Rot die Interpolation zwischen den Werten und als schwarzer, senkrechter Strich die Ermittlung des Abbrands für $k_{\text{eff}} = 0,95$. So lässt sich aus den Rechnungen für alle Anreicherungen die Beladekurve ermitteln, siehe Tab. 3.14 (mittlere Spalte) und Abb. 3.24 (schwarze Kurve). Es sei

angemerkt, dass die Verwendung eines $USL = 0,95$ ohne Berücksichtigung der Validierung des Kritikalitätscodes bzw. der diversen Unsicherheiten in der Praxis nicht zulässig ist. Im Rahmen des Rechenbenchmarks wurde dieser erste Schritt dennoch gewählt, um ggf. Unterschiede zwischen den Teilnehmern besser bewerten zu können.

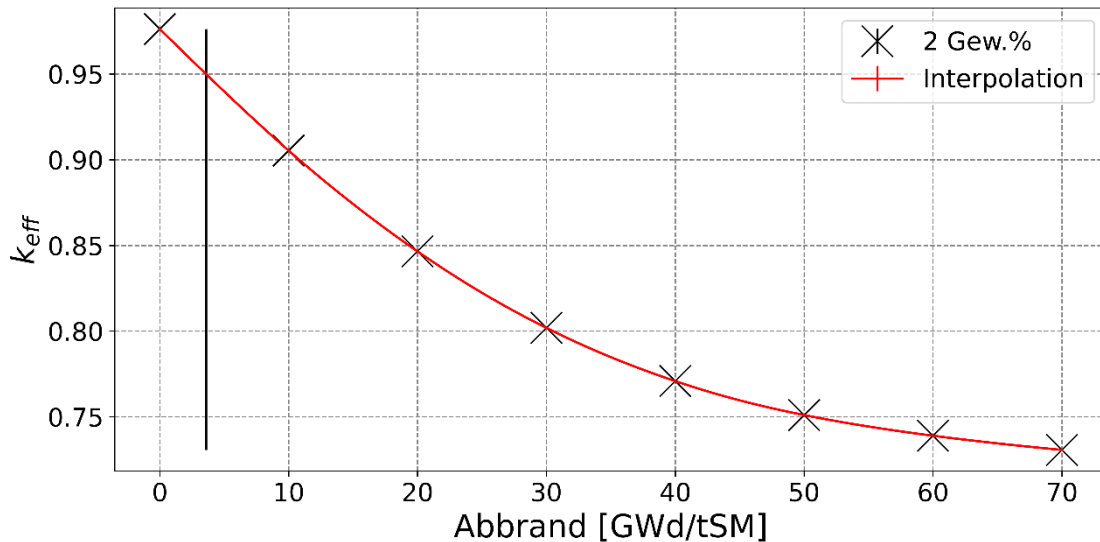


Abb. 3.23 k_{eff} -Entwicklung mit dem Abbrand für eine Anreicherung von 2 Gew.% ^{235}U für $USL = 0,95$ ohne Berücksichtigung der Validierung der Kritikalitätsrechnungen

Im zweiten Schritt wird die Beladekurve bestimmt unter Berücksichtigung des durch den jeweiligen Benutzer definierten USLs (Fall 2). Dazu wird in dem verwendeten Ansatz für jeden berechneten k_{eff} -Wert des Anwendungsfalls mit Hilfe des unter Kapitel 3.5.4 beschriebenen mathematischen Modells der Posterior k_{eff} -Wert und dessen Unsicherheit berechnet. Von dieser Verteilung wird nach DIN 25712 (/DIN 13/) jeweils die einseitige, obere 95%/95% Toleranzgrenze für die weitere Betrachtung verwendet. Die Ermittlung der Posterior-Werte erfolgt durch die Berücksichtigung von zehn unabhängigen Experimenten. Nach /OWE 90/ ergibt sich dadurch ein Faktor von 2,911, mit dem die Unsicherheit von k_{eff} multipliziert und auf den Mittelwert von k_{eff} addiert werden muss.

Mit den auf diese Weise für jede Anreicherung ermittelten Abbrand- k_{eff} -Kurven wird analog zu dem oben beschriebenen Vorgehen der Abbrand bei einem $k_{eff} = 0,95$ mittels Spline-Interpolation ermittelt, da auch in diesem Fall eine administrative Sicherheitsmarge von $\Delta k_{eff} = 0,05$ angewendet wird. Die resultierende Beladekurve ist in Tab. 3.14 (letzte Spalte) und Abb. 3.24 (blaue Kurve) wiedergegeben.

Tab. 3.14 Beladepkurven für Fall 1: USL = 0,95 und Fall 2: zusätzliche Betrachtung der Validierung der Kritikalitätsrechnungen und deren Unsicherheit

Anreicherung [Gew.% ²³⁵ U]	Fall 1: Abbrand für USL = 0,95 [GWd/tSM]	Fall 2: Abbrand für Bayes Verfahren [GWd/tSM]
2,0	3,667	4,298
3,0	18,730	19,400
4,0	31,556	32,403
5,0	43,417	44,435

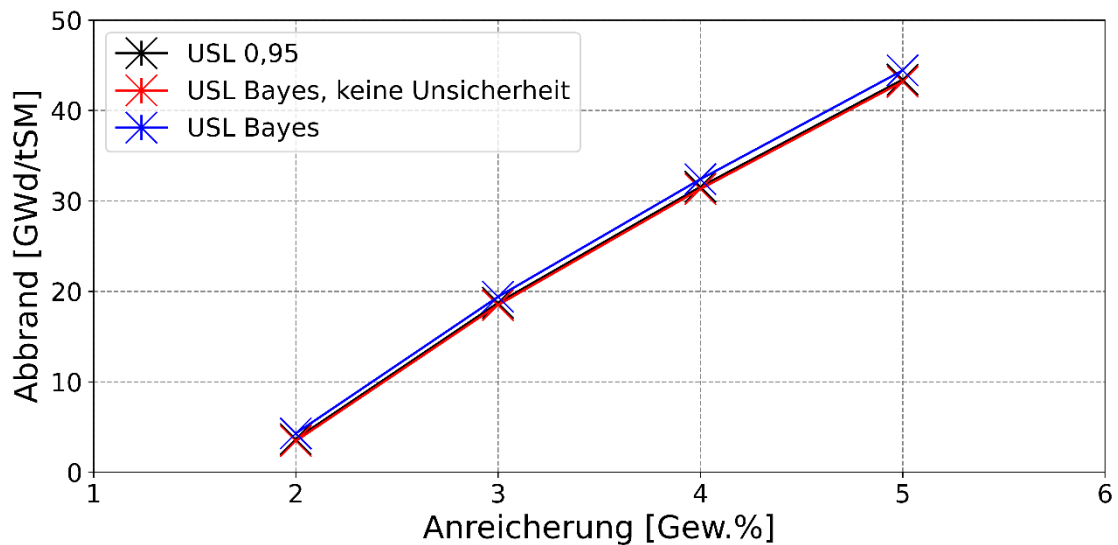


Abb. 3.24 Beladepkurven für Fall 1 (schwarz), Fall 2 ohne Betrachtung der Unsicherheit (rot) und Fall 2 nach dem Bayes Verfahren (blau)

Es ergibt sich die erwartete leichte Erhöhung der Mindestabbrände unter Verwendung des Bayes-Verfahrens, die hier mit bis zu 1,0 GWd/tSM sehr gering ausfällt. Es sei wiederholt, dass die Verwendung eine USL = 0,95 ohne Berücksichtigung der Validierung des Kritikalitätscodes, bzw. der diversen Unsicherheiten nicht zulässig ist. Deshalb ist der hier getätigte Vergleich für praktische Anwendungen nicht relevant. Ein Vergleich der Bayes-Methode mit anderen Rechenansätzen, z. B. mit frequentistischen Ansätzen, wird im Rahmen der Subgroup 13 der WPNCs durchgeführt.

Der Vollständigkeit halber ist in Abb. 3.24 zusätzlich die Beladepkurve nach dem Bayes-Verfahren eingezeichnet (rote Kurve), allerdings ohne Berücksichtigung der Unsicherheit der k_{eff} -Posterior-Werte. Damit zeigt sie die nahezu konstante Verschiebung der Mittelwerte aufgrund des Bayes-Updating-Prozesses. Zur Verdeutlichung der sehr geringen Unterschiede ist in Abb. 3.25 der Unterschied der Beladepkurven nach dem Bayes-

Verfahren ohne Berücksichtigung der Unsicherheit der Posterior-Verteilung (rote Kurve) und nach dem Bayes-Verfahren (blaue Kurve) zu dem Fall USL = 0,95 (schwarze Kurve) gezeigt.

Es zeigt sich, dass die Abbrand-Mittelwerte durch das Bayes-Updating (also ohne Berücksichtigung der Unsicherheiten) hier für alle Anreicherungen geringfügig um etwa $0,21 \pm 0,01$ GWd/tSM nach unten korrigiert werden. Aufgrund der berücksichtigten Unsicherheiten dieser Werte kommt es zu der bereits erwähnten Erhöhung der Mindestabbrände.

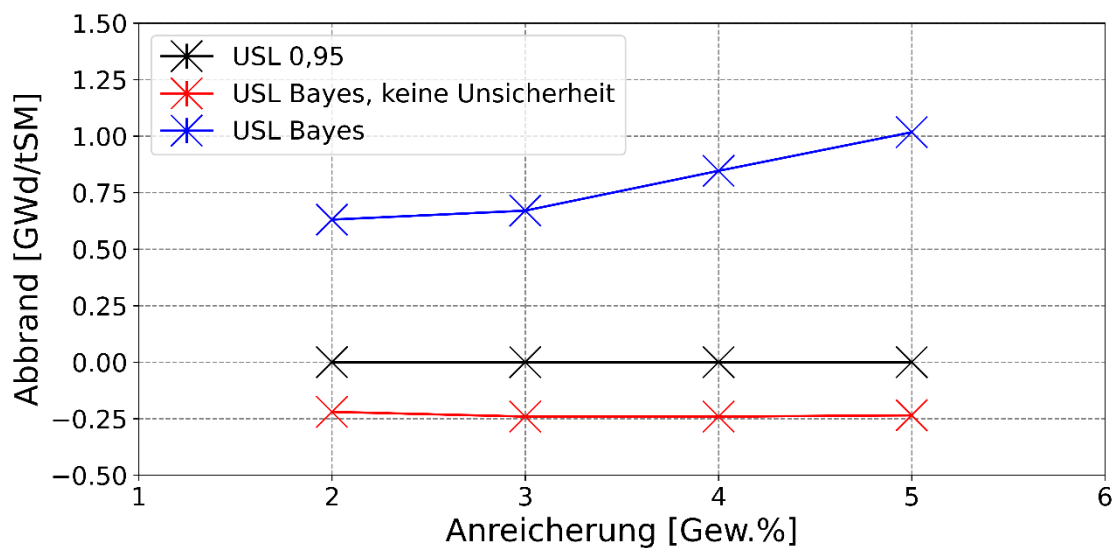


Abb. 3.25 Unterschied der Beladepkurven nach dem Bayes Verfahren

Ohne Berücksichtigung der Unsicherheit der Posterior-Verteilung (rot) und nach dem Bayes Verfahren (blau) zu dem Fall USL = 0,95 (schwarz)

Tab. 3.15 Beladepkurven für Fall 1 und Fall 2 unter Verwendung der nuklearen Datenbibliothek ENDF/B-VIII.0

Anreicherung [Gew. % ²³⁵ U]	Fall 1: Abbrand für USL = 0,95 [GWd/tSM]	Fall 2: Abbrand für Bayes Verfahren [GWd/tSM]
2,0	3,667	4,211
3,0	18,621	19,260
4,0	31,484	32,312
5,0	43,390	44,404

Die Beladepkurven für Fall 1 und Fall 2 unter Verwendung der nuklearen Datenbibliothek ENDF/B-VIII.0 sind in Tab. 3.15 wiedergegeben. Die Werte liegen im Vergleich zu den

Rechnungen mit ENDF/B-VII.1 (siehe Tab. 3.14) im Mittel um 0,07 GWD/tSM niedriger. Die größte Abweichung zeigt sich für eine Anreicherung von 3 Gew.% ^{235}U zu -0,12 GWd/tSM. Diese Abweichung verringert sich für 5 Gew.% ^{235}U auf -0,03 GWd/tSM. Die beiden nuklearen Datenbibliotheken liefern demnach sehr ähnliche Ergebnisse.

Der nationale und internationale Vergleich der Ergebnisse mit anderen Benchmark Teilnehmern, auch mit frequentistischen Ansätzen, wird im Zuge der zum Zeitpunkt der Berichterstellung noch nicht abgeschlossenen Subgroup 13 durchgeführt, besprochen und als OECD NEA WPNCs Report veröffentlicht.

4 Innovative Kernbrennstoffkonzepte

Dieses Kapitel beschäftigt sich mit den internationalen Entwicklungen auf dem Gebiet der innovativen Kernbrennstoffkonzepte. In Kapitel 4.1 werden die recherchierten Erkenntnisse zu dem Themenfeld „Reduzierung von radioaktiven Abfällen: Partitionierung und Transmutation, Small Modular Reactors und beschleunigergetriebene, unterkritische Systeme“ dargestellt. Kapitel 4.2 befasst sich mit den Erkenntnissen zu Herstellungsverfahren und Verarbeitung von Uransilizid U_3Si_2 und Kapitel 4.3 mit den Erkenntnissen zu Herstellungsverfahren und Verarbeitung von Uranmolybdän UMo. Kapitel 4.4 gibt eine kurze Zusammenfassung der Sicherheitsaspekte bei der Herstellung der Brennstoffe U_3Si_2 und U-Mo für Forschungsreaktoren.

4.1 Reduzierung von radioaktiven Abfällen: Partitionierung und Transmutation, Small Modular Reactors und beschleunigergetriebene, unterkritische Systeme

4.1.1 Einleitung

Auch nach dem Abschalten der letzten Kernkraftwerke in Deutschland ist international die Frage, was mit dem meist in Brennelementen gebundenen ausgedienten Brennstoff im Detail passieren soll, nicht einheitlich beantwortet. Das heute in Deutschland und in zahlreiche andere Kernenergie betreibenden Ländern verfolgte Konzept, sieht die dauerhafte Verbringung in einem tiefen geologischen Endlager vor. Parallel bleibt die Verpflichtung zur regelmäßigen Überprüfung alternativer Entsorgungsstrategien, wie sie international erforscht und teilweise aktiv verfolgt werden.

Bei der Zielsetzung der Minimierung von radioaktiven bzw. radiotoxischen Abfällen im Fall des Betriebs innerhalb eines geschlossenen Kernbrennstoffkreislaufs ist eine Wiederverwendung und / oder Aufarbeitung von singulären Stoffanteilen geboten. Der erste Schritt dabei ist eine meist mehrstufige **Partitionierung** des vorliegenden Kernbrennstoffes, d. h. eine stoffspezifische Separation in seine verschiedenen Stoffgruppen. Dies bildet die Grundlage für eine effektive Herstellung von neuem Brennstoff bzw. bei nicht mehr verwertbaren Anteilen eine optimierte Endlagerung. Für jeden dieser beiden Pfade, d. h. für den Wiederverwendungs- oder Abfallpfad, ist zu prüfen, ob nachgeschaltet eine günstigere / bzw. notwenige Ausgangsposition geschaffen werden kann. Eine andere zur Verfügung stehende Technik ist die **Transmutation**, d. h. eine Umwandlung des Radionuklids in ein anderes Nuklid. Dies geschieht entweder durch die Zertrümmerung

dessen Kerns oder durch das Einfangen eines oder mehrerer Teilchen. Zur Vermeidung unerwünschter Nebenprodukte muss der zu transmutierende Stoff in Reinform vorliegen, d. h. es ist in der Regel eine Separierung mittels einer vorgelagerten Partitionierung durchzuführen.

Integral ist dabei eine Balance zwischen den Edukten einer technisch machbaren Partitionierung und den Endprodukten einer möglichen Transmutation zu finden, um den Anforderungen an den neuen Brennstoff im Rahmen einer Kreislaufwirtschaft einerseits, aber auch unter Beachtung des dabei entstehenden sekundären Abfalls andererseits, gerecht zu werden. Zur besseren Verdeutlichung sind die dabei beteiligten Hauptprozesse in ihrem Zusammenwirken im folgenden Bild dargestellt.

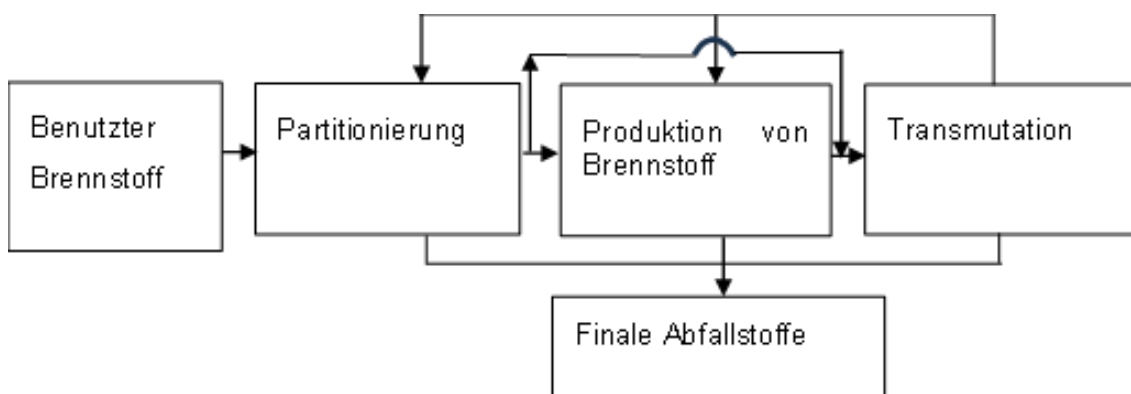


Abb. 4.1 Zusammenwirken von verschiedenen Hauptprozessen bei der Produktion von Brennstoff

Die Zielsetzung bei einer rein endlagerungsorientierten Partitionierung besteht darin, günstigere Bedingungen zu schaffen wie z. B. eine geringere Wärmeproduktion und somit einhergehend, einen geringeren Flächenbedarf für die Endlagerung der Stoffe.

In diesen Zusammenhängen treten bei beiden Vorgehensweisen auch neue Fragen der Sicherheit auf. So werden z. B. für einen geschlossenen Brennstoffkreislauf auch neue Reaktorkonzepte benötigt, die mit dem transmutierten radioaktiven Abfall betrieben werden können. Dies bedingt die Entwicklung neuer Kernbrennstoffarten. Um einen Ausblick darüber zu geben, welches Gefahrenpotential damit verbunden ist, wird im Folgenden eine kurze Übersicht über mögliche Reaktorkonzepte gegeben, wie z. B. Beschleunigergetriebenen Systeme (Accelerator-Driven Systems, ADS). Des Weiteren werden Gefahren, bzw. Ansprüche dargestellt, die mit solchem Brennstoff einhergehen.

Im Folgenden werden einige Aspekte im Zusammenhang mit der Reduzierung von radioaktivem Abfall in unterschiedlicher Detailtiefe näher betrachtet. In Kapitel 4.1.2 erfolgen

allgemeine Erläuterungen zu den Themen Rezyklierung, Partitionierung und Transmutation. Kapitel 4.1.3 fokussiert sich auf die Gattung der Beschleunigergetriebenen Transmutationssysteme, Kapitel 4.1.4 auf die Gattung der Reaktorgetriebenen Transmutationssysteme. Kapitel 4.1.5 geht auf die Unterschiede von homogenen und heterogenen Transmutationskonzepten ein. In Kapitel 4.1.6 werden anschließend Demonstrations- und Erprobungsanlagen für Transmutation umrissen. Kapitel 4.1 endet mit der Vorstellung des allgemeinen Gefahrenpotentials relevanter Brennstoffe im Zusammenhang mit deren Aufbereitung in Kapitel 4.1.7.

4.1.2 Rezyklierung, Partitionierung und transmutatorische Verfahren

In diesem Kapitel werden die drei, oft auch sehr allgemein benutzten Begriffe *Rezyklierung*, *Partitionierung* und *Transmutation*, bzw. *transmutatorische Verfahren*, nach ihrer Vorgehensweise, aber auch mit den dabei verbundenen bzw. noch zu überwindenden Herausforderungen erläutert.

4.1.2.1 Rezyklierung und Partitionierung

Zielsetzung der **Rezyklierung** ist, möglichst große Mengen aus vorhandenem radioaktivem Abfall wieder in den Brennstoffkreislauf einzuspeisen. Dabei liegt der Fokus auf den für eine Endlagerung im Langzeitverhalten problematischen Stoffanteilen, vor allem den Actinoiden. Dies erfolgt durch erneuten Einsatz und (anteiligen) Verbrauch bzw. Umwandlung dieser Stoffe in kurzlebige oder stabile Isotope im Neutronenfeld eines Reaktors. Um einen bestimmten Stoffanteil zu rezyklieren, wird dieser zunächst aus den vorigen radioaktiven Abfällen herausgelöst und separiert, d. h. partitioniert.

Generell wird bei möglichen zukünftigen Brennstoffkreisläufen zwischen dem Ziel einer homogenen und einer heterogenen Rezyklierung bzw. Wiederaufarbeitung unterschieden. Bei der sogenannten homogenen Rezyklierung, die vornehmlich für schnelle Reaktoren geplant ist, werden einem uranbasierten Brennstoff Gewichtsanteile an Actinoiden von zwei bis fünf Prozent aus bisherigem radioaktivem Abfall beigemischt. Diese Beimengungen sind somit im gesamten Reaktorkern verteilt. Der Anteil an zu verbrennenden Transuranen wird niedrig gehalten, sodass sich das auf Sicherheitsfragen fokussierte Verhalten des Brennstoffes nur geringfügig von Standardbrennstoffen unterscheidet. Bedingt durch die beigefügten Actinoide hat der neue Brennstoff weit höhere Anfangs-Gamma- und -Neutronenaktivitäten inklusive damit einhergehender

erhöhter Wärmeentwicklung als üblicher LWR-Brennstoff. Somit wird das Thema der Brennstoffversorgung um diese sicherheitsrelevanten Themen erweitert.

Bei der heterogenen Rezyklierung der minoren Actinoiden soll konventioneller Brennstoff (zum Beispiel MOX) den Hauptbrennstoff im Reaktorkern darstellen. Die zur Verbrennung (bzw. zur Transmutation) vorgesehenen Actinoide werden in besondere Brennelemente (BE) eingebracht. Diese BE werden in der Randzone eines schnellen Reaktorkerns angeordnet, in der die benötigten kinetischen Neutronenbedingungen vorherrschen. Vorteil dabei ist, dass die Actinoide einen geringen Einfluss auf die globalen Sicherheitsparameter des Reaktors haben. Demgegenüber ist als besondere sicherheitsrelevante Schwierigkeit die Herstellung solcher Actinoiden-Targets zu sehen, die bis zu 30 Gew.% Actinoide enthalten. Diese besitzen eine hohe Dosisleistung und sind somit aus sicherheitstechnischer Sicht weitaus anspruchsvoller in ihrer Herstellung sowie der folgenden Handhabung als im Vergleich zu herkömmlichen Brennelementen.

Mit dem Ausdruck **Partitionierung** bezeichnet man zumeist eine Aufbereitung von radioaktivem Material, meist in Form von stofflichen Aufsplittungen. Dabei kann eine stoffliche Partitionierung allgemein als Teilmenge eines Rezyklierungsprozesses gesehen werden, mit dem Ziel, eine möglichst große Menge der anfallenden Prozess-Reststoffe wieder in den Brennstoffkreislauf einzuspeisen. Im vorliegenden Kontext soll durch eine stoffliche Aufspaltung des Brennstoffes die Option einer selektiveren Endlagerung einerseits, die Möglichkeit einer potentiellen selektiven Wiedereinspeisung der besonders langlebigen und radiotoxischen Komponenten andererseits die Zielstellung sein.

Dabei ist die Behandlung der Actinoide ein zentrales Thema. Als minore Actinoide bezeichnet man die Elemente Neptunium, Americium, Curium, Berkelium, Californium, Einsteinium und Fermium. Die Gesamtgruppe der Actinoide besteht dabei aus Actinium und den 14 darauffolgenden Elementen Thorium, Protactinium, Uran, Neptunium, Plutonium, Americium, Curium, Berkelium, Californium, Einsteinium, Fermium, Mendeleevium, Nobelium und Lawrencium. Als majore Actinoide werden die Isotope von Uran, Plutonium und Thorium bezeichnet.

Hinsichtlich der stofflichen Aufspaltung von bestrahltem Kernbrennstoff ist die Abtrennung von Langzeit-radiotoxischen Material und hier der minoren Actinoide von besonderem Interesse. Besonders Americium liefert nach Plutonium den größten Beitrag zur Langzeitradiotoxizität von bestrahltem Brennstoff /ESK 15/. Neptunium entsteht in geringen Mengen und sein Hauptisotop ^{237}Np hat eine Halbwertszeit von $2,14 \times 10^6$ Jahren.

Somit ist sein Gesamtbeitrag hinsichtlich Radiotoxizität oder beim Thema Zerfallswärme als begrenzt einzustufen. Eine Transmutation von Curium wird aufgrund der besonders hohen Aktivität der dabei erzeugten Isotope ^{242}Cm bis ^{246}Cm mit Halbwertszeiten zwischen 162 Tagen (^{242}Cm) und 8.500 Jahren (^{245}Cm) im Allgemeinen als nicht zielführend gesehen. Besonders das Isotop ^{244}Cm besitzt dabei eine hohe Radiotoxizität. Bedingt durch die dann hohen Neutronenemissionen, deren Intensität massive Abschirmung und fernbedientes Hantieren erfordern würden, wird auf die Abtrennung, und damit weitere Aufkonzentrierung, sowie die Transmutation von Curium-Isotopen aus Gründen des Strahlenschutzes verzichtet. Vielmehr soll Curium unbehandelt in den wärmeentwickelnden Abfall überführt werden /ENG 15/.

Eine höhere Beladung von schnellen Reaktoren mit (minoren) Actinoiden bedingt bei Transienten negative Auswirkungen auf die Rückkoppelungskoeffizienten des Kernverhaltens. Dies bedingt einen limitierenden Faktor für die einsetzbare, das heißt für die rezyklierbare Stoffmenge.

Für eine Partitionierung werden folgende Verfahren genannt:

- Hydrochemische Verfahren
- Photochemische Verfahren
- Pyrochemische Verfahren
- Pyrophysikalische Verfahren
- Plasmare Verfahren

Der aktuell allgemeine angewendete Verfahrensfokus liegt auf den sogenannten hydrochemischen (nasschemischen) Verfahren, da diese eine hohe Einsatzbewehrung besitzen und momentan die einzige großtechnisch realisierbare Vorgehensweise darstellen.

Als **hydrochemisches Trennverfahren** werden in der Regel Niedertemperaturprozesse bezeichnet, bei denen hochlösliche Säuren (z. B. HNO_3) eingesetzt werden, um meist zuvor zerkleinerte Brennstoffe in eine wässrige Lösung umzuwandeln. Diese finden normalerweise bei 30 – 70 °C statt. Die gelösten Materialien werden dann mithilfe chemischer Verbindungen, die eine selektive Bindung mit den Materialien Ihrer Wahl eingehen, getrennt. Beispiele für diese Methoden umfassen Lösungsmittelextraktion, Ionenaustausch und photochemische Trennungen /MAN 22/.

Beispiel für ein hydrochemisches Verfahren

Die Lösungsmittelextraktionstechnik namens PUREX (**Plutonium-Uranium-Extraktion**) ist die gängigste Universalmethode für die Wiederaufbereitung abgebrannter Brennelemente. Hierbei werden die Kernbrennstoffe zerkleinert und in Salpetersäure gelöst. Anschließend wird dem System das organische Lösungsmittel TBP (**Tri-Butylphosphat** oder Tri-n-Butylphosphat, $(C_4H_9)_3PO_4$) zugesetzt. Sobald TBP selektiv Bindungen mit den gelösten Uran- und Plutoniumionen in der wässrigen Lösung eingeht, werden diese Teil der organischen Phase. Da das Material der organischen Phase über der wässrigen Phase schwimmt, kann es physikalisch entfernt werden. Durch mehrstufige Vorgänge dieses Verfahrens können sehr hohe Reinigungsgrade erreicht werden. Abb. 4.2 zeigt ein einfaches Massenflussdiagramm des PUREX-Prozesses /MAN 22/.

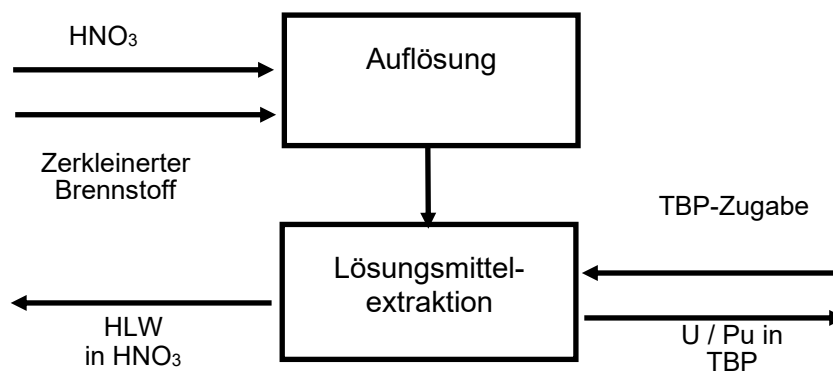


Abb. 4.2 Vereinfachte Darstellung des Massenfluss des PUREX-Prozesses

Der aktuell in der Technik angewendete Verfahrensfokus liegt auf dem hydrochemischen Verfahren. Dies besitzt eine hohe Einsatzbewehrung und ist momentan das einzig großtechnische realisierte Verfahren. Zu diesem Thema konnten keine aktuellen Innovationen ermittelt werden.

Der **photochemische Prozess** basiert auf der Erzeugung vorübergehend angeregter Zustände eines Moleküls durch selektive Absorption von Photonen. Im Zustand der Anregung steigt die Bereitschaft des Moleküls für chemische Verbindungen und durchläuft für die notwendige Trennung die vorgesehene chemische Reaktion. Die Methode des Ionenaustauschs oder der photochemischen Trennung wurde für die Wiederaufbereitung abgebrannter Brennelemente mangels Erfolgsaussichten, bisher nicht kommerziell genutzt.

Das **pyrochemische Verfahren** existiert bislang im Labormaßstab. Der Vorteil dieses Verfahrens ist, dass vor einer Verarbeitung eine kürzere Abklingzeit notwendig ist und weniger Sekundärabfälle anfallen würden. Pyroprozesse basieren auf einer Hochtemperaturverarbeitung (über mehrere hundert Grad Celsius), um die notwendige Trennung durchzuführen und nutzen die Unterschiede in der relativen thermodynamischen Stabilität von Verbindungen zur Trennung in Oxidations-Reduktions-Reaktionen. Oft dazu genutzte Ansätze sind die elektrochemischen Methoden mit geschmolzenen Salzen (z. B. LiCl-KCl oder LiF-CaF₂) zum Auflösen der Brennstoffmaterialien sowie als Elektrolyt zur elektrochemischen Trennung.

Als Elektroden für die Trennung werden auch Metalle einschließlich flüssiger Metalle (z. B. Cadmium, Wismut, Magnesium) verwendet. Dieser Prozess wird oft als „Pyroprozessierung“ bezeichnet, und ist die am weitesten favorisierte pyrochemische Methode. Integral kann die Qualität der eingesetzten Verfahren durch deren, auf einzelne Stoffe bezogene Trennschärfe, sowie deren Trenntiefe, im Sinne einer möglichst vollständigen Extraktion des fokussierten Stoffes bewertet werden. Jedoch besitzen Pyrochemische Verfahren bisher keine industrielle Einsatzreife für die Brennelementaufbereitung /WIS 23/. Dafür lassen sich mutmaßlich folgende Hauptgründe angeben /YAN 24/:

- eine zu komplexen Prozesslandschaft,
- die Überwachung von Mehrelementumgebunden,
- die Überwachung der dort herrschenden Strömungsumgebungen,
- die operativen Sensorstabilitäten zur Prozesssteuerung.

Gemäß einem koreanischen Vorschlag soll der elektrometallurgische Pyroprozesse einsetzen werden, um den Brennstoffkreislauf mit oxidischen Brennstoffen zu schließen. Dabei wird der pulverisierte verbrauchte Brennstoff zunächst erhitzt, um flüchtige Spaltprodukte auszutreiben. In einem Bad aus geschmolzenem Lithium und Kaliumchlorid wird Uran elektrolytisch zurückgewonnen. Die verbleibenden Transurane (Pu, Np, Am, Cm) werden konzentriert und mit den verbleibenden Spaltprodukten (insbesondere Cer, Neodym und Lanthan) entfernt, um dann ohne weitere Behandlung zu schnellem Reaktorbrandstoff verarbeitet zu werden. Dieser wäre intrinsisch proliferationsresistent, weil er radiologisch heiß ist und das Curium einen hohen Anteil an spontanen Neutronen liefert. Es würden etwa 95 % des bestrahlten Brennstoffs recycelt. In einer Anlage im Labormaßstab wurden dazu entsprechende Tests durchgeführt. Der so konditionierte

Brennstoff wäre in einem natriumgekühlten schnellen Reaktor vom Pooltyp einsetzbar /WNA 20/. Eine Kommerzialisierung des Prozesses wurde bisher nicht weiterverfolgt.

Pyrophysikalische Prozesse nutzen die Unterschiede in den physikalischen Eigenschaften von Verbindungen wie Dampfdruck, Schmelzpunkt oder Löslichkeit zur Trennung. Beispielsweise nutzt die fraktionierte Destillation die Unterschiede im Dampfdruck zwischen den Verbindungen zur Trennung. Bei der flüssig-flüssig-Verteilung werden Löslichkeitsunterschiede zur Verteilung von Verbindungen in der flüssigen Schmelze genutzt. Die flüssig-feststoff-Extraktion basiert auf der Umwandlung einer Komponente in einer Mischung in einen Feststoff durch Präzipitation aus flüssiger Schmelze. Präzipitation bedeutet allgemein, dass zwei lösliche Stoffe miteinander zu einem neuen, jedoch unlöslichen Stoff reagieren, der in Konsequenz eine Ausfällung unterliegt.

Zur Vervollständigung, bzw. für ein besseres Verständnis sollen hier im Folgenden einige der etablierten Recyclingtechnologien kurz umrissen werden, siehe auch Abb. 4.3. Mit dem sogenannten **DIAMEX/SANEX**-Prozesse, können die minoren Actinoide (MA) durch Lösungsmittelextraktion selektiv aus PUREX-Raffinaten (PUREX, Plutonium-Uranium Recovery by Extraction) zurückgewonnen werden. Dabei werden im DIAMEX-Prozesses u. a. Stoffe wie N,N'-DiMethyl-N,N'-DiOctyl-Hexyl-Ethoxy-Malonamide (DMDO-HEMA) sowie Di(2-ethylhexyl)phosphorsäure (HDEHP), einem sauren Extraktionsmittel, eingesetzt. Die Diamid-Derivate besitzen eine gute Extrahierbarkeit und entsprechen dem CHON-Prinzip. CHON bedeutet dabei, dass sie nur die Elemente Kohlenstoff (C), Wasserstoff (H), Sauerstoff (O) und Stickstoff (N) enthalten. Sie sind folglich vollständig verbrennbar und erzeugen bei der Verbrennung keinen radioaktiven Feststoffabfall. Americium und Curium werden in einem folgenden SANEX-Prozess (basierend auf einem Referenzmolekül) von den Lanthaniden getrennt. Ein spezifischen Stickstoff-Terendat-Ligand zeigte die Trennung von dreiwertigen Lanthaniden (Ln) von dreiwertigen Actiniden mit einem Trennfaktor (Separation Factor) für die Elemente Am und Eu von bis zu $SF_{Am/Eu} = 140$ /INL 12/, /MAH 22/. Dies wurde in einer Umgebung mit hohen wässrigen Salpetersäurekonzentrationen erreicht.

Das **TALSPEAK**-Verfahren (siehe Abb. 4.3) basiert auf dem wasserlöslichen Komplexbildner Diethylentriaminpentaessigsäure (DTPA), um Actinoide selektiv in der wässrigen Phase zurückzuhalten, während die Lanthanoide durch HDEHP in Gegenwart von DTPA extrahiert werden. Der TALSPEAK-Prozess kann nach Anpassung auch auf ein TRUJEX-Raffinat (siehe übernächsten Abschnitt) angewendet werden, um TRU-Elemente (Transuranelemente) von den Lanthanoiden zu trennen.

Das **LUCA**-Verfahren (Lanthaniden Und Curium Americium) wird für die selektive Abtrennung von Am(III) aus Lösungen entwickelt, die entweder aus dem DIAMEX-SANEX-Verfahren oder dem GANEX-Verfahren stammen. Als Extraktionsmittel wird eine Mischung aus Bis(chlorphenyl)dithiophosphinsäure ((CIPh)₂PSSH₀) und Tris(2-ethylhexyl)phosphat (TEHP) verwendet. Allerdings wurde bei höherem Säuregehalt (>0,5 M HNO₃) ein erheblicher Abbau des (CIPh)₂PSSH durch Oxidation beobachtet /INL 12/, /ZSA 20/.

Das **TRUEX**-Lösungsmittelextraktionsverfahren ist in der Lage, mit sehr hoher Effizienz kleine Mengen transuranischer Elemente (z. B. Np, Am, Pu, Cm) aus wässrigen Nitrat- oder Chloridlösungen zu trennen. PUREX unterliegt jedoch einer starken radiolytischen Zersetzung, die in der Folge zu einer radiolytischen Nitrierung ihrer kohlenstoffzentrierten Radikale führt.

Ein weiteres Verfahren ist das **EXAm**-Verfahren (Extraction of Americium). Dabei werden mit Hilfe von wasserlöslichen Tetraethyldiglykolamid (TEDGA), Curium(III) und schwerere Lanthanoide komplexiert, d. h. es findet eine Umhüllung der Ionen mit anderen neutralen oder polaren Stoffen statt. Dies ermöglicht im Nachgang die alleinige Rückgewinnung von Am(III) /INL 12/.

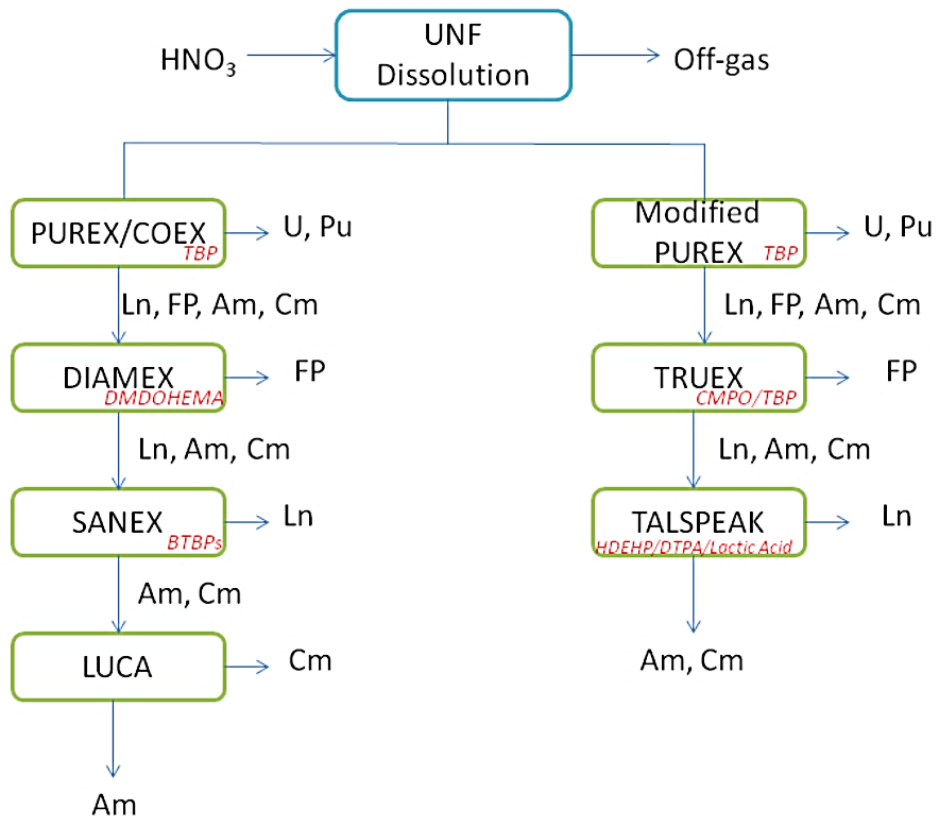


Abb. 4.3 Typische Beispiele von Prozessen, die eine Koextraktion und anschließende Abtrennung minorer Actinoide beinhalten

/INL 12/

Wie aus der Abbildung ersichtlich, handelt es sich bei den weiteren Verfahren um Folgeverfahren, die dem etablierten PUREX-Prozess nachgeschaltet sind.

Plasmare Verfahren: Im Gegensatz zu chemischen Verfahren werden bei plasmaren Stofftrennverfahren die physikalischen Eigenschaften (z.B. Masse, Ladung) des, in einen hochenergetisch ionisierten Gaszustand versetzten Stoffs genutzt. So werden z.B. bei den dort vorliegenden Temperaturen von mehreren Tausend Grad, organische Materialanteile zerstört. Die anorganischen Rückstände „verbacken“ sich bei der Abkühlung zu einer chemisch resistenteren und besser lagerbaren Schlacke. Dabei ist dieses Verfahren sehr energieintensiv. Es kann z. B. für die Verdichtung und Immobilisierung von schwach- und mittelradioaktiv kontaminierten Harzen, Filtern etc. eingesetzt werden. Zielsetzung dabei ist primär eine Volumenreduzierung in Relation zur originären Abfallmenge.

Ideen zum Einsatz von Plasmamassentrennverfahren für hochradioaktive Stoffe, wie z.B. durch Zentrifugen, die unter plasmaren Bedingungen arbeiten, bedürfen noch weiterer umfangreicher Forschung.

4.1.2.2 Transmutation

Die Transmutation ist die Veränderung eines chemischen Elementes in ein anderes, indem sich im Atomkern die Protonenzahl verändert, was mit chemischen Mitteln nicht möglich ist. Dies kann z. B. durch Beschuss mit anderen Teilchen ausgelöst werden.

Das Prinzip der Transmutation kann prinzipiell in kritischen, v. a. schnellen Reaktoren, z. B. Salzschnmelze-Reaktoren oder in unterkritische Reaktoren in einem kombinierten Einsatz mit einem Beschleunigersystem erfolgen. Bei einem Beschleunigersystem treffen beschleunigte Protonen auf ein Neutronen-multiplizierendes Spallationstarget. Durch diese „interne“ Neutronenquelle als Teilchenversorger, kann die Reaktion aufrechterhalten werden. Generell kann Transmutation überall dort praktiziert werden, wo hohe Teilchengeschwindigkeiten auftreten. Bedingt durch die Komplexität der Technik, liegt der internationale Fokus aktuell zunehmend nur noch auf eine Anwendung, bzw. Wandlung von Transuranen, d. h. Elemente mit einer höheren Ordnungszahl als Uran (92).

Transmutation mit dem Ziel der Nettoerduktion langlebiger höherer Actinoide erfolgt typischerweise in einem schnellen Neutronenspektrum, da hier im Gegensatz zum thermischen Spektrum praktisch alle relevanten Isotope spaltbar und damit transmutierbar sind, und das Erbrüten neuer, unerwünschter Transurane aus ^{238}U oder ^{240}Pu weitgehend vermieden wird.

Transurane, eine Untergruppe der Actinoide, sind chemisch untereinander und zudem zu den Lanthanoiden sehr ähnlich. Eine Trennung der Elemente ist damit sehr aufwändig. Diese ist jedoch für eine selektive und effiziente Transmutation erforderlich, da sich unter den Lanthanoiden, zu denen eine ganze Reihe von Spaltprodukten gehören, mehrere stark neutronenabsorbierende Isotope befinden, die den Transmutationsprozess parasitär beeinträchtigen können.

Jenseits der Actinoide ist zur Transmutation der langlebigen Spaltprodukte, v. a. ^{129}I , ^{99}Tc , ^{93}Zr , ^{135}Cs zu ergänzen, dass diese physikalisch fast ausschließlich durch einen thermischen Neutroneneinfang erfolgen kann, was einen erheblichen Neutronenüberschuss im Transmutationsprozess für diese Nuklide erfordern würde.

4.1.3 Beschleunigergetriebene Transmutationssysteme

Zunächst sollen dazu die zu Beginn der Technik vorgeschlagenen Basis-Konzepte für Beschleuniger getriebene Transmutationskonzepte (ADS-Konzept) kurz dargestellt werden.

4.1.3.1 Rubbia-Konzept

Das Rubbia-Konzept wurde von Carlo Rubbia, einem italienischen Physiker und Nobelpreisträger, in den 1990er Jahren vorgeschlagen. Es basiert auf der Verwendung eines Protonenbeschleunigers, um einen schnellen Neutronenstrahl zu erzeugen, der auf den spaltbaren Kernbrennstoff trifft. Dieses Konzept nutzt den schnellen Neutronenstrahl, um die radioaktiven Abfälle zu transmutieren, wodurch diese in weniger langfristige oder weniger gefährliche Abfälle umgewandelt werden sollen. Das Rubbia-Konzept sieht flüssiges Blei, bzw. ein Blei-Bismut Gemisch als Kühlmittel vor, das gleichzeitig auch als Spallationstargetmaterial fungieren kann. Es wird ein metallischer Brennstoff in Brennstäben verwendet. Der Kern wird von einer ringförmigen, mit Kühlmittel gefüllten Region umgeben. Die Wärmetauscher befinden sich oberhalb des Reaktorkerns, wodurch eine Wärmeabfuhr durch passive Konvektion gewährleistet werden soll. Dies trägt zusätzlich zur Sicherheit des Konzepts bei. Ein Ausschnitt des schematischen Aufbaus ist in Abb. 4.4 gezeigt /RUB 95/.

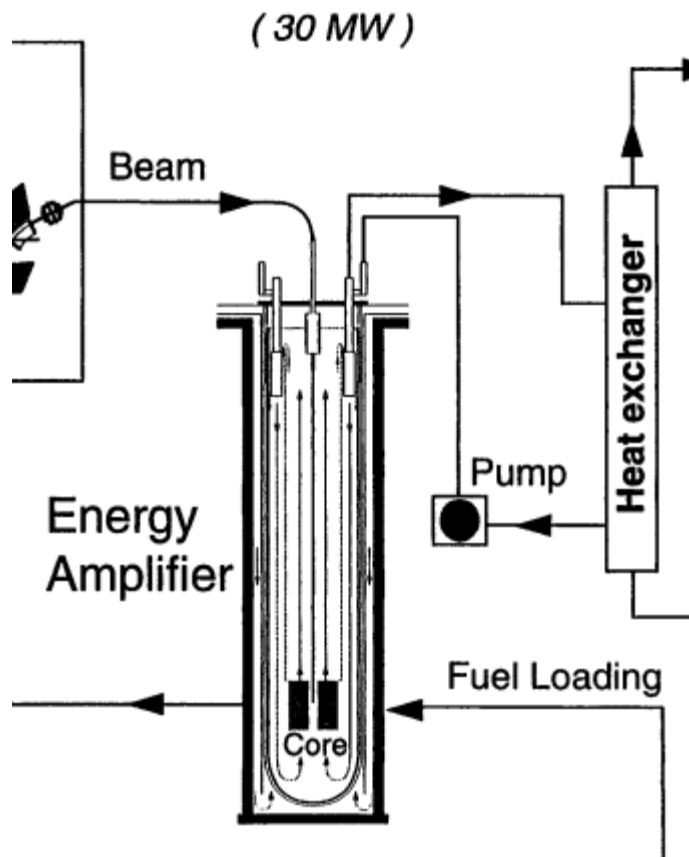


Abb. 4.4 Ausschnitt aus dem schematischen Aufbau des Rubbia-Konzepts

/RUB 95/

Zum Einsatz kommt ein metallischer Brennstoff, der sich in Hüllrohren befindet. Es wird davon ausgegangen, dass das Transuran-Inventar des Kerns, nach etwa drei Jahren vollständig ausgetauscht werden muss, weswegen eine regelmäßige Wiederaufbereitung des Brennstoffes notwendig ist. Um den Hauptanteil der Transurane abzubauen wird es dadurch auch notwendig, das Material bis zu zehnmal rezyklieren zu lassen /REN 14/. Zum Ausgleich des allmählichen Abbrands im Betrieb wird dem Brennstoff der Brutstoff Thorium zugesetzt, der sich während des Betriebs in das leicht spaltbare Uran-233 umwandelt. So kann der Multiplikationsfaktor konstant bei z. B. 0,95 gehalten werden. Mit der Erzeugung eines isoptenreinen Spaltstoffs kann jedoch ein Proliferationsrisiko entstehen.

4.1.3.2 Bowman-Konzept

Das Bowman-Konzept, benannt nach Charles D. Bowman, ähnelt in einigen Punkten dem Rubbia-Konzept. Es verwendet ebenfalls einen Protonenbeschleuniger und ein Spallationstarget. Der Hauptunterschied besteht darin, dass das Bowman-Konzept

Graphit als Moderator verwendet, sowie eine fluorhaltige Salzschnmelze als Brennstoff. Basierend darauf kann die hohe Wärmeleistung abgeführt werden, die ansonsten zum Schmelzen herkömmlicher Brennstäbe führen würde /HÄF 94/. Dadurch ist es auch möglich, über einen Nebenstrom neuen Brennstoff zuzugeben und Abbrandprodukte zu entfernen. Zielsetzung ist, in LWRs abgebrannte Brennstäbe, zu zerkleinern und die Transurane durch chemische Prozesse in Verbindungen zu überführen, welche wiederum in der Salzschnmelze in Lösung gehen. Eine weitere Partitionierung wird dadurch überflüssig und das entnommene Abbrandprodukt soll direkt endlagerfähig sein /BOW 98/.

4.1.3.3 Sicherheitsanforderungen bei ADS-getriebenen Reaktorsystemen

Allgemeine Reaktorsicherheitsanforderungen und die Einhaltung der grundlegenden Schutzziele gelten für ADS gleichermaßen. Ein wesentlicher Aspekt beim Einsatz von ADS-Systemen als Neutronenquelle für den Betrieb von ansonsten unterkritischen Reaktoren liegt darin, dass der Reaktorbetrieb durch den Einsatz der externen Neutronenquelle inhärent sicher gestaltet werden kann. Eben diese von der Neutronenquelle abhängige Unterkritikalität im Reaktor ist daher für alle möglichen Zustände und Zeitpunkte nachzuweisen. Auch sind an den speisenden Beschleuniger als Stimulus des Systems, Anforderungen an dessen Betriebszuverlässigkeit und einzuhaltende Sicherheitsaspekte zu stellen.

4.1.3.4 Sicherheitsmerkmale beschleunigergetriebener unterkritischer Systeme

Bei beschleunigergetriebenen Systemen handelt es sich um eine Kombination einer protonengetriebenen Neutronenquelle und einem unterkritischen Reaktor. Dabei ist die reaktoreigene Unterkritikalität unbedingte Voraussetzung, d. h., dass der Spaltprozess im Reaktor nicht selbsterhaltend werden kann. Auch darf z. B. beim Auftreten von Funktionsstörungen des Beschleunigers in Form einer Neutronen- Über- oder Unterproduktion bzw. sonstiger gepulster Funktionsstörungen, keine Eigenkritikalität des Reaktors erreichbar sein. Dies betrifft einerseits die Quantität der Neutronen, die Einhaltung deren energetischer Neutronen-Zustände, wie auch deren erforderliche Kontinuität in der Neutronenzuführung. Abweichungen von der Sollvorgabe in Form von sogenannten Beam-Trips, führen in der Regel zu ungewollten thermischen Belastungen des Brennstoffs sowie der involvierten Strukturmaterialien. Daher erfolgt hinsichtlich der Komponenten-Lebensdauer eine maximale Beam-Trip-Begrenzung nach Quantität und deren zulässigen

Qualität. Auch ist eine sicherheitstechnisch qualifizierte Überwachung des auftretenden Neutronen-Multiplikationsfaktors im Bereich des Spallationstargets, wie auch im Reaktor zu implementieren, dessen Reaktionszeit einen angemessenen Regeleingriff ermöglicht.

Das Protonenstrahlrohr bzw. der Protonenstrahlgang, stellt eine Durchdringung der sonst hermetischen Sicherheitsbarrieren des Reaktorsystems dar, die entsprechender sicherheitstechnischer Betrachtungen bedürfen. Die Protonenstrahlleistungen können für solche Anwendungen bis in den Megawattbereich vorstoßen. Die dabei eingesetzten Spallationstargets müssen für solche Leistungen ausgelegt sein, inklusiver entsprechender Sicherheitsmargen. Etwa 50 % der eingesetzten Strahlenergie fokussiert sich dabei auf ein begrenztes Zielareal, was einen entsprechenden Wärmeeintrag bedingt und eine entsprechend ausreichend ausgelegte Kühlung notwendig macht. Bei den aktuell benötigten hohen Strahlleistungen wird zunehmend der Einsatz von flüssigem bzw. fließendem Metall als Spallationstarget favorisiert, um u. a. das erhitzte Zielmaterial aus der Strahlinteraktionszone zur Abkühlung bewegen zu können. Alternativ gibt es Varianten, die hinsichtlich einer Targetkühlung auf rotierende Systeme setzen (/BAU 10/). Diese werden im Folgenden allerdings nicht behandelt.

Insgesamt gibt es bei den Spallationsneutronenquelle zwei Varianten, d. h. mit oder ohne Strahlfenster. Strahlfenster haben dabei die Aufgabe, das Hochvakuum des Beschleunigersystems zum Spallationstarget, (d. h. Richtung Reaktor) und somit die Systeme zu trennen. Dabei ist es unausweichlich, dass das Strahlfenster (meist bestehend aus einer Metallplatte in mm-Stärke) durch den hochenergetischen Teilchenstrahl über die Zeit Materialschäden erleidet. Auch wurden doppelwandige Strahlfenster mit einer dazwischen liegenden Gaskühlung entwickelt, um höhere Leistungen im Fensterbereich fahren zu können.

Wird auf die Strahlfenstertechnik mit ihren Herausforderungen verzichtet, ist das Spallationstarget Teil des Hochvakuumsystems des Beschleunigers. Nachteil dabei ist, dass sich lösende Dampfanteile sowie mögliche Spaltprodukte oder Verunreinigungen des Spallationsmaterials das benötigte Hochvakuum gefährden bzw. verschlechtern. Dies kann zu größeren beschleunigerseitigen Problemen (Leistungseinbußen, Temperaturentwicklungen etc.) führen.

Sowohl das Strahlfenster wie auch die Temperatur des benachbarten Targets (mit seiner hohen Protonen- und Neutronenflüssen) benötigt bei allen sicherheitstechnischen Betrachtungen besondere Aufmerksamkeit, da ein Versagen der Kühlungen bei den

gefährlichen Leistungsanforderungen bis zu einem Schmelzen des Strahlfensters / des Targetbereiches führen kann. Als Worst-Case Szenario kann es bei einem solchen Schmelzvorgang zum Austritt von Kühlmittel in das evakuierte Strahlrohr mit entsprechend großen Schädigungen, wie auch einer Freisetzung radiotoxischen Materials kommen. Zum thermischen Schutz des Fensters müssen entsprechende sensitive Strahlüberwachungsvorkehrungen von der Abschaltung des Strahls, bis hin zu einer sicherheitsgerichteten, aktiven Strahlunterbrechungen implementiert werden. Auch sind zur Vermeidung von Korrosion und Erosionseffekten im Targetbereich die entsprechenden chemisch-physikalischen Materialkonfigurationen, wie z. B. Aktivierungspotential des Targetmetalls, mögliche Materialverunreinigungen, Restsauerstoffanteile, etc. zuvor zu qualifizieren.

Der Einfluss der strahlungsbedingten Materialversprödungen, besonders im Spallationsumfeld, ist als besonderer, die Lebensdauer begrenzender Effekt in die Sicherheitsanforderungen einzubeziehen. Allgemein hängen die Strahlungseigenschaften der aktivierten Spallationsprodukte von der Protonenenergie und dem Zielmaterial ab, die wiederum die Handhabung der Spallationsprodukte bestimmen. Zum Beispiel enthalten einige Spallationsprodukte große Mengen radiotoxischer Radionuklide, die hochintensive Photonen freisetzen. Dies bringt ein erhebliches Risiko für nachgelagerte Umweltschädigungen bzw. für Entsorgungsfragen mit sich /LAI 23/. Um bei kritischen Leistungsanomalien eine entsprechend wirksame Regelperformance zu erreichen, sind neben einer Strahlschnellabschaltung bzw. einer aktiven Strahlunterbrechung beschleunigerseitig, auch Reaktor-Steuerstäbe mit einzubinden, um unzulässige Leistungstrips unterbinden zu können. Besonders bei homogener Rezyklierung bewirkt der höhere Gehalt von minoren Actinoiden in den Transmutationsbrennstoffen einen geringeren Anteil von verzögerten Neutronen. Dies muss in den Regelungscharakteristiken, im Vergleich zu konventionellen Reaktoren, besonders im transienten Betriebsbereich berücksichtigt werden.

4.1.4 Reaktorgetriebene Transmutationskonzepte

Die für die Zielsetzung einer **reaktorgetriebenen Transmutation** denkbar Reaktorarten, häufig in Form eines SMR, sind:

- Schwerwassermoderierte und -gekühlte Konzepte (Heavy Water Cooled Reactors, **HWR**).
- Salzschnmelze-gekühlte Konzepte (Molten Salt Reactor, **MSR**).

- Gasgekühlte Konzepte (Gas Cooled Reactors, **GCR**).
- Flüssigmetall-gekühlte Konzepte (Liquid Metal Cooled Reactors, **LMR**).

Die zu den Reaktorarten zugehörigen Kenndaten zeigt Tab. 4.1. Um eine entsprechendes Vergleichsnormale zu haben, wurden die Werte für einen klassischen LWR-Reaktor in der ersten Spalte mit aufgenommen.

Tab. 4.1 Typische Kenndaten von Reaktorarten, mit denen eine reaktorgetriebene Transmutation möglich ist

Als Vergleichsnormale sind dazu typische LWR-Kenndaten angegeben /PIS 23/

Reaktorart	LWR	HWR	MSR	GCR	GCR	LMR
Art des Neutronenspektrums	thermisch				schnell	
Kühlmittel	H ₂ O	H ₂ O/D ₂ O	Salzschmelze	He, N ₂	He, CO ₂	Pb, LBE, Na
Brennstoff	U	U, Th	U, Th	U, Th	U	U, Pu
Zyklusdauer	Ab 12 – 22 Monate, max. 22 – 48 Monate			18 – 24 Monate	4 – 5, max. bis zu 30 Jahre	
Geplanter Abbrand	15 – 90 MWd/kg	7 – 40 MWd/kg	-	Ca. 70 MWd/kg	70 – 110 MWd/kg	60 – 100 MWd/kg
Geplante Anreicherungen	Bis max. 20 %				Bis max. 20 %, vereinzelt bis zu 50 %	
Moderator	H ₂ O	D ₂ O	Graphit		-	
BE-Gitter	Quadratisch, hexagonal	Hexagonal	Geschmolzenes Salz, kugelförmig	Hexagonal-Block Kugelförmig	Hexagonal-Block	hexagonal
Brennstabhülle	Zirkaloy, Zr-Nb, E110	Zirkaloy	-	Stahl, Graphit, SiC	Stahl	Stähle: HAT-9, Fe-Cr-Al, D9, EP-823
Reflektor	Wasser, Stahl	D ₂ O	Graphit	Graphit, BeO	Be ₂ C	Stahl, Edelstahl
Steuerstäbe	Ag-In-Cd, B ₄ C, B ₄ O ₇ , Dy ₂ Ti ₂ O ₇	B ₄ C	B ₄ C	B ₄ C	B ₄ C, Hf	B ₄ C, Hf

Generell spielt der Brennstoff einerseits hinsichtlich der Leistungsanforderung an den Reaktor, andererseits gegenüber dem Verhalten in sicherheitstechnischen Fragen auch bei den kleinen modularen Reaktoren, eine entscheidende Rolle. Zum Beispiel werden Mischoxid-Brennstoffe mit einem Gehalt von bis zu elf Prozent Plutoniumdioxid (PuO₂)

bereits industriell hergestellt und in LWRs eingesetzt. Bei schnellen Reaktoren kann der PuO_2 -Anteil sogar bis zu 50 % betragen.

Die entscheidenden Charakteristika sind für die vier Reaktorarten HWR, MSR, GCR und LMR im Folgenden kurz umrissen.

4.1.4.1 Heavy Water Reactor (HWR)

Im HWR liegt der Brennstoff in Form von nicht oder nur schwach angereichertem Uranoxid (UO_2) vor. Der Brennstoff wird entweder in einzelnen Brennelementen oder Brennstoffbündeln eingesetzt. Die Anforderungen an den Brennstoff in HWR umfassen eine niedrige Anreicherung des Urans, um eine kritische Masse zu erreichen, und eine gute thermische Stabilität. Potenzielle Gefahren im Zusammenhang mit dem Brennstoff in HWR umfassen die Möglichkeit einer unkontrollierten Kettenreaktion, wenn die Anreicherung des Urans zu hoch ist, sowie das Risiko einer Überhitzung des Brennstoffs /SMI 07/. Transmutationsbrennstoff kann in gewissem Umfang in einzelnen, dedizierten Brennstäben oder Brennelementen anstelle des regulären Brennstoffs in den Kern eingefügt werden. Da bei vielen HWR ein kontinuierlicher Austausch des Brennstoffs im laufenden Betrieb möglich ist, erlaubt dieses Konzept eine kontinuierliche Transmutation von dafür vorgesehenem Material in einem stark thermalisierten Neutronenflussfeld.

4.1.4.2 Molten Salt Reactor (MSR)

MSR verwenden geschmolzene Salze sowohl als Kühlmittel, als auch als Brennstoff. Der Brennstoff in MSR besteht aus einer Mischung aus spaltbarem Material (z. B. Uran oder Thorium) gelöst in einem flüssigen Salz bei einem niedrigen Systemdruck. Als ein geeignetes Salz kommt z. B. Lithium-Berylliumfluorid oder Lithiumfluorid in Frage, mit einer Flüssigphase typischerweise bei 500 – 1.400 °C. Die Anforderungen an den Brennstoff in MSR umfassen eine hohe Löslichkeit des Brennstoffs im Salz, eine gute chemische Stabilität und eine hohe Spaltbarkeit des Materials. Somit ist der Betrieb in einer Vielzahl möglicher Brennstoffkonfigurationen denkbar. Die Brennstoffe Thorium, Uran und Plutonium bilden alle geeignete Fluoridsalze, die sich leicht in der LiF-BF_2 -Mischung (FLiBe) lösen. Auch können dabei Thorium und Uran in Fluoridform leicht voneinander getrennt werden. Potenzielle Gefahren im Zusammenhang mit dem Brennstoff im MSR beinhalten die chemische Reaktivität des flüssigen Salzes, die Handhabung von radioaktiven Materialien und das Risiko einer unkontrollierten Kettenreaktion, wenn die Kernleistung nicht richtig kontrolliert wird /LEB 16/. Transmutationsbrennstoffe können

in definierter Menge und Zusammensetzung der Salzschnmelze hinzugegeben werden. Es existieren MSR-Konzepte mit thermischen oder mit schnellem Neutronenspektrum.

4.1.4.3 Gas Cooled Reactor (GCR)

Bei den gasgekühlten Reaktoren (Gas Cooled Reactor GCR) wird zwischen der HTGR (High-Temperature Gas-Cooled Reactor) und der VHTR-Technologie (Very High Temperature Reactor) unterschieden. HTGR-Reaktoren verfügen über typische Austrittstemperaturen des Kühlmittels von bis zu 750 °C, während VHTR-Reaktoren typischerweise Temperaturbereiche von 750 bis 950 °C erreichen. Der HTGR bietet somit speziell für das Thema Prozesswärme zusätzliche Anwendungsmöglichkeiten. Als bekannter Vertreter ist die chinesische VHTR-Demonstrationsanlage HTR-PM zu nennen. Allgemein verwenden GCRs ein gasförmiges Kühlmittel wie Helium oder Kohlendioxid. Der Brennstoff in GCR besteht aus keramischen Kugeln oder Tabletten, die mit spaltbarem Material (z. B. Uran oder Plutonium) angereichert sind. Als Moderator dient zumeist Graphit, das Neutronenspektrum ist thermisch. Die Anforderungen an den Brennstoff in GCR umfassen eine gute Beständigkeit gegenüber hohen Temperaturen, eine geringe Freisetzung von Spaltprodukten und eine hohe Wärmeleitfähigkeit. Potenzielle Gefahren im Zusammenhang mit dem Brennstoff in GCR beinhalten die Möglichkeit der Freisetzung von radioaktiven Partikeln, die Handhabung von hochradioaktiven Materialien und das Risiko einer Kernschmelze bei unzureichender Kühlung /GIF 14/.

4.1.4.4 Liquid Metal Reactor (LMR)

LMR verwenden flüssige Metalle wie Natrium oder Blei-Bismut als Kühlmittel, das eine hohe Wärmeleitfähigkeit besitzt und somit die thermische Leistung des Brennstoffs hinsichtlich einer guten Wärmeableitung unterstützt. Als Brennstoff können im LMR unterschiedliche Arten von typischerweise Uran- und/oder Plutonium- basierten Brennstoffen eingesetzt werden. Beispielfhaft seien Uran-Plutonium-Mischnitrid-, Metallische-, sowie MOX-basierte Brennstoffe zu nennen. Die Anforderungen an den Brennstoff in LMR umfassen eine gute Wärmeleitfähigkeit, geringe Korrosionseffekte durch das Kühlmittel und eine hohe Spaltbarkeit des Materials. Potenzielle Gefahren im Zusammenhang mit dem Brennstoff in LMRs beinhalten das Risiko einer Reaktion zwischen dem Kühlmittel und dem Brennstoff, die Handhabung von toxischen und korrosiven Materialien sowie das Risiko einer unkontrollierten Kernreaktion bei unzureichender Kühlung /KIM 12/.

4.1.4.5 Zusammenschau

Im Gegensatz zum weitgehend standardisierten Druckwasserreaktor verfügt das Feld der neuen Reaktorkonzepte über eine enorm große Bandbreite der denkbar- und potentiell umsetzbaren Möglichkeiten. Umfassende und tiefergehende Konkretisierungen und Bewertungen sind somit nur bedingt möglich.

Pauschale Aussagen, welches Reaktorkonzept das Geeignetste wäre, sind dabei nicht möglich, da es vielmehr auf das Gesamtkonzept des angestrebten integralen Brennstoffkreislaufs ankommt und der Einfluss der Transmutation auf die Reduzierung der Radiotoxizität radioaktiver Abfälle von den verschiedenen Strategien zur Umsetzung der Transmutation abhängt. Eines der selektiven Bewertungskriterien für die Prozesstechnologie dabei ist aber sicher die Neutronenökonomie. Als relevante Einflussfaktoren sind dabei die entsprechende Abhängigkeit von den beteiligten Elementen aber auch von dem eingesetzten Neutronenspektrum zu nennen. Ein wichtiges Maß dabei ist die Konkurrenz zwischen den Einfangs(capture)- und Spalt(fission) -querschnitten δ_c und δ_f , sowie des Verhältnisses $\alpha = \delta_c / \delta_f$.

Die nachfolgende Tab. 4.2 zeigt exemplarisch für einige Elemente die δ und α -Werte für ein typisches Neutronen-Spektrum in einem Druckwasserreaktor (DWR) sowie für ein typisches Neutronen-Spektrum eines schnellen Reaktors /SAL 02/. Kleine α -Quotienten des mittleren Einfangs- und Spaltungswirkungsquerschnitt zeigen den Vorteil schneller Neutronenspektren. Eine gute Neutronenökonomie bildet die Basis für eine gute Transmutationsbedingungen. Letztendlich können in einem schnellen Spektrum Actinoide in praktisch jeder Kombination transmutiert werden.

Tab. 4.2 δ und α -Werte für ein typisches Neutronen-Spektrum in einem Druckwasserreaktor für einige exemplarische Elemente

Isotope	Typisches DWR-Neutronen-Spektrum			Schnelles Neutronen-Spektrum		
	δ_f	δ_c	α	δ_f	δ_c	α
²³⁷ Np	0.52	33	63	0.32	1.7	5.3
²³⁸ Np	134	13.6	0.1	3.6	0.2	0.05
²³⁸ Pu	2.4	27.7	12	1.1	0.58	0.53
²³⁹ Pu	102	58.7	0.58	1.86	0.56	0.3
²⁴⁰ Pu	0.53	210.2	396.6	0.36	0.57	1.6
²⁴¹ Pu	102.2	40.9	0.40	2.49	0.47	0.19
²⁴² Pu	0.44	28.8	65.5	0.24	0.44	1.8
²⁴¹ Am	1.1	110	100	0.27	2.0	7.4
²⁴² Am	159	301	1.9	3.2	0.6	0.19
²⁴³ Am	0.44	49	111	0.21	1.8	8.6
²⁴² Cm	1.14	4.5	3.9	0.58	1.0	1.7
²⁴³ Cm	88	14	0.16	7.2	1.0	0.14
²⁴⁴ Cm	1.0	16	16	0.42	0.6	1.4
²⁴⁵ Cm	116	17	0.15	5.1	0.9	0.18
²³⁷ Np	38.8	8.7	0.22	1.98	0.57	0.29
²³⁸ Np	0.103	0.86	8.3	0.04	0.30	7.5

Abb. 4.5 zeigt, basierend auf der Bateman-Gleichung, die Transmutation eines Ausgangsstoffes in einem Neutronenfeld mit den Zerfallskonstanten kurzlebiger Zwischenprodukte in Form einer Actinoiden-Transmutationskette. Die Zerfallskonstanten sind an den Reaktionspfeilen angegeben. Wenn die Zahlenangabe fehlt, erfolgt der Prozess in diese Richtung durch Neutronenreaktion, meist Einfang oder seltener (n, 2n).

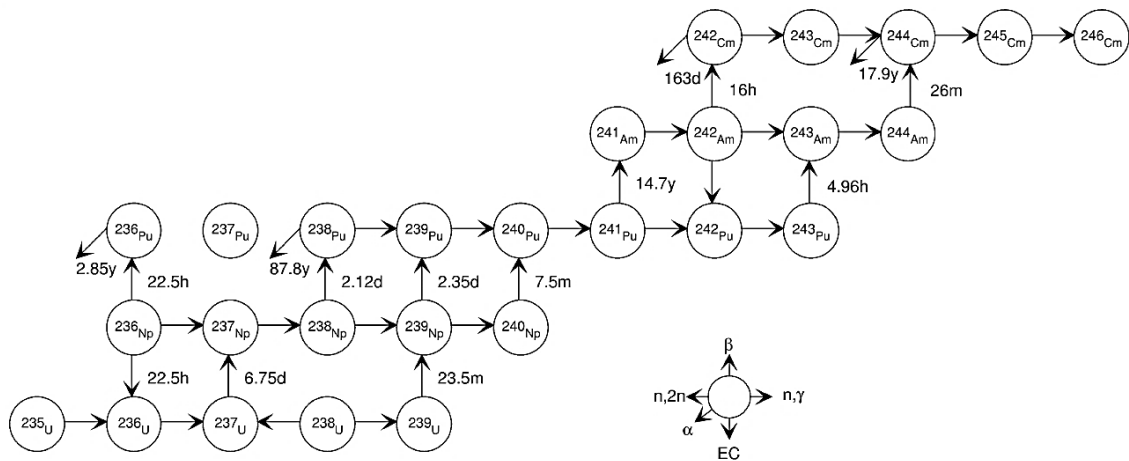


Abb. 4.5 Actinoiden-Transmutationskette, basierend auf der Bateman-Gleichung

/SAL 02/

4.1.5 Homogene- und heterogene Transmutations-Konzepte

Die Transmutation von minoren Actinoiden ist im Prinzip in jedem Reaktortyp möglich, d. h. sowohl in beschleunigergetriebenen, unterkritischen Reaktoren, wie auch in kritischen Reaktoren. Ein schnelles Neutronenspektrum begünstigt den Effekt, je nach Zielnuclid, zum Teil deutlich. Damit reduziert es das Nachbrüten weiterer, eigentlich unerwünschter höherer Actinoide aus dem Brennstoff, v. a. ausgehend von ^{238}U und ^{240}Pu . Daher sind metall- oder gasgekühlte Reaktoren in der Regel die dafür präferierten Kandidaten. In diesen schnellen Reaktoren werden im Allgemeinen zwei Transmutationsmodi in Betracht gezogen. Zum einen ist dies der **homogene Modus**, bei dem die Actinoide durch Einbringung in den gesamten Brennstoff „verdünnt“ werden. Zum anderen existiert die Möglichkeit eines **heterogenen Modus**, bei dem die Actinoide in spezielle Targets (Umschließungen) geladen werden und diese wiederum typischerweise im Bereich der Kernperipherie eingesetzt werden. Auch ist es durch die herrschenden Randbedingungen nicht möglich, alle Actinoide innerhalb eines Bestrahlungszyklus vollständig zu transmutieren. Unter Berücksichtigung eines durchschnittlichen Absorptionswirkungsquerschnitts von $2 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$ in einem schnellen Spektrum und einer Neutronendichte von $10^{15} \text{ n/cm}^2/\text{s}$ ergibt sich eine Gesamtbestrahlungszeit von 73 Jahren, um eine Reduzierung der ursprünglich geladenen Masse um 99 % zu erreichen /KOO 21/.

Eine weitere Herausforderung an die Brennstofffertigung ist die Zugabe von Americium zu einem Kernbrennstoff und die damit erhöhte Helium-Produktion im Betrieb des Transmutationsreaktors. Das ^{241}Am wandelt sich durch Neutroneneinfang zu ^{242}Cm . Dieses

wiederum wandelt sich durch Alphazerfall in ^{238}Pu mit einer Halbwertszeit von 168 Tagen. Der durch den Alphazerfall erzeugte Anstieg der Heliumproduktion fördert einerseits die Brennstoff-Quellgeschwindigkeit, d. h. die Bildung von Heliumblasen, andererseits erfolgt auch eine Erhöhung der Druckbeaufschlagung des freien Brennstabvolumens, was zu einer erhöhten Belastung des Hüllrohrs führt. Dies muss ggf. bereits bei der Herstellung des Transmutationstargets geeignet berücksichtigt werden.

4.1.6 Demonstrations- und Erprobungsanlagen für Transmutation

Für eine Betrachtung des aktuellen Stands und des Fortschritts der über den Maßstab von Labortechnik hinausgehenden Techniken sollen im Folgenden einige Demonstrations- und Erprobungsanlagen beispielhaft umrissen werden.

4.1.6.1 Natriumgekühlte Schnelle Brutreaktoren

Typische Vertreter der natriumgekühlten Schnellen Brutreaktoren stellt die russische Typenreihe BN dar. Der BN-600, sowie der BN-800 sind dabei die einzigen Reaktoren dieser Art, die sich kommerziell in Betrieb befinden. Die Reaktoren arbeiten mit schnellen, energiereichen Neutronen und verfügen über eine Natriumkühlung, die eine besonders effiziente Wärmeübertragung darstellt. Als Brutbereich dient eine U-238 Brutzone (Blanket). Dabei wird durch den Einfang schneller Neutronen das U-238 in das spaltbare Plutonium-239 umgewandelt. Die Zielsetzung der fortschreitenden Entwicklung besteht auch darin, möglichst effektiv Plutonium sowie Minore Aktinoide als Brennstoff einzusetzen, um eine Verringerung von Atommüll zu erreichen, und damit einen effizienteren integralen Brennstoffkreislauf betreiben zu können. Neben dem aktuellen BN-800 (800 MW) der mit MOX-Brennstoff arbeitet, wird an einer neuen Version BM-1200 (1.200 MW) Version gearbeitet, die ein Brutverhältnis von ca. 1,2 erreichen soll. Der BM-1200 soll auch die Sicherheitsstandards der Generation IV-Reaktoren erfüllen /VAS 21/, /NUC 24/.

4.1.6.2 MYRRHA-Projekt

Das Projekt MYRRHA (*Multi-purpose Hybrid Research Reactor for High-tech Applications*) ist ein europäischer Ansatz zur Entwicklung eines ADS-Konzepts mittels eines multifunktionalen Reaktors, der sowohl zur Erforschung neuer nuklearer Technologien wie auch zur Transmutation von radioaktivem Abfall genutzt werden kann. Er wurde als

technische Demonstrationsanlage konzipiert. Die Anlage gilt dabei als erster Reaktor, der basierend auf einem Teilchenbeschleuniger arbeitet. Im technischen Vergleich liegt MYRRHA näher am Rubbia- als am Bowman-Konzept. Zielsetzung bei diesem Konzept ist, dass aus bestrahlten Brennelementen diejenigen Isotope, die besonders hinsichtlich Weiterverarbeitung und Lagerung problematisch sind, abgesondert und in Isotope mit einem für die Weiterverarbeitung bzw. Endlagerung günstigeren Verhalten, umgewandelt werden.

Das System besteht aus einer Ionenquelle und einem Hochfrequenz-Quadrupol, sowie einer Anordnung von Magneten und supraleitenden Hochfrequenz-Hohlräumen (SRF) zur Strahlfokussierung auf das Spallationstarget. Letzteres ist Teil des Blei-Wismut gekühlten unterkritischen Reaktors. Zum Jahreswechsel 2022 / 2023 wurde das Erreichen eines wichtigen Meilensteins bekannt gegeben, die operative Fertigstellung des ersten supraleitenden HF-Resonators, d. h. eines 352-MHz-Niob-Einzelspeichenresonator /MYR 22/. Aktuell läuft die Produktion zur Herstellung von 59 gleichartigen Kavitäten, die bei einer Betriebstemperatur von 2 K eine Protonenenergie von 100 MeV generieren. Integral wird von einer Inbetriebsetzung der Anlage nicht vor Mitte der 2030er Jahre gerechnet, auch basierend auf mannigfachen Verzögerungen in Form von technischen Schwierigkeiten und einer substanziellen Erhöhung der Kosten. So liegt hier der technische Focus aktuell auf dem Aufbau der Betriebstechnik.

In der fortschreitenden Auslegung und Konzeptweiterentwicklung des MYRRHA war zwischenzeitlich neben dem prioritären unterkritischen Betrieb auch ein optionaler kritischer Betrieb angedacht.

4.1.6.3 ASTRID-Projekt

Das Projekt ASTRID (*Advanced Sodium Technological Reactor for Industrial Demonstration*) stellt ein Konzept für einen Natrium-gekühlten, Schnellen Brüter dar. Darin sollten die Vorteile eines Schnellen Brüters mit der grundsätzlichen Fähigkeit zur Transmutation von radioaktivem Abfall, also dem Netto-Verbrauch von Actinoiden (anstelle des Netto-Erbrütens von zusätzlichem Plutonium) kombiniert werden können. Es zielte darauf ab, diese Technologie in einem größeren Maßstab zu demonstrieren. 2019 wurde das Projekt jedoch hinsichtlich der explodierenden Kosten vorübergehend gestoppt, könnte aber mittelfristig wieder aufgegriffen werden /NUG 19/.

4.1.6.4 Monju-Reaktor

Bei dem japanischen Monju-Prototyp-Projekt handelte es sich um einen schnellen-Brüter-Reaktor, der mit Natrium gekühlt, mit MOX-Brennstoff betrieben und mit drei primären Kühlmittelkreisläufen ausgestattet war. Baubeginn der Anlage war 1985, die Inbetriebsetzung erfolgte 1994. Im Dezember 1995 erfolgte die Abschaltung, da wegen einer Leckage im Sekundärkreislauf flüssiges Natrium austrat und es zu einer Entzündung kam. Nach 14 Jahren Umbau kam es kurz nach dem erneuten Anfahren zu einem weiteren Unfall, diesmal im Bereich des Reaktordruckbehälters. Aufgrund der weiteren hohen Kosten von 7,8 Milliarden Euro und nach langwierigen Stillstandszeiten wurde der Betrieb im Jahr 2016 eingestellt. Im Jahr 2018 wurde der Rückbau der Anlage genehmigt /KOG 20/, /IPF 17/.

4.1.6.5 Phénix-Reaktoren

Der französische, natriumgekühlte, schnelle Phénix-Prototyp-Brutreaktor (Baubeginn 1968, Inbetriebsetzung 1973) war eine der wenigen Anlagen dieses Typs, die zur kommerziellen Stromerzeugung genutzt wurde. Nach einer Unterbrechung 1997/1998, wurde die Anlage 2010 endgültig abgeschaltet. Der Phénix-Reaktor war als Vorläufer für den Superphénix-Reaktor konzipiert. Bedingt durch häufig aufgetretene Defekte und technischer Probleme, sowie politischem Widerstand, wurde der Superphénix-Reaktor 1998 nach 10 Betriebsjahren geschlossen.

4.1.6.6 HTR-PM Projekt

In China wurde der modulare gasgekühlte Hochtemperaturreaktor *High Temperatur Reactor Pebble-Bed-Modul* (HTR-PM) mit zwei Einheiten (Baubeginn 2012) mit einer thermischen Leistung von jeweils $P_{th} = 200$ MW als Vertreter der Klasse der gasgekühlten Reaktoren (Gas Cooled Reactors - GCR) gebaut. Dieser Generation IV-Reaktor wurde in 2021 erstmals kritisch. Die kugelförmigen Brennelemente („Pebbles“) mit einem Durchmesser von 60 mm verfügen über jeweils 7 g Brennstoff mit einer Anreicherung von 8,5 Gew.% und eine äußere Schicht aus Graphit. Jedes „Pebble“ enthält etwa 12.000 vierschichtige, keramikbeschichtete Brennstoffpartikel, die in einer Matrix aus Graphitpulver dispergiert sind. Der Brennstoff hat hohe Sicherheitsmerkmale und bleibt bei Temperaturen bis zu 1.620 °C intakt. Der Brennstoff soll dabei allgemein über hohe inhärente Sicherheitseigenschaften verfügen. Als Kühlmittel wird Helium und als Moderator Graphit verwendet. Die Brennstoffkonfiguration ist auf die Produktion von

elektrischer Energie und die Bereitstellung von Wärme in Form von Prozessdampf ausgerichtet. Abb. 4.6 zeigt repräsentativ den prinzipiellen Aufbau einer Brennstoffkugel.

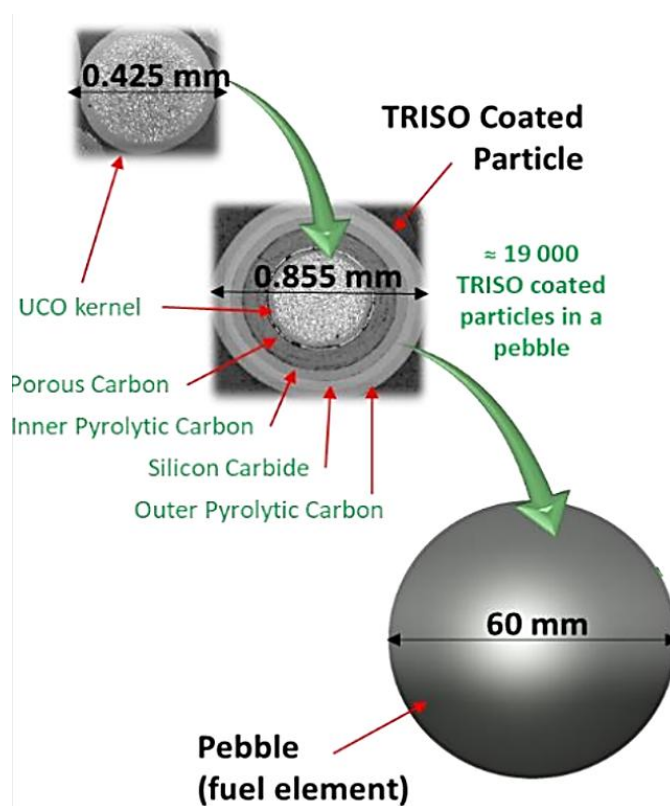


Abb. 4.6 Prinzipieller Aufbau einer Brennstoffkugel der Xe-100 Design Solution der Firma X-Energy

Aus /MUL 21/

4.1.7 Allgemeine Gefahren potenzieller Brennstoffe im Zusammenhang mit deren Aufbereitung

Grundsätzlich unterscheiden sich die Schutzziele im Zusammenhang mit dem Umgang mit Brennstoffen für Transmutations- und ADS-Anlagen nicht von denjenigen bei bekannten Brennstoffen für LWR oder Forschungsreaktoren. Aufgrund der teilweise deutlich unterschiedlichen physikalischen und chemischen Eigenschaften der beteiligten Substanzen zu beispielsweise reinem Urandioxid ergeben sich jedoch verschiedene, meist restriktivere Anforderungen zur Einhaltung dieser Schutzziele.

Im Folgenden werden einige der möglichen Gefahren im Zusammenhang mit Handhabung und Fertigung von Brennstoffen für ADS- und Transmutationssysteme näher erläutert.

1. Strahlenschutz

Transmutations- und ADS-Systeme verwenden Brennstoffe, die gegenüber niedrig angereichertem Uran eine deutlich erhöhte Aktivität und Quellstärke ionisierender Strahlung aufweisen. Neben der Prozessierung spaltstoff- und spaltproduktthaltiger Lösungen bezieht sich das insbesondere auf die Handhabung von Plutonium- und Americium-haltigen Materialien, etwa als Oxid oder Karbid. Dies erhöht das Gefährdungspotential sowohl bei Direktexposition als auch bei einer Freisetzung dieser Materialien /BRU 13/.

2. Kritikalität

Brennstoffe für ADS- und Transmutationsanlagen weisen eine deutlich unterschiedliche Zusammensetzung an Spaltmaterialien auf als LWR-Brennstoffe. Neben ^{235}U sind hier die Plutonium-Isotope besonders relevant, zudem auch höhere Actinoide wie ^{245}Cm , wenn sie in größeren Mengen und höheren Konzentrationen auftreten. Dies ist in der Kritikalitätssicherheitsanalyse bei der Handhabung und Fertigung dieser Brennstoffe explizit zu berücksichtigen.

3. Chemische Reaktivität

Bei hohen Temperaturen und unter dem Einfluss von Strahlung können bestimmte Brennstoffe chemische Reaktionen eingehen, die zu unerwünschten Folgen führen können. Um unkontrollierte chemische Reaktionen und daraus resultierende Schäden im Reaktor zu vermeiden, ist es wichtig, Brennstoffe mit stabilen chemischen Eigenschaften auszuwählen. Die Betrachtung der chemischen Stabilität und Reaktionsverträglichkeit des Brennstoffs unter relevanten Betriebsbedingungen ist von entscheidender Bedeutung für einen sicheren Betrieb /VAN 10/. Die sicherheitstechnischen Implikationen der zur Erfüllung dieser Anforderungen eingesetzten Prozesschemikalien sowie die individuellen chemischen Eigenschaften der Brennstoffe selbst sind bei der Fertigung der Brennstoffe zu berücksichtigen. Korrosions-, Explosions- und Brandschutz können hier explizit betroffen sein.

4. Chemotoxizität

Neben dem radiologischen Gefahrenpotential kann der Brennstoff ein anderes, z. T. erheblich erhöhtes chemotoxisches Gefahrenpotential aufweisen. Eine umfassende toxikologische Bewertung des Brennstoffs selbst ist ebenso erforderlich wie der Prozesschemikalien, um mögliche Gefahren zu identifizieren und geeignete Sicherheitsmaßnahmen insbesondere für das Betriebspersonal zu entwickeln /LUX 12/.

4.1.7.1 Gefährdungspotential bei der Wiederaufbereitung von Brennstoffen

Wichtig bei der Wiederaufbereitung von Brennstoffen allgemein ist eine möglichst selektive Extraktion seiner einzelnen Bestandteile. Dies dient dazu, um im Anschluss möglichst selektiv die daraus zu gewinnenden Stoffströme zur Generierung des wiederaufbereiteten Brennstoffs sowie die zu endzulagernden Anteile zu erhalten. Bei den in LWR eingesetzten Brennstoffen steht die Abtrennung der Actinoide und Spaltprodukte in besonderem Fokus. Diese Abtrennung kann auf unterschiedliche Art und Weise erfolgen. Großtechnisch etabliertest ist das hydrometallurgische Verfahren des PUREX-Prozesses (*Plutonium-Uranium Recovery by Extraction Process*). Aktuelle Forschungen werden zu den Möglichkeiten von pyrometallurgischen Verfahren vorangetrieben, sie sind aber noch weit von einer großtechnischen Umsetzbarkeit entfernt. Vorteil der pyrometallurgischen Verfahren ist die höhere radiolytische Stabilität der verwendeten chemischen Systeme. Speziell für die Aufarbeitung von Transmutationsbrennstoffen mit hohem Abbrand ist bei diesem Verfahren eine kürzere Abklingzeit vor der Wiederaufarbeitung möglich.

Die Entsorgung der abgetrennten Abfallstoffe erfolgt durch deren Verglasung. Neben den Spaltprodukten sind nach dem PUREX-Verfahren auch die höheren Actinoide in der Glasmatrix enthalten. Für bereits verglaste Abfälle ist zum Zeitpunkt der Berichterstellung keine weitere Bearbeitung vorgesehen und in Konsequenz auch nicht erforscht. Aufgrund der hohen Stabilität der eingesetzten Gläser wird eine hohe Langzeitstabilität der Abfälle unter Endlagerbedingungen gegen Auslaugung und damit gegen Transport und Freisetzung von Aktivität in die Biosphäre erwartet, so dass eine potentielle Transmutation dieser Stoffe nach derzeitigem Stand nachrangig ist und international nicht verfolgt wird.

Als besondere sicherheitstechnisch relevante Gesichtspunkte gelten die Erhaltung der energetischen Stabilität, die Einhaltung der Unterkritikalität bei durchzuführenden Partitionierungen, sowie der Strahlenschutz. Weiterhin sind die bei hydrometallurgischen Verfahren wie PUREX entstehenden und aufwändig zu entsorgenden großen Mengen an Sekundärabfällen zu betrachten. Auf diese Aspekte wird im Folgenden detaillierter eingegangen.

4.1.7.2 Erhaltung der energetischen Stabilität bei chemischer Partitionierung

Bei allen chemischen Abtrennverfahren ist für jeden Prozess die chemisch-energetische Stabilität der planmäßig ablaufenden, sowie eine generelle Überprüfung auf alle hypothetisch möglichen Reaktionen durchzuführen. Hier sind z. B. potenzielle Reaktionen zwischen der auflösenden Salpetersäure und den in hydrometallurgischen Verfahren eingesetzten organischen Phasen zu untersuchen. Dabei sind auch entsprechende Parameterstudien, wie z. B. verändertes Reaktionsverhalten bei unterschiedlichen Temperaturen, zu betrachten. Zum Beispiel kann speziell Salpetersäure mit organischen Phasen temperaturabhängig exotherme Reaktionen eingehen und so entsprechende Gefahrenpotentiale schaffen. Auch sind potenzielle Unfallszenarien, wie z. B. Reaktionen mit Löschwasser oder sonstigen zur Brandbekämpfung eingesetzten Stoffen aller Art zu betrachten.

4.1.7.3 Sicherstellung der Unterkritikalität bei Partitionierungsvorgängen

In bestrahltem Brennstoff aus LWR, der zur Transmutation herangezogen werden soll, sind trotz des Abbrands noch große Mengen an potentiell spaltbarem Material enthalten. Infolgedessen ist bei jedem Prozess- und Handhabungsschritt bei diesen Stoffen die Sicherstellung der Unterkritikalität ein wesentliches Schutzziel.

Folgende typische Werte für ausgedienten LWR-Urandioxidbrennstoff mit einer Anfangsanreicherung von 4 Gew.% ^{235}U , einem Abbrand von 50 GWd/tSM und einer fünfjährigen Abklingzeit, jeweils bezogen auf eine Tonne Schwermetalls werden genannt: etwa 11 kg Plutonium, 750 g Neptunium, 650 g Americium und 80 g Curium. Bei einer Anfangsanreicherung von 4,5 Gew.% und einem Abbrand von 65 Gigawatt-Tagen pro Tonne Schwermetall, werden 13 kg Plutonium, 900 g Neptunium, 800 g Americium und 150 g Curium erwartet /REN 13/. Die Transurane umfassen damit rund ein bis zwei Prozent des gesamten, im bestrahlten LWR-Brennstoff vorhandenen Schwermetalls, das nach wie vor weit überwiegend mit etwa 95 % aus ^{238}U besteht. Die Restmenge an nicht gespaltenem ^{235}U beträgt abbrandabhängig typischerweise ≈ 1 Gew.%.

Bei ausgedientem LWR-Mischoxid (MOX)-Brennstoff mit 6 Gew.% Plutonium im Ausgangsbrennstoff und einem Abbrand von 45 GWd/tSM, liegt der Transuran-Anteil bei etwa 40 kg Plutonium (davon $>50\%$ ^{239}Pu), 200 g Neptunium, 3,7 kg Americium und 600 g Curium. Somit ist in dieser Konfiguration ein deutlich höherer Transurangehalt

vorhanden /REN 14/. Gegenüber Urandioxid-Brennstoff ist dies hauptsächlich durch den bereits eingangs bestehenden, hohen Anteil an Plutonium im Brennstoff bedingt.

In beiden Fällen ist ein signifikanter Anteil an Spaltmaterial enthalten. Bei Lösungsprozessen liefert das thermisch spaltbare ^{239}Pu den weitaus größten Beitrag zur Reaktivität. Bei Einsatz des standardisierten PUREX-Verfahrens zur Abtrennung von Uran, Plutonium und Neptunium, liegt die nachgeschaltete Konzentration in der verbleibenden Lösung von Americium bei etwa 200 – 300 mg und von Curium bei etwa 30 – 50 mg je Liter. Zudem ist bei allen Spaltstofflösungen die hohe Mobilität und Volumen- und geometrische Formvariabilität der Flüssigkeiten mit hoher Sorgfalt zu berücksichtigen. Leitungen und Ventile haben sich hier in der Vergangenheit als Komponenten mit hohem Fehlerpotential bereits bei der Auslegung erwiesen. Neben dem Normalbetrieb ist die Möglichkeit einer unbeabsichtigten Ansammlung oder Aufkonzentrierung von spaltbaren Stoffen zu beachten.

Bei Transmutationstargets für ADS-Anlagen sind neben den bekannten Uran- und Plutonium-Isotopen v. a. $^{242\text{m}}\text{Am}$, ^{243}Cm , ^{245}Cm sowie ^{247}Cm , sowie weiterhin ^{237}Np , ^{240}Pu , ^{241}Am , ^{243}Am und weitere Curium-Isotope als schnellspaltend zu berücksichtigen. Weitere thermisch spaltbare Nuklide oder im thermischen Neutronen-absorbierende Nuklide sind ebenfalls enthalten. Die dabei wichtigsten thermisch absorbierenden Nuklide sind ^{240}Pu und ^{241}Am . Hohe Mengen relevanter Nuklide sind bei der heterogenen Transmutation (siehe Kapitel 4.1.5) in den an speziellen Reaktorpositionen eingebrachten Targets vorhanden.

Der Einsatz von pyrochemischen Verfahren entspricht aus Kritikalitätssicht einem unmoderierten System. Hier sind insbesondere die an den Elektroden abgeschiedenen Actinoiden-Legierungen zu betrachten, da sich dort besonders hohe Konzentrationen an spaltbarem Material ansammeln.

4.1.7.4 Radiologisches Gefährdungspotential bei der Wiederaufarbeitung

Bei der operativen Aufarbeitung und speziell der zunehmenden Aufkonzentration einzelner Elemente erfordert der dabei einhergehende, erhebliche Anstieg der Dosisleistung die Handhabung der Stoffe fernhantiert hinter starken Abschirmungen. Auch die für einen weiteren Einsatz aufbereiteten Stoffe wie die Actinoide, können bei der weiteren Handhabung nur mit aufwendigen Sicherheitsvorkehrungen, zum Teil in heißen Zellen, gehandhabt werden.

4.2 Herstellung und Verarbeitung von Uransilizid U_3Si_2

4.2.1 Einleitung

Speziell von US-amerikanischer Seite wird dem Spannungsfeld der Themen hochangereicherte Brennelemente (HEU, *High Enriched Uranium*-Brennstoff, Anreicherungsgrad ^{235}U bis zu 93 %) für Forschungsreaktoren und der Minimierung des Risikos möglicher Abzweigungswege des eingesetzten, waffenfähigen Brennstoffs besondere Aufmerksamkeit gewidmet /KIM 20/. Als Alternative zum HEU-Brennstoff ist nach einer breiten wissenschaftlichen Meinung, ein *Low Enriched Uranium*-Brennstoff (LEU, ^{235}U bis zu 19,75 Gew.%) möglich, z. B. auf Uransilizid-Basis. Dementsprechend wurde die Lieferbereitschaft von solchen hochangereicherten Brennelementen von amerikanischer Seite über die Jahre heruntergefahren, um entsprechende Umrüstungen zu forcieren. Ebenfalls besteht auch für einige europäische Forschungsreaktoren eine Abhängigkeit von Lieferungen von Brennelementen aus Russland, die sich zunehmend als problematisch herausstellt. Um dieser doppelten Abhängigkeit entgegenzuwirken, will die EU zunehmend Brennstoffe, u. a. auf Uransilizid-Basis, sowie damit verbundene Techniken entwickeln, um eine gewisse europäische Autarkie fokussiert auf den Bereich Forschungsreaktoren zu erreichen. Dazu wurden bereits in der Vergangenheit entsprechende europäische Forschungsvorhaben durchgeführt.

Effiziente Forschungsreaktoren sind in der modernen Forschung unabdingbar. Das US-amerikanische Projekt US PRO-X unterstützt einen Umstieg von HEU- auf LEU-Brennstoffe. Als dessen Abschluss wurde 2023 ein Leitfaden für den Aufbau einer Uransilizid-Brennstoffanlage und der Optimierung von Handhabungsprozessen im Hinblick auf Proliferationsresistenz veröffentlicht (Baseline Fuel Fabrication Facility, PRO-X-2023-001) /OFF 23/.

Um die bisherigen Brennstoff-Abhängigkeiten zu verringern und parallel die möglichen Gefahren aus einer Proliferation zu beseitigen, gibt es aktuelle europäische Anstrengungen zur Brennstoff-Qualifizierungen für Forschungsreaktoren. Da auch die US-Linie direkt auf das zu bearbeitende Thema Uransilizid-Brennstoff einwirkt, wird zum Ende dieses Kapitels auch auf die amerikanische Baseline-Brennstoffanlage aus einer Veröffentlichung im ersten Quartal 2023 mit eingegangen.

Uransilizid wurde bereits seit längerem als ein von seinen Leistungsparametern ausreichend und vor allen beherrschbarer Brennstoff im Bereich von Forschungsreaktoren

gesehen. Nach Fukushima wurde er zudem als potentieller Brennstoff-Kandidat zum Einsatz im LWR beforscht. Um zunächst den Einsatz von Uransilizid allgemeiner, d. h. auch als neuen Brennstoff in Leichtwasser Reaktoren, besser einordnen zu können, zeigt Abb. 4.7 die in /REB 23/ gesehenen Ansätze, die unter dem allgemeinen Stichwort *ATF (Accident Tolerant Fuel) - Modifikation von Brennstab sowie Brennstoff* für LWRs, zusammengefasst werden können.

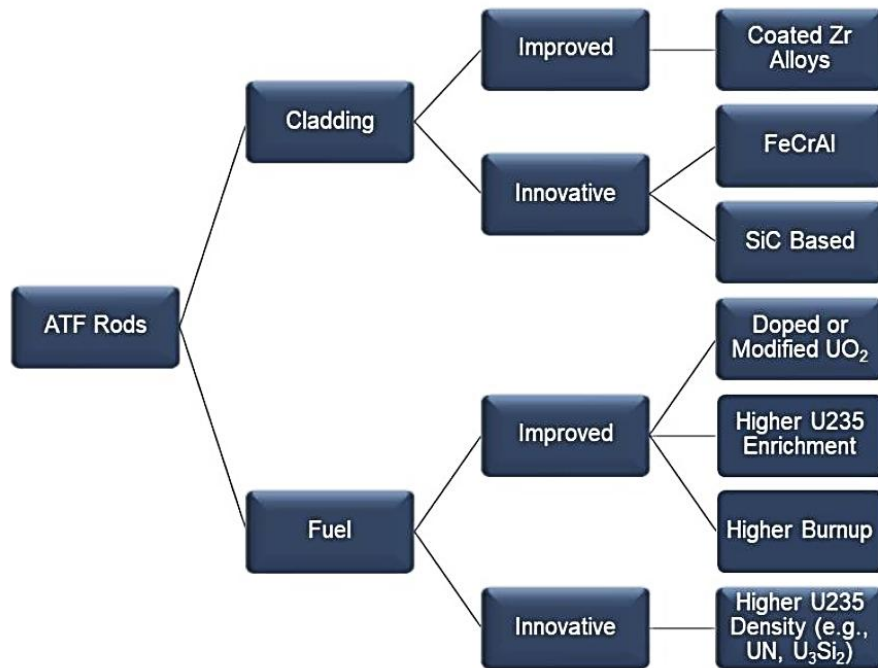


Abb. 4.7 Allgemein verfolgte Ansätze zur künftigen Entwicklung von ATF Brennstab-Brennstoff-Kombinationen

/REB 23/

Für den Bereich *Brennstäbe* werden im Wesentlichen folgende drei Hauptkonzepte verfolgt:

- Beschichtung vorhandener Zr-Legierungsplattierungen
- Verwendung von monolithischem FeCrAl
- Verwendung von Verbundwerkstoffen auf Basis der Keramik Siliziumkarbid

Die dazu aus sicherheitstechnischer Sicht sehr vielversprechende Kombination ist die Paarung aus U_3Si_2 -Brennstoff in einem SiC (Siliciumcarbid) Hüllrohr für den künftigen Einsatzzweck LWRs.

4.2.2 Uransilizid U_3Si_2 -Brennstoff in Kombination mit einem SiC-Hüllrohr für den Einsatz in Leichtwasser Reaktoren

Als mögliche ATF Kombination wurde auch U_3Si_2 Brennstoff in Verbindung mit einem SiC Hüllrohr für den Einsatz bei LWRs, speziell von der Firma Westinghouse verfolgt. Viele dazu gewonnenen Forschungsergebnisse sind somit für beide Themen, den Einsatz in LWRs, sowie den Einsatz in Forschungsreaktoren, von hoher Synergie. Aufgrund von Problemen im Bereich des hydrothermalen Korrosionsverhalten des Brennstoffes liegt der Focus bei LWRs jedoch nicht mehr auf reinen U_3Si_2 , sondern auf Uran-Silizid-Nitrid bzw. Uran-Nitrid-Brennstoffen.

4.2.2.1 Gründe für den Einsatz von U_3Si_2 Brennstoff

Im Rahmen der Suche nach Accident Tolerant Fuel für Leistungsreaktoren, wurde neben anderen Uranverbindungen auch Uransilizid, und hier speziell U_3Si_2 , als potenziell unfalltoleranter Brennstoff identifiziert. Gründe dafür waren u. a., dass durch eine höhere Wärmeleitfähigkeit als bei UO_2 , eine Verringerung der im Brennstoff gespeicherten Wärmeenergie auftritt. Speziell dieser Umstand verleiht U_3Si_2 , z. B. beim Unfallszenario Kühlmittelverlust (Loss of Coolant Accident, LOCA), eine hohe Bedeutung durch seine geringere Restwärmemenge. Ein weiterer Grund ist der höhere Urangehalt von U_3Si_2 im Vergleich zu UO_2 . Zum Beispiel könnte dadurch die Möglichkeit des Einsatzes von verbesserten unfalltoleranten Hüllrohrmaterialien in Erwägung gezogen werden, auch wenn diese eine schlechtere Neutronenkinetik als das etablierte Hüllrohrmaterial besitzen sollten, um dann immer noch eine vergleichbare Brennstoffperformance im Vergleich zu UO_2 zu erhalten. Als noch zu lösendes Problem gilt das unbefriedigende hydrothermale Korrosionsverhalten des Brennstoffes.

4.2.2.2 SiC Hüllrohrmaterial

Aufgrund seiner höheren mechanischen Festigkeit und deutlich verbesserten Oxidationsbeständigkeit bei sehr hohen Temperaturen ($>1.200\text{ °C}$) wurde die SiC-Umhüllung als eines der vielversprechenden Konzepte für U_3Si_2 Brennstoff, mit seiner gegenüber UO_2 höheren Urandichte von ca. $11,3\text{ gU/cm}^3$ eingestuft. Ein Nachteil von SiC ist, dass seine Wärmeleitfähigkeit nach einer Langzeitbestrahlung im Reaktor um ein bis zwei Größenordnungen abnimmt [SIH 20], was durch die prinzipiellen guten Ausgangsdaten des Materials aber weitgehend abgedeckt sein sollte. Das Hüllrohr mit seiner Funktion als Sicherheitsbarriere spielt eine wichtige Rolle beim Schutz des inneren

Brennstoffpellets. Aufgrund der Sprödigkeit des Keramikmaterials zeigte eine SiC-Beschichtung, die aus einer äußeren monolithischen SiC-Schicht und einer inneren SiCf/SiC-Verbundschicht (f in SiCf steht für faserverstärkt, engl. fibers reinforced) besteht, eine betrieblich zufriedenstellende mechanische Performance. Diese duktile und dichte Struktur ist entsprechend vorteilhaft, um das Austreten von Spaltgasen, sowie das Eindringen von Kühlmittel in den Brennstoffbereich zu verhindern.

Um ein möglichst umfassendes Bild zu U_3Si_2 Brennstoff und SiC Hüllrohren zu erhalten, muss die Brennstoffleistung sowie die Auswirkung auf das Hüllrohr bei normalen und erwarteten Bedingungen, aber auch bei Unfallbedingungen analysiert werden. Im Falle eines Hüllrohrbruchs erfolgt eine mehrstufige exotherme Oxidation von U_3Si_2 , die mit einer erheblichen Volumenexpansion einhergeht. Dies führt, besonders bei hohen Temperaturen, zu einer zeitnahen Pulverisierung des Pellets und einer folgenden Auswaschung des Brennstoffs. Zur Verhinderung, bzw. Beschränkung dieses Prozesses, wäre eine Reduzierung der Reaktivität von U_3Si_2 mit den typischen Kühlwasserkonfigurationen notwendig, um ihn gerade auch unter Unfallbedingungen verbessert einsetzen zu können. Als mögliche Legierungszusätzen könnten Al, Cr oder Y einen zumindest positiven Einfluss auf die Dampfoxidationsreaktion von U_3Si_2 nehmen und wurden entsprechend untersucht /WOO 20/.

Ende 2020 gab es bei der Firma Westinghouse, die anfänglich das Thema Uransilizid als Brennstoff für LWRs besonders verfolgte, einen Paradigmenwechsel von U_3Si_2 Brennstoff hin zu Uran-Silizid-Nitrid, bzw. hin zu Uran-Nitrid-Brennstoff, Aufgrund der noch besseren Kenndaten. Inwieweit diese Entscheidung selektiv durch ein einzelnes Thema, wie z. B. der hohen Wasserstoffproduktion unter schweren Unfallbedingungen, oder durch ein Bündel von Themen, wie die besseren Leistungsdaten und ein strategischer Marktvorteil beim künftigen Einsatz von Urannitrid-Brennstoff (UN) initiiert wurden, konnte nicht ermittelt werden.

Tab. 4.3 zeigt dazu eine vergleichende Darstellung der Basisdaten von UO_2 , U_3Si_2 und UN, die den Vorteil von Urannitrid herausstellt /IAEA 16/.

Tab. 4.3 Vergleichende Darstellung der Basisdaten von UO₂, U₃Si₂ und UN

/IAEA 16/

Material	Theoretische Gesamtdichte (TD) [g/cm ³]	Differenz der Schwermetall TD zu UO ₂	Wärmeleitfähigkeit bei 1.100 °C [W/m ⁻¹ K ⁻¹]	Schmelzpunkt [°C]	Wärmeausdehnungskoeffizient [10 ⁻⁶ K ⁻¹]
UO ₂	10,96	-	2,8	2.840	10
U ₃ Si ₂	12,2	+18 %	17,3	1.665	15
UN	14,3	+40 %	22,8	2.762	8

Als Konsequenz der veränderten Ausrichtung von Westinghouse, d. h. weg von U₃Si₂, verliert der bisherige Synergiefaktor im Bereich der LWR-U₃Si₂ Erforschung künftig an Ergiebigkeit.

4.2.3 Uransilizide als Brennstoff für Forschungsreaktoren

Wie zuvor erwähnt, wird Uransilizid schon seit langer Zeit im Bereich der Forschungsreaktoren eingesetzt aufgrund seiner hohen Beladbarkeit mit Uran.

4.2.3.1 Allgemeine Herstellung und Temperatur-Eigenschaften von Uransiliziden als Funktion des Molenbruchs

Die Ausgangsmaterialien für die Herstellung von Uransiliziden sind je nach Herstellungsverfahren Uranhexafluorid (UF₆) bzw. Urandioxid (UO₂) sowie Silizium. Diese Stoffe stellen auch bei den für Forschungsreaktoren benötigten Mengenbedarf, keine außergewöhnlichen Anforderungen dar. Auch fordern sie von den etablierten und bekannten vorgelagerten Prozessen (z. B. im Bereich dem Anreicherungsprozess) keine wesentlichen Veränderungen. Uransilizid-Dispensionsbrennstoff⁴ wird durch Schmelzen stöchiometrische Mengen von Uran und Silizium (d. h. mit einem korrekten Verhältnis von Edukten und Produkt) hergestellt. Im Anschluss daran erfolgt eine mechanische Zerkleinerung zu einer pulverförmigen Konsistenz. Anschließend erfolgt eine Mischung des Brennstoffpulvers mit Aluminiumpulver und einer Formung unter Druck zu einem plattenförmigen Pressling, siehe 4.2.5.1.

⁴ Dispersion: ein heterogenes Gemenge von Stoffen, die sich nicht oder kaum ineinander lösen oder chemisch miteinander verbinden.

Die angesprochene stöchiometrische Menge bzw. das Mengenverhältnis von Uran und Silizium kommt hinsichtlich des notwendigen Phasengleichgewichtes und damit des thermochemischen Verhaltens eine entscheidende Rolle zu. Der dabei leitende Grundgedanke ist, dass der temperaturstabile Brennstoff durch die Uran-Spaltung möglichst viele der Spaltprodukte über die vorhandene Brennstoffstruktur bindet. Diese Eigenschaft besitzt besonders das Uransilizid U_3Si_2 .

Die Darstellung der Temperatureigenschaften als wichtige Größe eines Kernbrennstoffes und der sich je nach Mischungsverhältnis (U zu Si) einstellenden Silizide erfolgt über ein U-Si-Phasendiagramm. Dies erfolgt mittels Darstellung des Molenbruchs von Silizium als Abszisse und der Temperatur als Ordinate. Des Molenbruch ist die physikalisch-chemische Größe zur quantitativen Beschreibung der Zusammensetzung des Stoffgemischs, bzw. der Mischphasen. Abb. 4.8 zeigt das Temperaturverhalten der einzelnen Uransilizide in Abhängigkeit des Molenbruchs /RAF 15/.

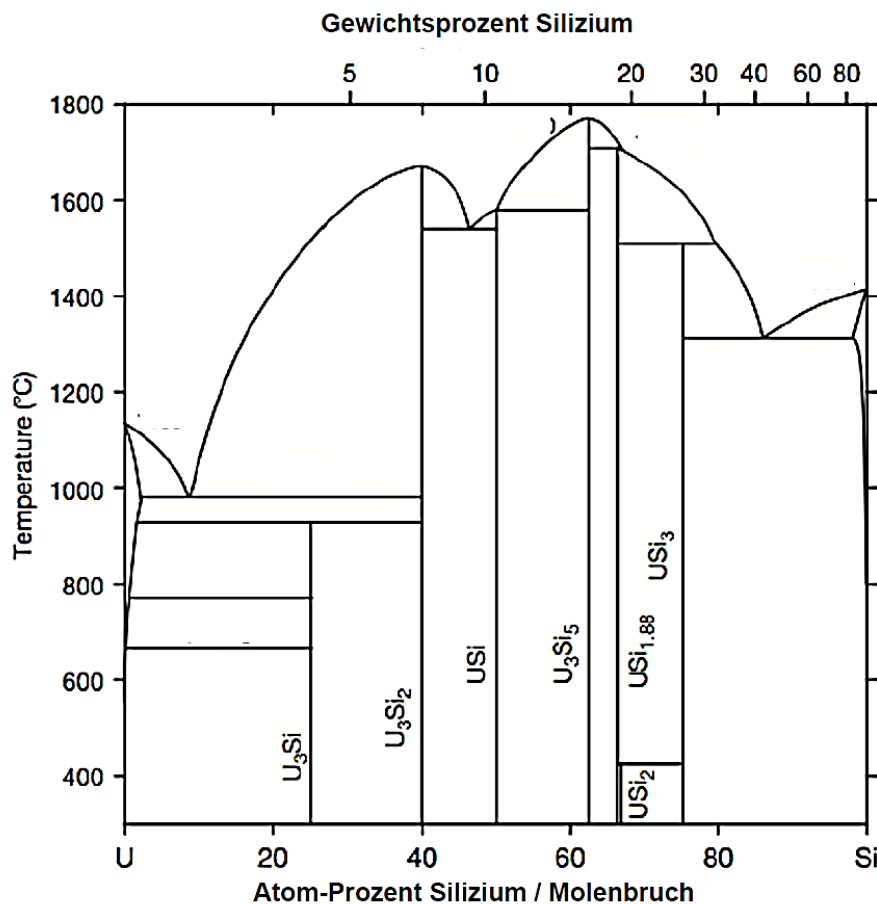


Abb. 4.8 Schmelztemperatur von Uransiliziden als Funktion des Molenbruchs

/RAF 15/

Insgesamt beschreiben die sieben identifizierten intermetallische Verbindungen, d. h. U_3Si , U_3Si_2 , USi , U_3Si_5 , $USi_{1.88}$, USi_2 und USi_3 das U-Si-Binärsystem. Der uranreiche linke Teil des Diagramms gilt allgemein als gut etabliert und als mit experimentellen Daten übereinstimmend; Wie z. B. U_3Si_2 bei Temperaturen über 1.000 °C mit seinem schmalen Homogenitätsbereich ($x = 0,03$ in $U_3Si_{2\pm x}$). In ähnlicher Weise gilt dies auch für USi , U_3Si_5 und $USi_{1.88}$, bei denen ebenfalls enge Homogenitätsbereiche zu beobachten sind. An dieser Stelle ist jedoch anzumerken, dass U_3Si_2 dazu neigt, bei niedrigem Abbrand und niedrigen Temperaturen, in einen amorphen Zustand (d. h. ohne periodische Anordnung der Atome in einem Gitter) überzugehen /MEI 21/. Dieses Verhalten ist jedoch für eine genaue Modellierung der dann induzierten Spaltgasblasenschwellungen von Relevanz, da sich die Entwicklung von Spaltgasblasen in amorpher Phase aufgrund ihrer unterschiedlichen Struktur sehr unterschiedlich von der Entwicklung in kristalliner Phase unterscheidet. Erste Messungen bei Raumtemperatur zeigen auch eine verschlechterte Wärmeleitfähigkeit im Vergleich zu kristallinem Material. Dieser Effekt spielt primär beim Einsatz von Uransilizid in Forschungsreaktoren eine Rolle. Ein wichtiger Aspekt zur Aufnahme von gasförmigen Spaltprodukten, ist eine gewisse, erwünschte Porosität des Brennstoffs, bei gleichzeitigem nur begrenztem eigenem Schwellverhalten, auch bei höheren Abbränden.

Allgemein wurde U_3Si_2 bereits frühzeitig und im Rahmen des *Reduced Enrichment in Research and Test Reactors Programms* in den USA entwickelt und qualifiziert /NRC 88/. Dabei wird davon ausgegangen, dass solches hochdichte- U_3Si_2 , d. h. HD-Dispersionsbrennstoff mit einem Brennstoffgehalt von 4,8 – 5,1 gU/cm³ mit, für Forschungsreaktoren akzeptablen Eigenschaften hergestellt werden könne. (Anmerkung: Das HD soll dabei den höheren Urananteil bei U_3Si_2 im Vergleich mit z. B. UO_2 hervorheben.) Eine weitere Steigerung des Urananteils birgt das Problem, dass die Brennstoffpartikel nicht mehr homogen im Pellet verteilt sind, sodass es zu Zusammenschlüssen von Brennstoffpartikeln kommen kann. In der Folge wird das Hüllmaterial beeinflusst und es werden vermehrt Brennstoffpartikel an der Oberfläche der Brennstoffplatte zu finden sein.

Mit dem nun aktuellen Interesse an U_3Si_2 speziell für Forschungsreaktoren, sollen auch über die damals gesetzten Randbedingungen z. B. max. Wärmestromdichte 140 W/cm³ und Brennstofftemperaturen 130 °C, wie z. B. in /NRC 88/ beschriebenen, mit EURATOM-Projekten, nun auf höhere Leistungsdaten qualifiziert werden. Um sprachlich eine kurze Unterscheidung zu haben, wird z. B. im Rahmen des LEU-FOREVER bzw. HiPROSIT-Projekts /WIG 22/ die U_3Si_2 -Brennstoffvarianten mit höherer Uran-Dichte

(z. B. 5,3 gU/cm³ oder 5,6 gU/cm³), im Folgenden High Loaded, HL - U₃Si₂ Brennstoff genannt.

Eine weitere Steigerung des Urananteils über 5,6 gU/cm³, d. h. eine Steigerung des Volumenverhältnis zwischen Brennstoff und Aluminiummatrixmaterial über einen Wert von 50 zu 50 zeigt, basierend auf Herstellererfahrungen, vermehrt Schwierigkeiten auf. Dabei tritt das Problem auf, dass die Brennstoffpartikel nicht mehr homogen in der Platte verteilt sind, sondern sich vermehrt Richtung Plattenoberfläche orientieren. Auch sind dabei vermehrt Zusammenschlüsse von Brennstoff-Partikeln zu verzeichnen, die sich infolge als hot-spots äußern /WIG 22/. Ein weiteres Argument gegen eine Erhöhung des Brennstoffanteils liegt in der Abnahme der Wärmeleitfähigkeit mit abnehmendem Aluminiumgehalt. In der Konsequenz liegt der weltweite Fokus bei der Entwicklung von Brennstoffen mit noch höheren Dichten, als dies mit hochbeladenem Silizid erreichbar ist, auf der leistungsstärkeren U-Mo Legierung.

Die Umrüstung von Forschungsreaktoren auf LEU-Brennstoff stellt ist ein wichtiges Thema dar, besonders in der europäischen EU-Forschungslandschaft. Bedingt durch die bisherigen gewonnenen positiven Erfahrungen mit U₃Si₂, bzw. der weitgehenden Erreichung der bisherigen Meilensteine, gepaart mit positiven Rückmeldungen aus aktuellen Projekten, ist von einer weiteren Fortführung der künftigen EU-Forschungsprogramme zu U₃Si₂ auszugehen. Besonderer Treiber des Themas Brennstoffmodifikation für Forschungsreaktoren, ist wie bereits in der Einleitung ausgeführt, die Umstellung von High Enriched Uranium-Brennstoff (HEU, Anreicherungsgrad ²³⁵U bis zu 93 Gew.%) auf Low Enriched Uranium-Brennstoff (LEU, ²³⁵U bis zu 19,75 Gew.%), um den Anforderungen der Nonproliferation gerecht zu werden.

Derzeit liegt ein Hauptaugenmerk der U₃Si₂-Brennstoffforschung auf der Dokumentation der Leistung von U₃Si₂-Al-Dispersionsbrennstoff bei den heute geforderten Leistungsniveaus, die weit über den damalig qualifizierten Werten liegen, um die Umrüstung von Hochleistungsforschungsreaktoren auf LEU-Brennstoff vorantreiben zu können.

4.2.3.2 Euratom Forschungs- und Ausbildungsprogramme LEU-FOREvER und EU-QUALIFY

Seit vielen Jahrzehnten werden in der EU und im Ausland Brennstoffentwicklungs- und Qualifizierungsprojekte für Forschungsreaktorbrennstoffe durchgeführt. Aktuell werden, bzw. wurden im Rahmen der Euratom Forschungs- und Ausbildungsprogramme, die

folgenden zwei Projekte zur Innovation und Qualifizierung von Brennstoffen und Materialien für LEU-Forschungsreaktoren durchgeführt, bzw. abgeschlossen /HOL 23/:

- *Low Enriched Uranium Fuels for RESEarch Reactors (LEU-FOREvER).*
- *Europäische Qualifizierungsansatz für niedrig angereicherte Brennstoffsysteme zur sicheren Produktionsversorgung mit medizinischen Isotopen (EU-QUALIFY).*

Diese Projekte ergänzen und überschneiden sich und folgen einem allgemeinen Rahmen für die Brennstoffqualifizierung, der vom HERACLES-Konsortium zur Unterstützung der weltweiten Nichtverbreitungsbemühungen von waffenfähigem Kernbrennstoff geplant wurden. Das HERACLES-Konsortium besteht aus den folgenden vier Forschungseinrichtungen mit Hochleistungsforschungsreaktoren und einem Brennstoff-Hersteller:

- Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives (CEA in Frankreich)
- Institut Laue-Langevin (ILL; Frankreich)
- Technische Universität in München (TUM; Deutschland)
- SCK CEN (Belgien)
- EU-Forschungsreaktorbrennstoffhersteller Framatome (CERCA; Frankreich).

Tab. 4.4 zeigt diese europäischen High Performance Research Reactors, (HPRR), ihre Betreiber und die potenziellen Brennstoffsysteme für eine entsprechende Umrüstung.

Tab. 4.4 Europäischen High Performance Research Reactors, (HPRR), ihre Betreiber und deren potenziellen Brennstoffsysteme für eine entsprechende Umrüstung

HPR-Reaktor	Betreiber / Organisation	Aktueller Brennstoff / Umrüstung auf potenziellen Brennstoff
BR2 - Belgian Reactor 2 (material test reactor)	SCK CEN Mol, Belgium	U ₃ Si ₂ / UMo disperion
FRM-II – Forschungs-Neutronenquelle Heinz Maier-Leibnitz (neutron source, beam-tube reactor)	Technische Universität München (TUM) Garching bei München	UMo monolithic
RHF - Réacteur a Haut Flux (neutron source, beam-tube reactor)	Institut Laue-Langevin (ILL) Grenoble, France	U ₃ Si ₂ / UMo disperion
JHR – Jules Horowitz Reactor (material test reactor) Note: Under Construction	Commissariat à l'Énergie Atomique (CEA) Ca-darache, France	U ₃ Si ₂ / UMo dispersion / UMo monolithic

Prinzipiell wurde das Thema der Umrüstung in die drei Evaluierungsphasen *Forschung & Entwicklung*, *Qualifikation* und die *reaktortechnische Umsetzung* untergliedert. Abb. 4.9 zeigt dies grafisch dargestellt mit den zugehörigen Projektnamen über dem Zeitstrahl. Für das hier relevante Thema U₃Si₂ für Hochleistungsforschungsreaktoren (High Density U₃Si₂) zeigt der untere Teil der Abbildung den Schwerpunkt für U₃Si₂-Brennstoff.

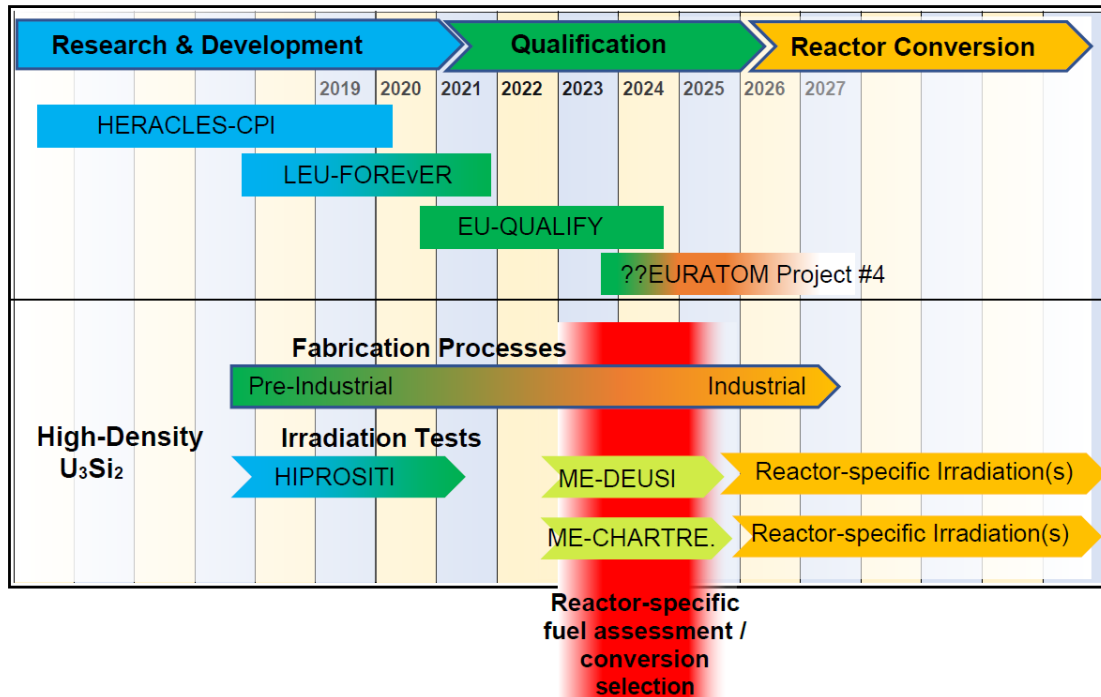


Abb. 4.9 Das HERACLES-Konsortium Programm mit den geplanten Bestrahlungszyklen und Projekten für fortgeschrittene Forschungsreaktorbrennstoffe im Bereich High-Density U_3Si_2 /HOL 23/

Abb. 4.10 zeigt die weitere Aufteilung des Themas *High performanc research reactors* in die beiden von der EU verfolgten Brennstoffvarianten U-Mo und U_3Si_2 . Dabei wird für U-Mo die beiden Varianten disperser und monolithischer Brennstoff verfolgt, für U_3Si_2 nur Dispersionsbrennstoff. Die unterste Bildreihe verdeutlicht die verfügbaren Brennelementplatten, mit Brennstoffart (blau-rot gepunktet als Dispersionsbrennstoff, rot-monochrom als monolithischer Brennstoff), sowie das Pellet Format (rechtwinklig, als rechtwinklige Pellet-Platte oder trapezförmig, d. h. mit einer sich über die Plattenlänge verändernden Dicke).

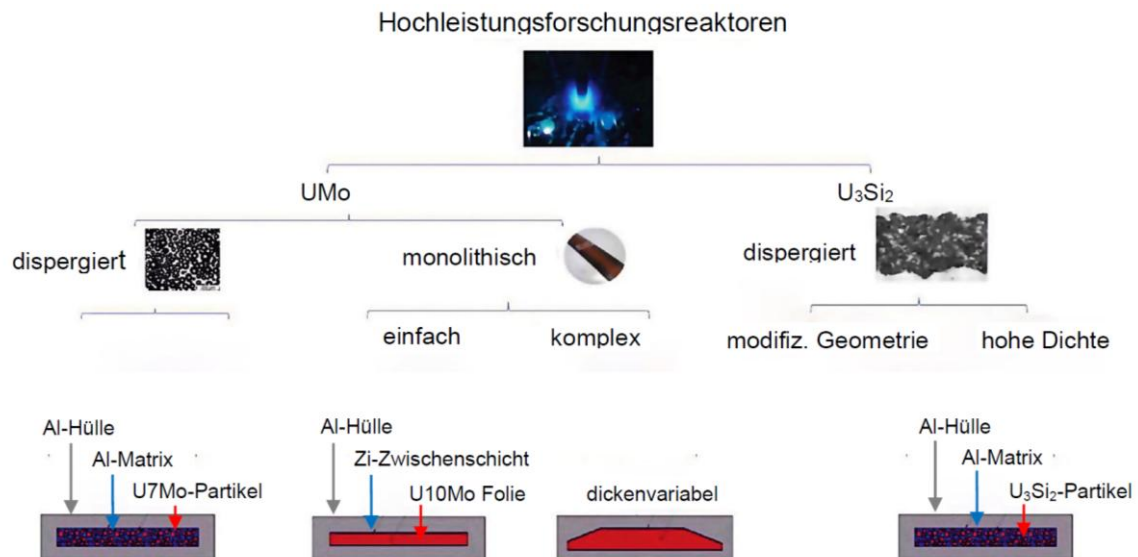


Abb. 4.10 In den LEU-FOREVER und EU-QUALIFY Projekten untersuchte Herstellungspfade für Brennstoffsysteme /WIG 23/

Als Ausgangsbasis dienten die Erfahrungen und der Fertigungsstatus für U_3Si_2 -Brennstoffsysteme mit LEU-Gehalt von $4,8 \text{ gU/cm}^3$, der weltweit zum Einsatz gebracht wird. Bei dieser Brennstoffvariante handelt es sich um einen walzengebundenen Dispersionsbrennstoffkern mit U_3Si_2 -Brennstoff, der in einer Matrix aus reinem Aluminium dispergiert ist. Der Silizid-Brennstoff mit einem Gehalt von $4,8 \text{ gU/cm}^3$ wird seit den 1980er Jahren von Framatome mit einem etablierten Herstellungsprozess und damit verbunden in einem hohen Fertigungs- und Technologiereifegrad hergestellt. Der Grund für die Wahl der obig genannten Urandichte ist besonders durch das Thema der thermomechanischen Eigenschaften von U_3Si_2 bedingt. Besonders bei der Umrüstung von bestehenden Forschungsreaktoren ist das Thema der Wärmeentwicklung bzw. der dort vorhandenen konstruktiven Randbedingungen zu beachten. Dabei kommt der Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffs eine essenzielle Rolle zu. Die Wärmeleitfähigkeit von U_3Si_2 bei $4,8 \text{ gU/cm}^3$ beträgt etwa $30 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$. Bei einer Steigerung auf $5,8 \text{ gU/cm}^3$ beträgt diese nur noch etwa $10 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$, wodurch entschieden höheren Brennstofftemperaturen bedingt wären /GUI 00/. Dieser Umstand ist bei Forschungsreaktoren, deren Fokus die Neutronenerzeugung ist, eher unerwünscht. Vor allen, wenn damit Eingriffe bzw. Modifikationen in das Kühlsystem bedingt wären. Auch ist das allgemeine Thema der bestehenden Randbedingungen bei Nach- bzw. Umrüstung sehr sensitiv. Für noch höhere Uran-Brennstoffdichten, als mit hochbeladenem Silizid erreichbar sind, die für einige der HPRR (High Performance Research Reactor) angedacht sind, wird eine neue UMo-Legierung entwickelt und durch Bestrahlung getestet. Daher werden in diesem Berichtsteil auch stellenweise Ergebnisse zu diesem Brennstoff zur Abrundung des Bildes mit dargestellt.

Zum Beispiel wurde sich beim französischen Jules Horowitz Forschungsreaktor nach Würdigung aller vorhandenen konstruktiven Randbedingungen gegen Modifikationen, die eine höhere thermische Belastung der Brennstoffplatten bedingen würden, ausgesprochen. Daher wurde die Option von U_3Si_2 mit einer Dichte von $5,8 \text{ gU/cm}^3$, bedingt durch die erwähnte geringe Wärmeleitfähigkeit, im dortigen Fall nicht weiterverfolgt.

Im Nachfolgenden werden zu dem wichtigen Thema der Wärmeleitfähigkeiten noch Diagramme zum Verlauf der Wärmeleitfähigkeiten von UO_2 in Abb. 4.11 /MAT 81/ und U_3Si_2 in Abb. 4.12 /INL 18/ dargestellt.

Abb. 4.11 zeigt die Wärmeleitfähigkeit von UO_2 in $^\circ\text{C}$ bis zu seinem Schmelzpunkt für unterschiedliche Abbrand-Werte. Hier ist die, speziell bis zum Erreichen des Scheitelpunktes bei ca. $1.700 \text{ }^\circ\text{C}$, abnehmende Wärmeleitfähigkeit zu nennen. Diese Abnahme der Wärmeleitfähigkeit führt umgekehrt zu einer Zunahme der Brennstofftemperatur bzw. der im Brennstoff gespeicherten Wärmemenge.

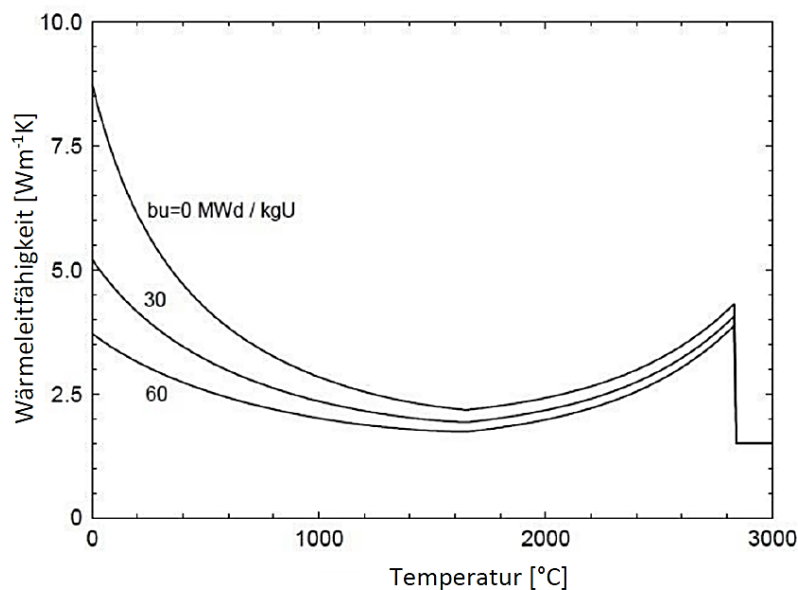


Abb. 4.11 Wärmeleitfähigkeit von UO_2 in $^\circ\text{C}$

/MAT 81/

Dem gegenüber steht das Diagramm der Wärmeleitfähigkeit von U_3Si_2 in Abb. 4.12 (Die Temperatur der x-Achse ist in Kelvin angegeben). Voreilend dazu ist anzumerken, dass hier die Stoffwerte in Reinform dargestellt sind. Beim Einsatz von U_3Si_2 im Bereich von LEU-Brennelementen für Forschungsreaktoren wird das Uranasilizid mit Aluminium dispergiert, was die Wärmeleitfähigkeit des Gesamtstoffes aufgrund der guten

Wärmeleitfähigkeit von Aluminium ($\lambda_{AL} \approx 205 \text{ Wm}^{-1} \text{ K}^{-1}$, bei $200 \text{ }^\circ\text{C}$) erhöht. Umgekehrt reduziert die, zur Aufnahme von Spaltprodukten gezielt erzeugte Porosität des U_3Si_2 Brennstoffs, wiederum den positiven Effekt der erhöhten Wärmeleitfähigkeit durch das Aluminium.

Abb. 4.12 zeigt den Temperaturverlauf der Gesamt-Wärmeleitfähigkeit von reinem Standard U_3Si_2 von 0 bis 1.800 K. Außerdem sind die durch Elektronen- und Phononen bedingten selektiven Einzel-Wärmeleitfähigkeiten angetragen. Wichtig für die Betrachtung von möglichen Unfallszenarien ist dabei der Umstand, dass die Wärmeleitfähigkeit des reinen U_3Si_2 mit der Temperatur zunimmt, also somit einem Überhitzungsprozess des Brennstoffinneren im Prinzip entgegenwirkt.

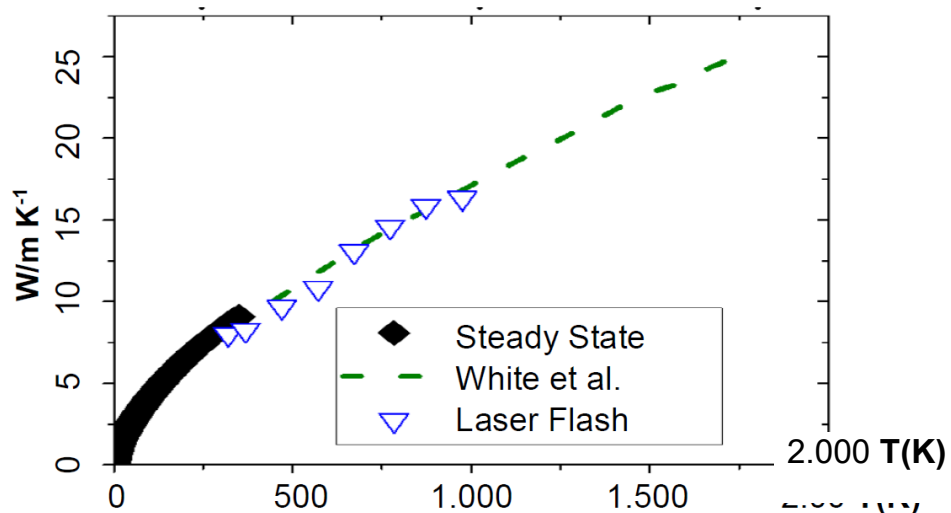


Abb. 4.12 Verlauf der Wärmeleitfähigkeit U_3Si_2 über der Temperatur in Kelvin T(K), basierend auf Steady State, Laser Flash sowie rechnerischen Daten
/INL 18/

Im Rahmen des HIPROSITI Projektes, ging es um die Frage einer Erhöhung der Uranbeladung des Brennstoffes von $4,8 \text{ gU/cm}^3$ auf $5,6 \text{ gU/cm}^3$ und um dies zu bewerten. Dies sollte vor den Hintergrund der seit den 1980er Jahren in Amerika qualifizierten Silizid-Brennstoffbeladung von $4,8 \text{ gU/cm}^3$ erfolgen. Die ersten nicht-zerstörerischen Nachbestrahlungsuntersuchungsergebnisse im aktuellen Projekt wiesen auf ein begrenztes, aber akzeptables Brennstoffschwellen hin. Mikrostrukturuntersuchungen zeigten eine signifikante Erhöhung der Fragmentierung von U_3Si_2 -Partikeln (oft einkristallin) /RRFM 22/, die mit der höheren Uran-Beladung einhergeht. In allen Testobjekten wurden mehrere kleinere Uran-tragende Phasen gefunden, wobei die häufigsten $\text{U}_{34}\text{Si}_{34.5}$

und UAl_3 (und/oder $U(Al, Si)_3$) waren. Lokale Messung der Porosität mittels Helium-Pycnometrie ergaben eine Porosität des Brennstoffes von 3 %. Drei-Punkt-Biege-Tests der Testplatten bei Raumtemperatur zeigten jedoch, dass die Zunahme der Uranbeladung zu einer Schädigung der Platte führte. Dabei handelte es sich um eine Neigung zum Bruch der Brennstoffplatte, die mit der Zunahme der Uranbeladung zunimmt. Dabei fungieren die größten U_3Si_2 -Partikel als Startpunkt für einen Riss, der parallel zur Belastungsrichtung des Tests verläuft.

Darin ist begründet, dass beim, in aluminiumdispergierten und in Aluminium gefassten U_3Si_2 Brennstoff, bezogen auf die aktuelle Fertigungskonfiguration, allgemein von einer Begrenzung auf deutlich unter 6 gU/cm^3 gesprochen wird.

4.2.3.3 Projektspezifische Innovationen

Für die beiden Projekte LEU-FOREVER und EU-QUALIFY wurden gemäß /WIG 23/ die *projektspezifischen Innovationen* wie folgt zusammengefasst.

4.2.3.3.1 LEU-FOREVER-Projekt

Beim LEU-FOREVER-Projekt konnte das Verhalten eines U_3Si_2 -Brennstoffs hoher Dichte erfolgreich demonstriert werden. Dies beinhaltete die erfolgreiche Bestrahlung von vier hochdichten und hochbeladenen ($4,8\text{--}5,6 \text{ gU/cm}^3$) Silizid-Brennstoffplatten im BR2-Reaktor. Diese erhielten anschließend eine zerstörungsfreie Nachbestrahlung (PIE), um die Qualität des Brennstoffs bei hoher Leistung (Spitzenwärmestrom: 450 W/cm^2) und hohem ^{235}U -Abbrand (Spitzen- ^{235}U -Abbrand: 80 %) zu bestätigen. Dieser erfolgreiche Test von Brennstoffplatten unter repräsentativen Hochleistungsbedingungen hat einen Weg für die LEU-Umwandlung von Hochleistungsforschungsreaktoren gezeigt. Tab. 4.5 fasst die Innovationen zusammen, die aus den Bestrahlungstests erzielt wurden, die im Rahmen der Projekte SEMPER-FIDELIS (in BR2), EMPIRE (in ATR), HIPROSIT (in BR2) und 4EVERTEST (in LVR-15) durchgeführt oder untersucht wurden. Der Vollständigkeit halber wurde in der Tabelle Tab. 4.5 auch das in Kapitel 4.3 behandelte UMo mit aufgeführt.

Tab. 4.5 Innovationen die aus den im Rahmen des Projekts LEU-FOREvER-Projekt durchgeführten bzw. untersuchten Bestrahlungstests erzielt wurden

/WIG 23/

Brennstoffsystem & Technologie	LEU-FOREvER Experiment	Erreichte Verbesserung / Verifikation
HD U ₃ Si ₂ Fabrikation	HiPROSIT	Demonstration der Herstellung von hochbeladenem und hochdichtem Silizidbrennstoff in Platten voller Größe, mit 4.8–5.6 gU/cm ³
HD U ₃ Si ₂ allgemeine Brennstoffleistung	HiPROSIT	Bestrahlung und Nachbestrahlung (PIE)-Untersuchung mit hoher Beladung und HD-Silizid-Brennstoffverhalten mit 4,8–5,6 gU/cm ³ . Entwicklung einer Brennstoffleistungsmodellierung zur Einbeziehung von HD-Silizid
UMo Dispersionsherstellung	SEMPER-FIDELIS	Demonstration Wärmebehandlungsprozesses für Brennstoffpulver. Fertigungsdemonstration des neuen Designs einer Vorrichtung zur Beschichtung von Brennstoffpartikeln. Fertigungsdemonstration der UMo-Dispersion von Platten in Originalgröße
UMo dispergierte allgemeine Brennstoffleistung	SEMPER-FIDELIS	Untersuchung von zerstäubtem, wärmebehandeltem, ZrN-beschichtetem U7Mo-Brennstoff. Mit und ohne Si-Zusatz zur reinen Al-Matrix bei hoher Leistung und hohem Abbrand durch Analyse der PIE-Ergebnisse und Modellierung
UMo monolithische Herstellung	EMPIRE	Fertigungsdemonstration des PVD-Zr-Beschichtungsverfahrens und der Umrüstung auf Folien repräsentativer Größe. Fertigungsdemonstration des C2TWP EU-Beschichtungsverfahrens auf Miniplatten
UMo monolithische allgemeine Brennstoffleistung	EMPIRE	PIE-Check des PVD-beschichteten monolithischen U10Mo-Brennstoffs im C2TWP-Prozess bei mäßiger bis hoher Leistung und mäßig hohem Abbrand
U ₃ Si ₂	4EVEREST	Demonstration eines Ersatzelements für den europäischen Reaktor mit original russischem Design

4.2.3.3.2 EU-QUALIFY-Projekt

Die Qualifikation des hochdichten und hochbeladenen U₃Si₂-Brennstoffs wurde mit der Demonstration der Herstellung von Platten in Originalgröße vorangetrieben, die zu Brennelementen in Originalgröße geformt wurden /WIG 23/. Um dieses Experiment zu ermöglichen, wurde das BR2-Brennelementdesign verwendet, bei dem der äußere Ring aus drei Brennstoffplatten durch die LEU U₃Si₂-Brennstoffplatten ersetzt wird. Zwei solcher Baugruppen wurden hergestellt. Eine mit einem Brennstoffkern aus U₃Si₂ mit

4,8 gU/cm³ mit dicker Brennstoffzone und eine mit einem 5,3 gU/cm³ Brennstoffkern. Beide wurden mit hoher Leistung (450-470 W/cm²) bis zu einem relativ hohen Abbrand (> 60 % ²³⁵U-Abbrand) einer Bestrahlung unterzogen. Diese „Mischelemente“ (LEU-Brennstoffplatten gemischt mit dem Standard-BR2-HEU-F Brennstoff) wurden ab 2023 als ME-DEUS und ME-CHARTREUSE am BR2 getestet. Nach der Bestrahlung und ersten visuellen Checks wurden die LEU-Platten zerlegt und aus dem gemischten Element entfernt. Anschließend folgte die typische zerstörungsfreie Nachbestrahlung. Zusätzlich zu den Herstellungsstudien, die diesen Experimenten vorausgingen, umfasste das EU-QUALIFY-Projekt auch innovative Bemühungen, eine Brennstoffleistungsdatenbank einzurichten und die Leistungsfähigkeit der Modellbildung weiter zu verbessern. Dies ist eine besonders wichtige Aktivität für eine generische Brennstoffqualifikation und um damit eine reaktorspezifische Brennstoffqualifikation gesichert zu ermöglichen. Tab. 4.6 fasst die erwarteten Innovationen aus den im Rahmen des Projekts durchgeführten oder untersuchten Bestrahlungstests ME-DEUS/ME-CHARTREUSE, E-FUTURE-III und FUTURE MONO-1 zusammen. Auch hier sind der Vollständigkeit halber die Ergebnisse des UMo Brennstoffes mit dargestellt.

Tab. 4.6 Herstellungstechnologien und die erwarteten Innovationsergebnisse von EU-QUALIFY-Zielbrennstoffsystemen

MRL = Fertigungsbereitschaftsgrad, TRL = Technologiebereitschaftsgrad /WIG 23/

Brennstoffsystem u. Technologie	EU-Qualify Experiment	Erwartete Innovationen
HD U ₃ Si ₂ Herstellung	ME-DEUS, ME-CHARTR EUSE	Erhöhte TRL/MRL Fertigungsdemonstration von HD-Silizid-Brennstoff. In Originalgröße geformten Brennstoffplatten, die zu einer Baugruppe verpresst sind (4,8–5,3 gU/cm ³).
HD U ₃ Si ₂ generelle Brennstoff Leistung	ME-DEUS, ME-CHARTR EUSE	Bestrahlung und PIE-Demonstration von HD-Silizidbrennstoff in geformten Brennstoffplatten in Originalgröße, die bei hoher Leistung und hohem Abbrand zu einer Baugruppe geformt werden (4,8–5,3 gU/cm ³). Entwicklung der Brennstoffleistungsmodellierung unter Einbeziehung von HD-Silizid-Baugruppen.
UMo Dispersion, Herstellung	E-FUTURE-III	Erhöhte TRL/MRL Fertigungsdemonstration des Wärmebehandlungsprozesses für fein staubige Brennstoffpulver. Fertigungsdemonstration des neuen Designs einer Brennstoffpartikeln Beschichtungsvorrichtung.
UMo dispergiert, generelle Brennstoff Leistung	E-FUTURE-III	Bestrahlung und PIE-Untersuchung mehrerer Platten aus fein staubigem, wärmebehandeltem, ZrN-beschichtetem U7Mo-Brennstoff mit und ohne Si-Zusatz zur reinen Al-Matrix, bei hoher Leistung und hohem Abbrand
UMo monolithische Fabrikation	FUTURE-MONO-1	Erhöhte TRL/MRL Fertigungsdemonstration der EU-LEU-U10Mo-Folienwalzfähigkeit. Fertigungsdemonstration des PVD-Zr-Beschichtungsverfahrens und der Ausrüstung auf Folien in Originalgröße. Fertigungsdemonstration des C2TWP-EU-Beschichtungsverfahrens auf Blechen in Originalgröße.
UMo monolithisch, generelle Brennstoff Leistung	FUTURE-MONO-1	Bestrahlung und PIE-Untersuchung des PVD-beschichteten monolithischen U10Mo-Brennstoffs beim C2TWP-Prozess bei hoher Leistung und hohem Abbrand

Tab. 4.7 zeigt den Stand der Technik und die nächsten Entwicklungsschritte der untersuchten Brennstoffsysteme.

Tab. 4.7 Stand der Technik und nächste Entwicklungsschritte der untersuchten Brennstoffsysteme

/WIG 23/

Brennstoffsystem	Uran-Gehalt	Aktueller Status (LEU-FOREVER)	Nächster Schritt im EU QUALIFY
U ₃ Si ₂ Standard-Brennstoff	4.8 gU/cm ³	In Forschungsreaktoren eingesetzt	Überprüfung in gemischten Elementen mit dicker Zone bei hoher Leistung (ME-CHARTREUSE)
U ₃ Si ₂ HD-Brennstoff	5.3–5.6 gU/cm ³	Vier Platten im Originalgröße unter relevanten Bestrahlungsbedingungen erfolgreich getestet	Verifizierung in Mixed-Elemente-Experimenten mit 5,3 gU/cm ³ (ME-DEUS)
UMo Dispersions-Brennstoff	~8 gU/cm ³	Eine vollmaßstäbliche Platte unter relevanten Bestrahlungsbedingungen erfolgreich getestet	Verifizierung mit vier Full-Scale-Platten (EF3-Experiment)
UMo monolithisch. Brennstoff	~16 gU/cm ³	Miniplatten erfolgreich bestrahlungsgeprüft	

Es ist zu erwarten, dass die Dispersionssilizid- und UMo-Brennstoffsysteme einen technologischen Reifegrad erreichen, der ausreicht, um weitere reaktorspezifische Bestrahlungskampagnen mit dem finalen Ziel von Reaktorummrüstungen zu unterstützen. Dabei werden entsprechende Wiederholung ähnlicher Tests als weniger anspruchsvoll eingestuft. Die Herausforderungen, die möglicherweise nach EU-QUALIFY für das monolithische Brennstoffsystem UMo, welches derzeit das am wenigsten in Europa entwickelte ist, bestehen bleiben, werden voraussichtlich durch bilaterale TUM/CERCA-Aktivitäten weiterbearbeitet.

4.2.4 Kenndaten des U₃Si₂ Brennstoffmaterials und des eingesetzten Aluminiums

Im Folgenden wird sich auf Daten des LVR-15 Fuel element qualification report /HUE 20/ bezogen. Dieser Qualifizierungsbericht für LEU angereicherte Uran-Silizid-Brennplatten für den LVR-15-Reaktor bietet mit ihren Angaben die notwendigen Grundlagen für eine Modellierung und Produktion der Brennelemente.

Um die Anforderungen der Proliferation zu erfüllen, darf die maximale Anreicherung des Brennstoffmaterials (U_3Si_2) $19,75 \pm 0,2$ Gew.% ^{235}U betragen. Bei den folgenden Angaben wurde sich auf Angaben von CERCA gestützt.

Der Siliziumgehalt des Uransilizids beträgt $7,5 \pm 0,15$ Gew.%. Bedingt durch die Phasenbildung wird empfohlen, dass der Siliziumgehalt nahe bei 7,5 Gew.% liegt und auf keinen Fall weniger als 7,4 Gew.% betragen darf.

4.2.4.1 Anforderungen an das zu verwendende Material

Verunreinigungen im Material müssen durch dessen Struktur ausgleichbar sein. Die Verunreinigungen in U_3Si_2 dürfen den insgesamten Maximalwert von 0,5 Gew.%, sowie selektiv für die folgenden Grenzwerte nicht überschritten werden.

- $Al \leq 600$ ppm
- $C \leq 1.000$ ppm
- $Fe+Ni \leq 1.000$ ppm
- $N \leq 1.700$ ppm
- $O \leq 7.000$ ppm

Das für die Aluminiummatrix verwendete Aluminiumpulver 1050A enthält mindestens 99,5 Gew.% Aluminium. Für Verunreinigungen gelten folgende Grenzwerte:

- $B \leq 0,001$ Gew. %
- $Cd \leq 0,003$ Gew. %
- $Fe \leq 0,4$ Gew. %
- $Si \leq 0,25$ Gew. %
- $Li \leq 0,004$ Gew. %
- $Mg \leq 0,05$ Gew. %
- $Mn \leq 0,05$ Gew. %
- Gesamtäquivalent-Borgehalt $\leq 0,003$ Gew. %

Der Brennelementrahmen und die Hülle bestehen aus der Aluminiumlegierung 5754 (AG3 NE). Der Aluminiumgehalt beträgt mindestens 97 Gew.%. Es müssen dabei in Bezug auf Verunreinigungen, die gleichen Grenzwerte wie oben gelistet, eingehalten werden. Ausnahmen gelten für die Elemente Chrom, Magnesium und Mangan und für die Summe sonstiger Verunreinigungen wie folgt:

- $Mg\ 2,5\ \% \leq Mg \leq 3,0$ Gew. %
- $Cr \leq 0,30$ Gew. %
- $Mn \leq 0,70$ Gew. %
- Summe sonstiger Verunreinigungen $\leq 0,15$ Gew. %

Die Aluminiumlegierung 5754 (AG3 NE) muss nach einer Glühbehandlung folgende mechanischen Eigenschaften erfüllen.

- Höchste Zugfestigkeit: 235 MPa
- Streckgrenze (0,2 %): 127 MPa
- Bruchdehnung: 17 %

4.2.4.2 Beschreibung der Material Eigenschaften

Im Folgenden erfolgt eine Darstellung der für eine Modellierung notwendigen Stoffdaten der beteiligten Materialien.

Materialdichten:

- U_3Si_2 $\rho_{U_3Si_2} = \frac{12.200}{(1 + \alpha_{U_3Si_2} * T)^3} kg m^{-3}$
mit Temperatur T in K, und Wärmeausdehnung α
- Aluminium 1050⁵ $\rho_{1050} = 2.700 kg m^{-3}$
- Aluminium alloy 5754 $\rho_{5754} = 2.670 kg m^{-3}$

Schmelzpunkte:

- Uransilizid U_3Si_2 : 1.665 °C
- Aluminium 1050⁵: 658 °C
- Aluminiumlegierung 5754: 650 °C

Die Anforderungen an die Partikelgrößenverteilung stehen im engen Zusammenhang mit den einzuhaltenden Eigenschaften des Brennelements. Allgemein ist jedoch eine Begrenzung dieser Partikelgröße erforderlich, um lokale Temperaturüberhöhungen oder eine ausgeprägte heterogene Verteilung des Brennstoffes zu vermeiden. Nach Qualifizierungsvorschrift sind zwei Bedingungen einzuhalten. Die integral-durchschnittliche Partikelgröße des Brennstoffmaterials muss nach der ersten Bedingung kleiner als 150 μm sein. Die zweite Bedingung lautet, dass Feinpartikel mit Größen kleiner 40 μm , nur einen Gewichtsanteil von weniger als 40 % vom gesamten Brennstoff ausmachen dürfen.

Die Wärmekapazität der einzelnen Stoffe des Brennstoffs wird für die weitere Berechnung der Brennstofftemperatur, dann unter Bestrahlung, benötigt.

⁵ Weitere Informationen zu Aluminium EN AW 1050 sind der Norm EN 573/485 zu entnehmen.

Eine vorgeschlagene Formel für die Wärmekapazität von U_3Si_2 , die jedoch aus einer Extrapolation eines Uransilizidpulvers mit 6,1 Gew.% Silizium gewonnen wurde, wurde in NUREG 1313 wie folgt angegeben:

- $C_{p_{U_3Si_2}} = (0,104 * T + 199) J kg^{-1}K^{-1}$
mit Temperatur T in Celsius

Basierend auf neueren Studien wird für die stöchiometrische U_3Si_2 -Wärmekapazität folgender Ansatz benutzt:

- $C_{p_{U_3Si_2}} = (0,02582 * T + 140,5) \frac{1}{0,77} J kg^{-1}K^{-1}$
mit Temperatur T in Celsius

für die Wärmekapazität der Aluminiummatrix (1050 A):

- $C_{p_{1050A}} = (0,46 * T + 892) J kg^{-1}K^{-1}$
mit Temperatur T in Celsius

Für die Wärmekapazität des Rahmens und der Hülle aus Aluminiumlegierung 5754

- $C_{p_{5754}} = 960 J kg^{-1}K^{-1}$

Die Wärmeleitfähigkeit von Uransilizid folgt bis 1.773 K folgender Beziehung:

- $\lambda_{U_3Si_2} = (0,0118 * T + 4,996) W m^{-1}K^{-1}$
mit Temperatur T in Celsius

Die Wärmeleitfähigkeiten von Aluminiumlegierungen sind wie folgt:

- $\lambda_{1050A} = 230 W m^{-1}K^{-1}$
- $\lambda_{5751} = 130 W m^{-1}K^{-1}$

Der thermisch Wärmeausdehnungskoeffizient von Uransilizid ist:

- $\alpha_{U_3Si_2} = 16,1 10^{-6} K^{-1}$

Die Wärmeausdehnungskoeffizienten der Aluminiumlegierungen sind:

- $\alpha_{1050A} \approx 23,5 \cdot 10^{-6} K^{-1}$
- $\alpha_{5754} \approx 24,0 \cdot 10^{-6} K^{-1}$

4.2.5 Brennstoff und Brennelement im Herstellungsprozess

Die Eigenschaften im Herstellungsprozess von Brennstoff und Hüllmaterial bilden dabei auch den Ausgangspunkt für die Entwicklung / Abschätzung der Eigenschaften während der Bestrahlung.

4.2.5.1 Herstellungsprozess einer Brennstoffplatte

Der Herstellungsprozess besteht aus einem einfachen Warmwalzprozess einer kompakten Mischung aus U_3Si_2 und Aluminiumpulver in einem Aluminiumrahmen zwischen zwei Aluminiumplatten. Bei diesem Verfahren ist jedoch, auch durch seine Einfachheit bedingt, besonders auf potentielle Probleme zu achten, wie z. B. von Streupartikeln, inhomogener Uranverteilung, dog-boning. (Anmerkung zum dog-bone Effekt: dieser Effekt bezeichnet einen physikalischen Effekt, wo sich an den Enden einer geometrischen Form, im Vergleich zur Mitte der Form ein höherer Aufbau von Material befindet bzw. sich herstellungsbedingt aufbaut. Da dies an die Form eines Hundeknochens erinnert, kommt es zur Namensgebung dog-bone. Im vorliegenden Fall tritt dieser Effekt als produktionstechnisch ungewollter Effekt auf.) Daher ist es auch ein wesentlicher Bestandteil des Herstellungsprozesses eine entsprechend detaillierte Produktions- und Inspektionsdokumentation zu erstellen, um die benötigte Qualität kontinuierlich nachweisen zu können.

Die Randbedingungen und die Eigenschaften bei der Herstellung sind auch essenzielle Ausgangspunkte für die Abschätzung der Eigenschaften während der Bestrahlung. Abb. 4.13 zeigt grafisch den gesamten Herstellungsprozess von den Ausgangsmaterialien bis zur hier besprochenen Plattenfertigung.

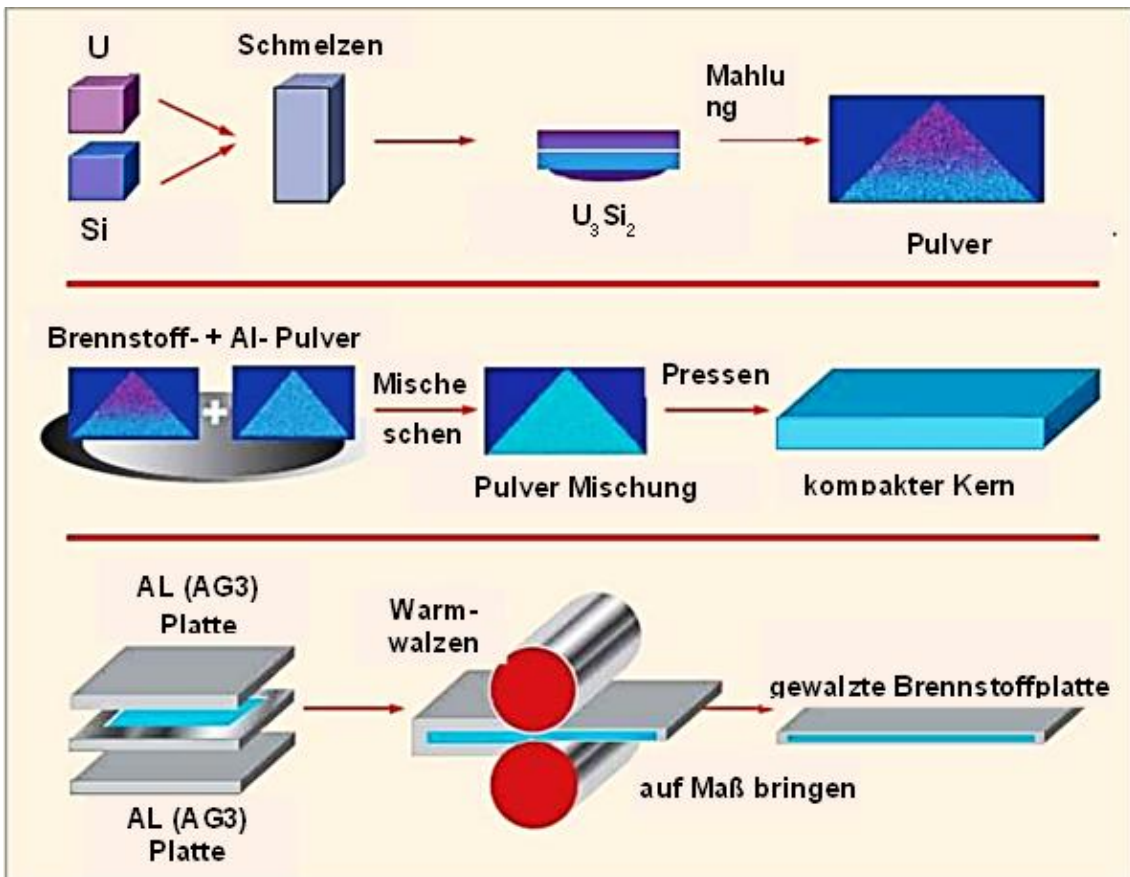


Abb. 4.13 Schematische Darstellung des gesamten Herstellungsprozesses von U_3Si_2 und der Herstellung der Brennelementplatten (unterer Bildteil) im Besonderen

/HUE 20/

Auch in /HUE 20/ wird sich als Sub-Referenz auf NUREG-1313 für die Spezifikationen des CERCA-Elements wie folgt bezogen:

- Streupartikel: es dürfen sich keine Partikel in einem Abstand von 0,5 mm von den Kanten oder den Enden des Brennelements (bzw. der Platte) befinden.
- Minstdicke der Ummantelung: 0,25 mm, bzw. 0,20 mm lokal, bei einem Hülldefekt auf der Oberfläche oder im dog-bone Bereich

Um an jedem Punkt des Brennelements eine mindestens 0,2 mm dicke Überdeckung des Brennstoffs zu haben, darf der Oberflächendefekt der Umhüllung eine maximale Tiefe von 0,127 mm aufweisen, mit der weiteren Beschränkung, dass für den dog-bone-Effekt die zulässige Unebenheit auf maximal 0,076 mm beschränkt ist.

4.2.5.2 Brennstoffvolumen und Volumenfraktionen der Komponenten

Das Nennvolumen des in der Aluminium-Umhüllung befindlichen Brennstoffs beträgt vor der Bestrahlung $17,748 \text{ cm}^3$ (aus den Nennwerten der Brennstoffdicke, -breite und -länge). Der angestrebte Volumenanteil des fabrikmäßig hergestellten Brennstoffmaterials (U_3Si_2) ist der durch NUREG 1313 qualifizierte Anteil von 42,5 % der Brennstoffpartikel im Brennstoff (Urاندichte von $4,8 \text{ gU/cm}^3$).

- $fv_{U_3Si_2} = 42,5 \%$

Im Dispersionsbrennstoff erfolgt während des Herstellungsprozesses eine Porenbildung. Der endgültige Volumenanteil der Porosität darin muss gemäß NUREG 1313 mindestens 4 % und darf maximal 10 % betragen.

- $4,0 \% \leq fv_p \leq 10,0 \%$

Der Rest besteht zu 100 % aus einer Aluminiummatrix

- $fv_{1050A} = 100 - fv_{U_3Si_2} - fv_p$

Es wird davon ausgegangen, dass während des Herstellungsprozesses keine sonstigen Wechselwirkungen zwischen dem Brennstoff U_3Si_2 und der Aluminiummatrix auftreten. Bei einem durchgeführten Experiment konnten bei einer Temperatur von $300 \text{ }^\circ\text{C}$, über mehr als 1.000 Stunden keine Wechselwirkung beobachtet werden.

Die Brennstoff-Wärmekapazität wird zur Berechnung der Wärmeleitfähigkeit sowie der Temperatur benötigt. Die Wärmeleitfähigkeit kann, so die Wärmekapazität bekannt ist, mittels Messungen der Diffusion ermittelt werden. Die Wärmekapazität des gesamten Brennstoffs ist aus der Wärmekapazität des originären Brennstoffs sowie der Aluminiummatrix zu bilden und folgt der Formel:

- $$c_{p \text{ Brennstoff}} = \frac{1}{fv_{U_3Si_2} * \rho_{U_3Si_2} + fv_{1050A} * \rho_{1050A}} * [(fv_{U_3Si_2} * \rho_{U_3Si_2}) * c_{p \text{ U}_3\text{Si}_2} + (fv_{1050A} * \rho_{1050A}) * c_{p \text{ 1050A}}]$$

Die Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffs variiert je nach dessen Beschaffenheit, bzw. genauer, nach der Porosität und dem Brennstoff / Matrix-Verhältnis und folgt dem Quotienten:

$$\bullet \frac{(e_{\text{Brennstoff}} + 2 \cdot e_{(5754)})}{\lambda_{\text{Brennelement}}} = \frac{e_{\text{Brennstoff}}}{\lambda_{\text{Brennstoff}}} + \frac{2 \cdot e_{(5754)}}{\lambda_{(5754)}}$$

mit der Dicke des Brennstoffs $e_{\text{Brennstoff}}$ und der Beschichtung e_{5754} , und der Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes $\lambda_{\text{Brennstoff}}$ und des Brennelementes $\lambda_{\text{Brennelement}}$

Der prinzipielle Verlauf der Wärmeleitfähigkeiten von U_3Si , U_3Si_2 und U_3O_8 als Aluminiumdispersionsbrennstoff, als Funktion des Volumenanteils des Brennstoffmaterials und Volumenanteil der Porosität bei 60 °C, ist in Abb. 4.14 dargestellt.

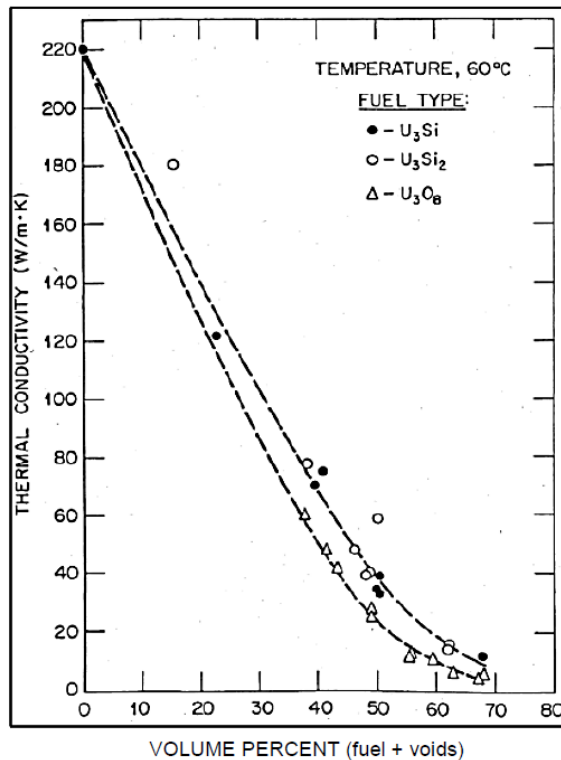


Abb. 4.14 Wärmeleitfähigkeiten der Uransilicide U_3Si , U_3Si_2 und von U_3O_8 als Funktion des Volumenanteils der Brennstoffpartikel plus Hohlräume (Porosität) bei 60 °C

/HUE 20/

4.2.6 Bestrahlungseigenschaften von Brennstoff und Brennelement

Gemäß NUREG 1313 weisen U_3Si_2 -Brennelemente in der Brennstoffkonfiguration bis zu $4,8 \text{ gU/cm}^3$ ein ausreichendes Verhalten innerhalb bzw. bis zu folgenden Bestrahlungsgrenzen auf:

- Wärmefluss bis zu 1.400 W.m^{-2}
- Brennstofftemperatur bis zu $130 \text{ }^\circ\text{C}$
- Abbrand:
 - bis zu 80 % des mittleren Abbrands
 - bis zu 98 % beim Spitzen-Abbrand

Unter diesen Bedingungen traten während der Bestrahlung im Oak Ridge Research Reactor (ORR) keine Anzeichen eines Spaltproduktaustritts, übermäßiger Schwellung der Brennstoffplatte, Verformung der Brennstoffplatte, Blasenbildung oder anderen ungewöhnlichen Zuständen auf.

Die aktuellen Ergebnisse aus dem belgischen Materialtestreaktor BR2 basieren auf drei U_3Si_2 -Brennelemente mit bis zu $4,8 \text{ gU/cm}^3$ und einer korrosionsbeständigen AlFeNi-Umhüllung bei Bestrahlungsdauer von 69 Betriebstagen. Als Randbedingungen galten eine Oberflächentemperatur der Umhüllung von bis zu $140 \text{ }^\circ\text{C}$ und einem durchschnittlichen Wärmestrom von 2.600 Wm^{-2} , mit Spitzenwerten bis zu 4.000 Wm^{-2} . Unter diesen wesentlich höheren als den ORR-Bedingungen wurden keine abnormalen Veränderungen des Brennstoffes sowie der Platten-Performance beobachtet.

Als Ursachen für eine Quellung des U_3Si_2 -Al-Dispersionbrennstoff durch die Bestrahlung sind folgende Effekte verantwortlich:

- Anschwellen durch Ansammlung von Spaltprodukten (fest und gasförmig): U_3Si_2 -Brennstoffpartikel zeigen mit zunehmendem Abbrand ein lineares Quellverhalten. Es konnte keine abbrandbedingte Grenze für eine Sättigung des Schwellvorganges ermittelt werden. Die Quellrate beträgt 6,2 % pro 1×10^{27} Spaltungen und pro m^3 .
- Restschumpfung der Herstellungsporosität: Die verbleibende Herstellungsporosität nimmt das Aufquellen des Brennstoffmaterials auf und verzögert so das Gesamtaufquellen des Brennstoffes

- mikrostrukturelle Veränderungen des Brennstoffs, einschließlich der Bildung eines Wechselwirkungsprodukts zwischen Brennstoffmaterial (U_3Si_2) und der Aluminiummatrix.

Praktisch gesehen führt ein Quellen zu einer Dickenzunahme des Materials. Faktisch ist der Quellvorgang als Funktion einer zunehmenden Füllung der vorhandenen Poren zu sehen. Abb. 4.15 zeigt das Quellverhalten von verschiedenen Uransiliziden und UAl_x -Brennstoffpartikeln als Funktion der Spaltdichte.

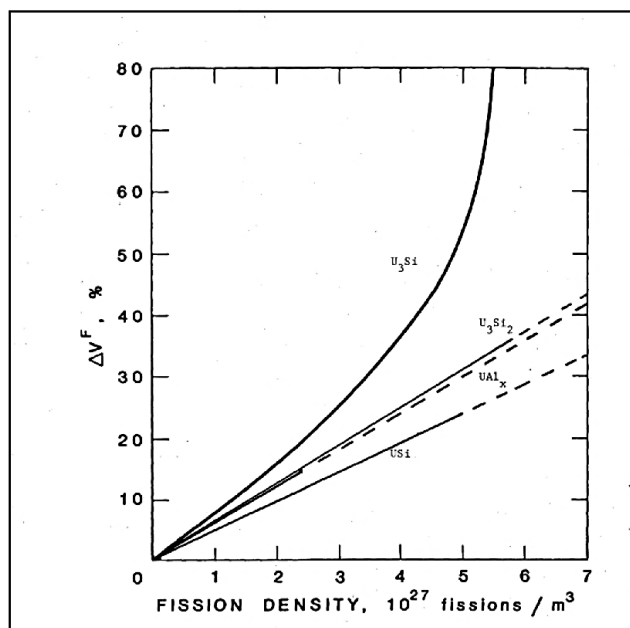


Abb. 4.15 Quellung von USi , U_3Si , U_3Si_2 und UAl_x -Brennstoffpartikeln als Funktion der Spaltungen. Gestrichelte Verläufe zeigen Bereiche, die mit LEU-Brennstoffen nicht erreichbar sind

/HUE 20/

4.2.7 Mechanische Integrität von Brennelementen in Bezug auf Blasenbildung

Blasen auf den Brennstoffplatten weisen darauf hin, dass sich die Brennstoffhülle aufgrund der Ausdehnung der im Brennstoff eingeschlossenen Spaltgase vom Brennstoff löst. Der Effekt wird durch hohe Temperaturen gefördert, wenn Spaltgase aus Brennstoffpartikeln freigesetzt werden und in die Hülle entweichen. Gemäß NUREG 1313 liegt die Blasenschwellentemperatur im Bereich zwischen 515 °C und 575 °C und zeigt keine abbrandbedingten Abhängigkeiten.

Bei neuen Modellen von U_3Si_2 Brennelementen wurde die erste Freisetzung gasförmiger Spaltprodukte bei 500 °C festgestellt, zum Zeitpunkt, als die Platte Blasen bildete. Am Ende des Tests bei 650 °C waren im Wesentlichen alle gasförmigen Spaltprodukte freigesetzt. Die größte Freisetzung des Spaltgases erfolgte etwa bei der Aluminiumschmelztemperatur, wo bekanntermaßen sowohl U_3Si_2 als auch U_3Si vollständig mit dem Aluminium reagieren und die Zerstörung der Brennstoffstruktur die Freisetzung der flüchtigen und festen Spaltstoffe unterstützt. Vor diesem Hintergrund liegen vorgeschlagene, angemessene Grenzen für die Freisetzungsanteile von Cs und I bei 25 bis 100 % /HUE 20/.

Wie oben ausgeführt, wird als Material für den Rahmen und die Abdeckung (Umhüllung) die Aluminiumlegierung 5754 (AG3 NE) verwendet. Das Verhalten dieser Legierung ist zufriedenstellend erforscht, da sie in zahlreichen französischen Reaktoren Verwendung findet. Aufgrund der umfangreichen verfügbaren Datenbank dürfte die AG3-Legierung für den Verwendungszweck des Rahmens und der Brennstoff-Umhüllung gut geeignet sein.

Während des Betriebes, bzw. der Bestrahlung tritt Oxidation an der Plattenoberfläche auf, die von den Größen Temperatur, Wasserchemie wie auch des Kühlmitteldurchsatzes abhängen kann. Als unbedenklichen Grenzen, an denen noch keine nachteilige Entwicklung zu erwarten sind, gelten:

- pH-Wert zwischen ~5 und ~6,7 (vorzugsweise ~6)
- Oberflächentemperaturen bis ~150 °C
- Wassergeschwindigkeiten bis 7,6 m/s
- kein ausgesprochenes Oxidwachstum durch Bestrahlungseffekte

Korrelationen zur Prognose des Wachstums der Oxidschicht auf den Plattenoberflächen sind in der Literatur verfügbar. Darüber sind in der Analyse *Oxidation of aluminum alloy cladding for research and test reactor fuel* /KIM 08/ eine ausführliche Übersicht über experimentelle Ergebnisse zu Oxidschichtdicken nach Bestrahlung dargestellt. Integral sind dabei keine erkennbaren Einflüsse des Legierungstyps auf die Oxiddicke abzuleiten. Als Beispiel sei die nach der Bestrahlung im OSIRIS-Reaktor gemessene maximale Dicke der Oxidschicht der AG3-Plattenoberfläche mit etwa 16 µm nach 241 Bestrahlungstagen bei folgenden Bestrahlungseigenschaften genannt:

- Oberflächentemperatur der Umhüllung (Spitze): 69 °C
- Wärmestrom (Spitze): 124 W/cm²
- durchschnittlicher Plattenabbrand 47 % (bei 67,5 %Spitzenwert)

4.2.8 **U₃Si₂-Brennstoff, Brennstoffhülle, Verarbeitungsmethoden mit Fokus Umrüstung von HEU auf LEU-Forschungsreaktoren / Baseline-Brennstoffherstellungsanlage (USA, PRO-X)**

Ein besonderer Aspekt, besonders beim Einsatz von HEU, ist das Thema der Umleitung von Brennstoff als waffenfähiges Nuklearmaterial. Dazu wurde vom US-Energieministerium ein auf Forschungsreaktoren ausgerichtetes Programmelement, das *Proliferation Resistance Optimization-Programms (PRO-X)* der National Nuclear Safety Administration gestartet /OFF 23/. PRO-X bietet einen Rahmen, um die Proliferationsgefahren zu minimieren und die Systemleistungen für Forschungsreaktoren zu optimieren. Auch beschreibt das Dokument eine Entwurfsgrundlage für eine solche Brennstofffabrik. Darin enthalten ist eine Beschreibung des Brennstoffsystems, den als Basis dienenden Herstellungsprozess, eine allgemeine Beschreibung der Fertigungsanlage und deren Optimierungsstrategien.

Relevanz hat dieses Dokument dadurch, dass dies für ein Beispiel eines HEU-Materialtestreaktors mit Umrüstung auf LEU (Anreicherung 19,75 Gew.% ²³⁵U) dargestellt wird. Als Brennstoffsystem wurde U₃Si₂-Brennstoff mit 4,8 gU/cm³ in einer Aluminiummatrix (U₃Si₂-Al, dispergiert) ausgewählt. Für eine praktische Umsetzung sollte auch in diesem Beispiel die Brennstoffschichtdicke (0,51 mm) und die Größe des Kühlmittelkanalspalts (2,188 mm) beibehalten werden.

Die insgesamt eingesetzte Uranmenge reicht aus, um einen Reaktor zu 85 % der Zeit (ca. 6 Tage pro Woche) mit 10 MW zu betreiben und einen ²³⁵U-Abbrand von mindestens 40 % zu erreichen. Der Gesamtbedarf an U₃Si₂ pro Platte, um 92,53 g Uran zu erreichen, beträgt somit 100 g. Das U₃Si₂ wird in Aluminium dispergiert, um das Brennmaterial in einer Matrix zu binden, wobei zusätzliches Aluminium für die Umhüllung des Brennstoffs verwendet wird. Die Brennstoffplatten für Standard- und Steuerbaugruppen sind identisch, mit Ausnahme der ersten und letzten Platte in einer Standardbaugruppe, die eine dickere 0,495 mm Ummantelung anstelle der standardmäßigen 0,38 mm Hülle verwenden.

4.2.8.1 Beschreibung des Herstellungsprozesses von U_3Si_2

Die höhere Urandichte, die für die Umrüstung von HEU-Reaktoren in LEU-Varianten notwendig ist, hat zur Auswahl und Entwicklung eines plattenförmigen U_3Si_2 Dispersionsbrennstoffs in einer Aluminiummatrix geführt. Die Porosität des Brennstoffs sorgt für eine Aufnahme von Spaltprodukten und die Aluminiumlegierungshülle umschließt den Brennstoff.

Die Zusammensetzung des hier eingesetzten Dispersionsbrennstoffs, einer Uransilizid-Brennstofflegierung beträgt 92,5 % U und 7,5 % Si. Dies ist eine größere Menge an Si, als für stöchiometrisches U_3Si_2 erforderlich ist, da festgestellt wurde, dass uranreiche Phasen eine schlechtere Bestrahlungsleistung aufwiesen. Das fertige Brennstoffkompakt hat eine U-Dichte von $4,8 \text{ gU/cm}^3$ mit einem Aluminiumgehalt von etwa 23 %. Eine Eigenschaft bei der Verarbeitung von Uranmetall sowie Uran- und Aluminiumfeinstoffen ist ihr pyrophores Verhalten. Somit ist dem durch eine entsprechende Inert- oder Vakuumatmosphäre bei vielen Verarbeitungsschritten Rechnung zu tragen.

4.2.8.1.1 Herstellung von metallischem Uran

U_3Si_2 -Brennstoff war einer der ersten entwickelten Brennstofftypen und wird seitdem im Bereich Hochfluss-Forschungsreaktoren und gasgekühlten Reaktoren verwendet. Zu seiner Produktion wird als Ausgangsbasis metallisches Uran benötigt. Zur Herstellung des metallischen Urans, wird gemäß /NEA 05/ angereichertes Urandioxid (UO_2) in UF_4 umgewandelt und mit z. B. Magnesium- oder Calciumspänen vermischt und zu Pellets gepresst. Durch Erhitzen der Pellets auf mehr als $500 \text{ }^\circ\text{C}$ erfolgt die Reaktion:



Das entstehende U-Metall, wird dann von der MgF_2 - oder CaF_2 -Schlacke abgetrennt. Der dazu verwendete Prozess wird in der Literatur oft auch als *Ames-Process* beschrieben.

Wenn man von dem großtechnisch verfügbaren UF_6 ausgeht, ist für die Anwendung der obigen Vorgehensweise dazu im ersten Schritt UF_4 notwendig. Die zuvor notwendige Umwandlung von UF_6 in UF_4 , erfolgt über einen gasförmigen, organischen Fluor-Akzeptor, der über 1 bis 3 Kohlenstoffatome verfügt. Dabei werden überstöchiometrische Mengen bei Temperaturen im Bereich von etwa 260 bis $320 \text{ }^\circ\text{C}$ behandelt. Dies erfolgt

dadurch, dass das gasförmige UF_6 und der Fluor-Akzeptor in eine Wirbelschicht-Reaktionszone eingeführt werden, die eine Wirbelschicht von festen UF_4 -Teilchen enthält. Die Konzentrationen des UF_6 und des gasförmigen Fluor-Akzeptors werden dabei so eingestellt, dass eine Oberflächenreaktion auf den festen UF_4 -Teilchen bestehen bleibt. In der Folge kann ein Überschuss von durch diesen Vorgang in der Reaktionszone erzeugten UF_4 -Teilchen abgeführt werden. Dieser prinzipielle Prozess ist detaillierter z. B. in einer Patentschrift, wie /ROD 66/ beschrieben.

Die weiteren klassischen Produktionsschritte zum Erhalt von U_3Si_2 wurden bereits in den vorherigen Kapiteln dargelegt.

4.2.8.1.2 Herstellung von Uransiliziden unter Verwendung von Urancarbid als Zwischenprodukt

Die zuvor beschriebenen Verfahren werden tendenziell, bedingt durch ihre Kostenintensität, nur für die Herstellung begrenzter Mengen eingesetzt.

Als Alternative kann z. B. auf ein auch großtechnisch orientiertes Verfahren zur direkten Herstellung von Uransiliziden aus UF_6 , bzw. aus UO_2 zurückgegriffen werden. Dazu wird das Urandioxid mit Kohlenstoff zur Herstellung von Urancarbid verwendet. Das Urancarbid wird mit einem Silan⁶, einem Siliciumhalogenid, einem Siloxan⁷ oder Kombinationen davon und überschüssigem Wasserstoff zur Herstellung von Uransilizid eingesetzt. Ein Sicherheitsvorteil dieses Verfahrens ist, dass es zwar über $500\text{ }^\circ\text{C}$, jedoch unter dem Schmelzpunkt der angestrebten Stöchiometrie des Materials betrieben werden kann und somit in diesem Arbeitsgang der Umgang mit korrosiven geschmolzenen Materialien nicht mehr erforderlich ist. Allgemein ist jedoch anzumerken, dass das Verhältnis von Uran zu Silizium im Uran-Silizium-Produkt je nach Verhältnis der zur Bildung von Uransilizid, Urancarbid und eines von Siliziumhydrid und Siliziumhalogenid verwendeten eingesetzten Stoffverbindungen variiert. Dies erfordert entsprechende sensible Systemkonfigurationen. Sobald die Reaktion zur Bildung des Uransilizid abgeschlossen ist, kann dann trotzdem noch ein Homogenisierungsschritt bei hohen Temperaturen erforderlich werden, um den Gehalt an Phasen mit unterschiedlichen Stöchiometrien im Vergleich

⁶ Silane bezeichnen eine Stoffgruppe chemischer Verbindungen, die aus einem Silicium-Grundgerüst und Wasserstoff bestehen.

⁷ Siloxane sind chemische Verbindungen mit der allgemeinen Formel $\text{R}_3\text{Si}-[\text{O}-\text{SiR}_2]_n-\text{O}-\text{SiR}_3$, wobei R Wasserstoffatome oder Alkylgruppen sein können.

zum Zielstoff U_3Si_2 zu reduzieren, d. h. um die geforderte Reinheit zu erlangen. Dies kann bei Temperaturen bis zum Schmelzpunkt der Zielphase (z. B. 1.665 °C für U_3Si_2) durchgeführt werden.

4.2.8.1.3 Spark Plasma Sintering (SPS) Prozess als mögliche Qualitäts- / Produktionsverbesserung

Als ein neues in der Entwicklung befindliches und vielversprechendes Verfahren, soll hier noch das Funkenplasmasintern (Spark Plasma Sintering) genannt werden. Beim Spark-Plasma-Sintern (SPS) handelt es sich um eine Methode zur Pulververfestigung durch Anwendung von Druck und elektrischem Strom /ADO 17/. Zu den Vorteilen von SPS im Vergleich zu anderen Sintermethoden gehören niedrigere Sintertemperaturen, kürzere Haltezeiten und verbesserte mechanische Eigenschaften. Bei dieser Sintermethode wird das Sintermaterial in eine Graphitform gefüllt und per elektrischem Gleichstrom, der durch die Form geleitet wird, unter Kompression erhitzt.

Trotz seiner Hauptvorteile einer ausreichenden Wärmeleitfähigkeit und einer hohen Schwermetалldichte, kann U_3Si_2 eine anisotrope kristallographische Struktur und eine geringe Löslichkeit von Spaltprodukten aufweisen, was unter Bestrahlungsbedingungen zu unerwünschten Effekten führen kann. Mit dem Einsatz von SPS soll ein dazu positiver wirkender Konditionierungseinfluss auf die Kristallstruktur genommen werden.

Die Ergebnisse zeigen, dass mit SPS im Temperaturbereich von 1.200 °C bis 1.300 °C , z. B. U_3Si_2 Pellets (mit Fokus LWR) mit hoher Dichte ($>95\%$ TD) produziert werden können. Dabei zeigt sich, dass die bei dieser Technik eine kurze Produktionszeit realisierbar ist und eine spezifische Mikrostruktur erzeugt werden kann, die hauptsächlich aus geschlossenen Nanoporen ($<1\text{ }\mu\text{m}$) und einer kleinen durchschnittlichen Korngröße ($\sim 4,5\text{ }\mu\text{m}$) besteht. Die testweise Zugabe von Mo (1,5 At.-%) zeigt, im Gegensatz zu früheren Versuchen, keine Löslichkeit von Mo in der U_3Si_2 -Matrix, was für die Frage der Spaltproduktbindung von Mo ein vielversprechender Umstand ist. Originär waren diese SPS-Entwicklungsschritte für die Produktion von U_3Si_2 Brennstoff für LWRs mit ihren erhöhten Temperaturen und einem in der Folge erheblichen Anstieg der Diffusion von Spaltprodukten angedacht. Dieses Verfahren könnte aber, je nach benötigten Mengen und Qualitätsanforderungen, bei weiteren Entwicklungsschritten zur kontrollierten Erzielung hoher technischer Dichten, kontrollierten Porengrößen und einer engen Porosität, für reaktorspezifische Anforderungen für die U_3Si_2 Produktion von Brennstoff für

Forschungsreaktoren eingesetzt werden. Auch besitzt der Produktionsprozess, wie oben beschrieben, eine generelle sicherheitstechnisch verbesserte Vorgehensweise.

4.2.8.2 Prozessschritte

Die zuvor bei der Verarbeitung von Uran-, Uranmetall sowie Aluminiumfeinstoffen angesprochene notwendige Inerte- oder Vakuumatmosphäre ist auch für bei der Handhabung von U_3Si_2 zur Vermeidung von Oxidbildungen notwendig. Wichtige Spezifikationen und Überlegungen zu Prozessschritten werden in den folgenden Abschnitten gemäß dem PRO-X-Projekt /OFF 23/ aufgezeigt. Für das Baseline Fuel Fabrication Facility Dokument wurde ein Flussdiagramm für den Herstellungsprozess von plattenförmigem U_3Si_2 -Al-Brennstoff entwickelt. Insgesamt besteht der Prozess aus 5 übergeordneten Prozessschritten A bis E, die jeweils farbig gekennzeichneten sind. Die erste Abbildung dazu, Abb. 4.16, zeigt die vier ersten Prozessschritte (A bis D), wobei die blauen und orange-farbenen Kästchen (A und C) nicht als Teil des originären Herstellungsmodells bewertet werden. Der 5-te Prozessschritt (E) wird in der darauffolgenden Abbildung, Abb. 4.17, dargestellt.

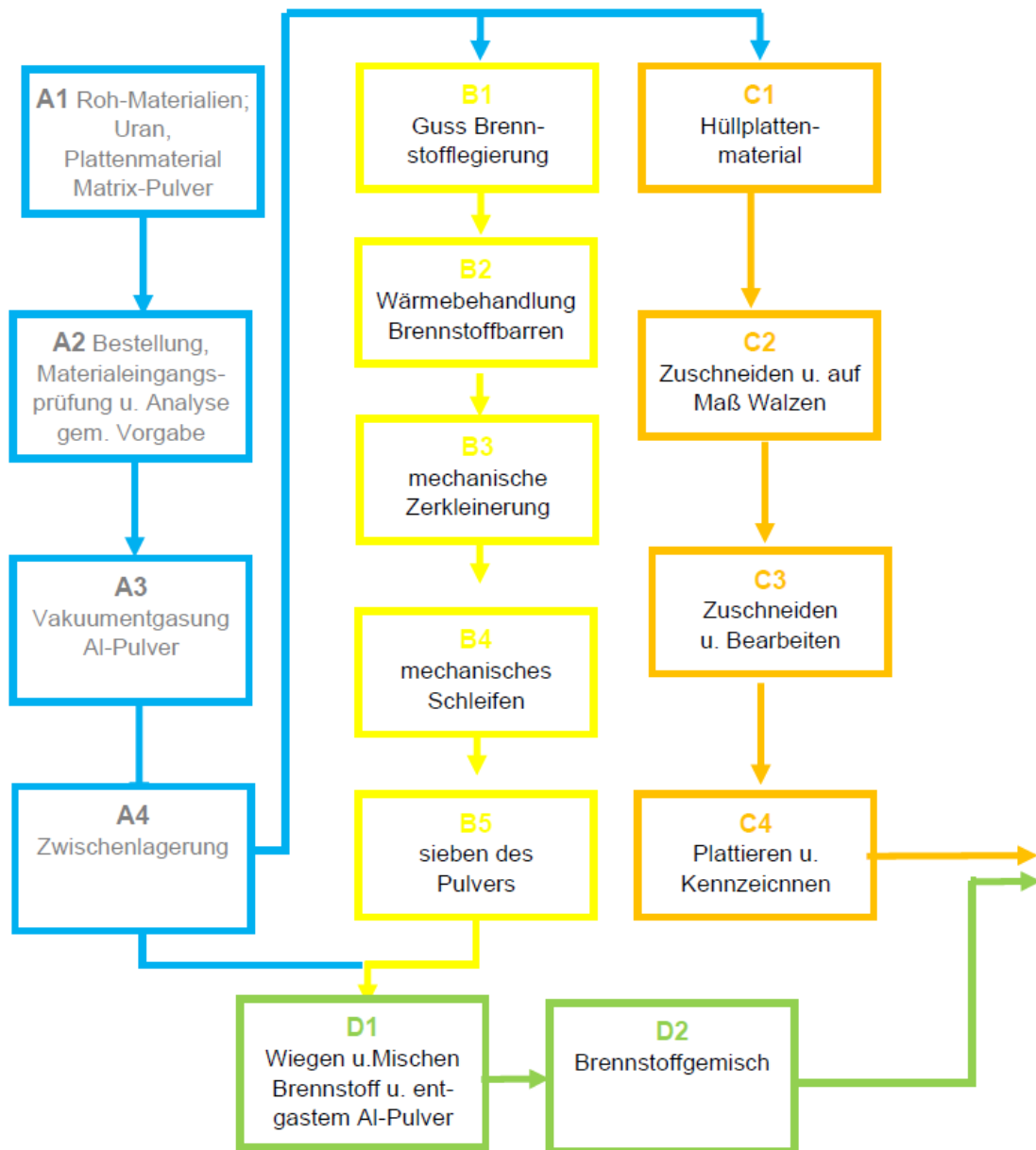


Abb. 4.16 Darstellung von Prozessschritt 1 bis 4 bei der U_3Si_2-Al Produktion

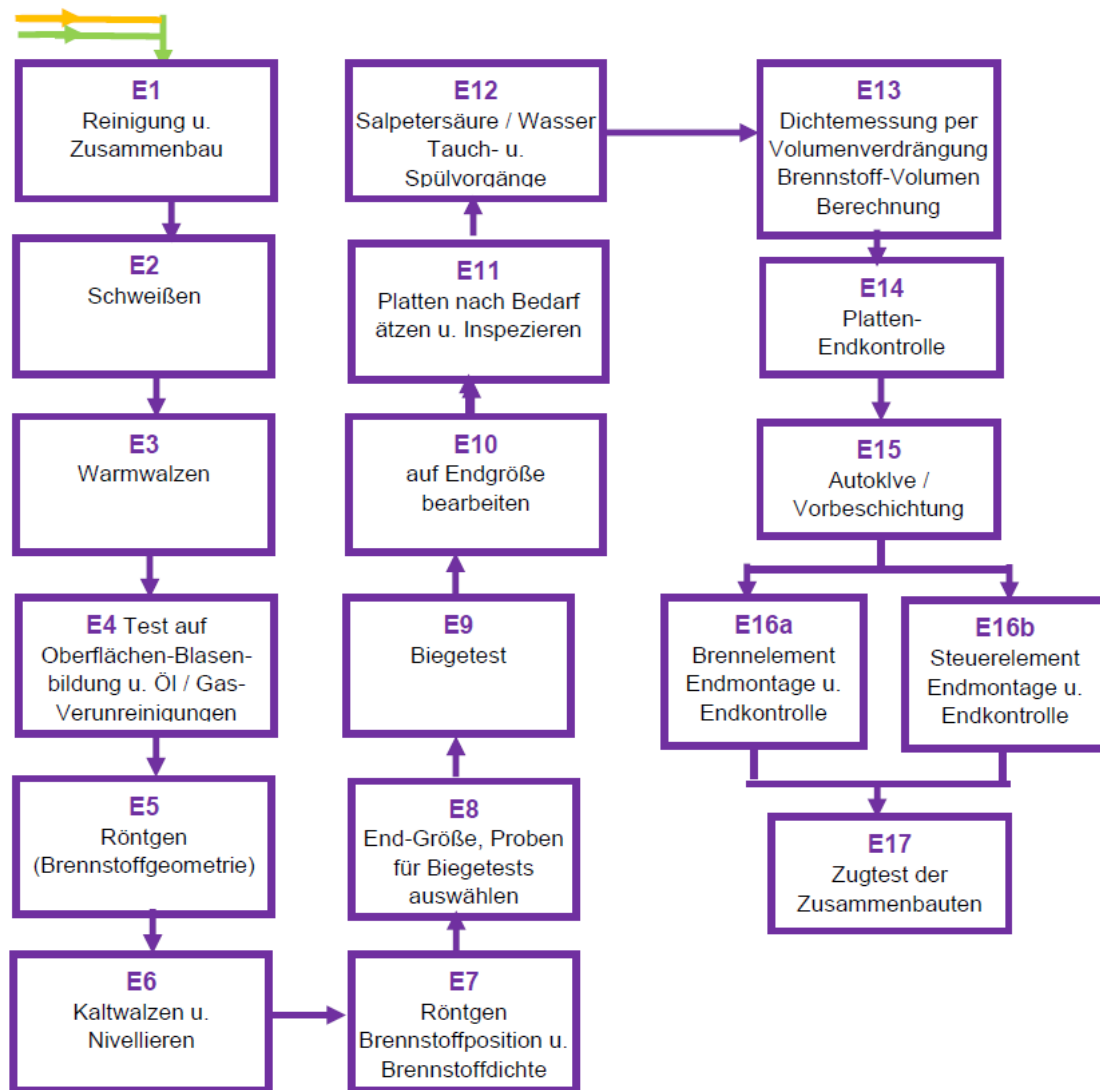


Abb. 4.17 Prozessschritt 5 bei der Herstellung von U_3Si_2 -Al-Dispersionsbrennstoff

/OFF 23/

Insgesamt besteht der Brennstoffherstellungsprozess aus fünf Hauptteilen:

- Materialannahme, Inspektion und Vorbereitung
- Brennstoffbildung
- Plattenproduktion
- Plattenbearbeitung und
- Elementmontage

die im Folgenden kurz umrissen werden.

4.2.8.2.1 Materialannahme, Inspektion und Vorbereitung

Dies betrifft die Annahme, Lagerung und Handhabung der Brennstoffmaterialien (Uran, Silizium), des Matrixmaterials (Aluminiumpulver) und der Plattenmaterialien (Aluminium 6061-Blech, Schweißstäbe). Bei der Materialannahme ist besonders auf die Einhaltung der bestehenden Qualitätsanforderungen zu achten. Dies gilt besonders für die Einhaltung des spezifizierten Uranisotopengehalts, sowie die vorliegende Partikelgrößenverteilung inkl. einer Kontrolle auf mögliche, vorhandene Verunreinigungen. Diese Arbeiten der Vorbereitung des Aluminiums für die Pulvermischung und das Kompaktpressen (grüne Prozessschritte) sind eng mit den notwendigen Vorbereitungen gekoppelt.

4.2.8.2.2 Brennstoffbildung

Unter der Brennstoffbildung subsumiert man die Herstellung der Uransilizidlegierung, die Herstellung von Brennstoffpulver, das Mischen mit dem Aluminiummatrixmaterial und die Bildung des Brennstoffkompaktes, der in die Brennstoffplatte eingebracht wird. Die dabei wichtigsten Schritte im Herstellungsprozess des Brennstoffpulvers sind im Folgenden in Abb. 4.18, dargestellt und erläutert.

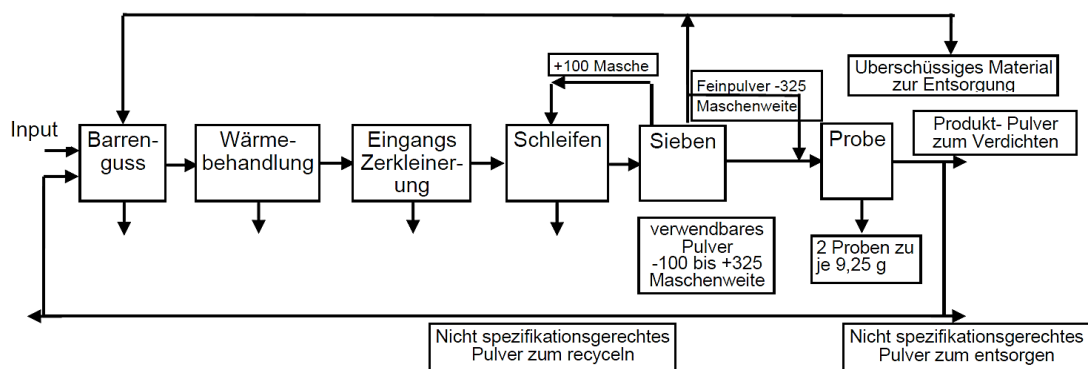


Abb. 4.18 Schematische Darstellung des Ablaufs des Pulverproduktionsprozesses

/OFF 23/

Wie zuvor angesprochen besitzt Uransilizid-Brennstoff eine hohe Affinität zu Sauerstoff. Somit hat Lagerung, Wiegen, Mischen und Verdichten in einer sauerstofffreien Umgebung (maximal < 4 % O₂), vorzugsweise in einer hochreinen Argon-Atmosphäre zu erfolgen, da eine Stickstoffatmosphäre zur Bildung von Urannitrid führen könnte. Zur Legierungsvorbereitung gehört das Mischen von Uran und Silizium im notwendigen Gewichtsverhältnis (92,5 % bzw. 7,5 % unter Berücksichtigung des beim Gießen verloren gehenden Siliziums). Dem folgt die Überführung der Mischung in einen

Lichtbogenschmelzofen in einer Helium/Argon-Atmosphäre, um den Schmelzpunkt von 1.665 °C zu erreichen. Das resultierende Gewichtsverhältnis muss möglichst nahe bei 7,5 % liegen und darf nicht kleiner als 7,4 % sein, damit Silizium etwas über dem stöchiometrischen Wert von 7,31 % liegt. Zur Sicherstellung einer homogenen Zusammensetzung durchlaufen die zuvor erzeugten Barren eine Reihe (nominell viermal) Schmelz-Kühl-Umschmelz-Zyklen. Damit ist mit einzuberechnen, dass bis zu 2 % der Masse aus Schmelzresten oder anderen Rückständen als Abfall zu entsorgen sind.

Als Standard wird ein wassergekühlter Kupferherd mit Lichtbogenschmelzofen verwendet, um die Aufnahme von Verunreinigungen zu minimieren. Das Lichtbogenschmelzen wird unter Verwendung einer nicht schmelzenden, nicht verbrauchbaren 2 % thorierten⁸ Wolframelektrode in einer Atmosphäre aus 80 % He und 20 % Ar durchgeführt. Obwohl die anderen Herstellungsschritte in einer hochreinen Ar-Umgebung stattfinden, erfolgt das Lichtbogenschmelzen hauptsächlich in einer He-Umgebung, da die Ar-Atmosphäre zu einer Verschlechterung der Wolframelektrode führen könnte. Auch sollten die erzeugten Barren gegläht werden, um sicherzustellen, dass jegliche Uran-Mischkristalllösung aus der Legierungsmikrostruktur entfernt wird. Bei Bedarf wird die Wärmebehandlung in einer Argonatmosphäre bei erhöhter Temperatur (≈ 800 °C) für bis zu 72 Stunden durchgeführt. Bei der Wärmebehandlung sind minimale Verluste ($\leq 0,1$ %) zu erwarten. Angesichts der nachgewiesenen Leistung des U_3Si_2 -Brennstoffs ohne Glühen kann eine Wärmebehandlung optional erfolgen. Die binäre U/Si-Brennstofflegierung wird zur Vorbereitung des Mahlens zunächst mit einem Backenbrecher zerkleinert und dann durch eine ShatterBox®-Labormühle verarbeitet, um die gewünschten Partikelgrößen herzustellen. Die Mühle ist mit Wolframcarbid-Kobalt ausgekleidet, um die erforderliche Härte zu gewährleisten und das Eindringen von Verunreinigungen zu minimieren. Jeder Barren wird aufgeteilt, um ihn mechanisch auf die richtige Partikelgröße für den Brennstoffpressling zu mahlen. Jede Charge durchläuft eine Reihe von Mahl- und Kühlzyklen und wird dann durch Siebe mit Maschenweiten von 100 bzw. 325 *mesh* (Anzahl der quadratischen Sieböffnungen pro Inch) geleitet. Der Mahlrückstand besteht aus extrem feinen Partikeln zur Entsorgung, und wird auf weniger als 1 % geschätzt. Das -100/+325 *mesh*-Material entspricht etwa 23,5 % des eingesetzten Materials und erfüllt die Spezifikationen für die Herstellung der Brennstoffkompaktkörper. „-100/+325“ bedeutet hier, dass das Material von dem Sieb mit einer Maschenweite von 325 zurückgehalten wird, während es von dem Sieb mit einer Maschenweite von 100 durchgelassen wird.

⁸ Thoriert bezeichnet das Hinzufügen von geringen Mengen Thorium zu einem Werkstoff

Das gröbere +100 *mesh*-Material ($\approx 59\%$) wird für eine Nachbearbeitung recycelt. Das feinere -325 *mesh*-Material ($\approx 17,5\%$) kann mit dem akzeptablen Pulver gemischt werden, um Brennstoffpresslinge herzustellen, die bis zu 40 % Feinanteile enthalten können. Während für den zuvor in Entwicklungslabors hergestellten Brennstoff nur 15 % Feinanteil zulässig waren, sind bei den derzeit möglichen Techniken und Spezifikationen für kommerzielle Anbieter bis zu 40 % Feinanteil zulässig. Allerdings haben einige Anbieter und Reaktorspezifikationen den Feinanteilgehalt in der Vergangenheit auf niedrigere Werte, beispielsweise 20 % Feinanteil, begrenzt.

Der nächste Schritt im Prozess ist die Herstellung des Brennstoffkompaktes. Das Brennstoffpulver wird mit der erforderlichen Menge Aluminiumpulver vermischt, das zur Sauerstoffentfernung zuvor entgast wurde. Die Zeit zwischen der Aluminiumentgasung und der Presslingsbildung sollte durch Zwischenlagerung in einer Inert- oder Vakuumatmosphäre minimiert werden. Das hinzugefügte Aluminium gewährleistet eine Enddichte des Presslings von $4,8 \text{ gU/cm}^3$. Das kompakte Pulver wird in spezielle gewogene Behälter gegeben, die verschlossen und dann zum Mischen in einen V-Mischer gelagert werden. Vor dem Pressvorgang müssen alle Oberflächen der Presse sorgfältig gereinigt werden. Zunächst wird das Pulver in die Matrize geschüttet. Zur genauen Bestätigung der entnommenen Pulvermenge, wird die Flasche nachgängig gewogen. Der Pressendruck ist so zu berechnen, dass die gewünschte Porosität der Brennstoffmatrix entsteht. Der tatsächliche Druck hängt dabei von der Zusammensetzung der Ladung und der Größe der Matrize ab. Der entstandene Pressling wird aus der Matrize ausgeworfen und in einer Vakuumumgebung gelagert.

4.2.8.2.3 Plattenherstellung

Der mit Aluminiumpulver dispergierte U_3Si_2 -Brennstoff ist unter Umgebungsbedingungen stabil und kann mit dem Rahmen und Abdeckplatten zusammengebaut werden. Der Kompaktkörper wird in einen Aluminiumrahmen gelegt und anschließend werden die Abdeckplatten zur Komplettierung oben und unten am Rahmen angebracht, siehe Abb. 4.19.

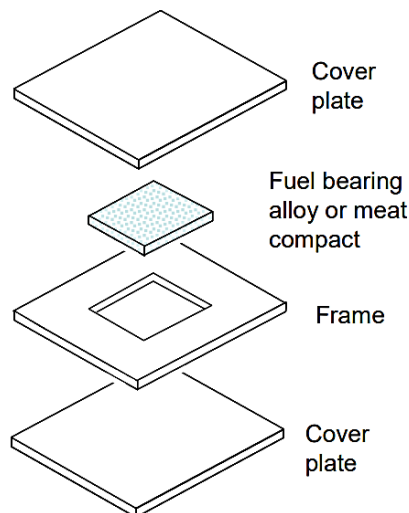


Abb. 4.19 Aufbau der Brennstoffplattenbaugruppe

/OFF 23/

Vor dem Zusammenbau werden Platte und Abdeckungen chemisch gereinigt, um den Aluminiumoxidfilm zu entfernen. Anschließend wird die Baugruppe geschweißt und auf die ungefähre Größe warmgewalzt. Während des Montagevorgangs muss die Entstehung von Streubrennstoff auf den Rahmen-/Abdeckungsflächen operativ verhindert werden. Dies kann u. a. durch Auftragung einer zusätzlichen dünnen Schicht Aluminiumpulver auf den Pressling erfolgen. Beim Warmwalzen müssen die Bleche in einem Ofen auf 500 °C vorgewärmt werden. Die Praxis zeigt, dass eine Oxidation von U_3Si_2 durch Sauerstoff während des Vorwärmzyklus vermieden werden muss. Das Element wird dann in einer Reihe von Durchgängen im Walzwerk verarbeitet. Das Warmwalzen führt zu einer Verbindung von Brennstoff und Platte. Dabei wird die Dicke der resultierenden so Platte reduziert, dass sie mindestens 10 % über der endgültigen Plattendicke verbleibt. Nach dem Warmwalzen wird das Blech einer Prüfung hinsichtlich Blasen-schwellungen unterzogen. Dies erfolgt durch Erhitzung über eine Stunde auf etwa 500 °C. Nach Abkühlung auf Raumtemperatur wird dazu die Platte auf Anzeichen von Blasenbildungen, die durch ungebundenen Brennstoff entstehen können, überprüft. Des Weiteren wird zur Überprüfung der Abmessungen und der Lage des Brennstoffs innerhalb der Platte eine Radiographie durchgeführt. Brennstoffplatten, die den Blistertest bestehen, werden kaltgewalzt, um die Platte auf die endgültige gewünschte Dicke zu reduzieren. Zu diesem Zeitpunkt werden die Platten vor der Übergabe an die Endbearbeitung mit einer Walze nivelliert. Die endgültige Reduzierung der Blechdicke muss durch Kaltwalzen erfolgen und darf nicht weniger als 4 % und nicht mehr als 25 % der endgültigen warmgewalzten Dicke betragen.

4.2.8.2.4 Plattenbearbeitung

Nach der radiologischen Untersuchung erfolgt die mechanische Bearbeitung der Platten, durch Zuschnitt und Präzisionsfräsen auf die notwendigen Endmaße. Parallel dazu erfolgen Probennahmen für die metallurgische Qualitätskontrolle. Dem schließt sich die Endreinigung, um mögliche Verunreinigungen der Plattenoberflächen auszuschliessen, an. Die Reinigung erfolgt in der Regel durch wechselseitiges Ätzen mit einer warmen alkalischen Lösung, einem Spülen in entionisiertem Wasser und Behandlung mit einer Beizlösung sowie einer weiteren Spülung. Abb. 4.20 zeigt zwei typische Schnittbilder einer Brennstoffplatte.

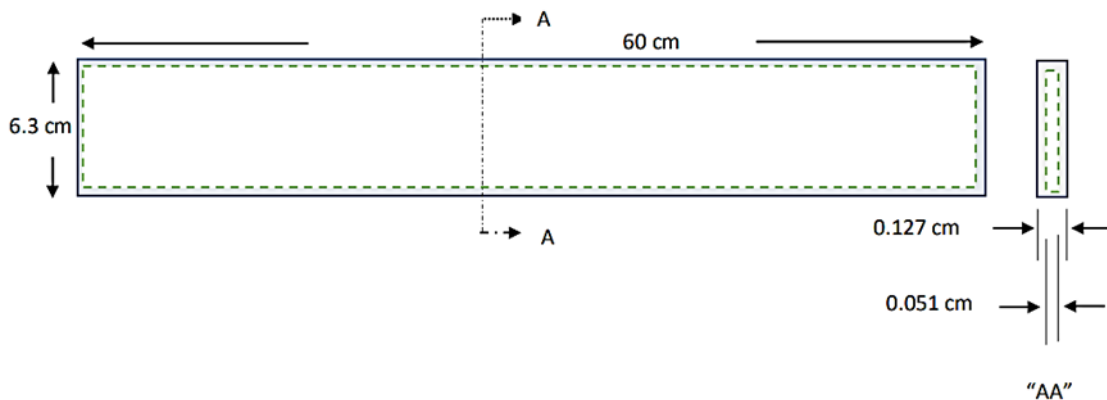


Abb. 4.20 Typische Schnittbilder einer assemblierten Brennstoffplatte

/OFF 23/

Im Anschluss folgt die Endkontrolle auf die Einhaltung der mechanischen Ausdehnungen, der Orthogonalität, Planarität, des Gewichtes sowie einer allgemeinen visuellen Prüfung der Oberfläche, die glatt und frei von Kratzern, Grübchen oder Markierungen mit einer Tiefe von mehr als 0,127 mm sein muss. Dellen in der Brennstoffplatte dürfen eine Tiefe von 0,3 mm und einem Durchmesser von 6,4 mm nicht überschreiten. Der Dogboning-Effekt tritt häufig im Bereich scharfer Kanten auf, da dort beispielsweise mehr Ablagerungen angezogen werden, d. h. die Dicke der Beschichtung an diesen Kanten und Enden zunimmt. In diesen sensiblen Bereichen sind Oberflächenfehler mit einer Tiefe von nicht mehr als 0,076 mm akzeptabel.

Vor der Assemblierung der Brennelemente kann sich durch die Einwirkung der Umgebungsluft auf der Außenhülle eine Oberflächenschicht aus Aluminiumhydroxid bilden. Diese Aluminiumhydroxidschicht kann unter den Bedingungen des Reaktorbetriebs, d. h. Hitze, Strahlung, Wasserchemie, wachsen und die Wärmeabfuhr von der Platte reduzieren. Zur Vermeidung wird die Aluminiumhydroxidschicht durch einen dünnen

Film einer haltbareren mineralischen Form von Aluminiumhydroxid, d. h. durch Böhmit ersetzt.

Der Böhmitfilm hat eine typische Dicke von 0,2 – 0,5 Mikrometer. Das Aufbringen erfolgt in einem Autoklav mittels entionisiertem Wasser, um so die Korrosionsbeständigkeit zu verbessern.

4.2.8.2.5 Elementmontage

Die einzelnen Brennstoffplatten werden in geschlitzte Seitenplatten positioniert und anschließend durch Rollstauchen fixiert. Für ein Brennelement werden auf diese Weise 20 Brennstoffplatten zu einem Brennkasten mit rechteckigem Querschnitt befestigt, siehe Abb. 4.21. Ein Steuerelement umfasst 14 Brennstoffplatten plus vier Aluminium-Blindplatten. Die Endstücke werden zur Vervollständigung der Brennstoffelementbaugruppe durch Schweißen oder Nieten am Kasten befestigt. Die Brennstoffplatten für Standard- und Steuerbaugruppen sind identisch, mit Ausnahme der ersten und letzten Platte in einer Standardbaugruppe, die eine dickere 0,495 mm Ummantelung anstelle der standardmäßigen 0,38 mm Ummantelung benötigt. Im Vergleich zu Standardbaugruppen fehlen bei Steuerbaugruppen die äußeren drei Brennstoffplatten auf beiden Seiten, von denen zwei durch Aluminiumrohlinge ersetzt sind, um eine Führung zum Einsetzen einer Steuerplatte zu bilden. Die Steuerplatten selbst arbeiten während des Betriebs mit der Steuerbaugruppe zusammen, sind jedoch für Zwecke der Brennstoffherstellung nicht Teil der Baugruppe. Nach der Endkontrolle wird die Baugruppe wiederum zum Entfernen von Rückständen gereinigt.

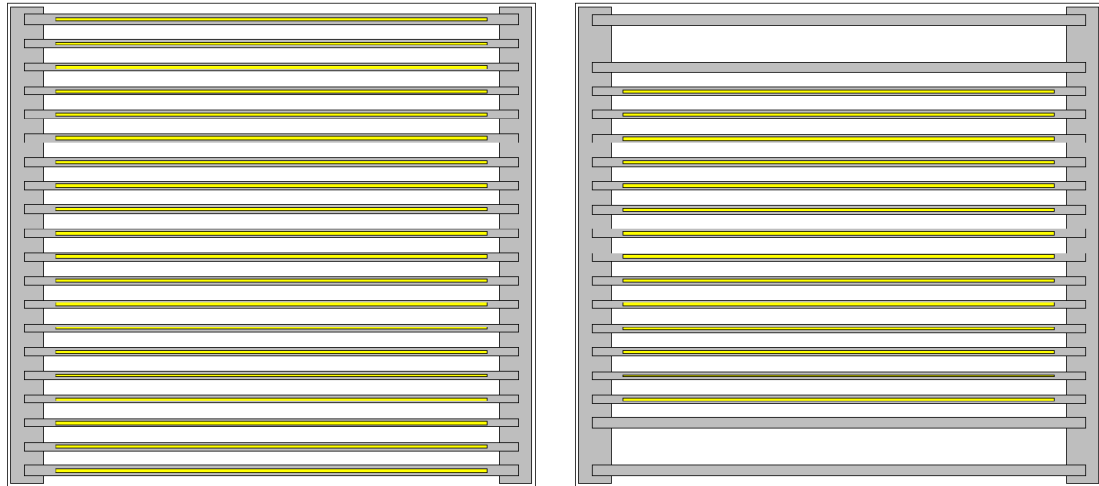


Abb. 4.21 Typische Querschnitte von Brennelementen

/OFF 23/; Links Standardbaugruppe, rechts Steuerbaugruppe mit Platz zum Einsetzen der Steuerplatten sowie der Ersatz der Außenplatten durch Aluminiumrohlinge. Das Brennstoffmaterial ist gelb, die Aluminiumkomponenten der Baugruppe grau gefärbt.

4.2.8.2.6 Herstellungsmodell und Optimierungsstrategie

Die Menge an Rest- und Ausschussmaterial, die während des Herstellungsprozess entsteht, sowie spezifische Prozessentscheidungen wurden als „Win-Win“-Szenarien für Proliferationsresistenz und Leistung identifiziert. Der beschriebene Herstellungsprozess gewährleistet somit auch über den optimierten, minimalen Einsatz von Rohmaterial eine Reduzierung der Kosten. Zur Verfolgung von Prozessgrößen wie Ausschuss, Warte- und Prozesszeit und um mögliche Änderungen zu quantifizieren, kann hier jedoch auf das sogenannte Argonne-Modell, welches ursprünglich für pyrochemisches Recycling (AMPYRE) entwickelt wurde, in einer angepassten Form zurückgegriffen werden.

Ein Thema, das direkt den Material-Ausschussanteil beeinflusst, und somit ein hohes Potential zur Einsparung bietet, ist das Partikelsieben, bzw. der akzeptable Partikelgrößenbereich für die Weiterverarbeitung des Mahlgutes. Hier ist wohl mit weiteren Optimierungsschritten zu rechnen. Als weiterer Optimierungsansatz gilt eine Anpassung der Produktionsanlagengröße auf den benötigten Ausstoß, was beiden Themen, d. h. der Proliferationsresistenz und der Kostenersparnis zugutekommt. Diese strukturierten Vorgehensweisen unterstützen dabei auch wesentlich das Sicherheitsniveau.

4.2.9 Endlagerung

In salinaren Lösungen ist eine rasche Korrosion der Brennelemente bestehend aus einer Uran-Aluminium und / oder Uransilizid-Matrix unter Gasentwicklung und unter Freisetzung des Urans und der Spaltprodukte zu erwarten. Auch wenn die absolute Menge des Urans und der Spaltprodukte im Vergleich zu Brennelementen aus Leistungsreaktoren insgesamt gering ist, so ist dieser Einfluss auf den Quellterm für Langzeitsicherheitsanalysen, dennoch gesondert zu prüfen.

Glaskokillen bieten im Langzeitverhalten eine verbesserte Aktivitätsrückhaltung als die direkte Endlagerung von ganzen oder zerteilten Brennelementen auf Basis von Uransilizid-Aluminium-Legierungen. Aufgrund der Schwierigkeiten, eine ausreichende Langzeitbeständigkeit der Behälter aufzuzeigen, und aufgrund der erhöhten Reaktivität der Legierungen mit Silizium und Aluminium mit Lösungen, ist eine direkte Endlagerung in Deutschland bisher nur vorläufig in Betracht gezogen worden.

4.2.10 Sicherheitsrelevante Randbedingungen bei der Herstellung von Uransilizid

In den vorherigen Kapiteln wurde bereits einzelne sicherheitstechnische Aspekte erwähnt. Wie ebenfalls zuvor ausgeführt, kann U_3Si_2 von unterschiedlichen Ausgangsmaterialien (vorzugsweise auf der Basis UF_6 oder über einen Umweg über UO_2), aus dann metallischem Uran hergestellt werden. Dabei ist bei der Frage der Herstellung eine entsprechende Mengenunterscheidung zu treffen, ob Labormaßstäbe oder eine großtechnische Herstellung angestrebt werden. In beiden Fällen ist jedoch zunächst das Gefahrenpotential des zu verarbeiteten Materials beim Handling der Stoffe zu betrachten.

Uranhexafluorid besitzt eine hohe Toxizität und einen Phasen-Tripelpunkt von 152 kPa bei 64,1 °C. Auch geht Uranhexafluorid bei Normaldruck und einer Temperatur von 56,5 °C durch Sublimation direkt vom festen in den gasförmigen Zustand über. Somit können bei konventioneller Handhabung, aber auch bei Unfallabläufen mit UF_6 , verschiedene Phasen unterschiedlicher Gefahrenstufen auftreten. Neben seiner Toxizität an sich, ist je nach Temperatur-, Druck- und Luftfeuchtigkeitsniveau zusätzlich mit gefährlichen Folgeprodukten zu rechnen. Besonders dazu sind die bereits durch Luftfeuchtigkeit sich entwickelnden und konzentrierten Aerosole HF und UO_2F_2 zu nennen, die eine unmittelbare letale Wirkung durch Einatmen besitzen.

Im Gegensatz zu UF_6 , hat **Urantetrafluorid** einen temperaturmäßig weitaus höher gelegenen festen Aggregatzustand, bestehend aus grünen monoklinen Kristallen⁹ und einen Schmelzpunkt von 1.036 °C. UF_4 hydrolysiert bei Kontakt mit Wasser, bzw. Luftfeuchtigkeit ebenfalls zu UO_2 und HF, sodass dieser Stoff vorzugsweise hermetisch oder unter Inertgas, aber in jedem Fall trocken gelagert werden muss. UF_4 gilt als hochtoxisch beim Einatmen und Verschlucken. In gleicher Weise gesundheitsschädlich entsprechen die Folgeprodukte der Aerosolisierung von UF_4 denen der Aerosolisierung von UF_6 .

Der **Konvertierungsprozess** von UF_6 zu UF_4 ($\text{UF}_6 + \text{H}_2 \rightarrow \text{UF}_4 + 2 \text{HF}$) besitzt in der gesamten U_3Si_2 Produktion das größte Gefahrenpotential. Im Folgenden soll daher auf eine großtechnische Lösung dieser Konvertierung von UF_6 zu UF_4 eingegangen werden.

Die UF_6 Anreicherungsprozedur, sowie entsprechende Lager- und Transportprozesse von UF_6 sind in der Vergangenheit entwickelt worden und als zuverlässig arbeitend eingestuft worden.

Die Umwandlung von UF_6 in UF_4 erfolgt großtechnisch über einen gasförmigen, organischen Fluor-Akzeptor in einer Wirbelschicht-Reaktionszone eines Ofens. In der Folge kann ein Überschuss der in der Reaktionszone durch diesen Vorgang erzeugten UF_4 -Teilchen kontinuierlich abgeführt werden. Auch wenn unterschiedliche technische Detaillösungen vorstellbar sind, dürfte sich die meisten Prozesse weitgehend an ähnlichen chemischen Reaktionen orientieren.

Allgemein betrachtet, bestehen Parallelen zu der allgemein sicherheitstechnisch bereits ausführlich betrachteten bekannten Umwandlung von UF_6 zu UO_2 . Analog zur Prozessierung von UO_2 , kann UF_4 kontinuierlich als fester Stoff der Wirbelschicht-Reaktionszone entnommen werden. Das Temperaturniveau ist mit ca. 300 °C etwa halb so hoch wie bei UO_2 , wobei das Endprodukt UO_2 wesentlich stabiler als das hydrolysierende UF_4 ist. Bei der Entnahme und der Lagerung von UF_4 ist primär auf eine hermetisch trockene Verwahrung zu achten.

Der letzte Schritt zum Erhalt von metallischem Uran erfolgt durch die Reduktion von Urantetrafluorid UF_4 mit Calcium oder mit dem industriell verwendeten Magnesium und

⁹ Ein monoklines Kristallsystem umfasst alle Punktgruppen, die in genau einer Richtung eine zweizählige Dreh- oder Drehinversionsachse besitzen.

Aluminium, wie bereits zuvor beschrieben. Bei diesem Vorgang ist, wie bei fast allen vorgelagerten Aktionen, eine entsprechend konfigurierte Schutzatmosphäre notwendig.

Zu diesen prinzipiellen Vorgehensweisen ist auf das RS-Handbuch (/BMUV 05/, /ROD 66/) zu verweisen, in dem die Verarbeitung von unterschiedlichen Uranfluoriden (inkl. UF_4) ausführlich erfasst ist. Unter dem Punkt *Sicherheitsanforderungen für Kernbrennstoffversorgungsanlagen*, Teil IV, *Sicherheitsanforderungen für die Herstellung von Uranbrennelementen für Hochtemperatur- und Forschungsreaktoren*, wird in den Unterpunkten *Sicherheitsanforderungen / Konstruktion und Auslegung* und unter dem Unterpunkt *UF_6 -Eingangslager, Chemieanlagen, Herstellung von Brennstofftabletten, Brennstäben, Brennelementen* ausgeführt, dass bei einer kalziothermischen Reduktion von UF_6 zu Uranmetall entsprechende Sicherheitsvorkehrung des Reaktionsofens durch eine Berst-Scheibe zu treffen sind. Dies ist darin begründet, dass UF_4 -Kalzium-Pulver bei einem unkontrollierten Druckanstieg nicht ungehindert in den Arbeitsraum gelangen darf. Ebenso ist als notwendige Voraussetzung für den Betrieb eines Schmelzofens eine kontinuierlich aufrechtgehaltene und überwachte Inertgasatmosphäre genannt. Ergänzt wird das Thema durch den Hinweis, dass bedingt durch die Selbstentzündbarkeit von metallischen Uranpulver und -spänen, diese entsprechend zu lagern sind. Somit sind diese Punkte bei der U_3Si_2 Herstellung bereits im RS-Handbuch abgedeckt.

Es sei noch angemerkt, dass vorgelagert, im Rahmen der zu betrachtende auslegungsbestimmende Störfälle wie Explosionen in Konversions-, Reduktions-, Kalzinations- oder Sinteröfen, allgemein übliche Themen wie Brand, Ausfall von notwendigen Versorgungseinrichtungen etc. betrachtet werden müssen. Zu den im RS-Handbuch als notwendig geforderten Anlagenausrüstungen werden z. B. redundante und diversitäre Temperaturüberwachungen, die Überwachung der Bildung von explosionsfähigen Gasgemischen, etc. genannt.

Somit sind zusammengefasst bereits generische Sicherheitsanforderungen für die zu erwartende eingesetzte Technik zur Herstellung von U_3Si_2 definiert, sodass es bei einer realen, großtechnischen Umsetzung mehr um die gewählten, detaillierten Realisierungsstrategien geht.

4.3 Herstellung und Verarbeitung von Uranmolybdän U-Mo

4.3.1 Einleitung

Allgemein werden international große Anstrengungen zur Reduzierung der Proliferationsrisiken, sowie zur Generierung einer gesicherten Brennstoffversorgung für den Betrieb von Forschungsreaktoren unternommen. Für die meisten Forschungsreaktoren konnte eine Umrüstung von HEU (High Enriched Uranium) auf LEU (Low Enriched Uranium) durch den Einsatz des neu entwickelten LEU-Uransilizid (U_3Si_2) Brennstoffs erfolgreich durchgeführt werden, siehe Kapitel 4.2. Für die verbleibenden Hochleistungsreaktoren reicht die Leistungsfähigkeit von Uransilizid-Brennstoff nicht aus. Das heißt konkret, dass der Einsatz dieses Brennstoffs eine Leistungseinbuße des Neutronenfluss darstellen würde. Für diese Reaktoren muss eine alternative Variante gefunden werden, d. h. ein Brennstoff mit noch höherer Uran-Dichte verglichen mit Uransilizid.

4.3.2 U-Mo-Brennstoff

Aus der Menge der denkbaren Kandidaten wurden international, u. a. basierend auf umfangreichen Versuchen, Uran-Molybdän-Legierungen (U-Mo) mit einem Molybdän-Gehalt von 7–10 Gew.% als zielführend eingestuft. Gründe zur Auswahl dieser Verbindung waren u. a. ein gutes Bestrahlungsverhalten, eine ausreichend hohen Eigendichte ($\sim 16 \text{ g/cm}^3$), ein geringer Neutronenabsorptionsquerschnitt, aber auch das Vorhandensein von Materialkennwerten aus früheren Einsätzen, wie z. B. in schnellen Reaktoren. Der Einsatz von U-Mo ist dabei in zwei unterschiedlichen Arten, als disperser, sowie als monolithischer Brennstoff möglich.

Bei **disperser Brennstoff** liegt die U-Mo Legierung in Form eines feinen Pulvers vor, das in eine Aluminium-Matrix eingebettet wird. Die Brennstoffplatten, auch manchmal Brennstoffrahmen genannt, bilden dabei den Einschluss des Brennstoffs in Aluminium.

Bei **monolithischem Brennstoff** handelt es sich um eine massive, metallische, zu einer U-Mo-Folie gewalzten Form, welche dann ebenfalls von einem bündigen Aluminiumrahmen umschlossen wird.

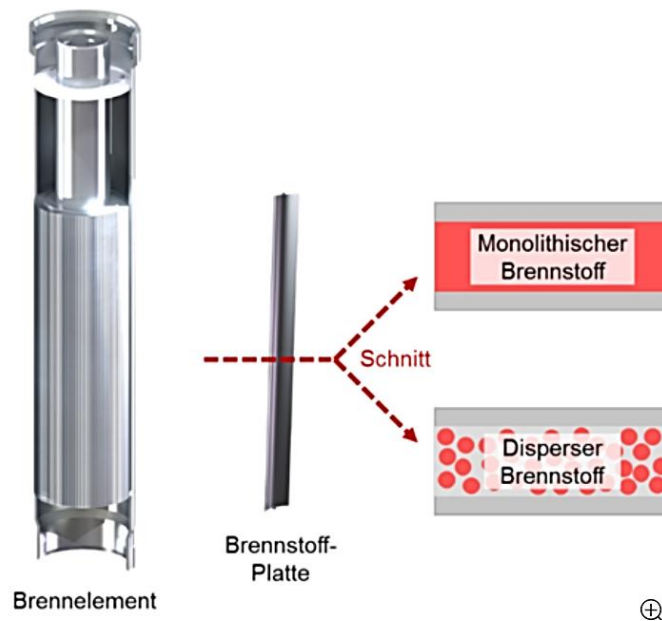


Abb. 4.22 Typisches Brennelement des FRM-II, mit einzelnen, zu Evolventen gebogenen Brennstoffplatten die mittels dazwischen ausgeprägten Kühlschlitzen, zirkular zu einem Brennelement angeordnet werden.

/FRM 24/; Eine Evolvente bezeichnet die geometrische Kurve, wenn eine Gerade auf einem Grundkreis aufgerollt wird; Die Brennstoffbeladung der Platten kann wahlweise in Form von monolithischem oder dispersem Brennstoff erfolgen

Entsprechend dem Fertigungsverfahren, bietet der monolithische Brennstoff (Abb. 4.22) die höhere Urandichte. Gemäß /GOM 17/ wird ausgeführt, dass der Urangehalt in Dispersionsbrennelementen typischerweise auf einen Volumenanteil von weniger als 55 Vol.-% in der Brennstoffzone beschränkt ist.

Der Herstellungsprozess des Ausgangspulvers kann nicht in analoger Weise zu Uransilizid durchgeführt werden, da die U-Mo-Legierung eine höhere Duktilität aufweist. Durch die plastische Verformung vor Bruch können U-Mo-Legierungen nicht durch dieselben mechanischen Mahltechniken pulverisiert werden, wie es bei Uransilizid erfolgt.

Auch zeigten die ersten Experimente Anzeichen eines Versagens des U-Mo-Al-Dispersionsbrennstoffsystems im Rahmen von Hochleistungsbestrahlungen. Hier kam es bei den Brennstoffplatten zu übermäßigem Schwellen (swelling), bzw. Blasenbildung (blistering), die besonders in Bereichen höheren Bestrahlungsdichten auftraten. Die entscheidende Ursache konnte dabei einer amorphen Wechselwirkung zwischen dem U-Mo und seiner umgebenden Al-Matrix zugeordnete werden. Konkret bedeutet dies, dass sich dabei zwischen den Materialien des Brennstoffs und der Hülle eine

Wechselwirkungsschicht (Intermediate Layer, IL) ausbildet. Auch ergaben Messungen, dass die zusätzliche Schicht u. a. eine geringere Wärmeleitfähigkeit besitzt, was wiederum eine zusätzliche, thermisch Leistungseinbuße bedingt. Der dabei auftretende Effekt des Schwellens der Wechselwirkungsschicht wird von Parametern wie Temperatur, Spaltrate und Bestrahlungszeit beeinflusst. Eine gewisse Reduzierung der Neigung zum Schwellen kann dabei durch Zugabe von Silizium zur Dispersionsbrennstoffmatrix erreicht werden. Auch wurden beim Dispersionsbrennstoff zunächst bessere Ergebnisse durch den Einsatz von lediglich zerkleinerten, und nicht fein gemahlten Brennstoffpulvern erzielt. Trotzdem trat unter Hochleistungsbedingungen weiterhin unakzeptables Materialschwellen auf.

Dazu wurden Versuche mit einer Erhöhung des Si-Anteils durchgeführt, bei denen fein gemahlene U-7Mo-Körner (U-Mo Legierung mit einem Molybdängehalt von 7 Gew.%) eingesetzt wurden, die mit Al-4Si- oder Al-6Si (Al-Si Legierung mit einem Siliziumgehalt von 4 oder 6 Gew.%) in Matrizen dispergiert wurden. Dabei trat das Schwellen allerdings immer noch jenseits akzeptabler Werte aus, allerdings in reduziertem Maß und erst bei höherem Abbrand. Neben Überlegungen, den Si-Gehalt weiter zu erhöhen, war einer der Strategiegedanke, die U-Mo-Matrix-Grenzfläche zu modifizieren, um auf diese Weise akzeptables Brennstoffverhalten auch bei hohem Abbrand zu erreichen /VAN 14/. Dies muss jedoch für beide Brennstoffarten erfolgen, d. h. für den dispersen (über die Brennstoffpartikel) sowie den monolithischen Brennstoff (über die gesamte monolithische Folie).

Bei den U-Mo-Brennelementen ist hinsichtlich Leistungsfähigkeit und Produktionsart zwischen den beiden Varianten *disperser* U-Mo-Brennstoff, sowie *monolithischem* U-Mo-Brennstoff zu unterscheiden. Gemeinsam ist diesen der vorgelagerte Schritt der Herstellung des metallischen Urans sowie der U-Mo-Legierung.

4.3.2.1 Herstellung von metallischem Uran sowie der U-Mo-Legierung

Die Herstellung der U-Mo-Legierung basiert auf metallischem Uran, wie sie schon bei der Uransilizid-Herstellung beschrieben war. Hinsichtlich der Legierungshöhe werden in der Regel U-Mo-Legierungen mit einem Molybdängewichtsanteil von 7 bis 10 Gew.% Molybdän verwendet. Von der methodischen Seite der Herstellung der Legierung gibt es unterschiedliche Möglichkeiten, wie z. B. die Lichtbogenmethode, die Induktionsmethode, oder die Pulvermetallurgie, wobei jede Methode ihre eigenen Vorteile wie auch besondere Herausforderungen besitzt. So ist z. B. beim pulvermetallurgischen Prozess

der Mischphase äußerste Sorgfalt zu widmen, da diese Phase die Homogenität der Endproduktlegierung bestimmt. Eine vielbenutzte Technik ist die Lichtbogenschmelztechnik unter Einsatz einer Argon-Schutzatmosphäre. Zur Unterstützung der Homogenisierung der Legierung, wird der Schmelzvorgang wiederholt durchgeführt. Dabei ist zu beachten, dass Parameter wie z. B. die Abkühlgeschwindigkeit einen Einfluss auf die Bildung der Korngröße etc. haben. Daher sind möglichst angepasste Temperaturgradienten einzuhalten. Die Induktionsmethode bietet bereits höhere Homogenisierungsgrade als die reine Lichtbogentechnik, sodass die nachgelagerte Homogenisierungsphase verkürzt werden kann. Allgemein werden aber die methodischen Vor- und Nachteile neben dem physikalischen Grundprinzip durch operative Randbedingungen beeinflusst. Dies können typischerweise Größen wie Konfiguration der Ofengeometrie, die Beschickungsart, die eingesetzten Abkühlsysteme, etc. sein. Der Hauptfokus des Herstellungsprozesses bleibt auf einer möglichst hohen Ausbeute des in γ -Phase vorliegenden Urananteils, d. h. in einer kubisch raum-zentrierten Struktur. Dabei nimmt die Stabilität der γ -Phase mit zunehmendem Molybdängehalt in der Legierung zu.

Allgemein ist hier noch anzumerken, dass U-Mo-Legierungen dabei wesentlich weniger reaktiv sind als reines U ist. Somit bestehen an die Lagerbedingung nicht so hohe Anforderungen, es sollte aber dennoch in einer inerten Umgebung gelagert bzw. gehandhabt werden.

4.3.2.1.1 Fertigung von dispersem U-Mo-Brennstoff

Als Ausgangsbasis für dispersen U-Mo-Brennstoff dient dabei die zuvor generierte U-Mo-Legierung, wobei das Material bereits in Form einer einsetzbaren und verbrauchbaren Elektrode vorliegt. Die Wandlung zu Pulver erfolgt durch die sogenannten „Atomisierung“. Für diesen Prozess sind die notwendigen Abläufe zu beherrschen, bzw. die notwendigen Parameter einzuhalten, wie z. B. Tröpfchen-Bildungsmechanismen, Größenverteilung, Pulverform und Pulveroberfläche. Die Erzeugung erfolgt dabei unter einer einzuhaltenden Schutzatmosphäre. Zur Verdeutlichung zeigt Abb. 4.23 eine schematische Übersicht der Schritte der Fertigungsfolge.

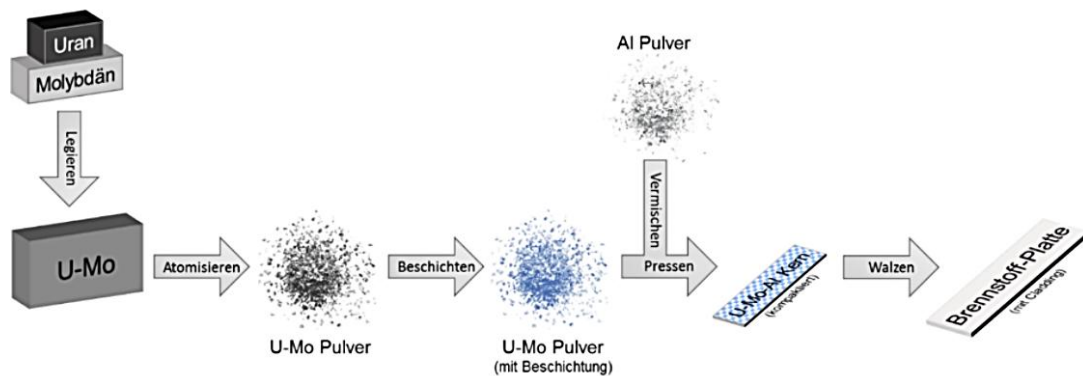


Abb. 4.23 Schematische Übersicht zum Fertigungsprozess eines dispersen U-Mo-Brennstoffes

/FRM 24/

Der Zerstäubungsprozess an sich basiert auf einer sich verbrauchenden Elektrode in Form eines Stiftes aus U-Mo-Legierung. Bei diesem Atomisierungsprozess wird dabei, wie bereits oben angedeutet, ein als Elektrode dienendes zylindrisches U-Mo-Metallstück mit hoher Geschwindigkeit um seine Achse gedreht und währenddessen mit einem Lichtbogen lokal aufgeschmolzen. Bedingt durch die hohe Drehgeschwindigkeit wird die Schmelze in feinen Tröpfchen abgelöst. Einer der wichtigen Parameter ist dabei, dass sich die Tröpfchen bis zum Aufprall auf die Gefäßwand so weit verfestigen, dass ihre exakt sphärische Form erhalten bleibt und somit feines Pulver mit einer homogen runden Oberfläche entsteht. Diese exakt sphärische Form ist ein Hauptvorteil dieser Technik, vor allem im Gegensatz zu klassischen Mahlvorgängen. Sie verbessert zudem die Aufbringbarkeit einer Diffusions-Sperrschicht, die die Brennstoffkügelchen, für eine besonders hohe Wirksamkeit komplett und homogen umgibt. Diese Technik hilft, die Brennstoffqualität zu verbessern und stellt somit einen wichtigen und innovativen Vorgang dar, um mögliches Brennstoffschwellen besser unterbinden zu können.

Im Anschluss wird das Pulver mit der Diffusions-Sperrschicht überzogen. Zu Beschichtung des U-Mo-Pulvers mit Zirkoniumnitrid (ZrN) stehen verschiedene Möglichkeiten zur Verfügung, wie z. B. der Atomic Layer Deposition (ALD) Prozess, sowie Wärmebehandlungsverfahren zur Vergrößerung der Körnung. Des Weiteren erfolgt eine Mischung mit Aluminium-Pulver zur Herstellung eines kompakten Presslings. Mit einem Hüllmaterial versehen, entsteht durch entsprechende Walzvorgänge die Brennstoffplatte. Typischerweise werden zwei Konfigurationen der U-Mo-Legierung angeboten, eine mit 7 Gew.% und eine mit 10 Gew.% Molybdän. Typische U-10Mo-Brennstoffplatten verfügen über eine Brennstoff-Foliendicke von 0,635 mm bis 2,032 mm, sowie über eine dünne Zr-

Zwischenschicht, die typischerweise 25 μm dick ist. LEU-10Mo-Brennstoff verfügt bei 20 °C über eine theoretische Dichte von $17,145 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$. Der in der Praxis auftretende Wert liegt produktionstechnisch bedingt leicht darunter /BUR 10/. Zur Optimierung der Neutronenausbeute sind ebenfalls gebogene Platten, die über einen Dickengradienten verfügen, in der Umsetzungsphase.

4.3.2.1.2 Fertigung von monolithischem U-Mo-Brennstoff

Die Fertigung von monolithischen Brennstofffolien ist für die Qualität des U-Mo-Brennstoffes entscheidend. Dabei sind U-Mo-Foliendichten von bis zu $\sim 17 \text{ g}/\text{cm}^3$ möglich. Typischerweise basiert der Herstellungsprozess auf einer umfangreichen Sequenz von unterschiedlichen Verarbeitungsschritten. Zunächst erfolgt die Konfiguration der U-Mo-Legierung aus den beiden Grundmaterialien, z. B. via Lichtbogenschmelzverfahren mittels einer Wolframelektrode in einem sauerstoffarmen Kupfertiegel. Dem folgt der Blockguss der U-Mo-Legierung mit Hilfe eines Induktionsofens und einem atmosphärenkontrollierten Gießverfahren. Der darauffolgende Schritt ist die Umformung des U-Mo Blocks, in einem Warmwalzwerk zur Folie.

Das Aufbringen der Beschichtung erfolgt z. B. mittels PVD-Verfahren (Physical Vapour Deposition, Gasabscheidungsverfahren). Dabei handelt es sich um ein Plasmaverfahren, bei dem das aufzubringende Material (z. B. Zirkonium) in einem Niederdruck-Plasma atomar zerstäubt und auf das Substrat (U-Mo) aufgedampft wird. Vorteil dieses Verfahrens ist dabei, dass ein Aufbringen nahezu aller Schichtmaterialien und in beliebigen Dicken möglich ist. Ein weiterer Vorteil ist, dass auch komplexerer Geometrien, wie z. B. U-Mo-Folien mit Dickenprofil, mit dem PVD-Verfahren problemlos beschichtet werden können. Diese Zwischenschicht dient dazu, die sonst an der Grenzschicht Brennstoff / Hülle auftretende Destabilisierung der γ U-Mo-Phase (d. h. der kubisch raumzentrierten Struktur), durch den Einsatz einer Diffusionsbarriere zu vermeiden, bzw. den Effekt, der sich dynamisch aufbauenden Interdiffusionsschicht (γ U-Mo und Al) zu unterbinden. Die so finalisierte U-Mo-Folie erfährt anschließend den Übergang zur Brennstoffplatte mit der Aufbringung der Aluminium-Beschichtung mittels des C2TWP Prozess (CEA CERCA TUM Welding), siehe Abb. 4.23 /FRM 24/.

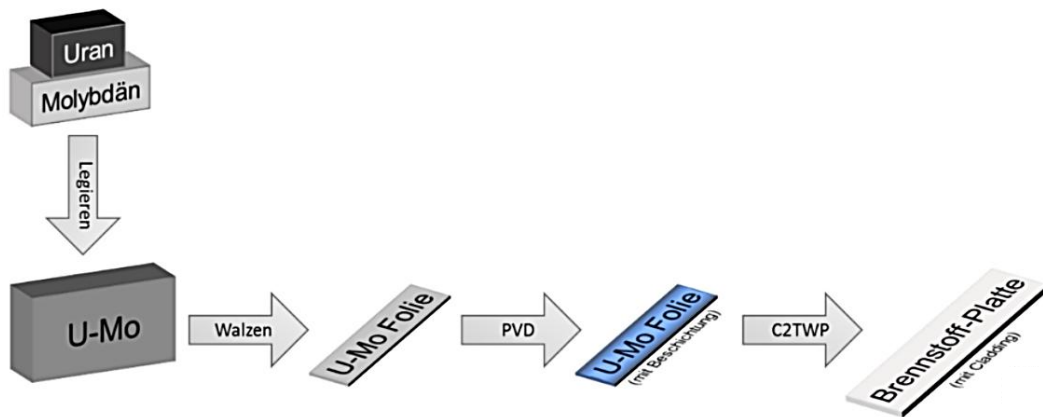


Abb. 4.24 Schematische Übersicht zum Fertigungsprozess eines monolithischen U-Mo-Brennstoffes

/FRM 24/

Parallel zu den Entwicklungen zur Herstellung von Platten aus ebenen monolithischen Folien werden Untersuchungen durchgeführt, um eine Fertigungsstrategie für gradierte Folien zu entwickeln. Grund dafür ist, dass einige Hochleistungsforschungsreaktoren, (z. B. FRM II), zur Gewährleistung der Kühlbarkeit des Kerns bei der Umstellung auf Brennstoffe mit niedrig angereichertem Uran, U-Mo-Folien mit variierender Dicke, d. h. sogenannte Gradientenfolien benötigen. Die Variation der Dicke bzw. die Notwendigkeit eines Folien-Dickengradienten, wird u. a. zur Verringerung von auftretenden Leistungsspitzen an den Rändern der Brennstoffplatten bedingt. Die zuvor beschriebenen Prozesse werden dahingehend, d. h. auf die Verwendung einer variablen Dicke, ertüchtigt, bzw. erprobt. Um den angestrebten Gradienten, bzw. die zu bewältigende Dickenvariation zu verdeutlichen, sei hier noch erwähnt, dass die maximale Dicke der Gradientenfolie bis zu einem Faktor 2 im Vergleich zu ebenen Folien betragen kann.

Ultraschalluntersuchungen zeigten an den untersuchten Testfolien zwar radiale Dekohäsionsdefekte, jedoch ist von einem zufriedenstellenden Einschluss der Gradientenfolie in die Aluminiumummantelung per C2TWP-Verfahren auszugehen. Allgemein benötigen die Themen der Gewinnung, der Beschichtung und des Verhaltens von U-Mo-Gradientenfolien weiterhin noch vertiefende Studien, auch vor dem Hintergrund einer Produktion für den Einsatz in industriellen Verfahren /BAU 22/.

4.3.2.2 Rückgewinnung von Uran aus U-Mo-Folienbrennstoff

Ziel der Rückgewinnung von Uran, bzw. sonstigen Materialien aus U-Mo-Folienbrennstoff ist es, die einzelnen eingesetzten Stoffe, in der Rangfolge ihrer Wichtigkeit, aus produktionsbedingtem Ausschuss wieder herauslösen und wiederverwendbar machen zu können. Umgekehrt bieten diese Erkenntnisse auch eine erste Basis für eine spätere Aufarbeitung der Brennelemente für eine erneute Ressourcennutzung oder für eine stoffselektive Endlagerungen. Dazu wurden vom US-Argonne National Laboratory Untersuchungen hinsichtlich einer wässrigen Verarbeitung von U-10Mo-Brennstoffanteilen im Rahmen des Produktionsprozesses für U-10Mo-Folien durchgeführt /YOU 12/. Unter anderem standen folgende Punkte im Fokus:

- Ermittlung der Auflösungsbedingungen für U-10Mo-Folien in sauren Medien innerhalb der einzelnen Produktionsschritt.
- Rückgewinnung und Verfügbarmachung von Uran mittels Einsatzes einer Lösungsmittelextraktion, dass bei der Brennstoffherstellung sonst im Rahmen von prozessbedingtem Ausschuss verlorengegangen bzw. entsorgt worden wäre.
- Entwicklung von Arbeitsablaufdiagrammen zu den benötigten Prozesssequenzen mit detaillierten Konzentrationsangaben der eingesetzten Chemikalien, unter Verwendung des sogenannten Argonne-Designs, d.h. der vom Argonne National Laboratory entwickelten Technik / bzw. deren Vorgehensweise.

Bereits in der Frühphase der technischen Entwicklung von U-Mo-Brennstoff, wurden Abschätzungen auf Basis der damals zur Verfügung stehenden Produktionsprozesse hinsichtlich deren Produktionseffizienz durchgeführt. Dabei wurde ein hoher Materialanteil an Produktions-Verschnitt bzw. Ausschuss vorhergesagt. Um die Effizienz zu erhöhen, und damit u. a. die Produktionskosten zu senken, wurden Optionen zum Materialrecycling innerhalb des Produktionsprozesses theoretisch, aber auch praktisch evaluiert. Damals, wie aber auch heute, wird die wässrige Verarbeitung, d. h. die chemische Auflösung in Flüssigkeit für weitere Bearbeitungsschritte, des U-Mo-Brennstoffes als zielführend angesehen. Daher erfolgten Betrachtungen, wie auch Experimente für jede einzelne Stoffkonfiguration von botton-up (also vom reinen U-Mo Ausgangsprodukt komend), genauso wie von top-down (d. h. von der Seite der fertigen Brennstoffplatte komend). Auch wurde der mögliche Einsatz von unterschiedlichen Interdiffusionsschichten, wie Zr oder Si, berücksichtigt.

Im Detail erfolgt dabei eine Auflösung aller Brennstoffkomponenten in HNO_3 -HF. Im Fall von Brennstoffplatten erfolgt eine Vorauflösung der Aluminiumumhüllung mittels Ätznitratlösung, gefolgt von der Auflösung des Brennstoffs mittels HNO_3 -HF. Die Reinigung des Urans erfolgt durch eine kontinuierliche, mehrstufige Lösungsmittelextraktion in einem Gegenstromverfahren. Dem folgt eine Umwandlung des entstehenden Urannitrates zurück in metallisches Uran. Diese Schritte wurden neben unterstützenden Modellrechnungen auch experimentell untersucht und die Gesamtergebnisse validiert. Allerdings muss darauf hingewiesen werden, dass bei diesen Abläufen auf die Vermeidung der Bildung von intermetallischem, hochexplosivem UZr_2 -Komplex geachtet werden muss. Auch sollten durch dazu mögliche Vermeidungsmaßnahmen die Effizienz der weiteren Prozessschritte nicht, oder nur in geringem Maße beeinträchtigt werden.

Ein wichtiger Punkt bei der Aufarbeitung von fertigen Brennelementplatten ist, dass jeder Hochleistungsforschungsreaktor u. a. konstruktionsbedingt leicht unterschiedliche Mengen an Aluminiumhüllmaterial benötigt. Beispielhafte, reaktorspezifische Wertebereiche der Molverhältnisse von Aluminiumhülle zu U-10Mo-Folien (d.h. Al / U) liegen für verschiedene Reaktoren und Positionen, bei Werten von 1,9 – 7,7 bis hin zu Werten von 4,9 – 24,8. Diese Daten sind von Relevanz, um die Auflösungsbedingungen der Materialien qualifiziert vorhersagen zu können und für eine gewisse Überwachung der Prozessablaufpläne. Die anfänglich durchgeführten experimentellen Untersuchungen fokussierten sich dabei auf Al / U-Molverhältnissen im Bereich von 2 bis 10. Abb. 4.25 zeigt das Fließschema eines exemplarischen Uranrückgewinnungsprozesses mit zugehörigen Konzentrationsangaben.

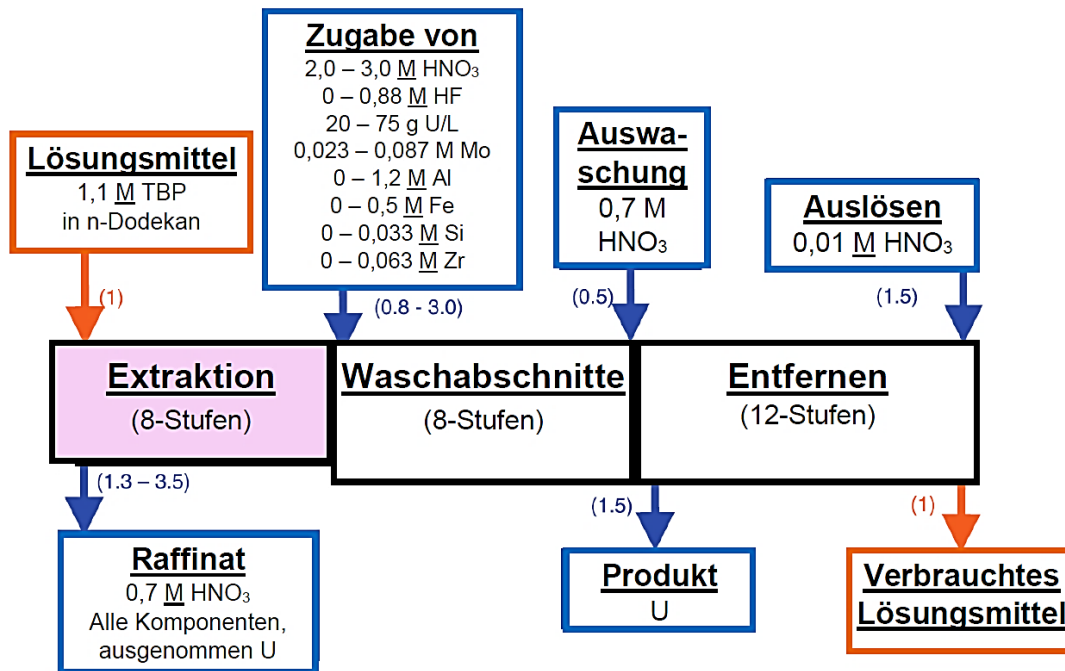


Abb. 4.25 Fließschema mit Konzentrationsangaben der einzusetzenden Chemikalien für die Uranrückgewinnung aus aufgelösten U-Mo-Herstellungsfragmenten

/YOU 12/

Beispielhaft seien hier nur einige der Auflösungsversuche benannt. Begonnen wurden mit reinen U-10Mo-Folien, d. h. ohne aufgebrachte Interdiffusionsschicht oder Aluminiumumhüllung. Es folgten Versuche mit U-10Mo-Folien mit Interdiffusionsschicht, wie auch U-10Mo-Folien mit Zr-Bindeschicht und Al-Umhüllung, aber auch die Anwendung von zweistufigen Auflösungsprozessen und Betrachtungen von U-8Mo-Folien. Diese Schritte wurden besonders zu einem möglichst vollständigen Verständnis der beteiligten Reaktionen durchgeführt.

Wie bereits zuvor erwähnt, ist die Bildung des intermetallischen, hochexplosiven U-Zr₂ Komplexes (bzw. intermetallischer Uran-Zirkonium-Phasen) unter allen Umständen zu vermeiden. Dies kann dadurch erfolgen, dass ein Molverhältnis von HF : Zr von 4 : 1 eingehalten wird, damit sich ein negativ geladener Fe-Mo-Komplex bilden kann und eine Ausfällung von Uranyl-molybdat verhindert wird. Hier kommt nicht nur der prinzipiellen Vorgehensweise, sondern auch den konkreten Molverhältnissen, eine entscheidende Sicherheitsrolle zu /YOU 12/.

Einschränkend muss zu diesen Ausführungen ergänzend erwähnt werden, dass sich die Untersuchungen auf die US-amerikanische Variante der AL-Umhüllung mit den dort

typischerweise eingesetzten Aluminiumlegierungen der 6000er-Serie beziehen. Bei dem aktuell speziell im europäischen Raum favorisierten C2TWP-Hüll-Verfahren der Brennstoffplatten (CEA CERCA TUM Welding Process), wird allerdings eine Framatome-eigene Legierung eingesetzt. Zu dieser Eigenentwicklung sind nur in höchst begrenztem Maße Materialeigenschaften des eingesetzten AlFeNi frei zugänglich. Daher ist man für tiefere Betrachtungen auf entsprechende zusätzlich veröffentlichten Veröffentlichungen zu diesem Thema angewiesen. Auch waren bis dato keine weitergehenden Aussagen über die detaillierte Ausgestaltung der geplanten Produktionsstraßen verfügbar.

Hinsichtlich einer möglichen späteren Aufarbeitung von bestrahltem Brennstoff, oder zu Fragen der Endlagerung in Form von selektiv abgetrennten Stoffen, können ohne Detailkenntnisse, wichtige Hinweise auf mögliche Gefahrenquellen dazu nicht abgeleitet werden, z. B. beim Entstehen von Uran-Zirkonium (UZi_2 , bzw. intermetallischen Uran-zirkonium-Phasen).

4.3.3 Gefahrenpotentiale bei der Herstellung von U-Mo-Brennstoffen sowie bei der Materialverarbeitung

Wie bereits ausgeführt treten bei der Herstellung von metallischem Uran mittels chemischer Reduktion von UF_4 stark exothermische Vorgänge auf. Eine der Sicherheitsmaßnahmen dabei ist, das verschlossene Prozessgefäß mit einer zusätzlichen Sicherheits-hülle zu umgeben und dieses mit zusätzlichem feuerfestem Sand (z. B. Magnesiumoxid) abzuschirmen. Auch ist in jedem Fall der Kontakt von Uranmetall mit Luft, Wasser oder Wasserdampf durch geeignete Sicherheitsvorkehrungen auszuschließen. Neben dem eigentlichen Prozessgut, gilt dies auch für kleine Ablagerungen von feinem Uranmetall oder -hydrid. Das dabei bestehende Gefahrenpotential ist wissenschaftlich durch entsprechende Parameterstudien der prinzipiellen Abhängigkeit der Zündtemperatur solcher Ablagerungen von der Umgebungstemperatur, der „Pulvermenge“ der Ablagerungen, der Partikeldurchmesser etc. bekannt. Allgemein geht es dabei aber mehr um operative Abläufe, damit sich entsprechende Ansammlungen gar nicht bilden können.

Ein besonders relevantes Sicherheitsproblem ergibt sich, wie bereits zuvor beschrieben, beim möglichen Einsatz von wässrigen Verfahren zur Rückgewinnung von Uran aus betrieblichem Produktionsausschuss. Hier ist die je nach Molkonzentration mögliche Bildung des hochexplosiven UZr-Komplexes eine größere Herausforderung. Wenn ein solches Verfahren eingesetzt wird, bedarf es neben einer genauen Festlegung der

eingesetzten Mengen, weiterer, mehrstufiger Sicherheitsverfahren, um der potenziellen Gefahr entsprechend Rechnung zu tragen, bzw. Vermeidungsstrategien zu entwickeln.

4.3.4 Materialbearbeitung und thermomechanische Verarbeitung

Unter dem Thema Materialbearbeitung und thermomechanische Verarbeitung werden alle Prozessschritte wie Schneiden, Scheren, Walzen in Form von Warmumformung und Kaltumformung, aber auch das reine Thermo-Homogenisieren von Material verstanden. Hier ist im Rahmen der allgemeinen Verarbeitung mit dem Anfallen von Spänen, Stäuben oder sonstigen Partikeln unterschiedlichster Art und Größe zu rechnen. Konkret können auch Materialien wie Aluminium und Zirkonium eine ausgesprochene Pyrophorizitätsgefahr darstellen. Unter Pyrophorizität versteht man die Eigenschaft eines Stoffes, dass dieser bei feiner Verteilung schon bei Raumtemperatur heftig mit Luftsauerstoff reagiert, und aufgrund freiwerdender Energie bis zu Selbstentzündung kommen kann.

Auch ist aus sicherheitstechnischen Gründen beim Einsatz von Schneid-, Schleif-, Schmier-, oder sonstigen Reinigungsmitteln zuvor die Kompatibilität mit dem zu bearbeiteten Stoff zu prüfen und eine zum Prozesseinsatz notwendige Qualifizierung durchzuführen. Ebenso gilt, dass beim notwendigen Einsatz von Inertgasen als Schutzatmosphäre jeweils das richtige Gas verwendet wird.

Hinsichtlich von, über einen längeren Zeitraum zu lagernden Stoffen (speziell von zu recycelnden Stoffen oder Abfälle) gilt allgemein, dass diese dazu zuvor in eine stabile (meist oxidische) Form überführt werden müssen, um das von ihnen ausgehende Risiko zu reduzieren.

Allgemein zeigen Untersuchungen zu gemeldeten Vorfällen, dass diese zumeist auf Mängel beim Betreiber oder Arbeitsfehler zurückzuführen sind. Dabei sind Mängel in der Konstruktion oder Ausrüstung, gefolgt von Defiziten administrativer Art in der Verwaltung oder des Verfahrens und Bediener- oder Arbeitsfehler zu nennen /LAH 19/. Hier ist bereits im Frühstadium des Anlagendesigns ein entsprechender Fokus auf eine Minimierung der unterschiedlichen Fehler- bzw. Mängelquellen zu richten.

Für weitere detailliertere Untersuchungen konkreter Produktionslinien sind, die noch nicht im benötigten Umfang fixierten, bzw. veröffentlichten Details zu den eingesetzten Produktionsschritten, bzw. zu den Produktionsgeräten von Nöten.

4.4 Sicherheit bei der Herstellung von Uran-Silizid und Uran-Molybdän Brennstoffen für Forschungsreaktoren, Zusammenfassung

Bei der Betrachtung und Bewertung der Sicherheit bei der Herstellung von U_3Si_2 wie auch U-Mo Brennstoff allgemein, soll hier der richtige Einsatz von Prozessstoffen, Prozessbedingungen, Inertgasen aber auch eine kontrollierte Behandlung und Abfuhr von Prozessabfällen allgemein vorausgesetzt sein.

Prozesse zur Lagerung, Transport und Verarbeitung von Uranhexafluorid, Urantetrafluorid, sowie die Herstellung von metallischem Uran sowie von Uransiliziden unter Verwendung von Urancarbid als Zwischenprodukt, sind in der Vergangenheit entwickelt und erprobt worden. Diese Prozesse sind zwar gut bekannt, nicht destotrotz besitzen einzelne Prozessschritte, wie beschrieben, ein ausgeprägtes Prozessrisiko hinsichtlich Toxizität, wie auch von exothermen Reaktionen. Bei Einhaltung der existierenden Regelwerke / Vorgaben können diese jedoch als erprobt zuverlässig eingestuft werden.

Speziell bei der Rückgewinnung von Uran aus U-Mo-Folienbrennstoff, sei es zur Reduzierung des produktionsbedingten Brennstoffausschusses oder im Rahmen für ein späteres Materialrecycling, ist dort das größte Gefahrenpotential zu sehen. Dabei muss im Rahmen der beschriebenen chemischen Auflösungsprozesse die Bildung von intermetallischem, hochexplosivem UZr_2 -Komplexen verhindert werden. Bei dem hier vorgestellten Auflösungsprozess ist aber bereits das reine Mengenverhältnis der beteiligten Reaktanten zur Vermeidung der hochexplosiven UZr_2 -Komplexen von entscheidender Bedeutung. Da Forschungsreaktor-Brennelemente extrem unterschiedlich in der Konstruktion aber auch in den Mengenausformungen einzelner Brennplatten ausgeführt sein können, ist für die eingesetzten Mengenverhältnisse die notwendige Genauigkeit sicherzustellen. Für diesen Prozess müssen demnach besondere Sicherheitsmaßnahmen, sowohl technischer als auch administrativer Art und Weise ergriffen werden, um einen sicheren Betrieb zu ermöglichen.

5 Zusammenfassung

Für belastbare Störfallanalysen und Sicherheitsbewertungen kerntechnischer Anlagen ist die Verfügbarkeit aktueller Methoden, Verfahren und Datengrundlagen auf dem Stand von Wissenschaft und Technik unerlässlich. Für Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung bedeutet dies insbesondere physikalisch-technische Prozessabläufe sowie die nukleare Sicherheit hinsichtlich der Einhaltung der Unterkritikalität.

In diesem Zusammenhang wurden die Teile A und D des seit längerem von der GRS erstellten „Handbuch zu Störfallanalysen für Anlagen der nuklearen Ver- und Entsorgung“ überarbeitet und erweitert.

Weiterhin erstellt und pflegt die GRS seit geraumer Zeit das „Handbuch zur Kritikalität“, deren zwei Teile des Band II, im Rahmen dieses Eigenforschungsvorhaben einer weiteren Revision unterzogen wurden, indem zusätzliche kritische Parameterkurven zu Uran-silizid, Uran-Molybdän und zahlreichen Actinoiden aufgenommen wurden. Die elektronische Version des Handbuchs, die eine computergestützte Anzeige und Auswertung der Daten mit Hilfe einer graphischen Oberfläche erlaubt, wurde erweitert.

Die Implementierung, Validierung und Bewertung aktueller numerischer Rechenverfahren erfolgte durch die Implementierung und Überprüfen von SCALE 6.3 und der darin enthaltenen Rechencodes SHIFT und TSUNAMI, der Erprobung der fixed-source- und weight-window-Optionen von SERPENT und einer Machbarkeitsstudie zur Anwendung von künstlichen Neuronalen Netzwerken zur Erstellung von kritischen Parameterkurven. An dem Rechenbenchmark zum Methodenvergleich bei der Bestimmung der Kritikalität von Endlagerbehälter im Rahmen der SG 13 der WPNCs, OECD-NEA wurde aktiv teilgenommen.

Die in früheren Eigenforschungsvorhaben begonnene Literaturbericht zu innovativen Kernbrennstoffkonzepten wurde fortgeschrieben. Neben einer Erweiterung um Methoden zur Reduzierung von radioaktiven Abfällen, speziell Partitionierung und Transmutation, Small Modular Reactors und beschleunigergetriebene, unterkritische Systeme, wurden die Herstellung und Verarbeitung von Uransilizid und Uran-Molybdän recherchiert.

Literaturverzeichnis

- /ADO 17/ Adorno Lopes, D., Benarosch, A., Middleburgh, S., Johnson, K.-D.: Spark plasma sintering and microstructural analysis of pure and Mo doped U₃Si₂ pellets. *Journal of Nuclear Materials*, Volume 496, S. 234–241, Dezember 2017.
- /ALT 08/ Altmaier, M., Kienzler, B., Marquardt, C. M., Neck, V., Brendler, V., Richter, A., Hagemann, S., Herbert, H.-J., Moog, H. C., Voigt, W., Wilhelm, S.: THEREDA: Ein Beitrag zur Langzeitsicherheit von Endlagern nuklearer und nichtnuklearer Abfälle. *Atw. Internationale Zeitschrift für Kernenergie*, 53(4), 249–253, 2008.
- /AME 25/ amentum, The ANSWERS Software Service Website (Hrsg.): MONK - Nuclear Criticality Safety, MONK, an advanced Monte Carlo software tool for nuclear criticality safety and reactor physics analysis. GB, Stand vom 2025-09, erreichbar unter <https://answerssoftwareservice.com/monk/>, 2025.
- /ANL 24a/ Argonne National Laboratory (ANL): Nuclear Science and Engineering - Software. Stand vom 15. Dezember 2024, erreichbar unter <https://www.anl.gov/nse/software>, abgerufen am 15. Dezember 2024.
- /ANL 24b/ Argonne National Laboratory (ANL): NEK – fast high-order scalable CFD. Stand vom 15. Dezember 2024, erreichbar unter <https://nek5000.mcs.anl.gov/>, abgerufen am 15. Dezember 2024.
- /ANS 96/ ANS: ANSI/ANS-8.15-1981; R1987; R1995; R2005: Nuclear Criticality Control of Special Actinide Elements. Hrsg.: *Trans. Am. Nucl. Soc.*, 75, 200, 1996.
- /ANS 14/ American Nuclear Society (ANS): American National Standard ANSI/ANS-8.15-2014: Nuclear Criticality Safety Control of selected Actinide Nuclides, (Reaffirmed September 12, 2019). American Nuclear Society: La Grange Park, IL, USA, Oktober 2014.

- /ASNR 24/ Nuclear Safety and Radiation Protection Authority (ASNR) (Hrsg.): Qualification report for the CRISTAL package made available to the international community, Nuclear safety. Erreichbar unter <https://research-assessment.asnr.fr/news/qualification-report-cristal-package-made-available-international-community#:~:text=CRISTAL:%20the%20French%20software%20suite,1%2C%20with%20sufficient%20safety%20margins.,> abgerufen am 2025-09.
- /AUR 25/ Aures, A., Eisenstecken, T., Elts, E., Kilger, R.: Nuclear data uncertainty propagation in continuous-energy Monte Carlo calculations. *Annals of Nuclear Energy*, Bd. 211, DOI 10.1016/j.anucene.2024.110955, 2025.
- /BAI 16/ Baiocco, G., Petruzzi, A., Cherubini, M.: Group constant generation for PARCS using Helios and Serpent and comparison to Serpent 3D model. 6th International Serpent User Group Meeting: Politecnico di Milano, Milan, Italy, 26. - 30. September 2016.
- /BAU 10/ Bauer, G. S.: Overview on spallation target design concepts and related materials issues. Forschungszentrum Jülich GmbH, *Journal of Nuclear Materials*, Volume 398, Issues 1-3, pages 19-27, 2010.
- /BAU 22/ Baumeister, B.: Advancements in Monolithic U-Mo Fabrication, Demonstration of Gradient Foil Fabrication and Development of a Pilot Physical Vapor Deposition Process for Full-Size U-Mo Foils. Dissertation, Fakultät für Physik, TUM: München, 4. April 2022.
- /BEH 14/ Behler, M., Hannstein, V., Kilger, R., Moser, E.-F., Pfeiffer, A., Stuke, M.: Quantifizierung der Rechengenauigkeit von Codesystemen zum Abbrandkredit durch Experimentnachrechnungen. GRS-336, 196 S., ISBN 978-3-944161-16-7, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: Köln, 2014.
- /BMUV 05/ Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, nukleare Sicherheit und Verbraucherschutz (BMUV): Sicherheitsanforderungen für Kernbrennstoffversorgungsanlagen vom April 1997 und Juni 2004, RS-Handbuch Kap. 3-11, Stand 06/05. BMUV S III 2, 58 S., 2005.

- /BOW 98/ Bowman, C. D.: Accelerator-driven systems for nuclear waste transmutation. *Annual Review of Nuclear and Particle Science*, Bd. 48, Nr. 1, S. 505–556, DOI 10.1146/annurev.nucl.48.1.505, 1998.
- /BRO 92/ Brown, L. G.: A survey of image registration techniques. *ACM Computing Surveys*, Bd. 24, Nr. 4, S. 325–376, DOI 10.1145/146370.146374, 1992.
- /BRO 04/ Broadhead, B. L., Rearden, B. T., Hopper, C. M., Wagschal, J. J., Parks, C. V.: Sensitivity- and Uncertainty-Based Criticality Safety Validation Techniques. *Nuclear Science and Engineering*, Bd. 146, Nr. 3, S. 340–366, DOI 10.13182/NSE03-2, 2004.
- /BRU 13/ Bruyn, D. de, Geerts, W. J.: Accelerator Driven Systems for Nuclear Waste Transmutation. *Nuclear Energy Encyclopedia: Science, Technology, and Applications*, Page 8 -16, 2013.
- /BUR 10/ Burkes, D. E., Mickum, G. S., Wachs, D. M.: Thermophysical Properties of U-10Mo Alloy. Hrsg.: INL, INL, INL/EXT-10-19373, erreichbar unter , Stand von 2010.
- /CEA 24/ CEA, I. (Hrsg.): Validation Of The Criticality Safety Cristal V2 Package On ICSBEP Benchmarks, Comparison Of The Three Calculation Routes. 2024.
- /CHA 11/ Chadwick, M. B., Herman, M. W., Obložinský, P., Dunn, M. E., Danon, Y., Kahler, A. C., Smith, D. L., Pritychenko, B., Arbanas, G., Arcilla, R., Brewer, R., Brown, D. A., Capote, R., Carlson, A. D., et al.: ENDF/B-VII.1 Nuclear Data for Science and Technology: Cross Sections, Covariances, Fission Product Yields and Decay Data. *Nuclear Data Sheets*, Bd. 112, Nr. 12, S. 2887–2996, DOI 10.1016/j.nds.2011.11.002, 2011.
- /CHO 07/ Cho, J. Y., Kim, K. S., Kim, H. Y., Lee, C. C., Zee, S. Q., Joo, H. G.: De-CART v1.2 User's Manual. Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI), 2007.
- /CLA 71/ Clayton, E. D.: Criticality Problems of Actinide Elements. Hrsg.: *Actinides Rev.*, 1, 409-432, 1971.

- /CLA 73/ Clayton, E.: The Nature of Fission and the Criticality Process: From Protactinium to Californium and Beyond. Hrsg.: Nucl. Sci. Eng., Vol 52, No 417, DOI 10.2172/4462458, 1973.
- /CLA 80/ Clark, H. K.: Subcritical Limits for Special Fissile Actinides. Nuclear Technology, Bd. 48, Nr. 2, S. 164–170, DOI 10.13182/NT80-A32462, 1980.
- /CLA 23/ Clarno, K. T., Barlow, J. E., Sawyer, T., Scherr, J., Hearne, J., Tsvetkov, P.: Evaluation of SCALE, Serpent, and MCNP for Molten Salt Reactor applications using the MSRE Benchmark. Annals of Nuclear Energy, Bd. 194, S. 110092, DOI 10.1016/j.anucene.2023.110092, 15. Dezember 2023.
- /DAL 11/ Dalcin, L. D., Paz, R. R., Kler, P. A., Cosimo, A.: Parallel distributed computing using Python. Advances in Water Resources, Bd. 34, Nr. 9, S. 1124–1139, DOI 10.1016/j.advwatres.2011.04.013, 2011.
- /DIN 13/ Deutsches Institut für Normung (DIN) e.V.: DIN 25712: Kritikalitätssicherheit unter Anrechnung des Brennstoffabbrands bei Transport und Lagerung bestrahlter Leichtwasserreaktor-Brennelemente in Behältern, Criticality safety taking into account the burnup of fuel for transport and storage of light water reactor fuel assemblies in cask. Berlin, Deutschland, März 2013.
- /DIN 21/ Deutsches Institut für Normung (DIN) e.V.: Einsatz von Berechnungssystemen beim Nachweis der Kritikalitätssicherheit. DIN 25478:2021-08, 16 S., Beuth Verlag GmbH: Berlin, 2021.
- /DOE 25/ Idaho National Laboratory (INL), Department of Energy (DOE): Multiphysics Object-Oriented Simulation Environment (MOOSE). Idaho National Engineering Laboratory (INL), Argonne National Laboratory (ANL), Los Alamos National Laboratory (LANL), Oak Ridge National Laboratory (ORNL), Stand vom 15. Dezember 2025, erreichbar unter <https://mooseframework.inl.gov/>, abgerufen am 15. Dezember 2025.
- /ENG 15/ Englert, M., Kirchner, G.: Gutachten Transmutation. Hrsg.: Kommission Lagerung hoch radioaktiver Abfallstoffe, K-MAT 48, Öko-Institut e.V., Universität Hamburg, Zentrum für Naturwissenschaft und Friedensforschung: Hamburg / Darmstadt, 8. Dezember 2015.

- /ESK 15/ ESK (Hrsg.): Partitionierung und Transmutation (P&T) als Option für die nukleare Entsorgung Wärme entwickelnder radioaktiver Abfälle in Deutschland, Diskussionspapier der Entsorgungskommission vom 18.06.2015. Erreichbar unter , Stand von 2015.
- /FER 05/ Ferencz, R. M., Parsons, D., Felker, F. F., Havstad, M. A., Castillo, V., Pierce, E. M.: DIABLO: Scalable, Implicit Multi-Mechanics for Engineering Simulation. DOI 10.13140/RG.2.2.10040.98563, Unpublished, 2005.
- /FIL 24/ Fildes, J., Richards, B., Simon, A., Cox, A., Fry, T., David, H., Jones, B., Long, D., Tantillo, F., Wright George, Hiles, R.: Recent Developments to the ANSWERS Monte Carlo Codes MONK and MCBEND. EPJ - Nuclear Sciences & Technologies, Volume 10, 2024.
- /FIS 23/ FISPACT-II: Documentation. UK Atomic Energy Authority, Stand vom 26. Mai 2023, erreichbar unter <https://fispact.ukaea.uk/documentation-2/>, abgerufen am 15. Dezember 2024.
- /FRM 24/ Technische Universität München, Forschungs-Neutronenquelle Heinz Maier-Leibnitz (FRM II) (Hrsg.): Brennstoff-Fertigung. München, erreichbar unter <https://www.frm2.tum.de/frm2/umruestung-frm-ii/brennstoff-fertigung/>, abgerufen am 13. März 2024.
- /GES 25a/ Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: Handbuch zur Störfallanalyse von nuklearen Ver- und Entsorgungseinrichtungen, Teil D - Exemplarische Anwendung der Störfallanalyse auf Einrichtungen der nuklearen Ver- und Entsorgung. GRS-510, ISBN 978-3-946607-95-3, Oktober 2025.
- /GES 25b/ Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: Handbuch zur Störfallanalyse von nuklearen Ver- und Entsorgungseinrichtungen, Teil A - Grundlagen der Störfallanalyse; Adendum. GRS-507, ISBN 978-3-946607-92-2: Garching b. München, Oktober 2025.
- /GIF 14/ Generation IV International Forum (GIF): Technology Roadmap Update for Generation IV Nuclear Energy Systems. OECD Nuclear Energy Agency (NEA), Januar 2014.

- /GIT 24/ Github: NJOY Nuclear Data Processing Code. Erreichbar unter <https://github.com/njoy>, abgerufen am 15. Dezember 2024.
- /GOM 17/ Gomes, D. S., Silva, A. T., Abe, A. Y., Muniz, R. O. R., Giovedi, C.: High Density Fuels Using Dispersion And Monolithic. Hrsg.: ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE ENERGIA NUCLEAR (ABEN), International Nuclear Atlantic Conference (INAC): Belo Horizonte, MG, Brazil, 2017.
- /GOO 94/ Goossens, M., Mittelbach, F., Samarin, A.: The LATEX Companion. Addison-Wesley. Reading: Massachusetts, 1994.
- /GRS 15/ Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH (GRS): Handbuch zur Kritikalität, Band 1: Kritikalität und nukleare Sicherheit. GRS-379, ISBN 978-3-944161-60-0: Garching b. München, 2015.
- /GRS 19a/ Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: Handbuch zur Störfallanalyse von nuklearen Ver- und Entsorgungseinrichtungen, Teil A - Grundlagen der Störfallanalyse. GRS-507, ISBN 978-3-946607-92-2: Garching b. München, April 2019.
- /GRS 19b/ Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: Handbuch zur Störfallanalyse von nuklearen Ver- und Entsorgungseinrichtungen, Teil B - Physikalisch-chemische Grundlagen der Störfallanalyse. GRS-508, ISBN 978-3-946607-93-9: Garching b. München, Juli 2019.
- /GRS 19c/ Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: Handbuch zur Störfallanalyse von nuklearen Ver- und Entsorgungseinrichtungen, Teil C, Auswertung der Betriebserfahrung von Vorkommnissen. GRS-509, ISBN 978-3-946607-94-6: Garching b. München, Juli 2019.
- /GRS 19d/ Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH (GRS): Handbuch zur Kritikalität, Band 2 - Zusammenstellung der Kritikalitätskenngrößen, Teil 1 - Daten für ²³⁵Uran, überarbeitete Auflage. GRS-380, ISBN 978-3-944161-61-7: Garching b. München, Juni 2019.

- /GRS 19e/ Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH (GRS): Handbuch zur Kritikalität, Band 2 - Zusammenstellung der Kritikalitätskenngrößen, Teil 2 - Daten für Plutonium, ²³³Uran und höhere Aktinoide, überarbeitete Auflage. GRS-381, ISBN 978-3-944161-62-4: Garching b. München, Juli 2019.
- /GRS 25a/ Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH (GRS): Criticality Handbook (Volume 2): Compilation of Criticality Parameters, Part 2: Data for Plutonium, ²³³Uranium and Higher Actinides. GRS-673, ISBN 978-3-949088-64-3: Garching b. München, November 2025.
- /GRS 25b/ Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH (GRS): Criticality Handbook (Volume 2): Compilation of Criticality Parameters, Part 1: Data for ²³⁵Uranium. GRS-672, ISBN 978-3-949088-63-6: Garching b. München, November 2025.
- /GUI 00/ Guigon, B., Vacelet, H., Dornbusch, D.: A new MTR fuel for a new MTR reactor: UMo for the Jules Horowitz reactor. Hrsg.: International Atomic Energy Agency (IAEA), 2000.
- /HÄF 94/ Häfele, W.: Beschleuniger-gestützte Kernreaktoren: Die Vorschläge von C. Rubbia und C. D. Bowman. Physik Journal, Bd. 50, Nr. 10, S. 935–938, DOI 10.1002/phbl.19940501007, 1994.
- /HOE 11/ Hoefler, A., Buss, O., Neuber, J. C.: How confident can we be in confidence intervals for the computational bias obtained with the generalized linear least squares methodology?-a toy model analysis. Proc. International Conference on Nuclear Criticality (ICNC 2011), 2011.
- /HOE 15/ Hoefler, A., Buss, O., Hennebach, M., Schmid, M., Porsch, D.: MOCABA: A general Monte Carlo–Bayes procedure for improved predictions of integral functions of nuclear data. Annals of Nuclear Energy, Bd. 77, S. 514–521, DOI 10.1016/j.anucene.2014.11.038, 2015.
- /HOE 19/ Hoefler, A., Buss, O., Schmid, M.: Applications of multivariate normal bayesian models in nuclear engineering. Nuclear Technology, 2019.

- /HOE 21/ Hoefler, A., Stuke, M.: Specification of an Intercomparison Exercise on Bias and Correlated Data, Comparison of Methods, Working Party on Nuclear Criticality Safety (WPNCS), Subgroup 11. OECD Nuclear Energy Agency (NEA), Juli 2021.
- /HOL 23/ Holmström, S., Wight, J., Leenaers, A., Kalcheva, S., Baumeister, B., Stepnik, B., Rontard, C., Calzavara, Y., Valance, S.: High loaded and high density fuel irradiations within the EU QUALIFY project. In: European Nuclear Society (ENS) (Hrsg.): European Research Reactor Conference 2023. 4. April 2023, S. Proceeding S.615, April 2023.
- /HUE 20/ Huet, F.: LVR15 Fuel element qualification report, Milestone D 4.7, LEU-FOREVER. Hrsg.: Technic Atome, Januar 2020.
- /IAEA 98/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Towards an Extension of the Definition of Fissile Materials and Their Mass Exemption Limits, 3rd Meeting of the Transport Safety Standards Advisory Committee (TRANSAC III). Hrsg.: IAEA, Division of Radiation and Waste Safety: IAEA Headquarters, Vienna, 4. Mai 1998.
- /IAEA 16/ International Atomic Energy Agency (IAEA) (Hrsg.): Developments in reactor and economic modelling considering the performance of accident tolerant fuels, Accident Tolerant Fuel Concepts for Light Water Reactors. IAEA-TECDOC-1797, 978-92-0-105216-2: Vienna, 2016.
- /IAEA 20/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Material Properties of Unirradiated Uranium–Molybdenum (U–Mo) Fuel for Research Reactors. IAEA-TECDOC-, Bd. 1923, ISBN 978-92-0-115720-1, 2020.
- /IFA 22/ Institut für Arbeitsschutz der Deutschen Gesetzlichen Unfallversicherung (IFA) (Hrsg.): Stoffdatenblatt Uranylinitrat - UO₂(NO₃)₂. Gefahrstoffinformationssystem GESTIS, 16 S., Stand vom 5. August 2022, erreichbar unter <https://gestis.dguv.de/data?name=005530>, 2022.
- /INL 12/ Idaho National Engineering Laboratory (INL) (Hrsg.): 14th International Workshop on Nuclear Safety and Simulation (IWNSS). Oktober 2012, Oktober 2012.

- /INL 18/ Idaho National Laboratory (INL) (Hrsg.): Thermal and Transport Properties of U3Si2. Journal of Nuclear Materials / INL/JOU-17-42333-Revision-0, Volume 508, Page 154 - 158: Journal of Nuclear Materials, September 2018.
- /IPF 17/ IPFM Blog (Hrsg.): Monju reactor is finally shut down. Erreichbar unter <https://fissilematerials.org/cgi-bin/mt/mt-search.cgi?IncludeBlogs=3&tag=Monju&limit=999>, Stand vom 13. Dezember 2017.
- /JAC 23/ Jacobs Engineer Group Inc. (Hrsg.): A Monte Carlo Program for Nuclear Criticality Safety and Reactor Physics Analyses. Stand vom 2025-09, erreichbar unter https://mathrad.ac.uk/wp-content/uploads/2023/06/MONK_Overview.pdf, 2023.
- /JOR 92/ Jordan, W. C., Turner, J. C.: Estimated critical conditions for UO2F2-H2O Systems in fully water-reflected spherical geometry. Oak Ridge National Laboratory (ORNL), TM-12292: Oak Ridge, USA, 1992., 1992.
- /KIL 09/ Kilger, R., Moser, E.-F., Behler, M.: Neuberechnung von kritischen Parametern und deren Validierung für das GRS "Handbuch zur Kritikalität", Ausgabe 2009, Abschlussbericht zum Vorhaben 3606R02536. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH (GRS), GRS-A-Bericht, GRS-A-3532, Oktober 2009.
- /KIM 12/ Kim, T. K.: Metal Fuel Development for Sodium-Cooled Fast Reactors. Journal of Nuclear Materials, 425(1-3), page 23-33, 2012.
- /KIM 20/ Kim, Y. S., Chae, H. T., van den Berghe, S., Leenaers, A., Kuzminov, V., Yacout, A. M.: Aluminum cladding oxide growth prediction for high flux research reactors. Journal of Nuclear Materials, Bd. 529, S. 151926, DOI 10.1016/j.jnucmat.2019.151926, 2020.
- /KIR 06/ Kirk, B. S., Peterson, J. W., Stogner, R. H., Carey, G. F.: libMesh: A C++ Library for Parallel Adaptive Mesh Refinement/Coarsening Simulations. Hrsg.: Engineering with Computers, 22, 3-4, 237-254, DOI 10.1007/s00366-006-0049-3, 2006.

- /KIT 24/ KIT-INR Teams - Analysis of Beyond Design Nuclear Events - Multi Physics Codes: ERANOS Code. Stand vom 15. Dezember 2024, erreichbar unter <https://www.inr.kit.edu/english/977.php>, abgerufen am 15. Dezember 2024.
- /KOG 20/ Koga, K.: Unloading and Handling Technology of the Fuel Assembly in Prototype Fast Breeder Reactor "Monju". Hrsg.: Fuji Electric Review, erreichbar unter , Stand von 2020.
- /KOO 21/ Kooyman, T.: Current state of partitioning and transmutation studies for advanced nuclear fuel cycles. Hrsg.: Elsevier, Volume 157, July 2021, 2021.
- /KOP 00/ Kopka, H.: LaTeX. Addison-Wesley scientific computing, 3. Aufl., XXII, 521 S., ISBN 3-8273-1557-3, Addison-Wesley: Bonn [u.a.], 2000.
- /KUL 22/ Kulesza, J., Adams, T., Armstrong, J., Bolding, S., Brown, F., Bull, J., Burke, T., Clark, A., Forster, R., III, Giron, J., Grieve, T., Josey, C., Martz, R., McKinney, G., et al.: MCNP® Code Version 6.3.0 Theory & User Manual. DOI 10.2172/1889957, 2022.
- /LAH 19/ LaHaye, N. L., Burkes, N. L.: Metal Fuel Fabrication Safety and Hazards. TO NRC-HQ-25-17-T-005, erreichbar unter <https://www.nrc.gov/docs/ML1919/ML19193A057>, abgerufen am 13. März 2023.
- /LAI 23/ Lai, H., Wang, H., Gao, Q., Yang, Y., Wu, X., Fang, P., Guo, Y., Yang, L.: Radiation characteristics analysis for spallation products of lead-bismuth target and tungsten-iron-nickel target. Applied radiation and isotopes : including data, instrumentation and methods for use in agriculture, industry and medicine, Bd. 194, April 2023, S. 110728, DOI 10.1016/j.apradiso.2023.110728, 2023.
- /LANL 25a/ Los Alamos National Laboratory (LANL): Monte Carlo N-Particle MCNP®. Stand vom 15. Dezember 2024, erreichbar unter <https://mcnp.lanl.gov/manual.html>, abgerufen am 15. Dezember 2024.

- /LANL 25b/ Los Alamos National Laboratory (LANL): Nuclear Data Libraries. Stand vom 15. Dezember 2024, erreichbar unter <https://nucleardata.lanl.gov/>, abgerufen am 15. Dezember 2024.
- /LAV 04/ Lavarenne, C., Mennerdahl, D., Dean, C.: Evaluation of nuclear criticality safety data and limits for actinides in transport. Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), IRSN Report, C4/TMR2001/200-1, 67 S., 21. April 2004.
- /LEB 16/ LeBlanc, D.: Molten Salt Reactors: A New Beginning for an Old Idea. Nuclear Engineering and Technology, 48 (2), page 387 - 395, 2016.
- /LUM 24/ LUMITOS: Chemie.de Lexikon, Das führende Fachportal für die Chemie-Branche vom Labor bis zum Prozess. Erreichbar unter <https://www.chemie.de/lexikon/>, abgerufen am 27. August 2024.
- /LUX 12/ Luxembourg: Publications Office of the European Union. (Hrsg.): Accelerator-Driven Systems (ADS) and Fast Reactors (FR) in Advanced Nuclear Fuel Cycles. European Commission, Joint Research Center (JRC), 2012.
- /MAH 18/ Maharramova, S., Beere, W., Eitrheim, K., Reistad, O., Walderhaug, T.: Comparison of HELIOS-2.1 and SCALE-6.1 codes on pin-cell model. Annals of Nuclear Energy, Bd. 117, S. 155–164, DOI 10.1016/j.anucene.2018.03.026, 2018.
- /MAH 22/ Mahmoud, J., Higginson, M., Thompson, P., Gilligan, C.: Rapid separation of americium from complex matrices using solvent impregnated triazine extraction chromatography resins. Elsevier: Journal of Chromatography A, 2022.
- /MAN 22/ Man-Sung Yim: Nuclear Waste Management, Science, Technology, and Policy. Korea Advanced Institute of Science and Technology, ISBN 978-94-024-2104-0, 2022.
- /MAS 25/ Massachusetts Institute of Technology, UChicago Argonne LLC, and OpenMC contributors (Hrsg.): The OpenMC Monte Carlo Code, Version 0.1.5.2. Erreichbar unter , Stand von 2025.

- /MAT 81/ MATPRO - Version 11 (Rev. 2) A Handbook of Material Properties for Use in the Analysis of Light Water Reactor Fuel Behavior: NUREG/CR-0497, TREE-1280. Idaho National Engineering Laboratory (INL), NUREG/CR-, 0497, TREE-1280, 2. Aufl.: Idaho Falls, 1981.
- /MAU 78/ Maubert, L.: Standard de Criticite - Valeurs Minimales Critiques, CEA-N-2051. 1978.
- /MEI 21/ MEI, Z., YE, B., Yacout, A. M.: Structural and dynamical properties of different phases of U₃Si₂ from ab initio molecular dynamics simulations, European Research Reactor Conference, 2021. Hrsg.: European Research Reactor Conference (RRFM), Argonne National Laboratory (ANL), RRFM21_U₃Si₂_ZMei_FINAL-64-483-Mei-Zhigang.pdf, 2021.
- /MIT 18/ Mitchell, M.: Engauge Digitizer. Version 10.6, erreichbar unter <http://markummittchell.github.io/engauge-digitizer/>, abgerufen am 9. April 2018.
- /MUL 21/ Mulder, E. J.: Overview of X-Energy's 200 MWth Xe-100 Reactor. Hrsg.: National Academy of Sciences, erreichbar unter , Stand vom 13. Januar 2021.
- /MYR 22/ MYRRHA (Hrsg.): Technological milestone for MYRRHA: 1st superconducting cavity is ready, A true technological milestone has already been achieved for the MYRRHA Accelerator Driven System (ADS). Erreichbar unter <https://myrrha.be/news/technological-milestone-myrrha-1st-superconducting-cavity-ready>, abgerufen am 22. Februar 2024.
- /NEA 05/ OECD Nuclear Energy Agency (NEA): The Safety of the Nuclear Fuel Cycle, Third Edition. NEA No. 3588, 321 S., ISBN 92-64-01421-7, OECD Publishing: Paris, 2005.
- /NEA 12/ NEA Nuclear Development (NEA): Burn-Up Credit Criticality Safety Benchmark—Phase VII, UO₂ Fuel: Study of Spent Fuel Compositions for Long-Term Disposal. OECD Nuclear Energy Agency (NEA), Nr. 6998: Paris, 2012.

- /NEA 16/ OECD Nuclear Energy Agency (NEA): International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments. NEA/NSC/DOC(95)03, NEA No. 7328: Vienna, Austria, September 2016.
- /NEA 19/ OECD Nuclear Energy Agency (NEA) (Hrsg.): International Criticality Safety Benchmark Evaluation Project (ICSBEP), Handbook 2019. NEA/NSC/DOC(95)03, DOI 10.1787/e2703cd5-en: Paris, Juni 2019.
- /NEA 24/ OECD Nuclear Energy Agency (NEA) (Hrsg.): International Criticality Safety Benchmark Evaluation Project (ICSBEP), Handbook 2022, 2023. NEA/NSC/DOC(95)03: Paris, November 2024.
- /NEU 09/ Neuber, J. C., Hoefer, A.: Frequentist and bayesian approach in criticality safety uncertainty evaluations. 2009 ANS Nuclear Criticality Safety Division Topical Meeting, NCSD, 2009.
- /NGU 21/ Nguyen, T. D. C., Lee, H., Du, X., Dos, V., Tran, T. Q., Lee, D.: Macroscopic cross sections generation by Monte Carlo Code MCS for fast reactor analysis. EPJ Web of Conferences, Bd. 247, S. 2007, DOI 10.1051/epjconf/202124702007, 2021.
- /NOB 24/ Nobre, G., Brown, D., Arcilla, R., Coles, R., Shu, B.: Progress towards the ENDF/B-VIII.1 release. EPJ Web of Conferences, Bd. 294, S. 4004, DOI 10.1051/epjconf/202429404004, 2024.
- /NRC 88/ NRC, U.S. Nuclear Regulatory Commission (Hrsg.): NUREG-1313, Safety Evaluation Report related to the Evaluation of Low-Enriched Uranium Silicide-Aluminum Dispersion Fuel for Use in Non-Power Reactors. Juli 1988.
- /NSC 16/ NEA Nuclear Science Committee (NSC): Benchmark for Neutronic Analysis of Sodium-cooled Fast Reactor Cores with Various Fuel Types and Core Sizes. Hrsg.: OECD Nuclear Energy Agency (NEA), NEA/NSC/R(2015)9, 87 S., Februar 2016.
- /NUC 24/ Nuclear Engineering (Hrsg.): New fuel types explored for BN-1200 reactor. Stand vom 2025-11, erreichbar unter <https://www.neimagazine.com/news/new-fuel-types-explored-for-bn-1200-reactor/>, 2024.

- /NUG 19/ NUGENIA (Hrsg.): ERMSAR 2019. 1 online resource, ISBN 978-80-270-5809-9, NUGENIA = Nuclear Generation Association: [S. l.], 2019.
- /OAK 24/ Oak Ridge National Laboratory: SCALE 6.3.2 User Manual, Introduction. Erreichbar unter <https://scale-manual.ornl.gov/index.html>, abgerufen am 15. Dezember 2024.
- /OFF 23/ Office of Defense Nuclear Nonproliferation (Hrsg.): Baseline Fuel Fabrication Facility, PRO-X-2023-001. Argonne National Laboratory (ANL), ANL/CFCT-23/3, März 2023.
- /ORNL 12/ Oak Ridge National Laboratory (ORNL): SCALE: A Comprehensive Modeling and Simulation Suite for Nuclear Safety Analysis and Design. Version 6.1.2, ORNL/TM-2005/39, available from Radiation Safety Information Computational Center as CCC-785: Oak Ridge, TN, USA, 2012.
- /OWE 90/ Owen, A. B.: Empirical Likelihood Ratio Confidence Regions. The Annals of Statistics, Bd. 18, Nr. 1, DOI 10.1214/aos/1176347494, 1990.
- /PAR 19/ Park, H. J., Kang, H., Lee, H. C., Cho, J. Y.: Comparison of ENDF/B-VIII.0 and ENDF/B-VII.1 in criticality, depletion benchmark, and uncertainty analyses by McCARD. Annals of Nuclear Energy, Bd. 131, S. 443–459, DOI 10.1016/j.anucene.2019.04.012, 2019.
- /PHY 24/ Physics Forums: CASMO-5 vs HELIOS: Comparing Lattice Codes. Stand vom 15. Dezember 2024, erreichbar unter <https://www.physicsforums.com/threads/casmo-5-vs-helios-comparing-lattice-codes.375872/>, abgerufen am 15. Dezember 2024.
- /PIS 23/ Pistner, C., Englert, M., Hirschhausen, C. von: Analyse und Bewertung des Entwicklungsstands, der Sicherheit und des regulatorischen Rahmens für sogenannte neuartige Reaktorkonzepte.: Hrsg.: Bundesamt für die Sicherheit der nuklearen Entsorgung (BASE), Dezember 2023.
- /RAC 13/ Rachamin, R., Wemple, C., Fridman, E.: Neutronic analysis of SFR core with HELIOS-2, Serpent, and DYN3D codes. Annals of Nuclear Energy, Nr. 55, S. 194–204, 2013.

- /RAF 15/ Raftery, A. M.: Fabrication and Characterization of UN-USix Nuclear Fuel. MasterThesis, Reactor Physics Department, KUNGLIGA TEKNISKA HÖGSKOLAN (KTH): Stockholm, Sweden, 2015.
- /REA 02/ Rearden, B. T.: Investigations and Recommendations on the Use of Existing Experiments in Criticality Safety Analysis of Nuclear Fuel Cycle Facilities for Weapons-Grade Plutonium. DOI 10.2172/814409, 2002.
- /REA 17/ Rearden, B. T., Jessee, M. A. (Hrsg.): SCALE Code System. Oak Ridge National Laboratory (ORNL), ORNL/TM-2005/39, Version 6.2.2, 2747 S.: Oak Ridge, Tennessee, Februar 2017.
- /REB 23/ Rebak, R. B.: Improved and Innovative Accident-Tolerant Nuclear Fuel Materials Considered for Retrofitting Light Water Reactors, A Review. GE Research, corrosion and materials degradation, Bd. 4, Volume 4 /Issue 3/ 10.3390/cmd4030024 // 3, DOI 10.3390/cmd4030024, 24. August 2023.
- /REI 25/ Reiche, T., Kilger, R., Sommer, F.: Anwendung von künstlichen Neuronalen Netzwerken auf die Berechnung von kritischen Parameterkurven, Erweiterte Machbarkeitsstudie und erste Anwendungen. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS - 804, ISBN 978-3-910548-97-8: Garching b. München, September 2025.
- /REN 13/ Renn, O. (Hrsg.): Partitionierung und Transmutation, Forschung - Entwicklung - Gesellschaftliche Implikationen. acatech, acatech STUDIE, 292 S., Herbert Utz Verlag: München, Dezember 2013.
- /REN 14/ Renn, O. (Hrsg.): Partitionierung und Transmutation, Forschung, Entwicklung, gesellschaftliche Implikationen. Deutsche Akademie der Technikwissenschaften, acatech STUDIE, 291 pages, ISBN 9783831643806, Herbert Utz Verlag GmbH: München, 2014.
- /REU 14/ Richtlinie 2014/87/Euratom des Rates vom 8. Juli 2014 zur Änderung der Richtlinie 2009/71/Euratom über einen Gemeinschaftsrahmen für die nukleare Sicherheit kerntechnischer Anlagen (2014/87/Euratom) zuletzt geändert 25. Juli 2014 (Amtsblatt der Europäischen Union L 219/42 DE).

- /RIM 22/ Rimpault, G., Plisson, D., Tommasi, J., Jacqmin, R., Rieunier, J.-M., Verrier, D., Biron, D.: The ERANOS Code and Data System for Fast Reactor Neutronic Analysis. In: American Nuclear Society (ANS) (Hrsg.): International Conference on Physics of Reactors (PHYSOR 2002). PHYSOR 2002, Seoul, South Korea, 7. - 10. Oktober 2002, ISBN 9781713827788, Oktober 2002/Oktober 2002.
- /ROC 23/ Rochman, D., Taforeau, J., Simeonov, T., Shama, A.: Comparison of calculated and measured spent nuclear fuel decay heat with CASMO5, SNF and standard methods. Nuclear Engineering and Design, Bd. 410, DOI 10.1016/j.nucengdes.2023.112392, 15. August 2023.
- /ROD 66/ Rode, J. A.: Verfahren zur Umwandlung von Uranhexafluorid in Urantetrafluorid, Verfahren zur Umwandlung von Uranhexafluorid in Urantetrafluorid. Hrsg.: United Nuclear Corp, DE1967U0014378, 1966.
- /RRFM 22/ European Research Reactor Conference (RRFM) (Hrsg.): Efficient balance between research and production tasks at IVV-2M research reactor, European Research Reactor Conference. Institute of Nuclear Materials, (INM JSC), 2022.
- /RUB 95/ Rubbia, C., Rubio, J. A., Buono, S., Carminati, F., Fiétier, N., Galvez, J., Gelès, C., Kadi, Y., Klapisch, R., Mandrillon, P., Revol, J. P., Roche, C.: Conceptual Design of a Fast Neutron Operated High Power Energy Amplifier. CERN, CERN/AT/95-44 (ET): Genf, 29. September 1995.
- /SAL 02/ Salvatores, M.: The physics of transmutation in critical or subcritical reactors. Hrsg.: Elsevier, CEA, Comptes Rendus Physique, Volume 3, Issues 7–8, September–October 2002, Pages 999-1012: Cadarache, France, 2002.
- /SAN 03/ Sanchez, R. G.: Criticality of a ^{237}Np Sphere. Hrsg.: Proceedings of the International Conference on Nuclear Criticality (ICNC): Tokai-mura, Japan, 2003.

- /SIH 20/ Sihong, H., Jiejun, C.: The potentiality of thermal safety and economy of the U3Si2-SiC system in PWR. Annals of Nuclear Energy, Bd. 2020, Volume 140, 1,
- /SMI 07/ Smith, A. R.: CANDU Fuel Cycles and Their Evolution. Journal of Nuclear Science and Technology, 44(1), page 3 - 15, 2007.
- /SOM 19/ Sommer, F., Bartos, O., Behler, M., Hannstein, V., Kaufholz, P., Kilger, R., Krüger, J., Rowold, F.: Bereitstellung und Weiterentwicklung von Methoden, Daten und Rechenmethoden zu nuklearen Sicherheitsanalysen. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH (GRS), GRS-Bericht, GRS-542, ISBN 978-3-947685-27-1: Garching, 2019.
- /SOM 22/ Sommer, F., Behler, M., Hannstein, V., Kaufholz, P., Kilger, R., Kolbasseff, A.: Bereitstellung und Weiterentwicklung von Methoden, Daten und Rechenmethoden zu nuklearen Sicherheitsanalysen: 2020 - 2022, Abschlussbericht zum Forschungsvorhaben 4719E03320. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-Bericht, GRS-682, ISBN 978-3-949088-73-5: Köln, August 2022.
- /STU 11/ Studsvik: HELIOS-2 Methods Manual, (Version 2.1). SSP-11/452 Rev 1, 16. Dezember 2011.
- /STU 16/ Stuke, M., Peters, E., Sommer, F.: Generation of Integral Experiment Covariance Data and their Impact on Criticality Safety Validation. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH (GRS), GRS - 440, 97 S., ISBN 978-3-946607-22-9, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, 2016.
- /STU 23/ Stuke, M., Hofer, A.: Role of Integral Experiment Covariance Data for Criticality Safety Validation, EG UACSA Benchmark Phase I. Hrsg.: OECD Nuclear Energy Agency (NEA), NEA/NSC/R(2021); JT03510848, Januar 2023.
- /STU 24a/ Studsvik: HELIOS-2. Stand vom 19. November 2024, erreichbar unter <https://www.studsvik.com/de/key-offerings/nuclear-simulation-software/software-produkte/helios-2/>, abgerufen am 15. Dezember 2024.

- /STU 24b/ Studsvik: CASMO5. Stand vom 19. November 2024, erreichbar unter <https://www.studsvik.com/de/key-offerings/nuclear-simulation-software/software-produkte/casmo5/>, abgerufen am 15. Dezember 2024.
- /STU 25/ Studsvik (Hrsg.): Spent Nuclear Fuel Code, SNF, Calculation of isotopic concentrations, radiation source terms, and decay heat of spent light water reactor (LWR) fuel. Erreichbar unter <https://www.studsvik.com/key-offerings/nuclear-simulation-software/software-products/snf/>, abgerufen am 2025-09.
- /SUB 17/ Sublet, J.-C., Eastwood, J. W., Morgan, J. G., Gilbert, M. R., Fleming, M., Arter, W.: FISPACT-II: An Advanced Simulation System for Activation, Transmutation and Material Modelling. Nuclear Data Sheets, Bd. 139, S. 77–137, DOI 10.1016/j.nds.2017.01.002, 2017.
- /TRA 25/ Travleev, A.: Analysis of the fixed-source option and the weight-window implementation in Serpent. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) GmbH, GRS-842: Garching b. München, November 2025.
- /UKA 24/ UK Atomic Energy Authority: FISPACT-II. Erreichbar unter <https://fispact.ukaea.uk/>, abgerufen am 15. Dezember 2024.
- /VAN 10/ Vandenberghe, R. E., Vandecasteele, C., Cnudde, V.: Radioactive Waste Disposal: An ADS Point of View. Waste Management, 30(2), 222-231, 2010.
- /VAN 14/ van den Berghe, S., Lemoine, P.: Review of 15 years of high-density low-enriched UMo dispersion fuel development for research reactors in europe. Nuclear Engineering and Technology, Bd. 46, Nr. 2, 2014.
- /VAS 21/ Vasiliev, B.A., Belov, S. B., Kiselev, A. V., Eliseev, V. A., Khomiakov, I., Rodina, E. A.: Unification of the BN-1200 reactor core designs with MOX and MNUP fuel. Hrsg.: Science Direct, Nuclear Engineering and Design, Volume 382, 10/2021, 111387, 2021.

- /VAS 23/ Vasiliev, A., Frankl, M., Rochman, D., Wittel, M.: Comparison of Criticality Safety Evaluations + Burn Up credit approaches: Assessment of a pseudo-application case with user-defined NCS criteria (WPNCs SG13), Benchmark specifications. Hrsg.: OECD Nuclear Energy Agency (NEA), Paul Scherrer Institute (PSI), 25. September 2023.
- /VTT 24a/ Technical Research Centre of Finland (VTT): Kraken Wiki. Stand vom 9. Oktober 2024, erreichbar unter https://serpent.vtt.fi/kraken/index.php/Main_Page, abgerufen am 15. Dezember 2024.
- /VTT 24b/ Technical Research Centre of Finland (VTT): Serpent - a Continuous-energy Monte Carlo neutron and photon transport code. Stand vom 4. Oktober 2024, erreichbar unter <https://serpent.vtt.fi/serpent/>, abgerufen am 15. Dezember 2024.
- /WER 17/ Werner, C. J. (Hrsg.): MCNP, User's Manual Code Version 6.2. Los Alamos National Laboratory (LANL), La-UR-17-29981, 746 S.: Los Alamos, NM, USA, 2017.
- /WES 81/ Westfall, R. M.: Critical Masses for the Even-Neutron-Numbered Transuranium Actinides. Nuclear Science and Engineering, Bd. 79, Nr. 2, S. 237–239, DOI 10.13182/NSE81-4, 1981.
- /WIE 24/ Wieselquist, W. A., Lefebvre, R. A., Eds.: SCALE 6.3.2 User Manual. ORNL/TM-2024/3386, Oak Ridge National Laboratory (ORNL): UT-Battelle, erreichbar unter <https://scale-manual.ornl.gov/index.html>, abgerufen am 15. Dezember 2024.
- /WIG 22/ Wight, J., Holmström, S.: TRL analysis of existing RR fuel systems, manufacturing methods & assembly design classes, LEU FOREvER. Hrsg.: SCK-CEN, Ref. Ares(2022)2511916 - 04/04/2022, D4.8, 4. April 2022.
- /WIG 23/ Wight, J., Valance, S., Holmström, S.: Innovation and qualification of LEU research reactor fuels and materials, Euratom Research and Training in 2022: challenges, achievements and future perspectives. Hrsg.: EPJ Nuclear Science and Technology, Volume 9, 2023.

- /WIL 25/ Wilkie G. J.: Demonstration of OpenMC as a framework for atomic transport and plasma interaction. *Plasma Phys. Control. Fusion* 67 055046, 2025.
- /WIS 23/ Wissenschaftlicher Dienst des Deutschen Bundestags (Hrsg.): Partitionierung und Transmutation, Sachstand. 2023 Deutscher Bundestag, WD8-3000-09/12, erreichbar unter , Stand von 2023.
- /WNA 20/ World Nuclear Association (WNA) (Hrsg.): Processing of Used Nuclear Fuel. Stand vom 2020-12, erreichbar unter <https://world-nuclear.org/information-library/nuclear-fuel-cycle/fuel-recycling/processing-of-used-nuclear-fuel>, abgerufen am 20. Februar 2024.
- /WOO 20/ Wood, E. S., Moczygemba, C., Robles, G., Acosta, Z., Brigham, B. A., Grote, C. J., Metzger, K. E., Cai, L.: High temperature steam oxidation dynamics of U₃Si₂ with alloying additions: Al, Cr, and Y. Hrsg.: Elsevier, U.S. Department of Energy, Office of Scientific and Technical Information, Report-Number LA-UR-19-27149, Februar 2020.
- /YAN 24/ Yang, W., Foster, R. I., Kim, J.: Electrochemical Monitoring for Molten Salt. *Korean J. Chem. Eng.* 41,, S. 2781–2797, 2024.
- /YOU 12/ Youker, A. J., Stepinski, D. C., Maggos, L. E., Bakel, A. J., Vandegriff, G. F.: Aqueous processing of U–10Mo scrap for high performance research reactor fuel. *Journal of Nuclear Materials*, Nr. 427, S. 185–192, 2012.
- /ZSA 20/ Zsabka, P., van Hecke, K., Wilden, A.: Selective extraction of americium from curium and the lanthanides by the lipophilic ligand CyMe₄BTPPhen dissolved in Aliquat-336 nitrate ionic liquid. Hrsg.: Institute for Nuclear Materials Science, Belgian Nuclear Research Center (SCK·CEN): Mol, erreichbar unter <https://juser.fz-juelich.de/record/868233/files/Accepted%20manuscript>, Stand von 2020.

/ZWE 09/ Zwermann, W., Krzykacz-Hausmann, B., Gallner, L., Pautz, A.: Influence of Nuclear Covariance Data on Reactor Core Calculations. In: Proceedings of WONDER 2009. 2nd International Workshop on Nuclear Data Evaluation for Reactor Applications, CEA Cadarache Château, France, 29. September - 2. Oktober 2009, 2009.

Abbildungsverzeichnis

Abb. 2.1	Urاندichte ρ_U in Abhängigkeit des Moderationsverhältnisses H/U Uranylнитrat	9
Abb. 2.2	Kritische Kugelmasse von Uranylнитrat-Wasser-Systemen. Vergleich der Rechnungen mit klassischer Volumenaddition und unter Verwendung der Dichteformel nach CRISTAL V2.....	11
Abb. 2.3	Kritisches Kugelvolumen von Uranylнитrat-Wasser-Systemen. Vergleich der Rechnungen mit klassischer Volumenaddition und unter Verwendung der Dichteformel nach CRISTAL V2.....	12
Abb. 2.4	Kritischer Zylinderdurchmesser von Uranylнитrat-Wasser-Systemen. Vergleich der Rechnungen mit klassischer Volumenaddition und unter Verwendung der Dichteformel nach CRISTAL V2.....	13
Abb. 2.5	Kritische Schichtdicke von Uranylнитrat-Wasser-Systemen. Vergleich der Rechnungen mit klassischer Volumenaddition und unter Verwendung der Dichteformel nach CRISTAL V2.....	14
Abb. 2.6	Kritische Kugelmasse eines Uranylнитrat-Wasser-Systems mit 5 Gew.% Anreicherung in Abhängigkeit des Partikelradius	16
Abb. 2.7	Kritische Kugelmasse eines Uranylнитrat-Wasser-Systems mit 10 Gew.% Anreicherung in Abhängigkeit des Partikelradius	17
Abb. 2.8	Urاندichte ρ_U in Abhängigkeit des Moderationsverhältnisses H/U für Uranylfluorid	19
Abb. 2.9	Urاندichte ρ_U in Abhängigkeit des Moderationsverhältnisses H/U für Uranylfluorid, Bereich H/U: [0, 20].....	20
Abb. 2.10	k_{inf} Kurven für alle gerechneten Plutonium Isotope.....	32
Abb. 2.11	Kritische Kugelmasse M_k für alle gerechneten Plutonium Isotope mit H ₂ O Reflektor.....	33
Abb. 2.12	Kritische Kugelmasse M_k [kg] der metallischen Systeme mit H ₂ O Reflektor	34
Abb. 2.13	k_{inf} -Werte der metallischen Systeme	34
Abb. 2.14	Vergleich der berechneten Reaktivitätsunterschiede (GRS und andere Institute) mit experimentellen Werten für SMF-001, -002, und -003	38

Abb. 2.15	Vergleich der berechneten k_{eff} -Werte (orange) mit experimentellen Werten (dunkelblau) und Nachrechnungen anderer Institute (grau, gelb, hellblau, grün) für die kritischen Experimente SMF-008, -011, und -014	39
Abb. 2.16	k_{inf} -Werte der metallischen Systeme mit Unsicherheiten aufgrund von Unsicherheiten der nuklearen Daten, ermittelt mit TSUNAMI-1D	45
Abb. 2.17	Kritische Kugelmasse M_k [kg] der metallischen Systeme mit abgeschätzten Unsicherheiten aufgrund von Unsicherheiten der nuklearen Daten	46
Abb. 2.18	Infiniter Multiplikationsfaktor k_{inf} für homogene Uransilizid-Wasser-Gemische	53
Abb. 2.19	Kritische Kugelmasse für homogene Uransilizid-Wasser-Gemische	54
Abb. 2.20	Unsicherheit von k_{inf} aufgrund von Unsicherheiten in den nuklearen Daten für die Kurvenmaxima von Uransilizid.....	56
Abb. 2.21	Unsicherheit von k_{eff} für die Kurvenminima der vier kritischen Parameter (M_k , V_k , D_k und S_k) aufgrund von Unsicherheiten in den nuklearen Daten für Uransilizid	56
Abb. 2.22	Unsicherheiten der vier kritischen Parameter (M_k , V_k , D_k und S_k) aufgrund von Unsicherheiten in den nuklearen Daten für Uransilizid	57
Abb. 2.23	Korrelation (c_k -Werte) zwischen den drei Anwendungsfällen (Uransilizid mit 3 Gew.%, 20 Gew.% und 93 Gew.% Anreicherung) und den kritischen Experimenten aus der Validierungsdatenbank	59
Abb. 2.24	Abweichung zwischen Berechnung und Experimente (C-E) in Abhängigkeit der c_k -Werte für Uransilizid	60
Abb. 2.25	Infiniter Multiplikationsfaktor k_{inf} für homogene Uran-Molybdän-Wasser-Systeme	64
Abb. 2.26	Kritische Kugelmasse für homogene Uran-Molybdän-Wasser-Systeme	65
Abb. 2.27	Unsicherheit von k_{inf} für die Kurvenmaxima von Uran-Molybdän aufgrund von Unsicherheiten in den nuklearen Daten.....	66
Abb. 2.28	Unsicherheit von k_{eff} für die Kurvenminima der vier kritischen Parameter (M_k , V_k , D_k und S_k) aufgrund von Unsicherheiten in den nuklearen Daten von Uran-Molybdän.....	67

Abb. 2.29	Unsicherheiten der vier kritischen Parameter (M_k , V_k , D_k und S_k) aufgrund von Unsicherheiten in den nuklearen Daten für Uran-Molybdän	68
Abb. 2.30	Korrelation (c_k -Werte) zwischen den drei Anwendungsfällen (Uran-Molybdän mit 3 Gew.%, 20 Gew.% und 93 Gew.% Anreicherung) und den kritischen Experimenten aus der Validierungsdatenbank	70
Abb. 2.31	Abweichung zwischen Berechnung und Experimente (C-E) in Abhängigkeit der c_k -Werte für Uran-Molybdän	71
Abb. 2.32	HBcritGUI – Anzeigefenster und Kontrollen für die Anzeigeoptionen	73
Abb. 2.33	HBcritGUI – Auswahl von zwei Systemen für den Vergleich	74
Abb. 2.34	HBcritGUI – Anzeigefenster und Kontrollen für die Vergleichsanzeige.....	75
Abb. 3.1	Schematische Darstellung des KRAKEN-Frameworks.....	91
Abb. 3.2	Abweichung aller berechneten k_{eff} -Werte zu den experimentellen Werten.....	140
Abb. 3.3	Berechnete Multiplikationsfaktoren im Vergleich zu den gemessenen Benchmark-Ergebnissen.....	145
Abb. 3.4	Vergleich der Multiplikationsfaktoren zwischen <i>Shift</i> - und <i>KENO-V.a</i> -Rechnungen unter Betrachtung von Multigruppen- und kontinuierlichen Wirkungsquerschnitten (MG bzw. CE).....	146
Abb. 3.5	Relative Laufzeitunterschiede zwischen <i>Shift</i> - und <i>KENO-V.a</i> -Rechnungen unter Betrachtung von Multigruppen- und kontinuierlichen Wirkungsquerschnitten (MG bzw. CE).....	147
Abb. 3.6	Relative Bedarfsunterschiedes des Arbeitsspeichers zwischen <i>Shift</i> - und <i>KENO-V.a</i> -Rechnungen unter Betrachtung von Multigruppen- und kontinuierlichen Wirkungsquerschnitten (MG bzw. CE).....	148
Abb. 3.7	Vergleich der absoluten Abweichung der Multiplikationsfaktoren zwischen den <i>Shift</i> - und <i>KENO-V.a</i> -Rechnungen (CE-Bibliothek)	153
Abb. 3.8	Relative Unsicherheiten des Multiplikationsfaktors aufgrund von Unsicherheiten in den nuklearen Daten	154
Abb. 3.9	Relative Laufzeitunterschiede zwischen <i>TSUNAMI-Shift</i> - und <i>TSUNAMI-KENO-V.a</i> -Rechnungen (CE-Bibliothek).....	157
Abb. 3.10	Arbeitsspeicherbedarf der <i>TSUNAMI-Shift</i> - und <i>TSUNAMI-KENO-V.a</i> -Rechnungen.....	158

Abb. 3.11	Relative Speicherbedarfsunterschiede zwischen <i>TSUNAMI-Shift-</i> und <i>TSUNAMI-KENO-V.a</i> -Rechnungen.....	159
Abb. 3.12	Resultierende Korrelationsparameter c_k der TSUNAMI-IP Rechnung	164
Abb. 3.13	Resultierende integrale E-Indizes der TSUNAMI-IP Rechnung.....	165
Abb. 3.14	Resultierende integrale G-Indizes der TSUNAMI-IP Rechnung	166
Abb. 3.15	Horizontaler Schnitt des Anwendungsfalls und Anordnung der Brennstäbe und Führungsrohre im Brennelement.....	173
Abb. 3.16	Brennstab- und Führungsrohrgeometrien	173
Abb. 3.17	C/E-1 Wert von k_{eff} aller Validierungsexperimente	180
Abb. 3.18	σ_{keff} der Validierungsexperimente.....	181
Abb. 3.19	k_{eff} Werte der Kritikalitätsrechnungen zum Lagerbehälter	183
Abb. 3.20	σ_{keff} der Kritikalitätsrechnungen zum Lagerbehälter	183
Abb. 3.21	c_k -Werte zwischen allen Validierungsexperimenten	184
Abb. 3.22	c_k -Werte zwischen den Anwendungsfällen und den Validierungsexperimenten	185
Abb. 3.23	k_{eff} -Entwicklung mit dem Abbrand für eine Anreicherung von 2 Gew. % ^{235}U für USL = 0,95 ohne Berücksichtigung der Validierung der Kritikalitätsrechnungen	187
Abb. 3.24	Beladepkurven für Fall 1 (schwarz), Fall 2 ohne Betrachtung der Unsicherheit (rot) und Fall 2 nach dem Bayes Verfahren (blau).....	188
Abb. 3.25	Unterschied der Beladepkurven nach dem Bayes Verfahren	189
Abb. 4.1	Zusammenwirken von verschiedenen Hauptprozessen bei der Produktion von Brennstoff.....	192
Abb. 4.2	Vereinfachte Darstellung des Massenfluss des PUREX-Prozesses.....	196
Abb. 4.3	Typische Beispiele von Prozessen, die eine Koextraktion und anschließende Abtrennung minorer Actinoide beinhalten	200
Abb. 4.4	Ausschnitt aus dem schematischen Aufbau des Rubbia-Konzepts	203
Abb. 4.5	Actinoiden-Transmutationskette, basierend auf der Bateman- Gleichung	212
Abb. 4.6	Prinzipieller Aufbau einer Brennstoffkugel der Xe-100 Design Solution der Firma X-Energy.....	216

Abb. 4.7	Allgemein verfolgte Ansätze zur künftigen Entwicklung von ATF Brennstab-Brennstoff-Kombinationen	222
Abb. 4.8	Schmelztemperatur von Uransiliziden als Funktion des Molenbruchs	226
Abb. 4.9	Das HERACLES-Konsortium Programm mit den geplanten Bestrahlungszyklen und Projekten für fortgeschrittene Forschungsreaktorbrennstoffe im Bereich High-Density U ₃ Si ₂ /HOL 23/	231
Abb. 4.10	In den LEU-FOREvER und EU-QUALIFY Projekten untersuchte Herstellungspfade für Brennstoffsysteme /WIG 23/.....	232
Abb. 4.11	Wärmeleitfähigkeit von UO ₂ in [°C]	233
Abb. 4.12	Verlauf der Wärmeleitfähigkeit U ₃ Si ₂ über der Temperatur in Kelvin T(K), basierend auf Steady State, Laser Flash sowie rechnerischen Daten /INL 18/	234
Abb. 4.13	Schematische Darstellung des gesamten Herstellungsprozesses von U ₃ Si ₂ und der Herstellung der Brennelementplatten (unterer Bildteil) im Besonderen	245
Abb. 4.14	Wärmeleitfähigkeiten der Uransilizide U ₃ Si, U ₃ Si ₂ und von U ₃ O ₈ als Funktion des Volumenanteils der Brennstoffpartikel plus Hohlräume (Porosität) bei 60 °C	247
Abb. 4.15	Quellung von USi, U ₃ Si, U ₃ Si ₂ und UAl _x -Brennstoffpartikeln als Funktion der Spaltungen. Gestrichelte Verläufe zeigen Bereiche, die mit LEU-Brennstoffen nicht erreichbar sind.....	249
Abb. 4.16	Darstellung von Prozessschritt 1 bis 4 bei der U ₃ Si ₂ -Al Produktion	256
Abb. 4.17	Prozessschritt 5 bei der Herstellung von U ₃ Si ₂ -Al- Dispensionsbrennstoff	257
Abb. 4.18	Schematische Darstellung des Ablaufs des Pulverproduktionsprozesses	258
Abb. 4.19	Aufbau der Brennstoffplattenbaugruppe	261
Abb. 4.20	Typische Schnittbilder einer assemblierten Brennstoffplatte	262
Abb. 4.21	Typische Querschnitte von Brennelementen.....	264
Abb. 4.22	Typisches Brennelement des FRM-II, mit einzelnen, zu Evolventen gebogenen Brennstoffplatten die mittels dazwischen ausgeprägten Kühlschlitzten, zirkular zu einem Brennelement angeordnet werden.	269

Abb. 4.23	Schematische Übersicht zum Fertigungsprozess eines dispersen U-Mo-Brennstoffes	272
Abb. 4.24	Schematische Übersicht zum Fertigungsprozess eines monolithischen U-Mo-Brennstoffes	274
Abb. 4.25	Fließschema mit Konzentrationsangaben der einzusetzenden Chemikalien für die Uranrückgewinnung aus aufgelösten U-Mo-Herstellungsfragmenten.....	277

Tabellenverzeichnis

Tab. 2.1	Wichtigste Parameter zur Betrachtung des Einflusses von Heterogenitäten	16
Tab. 2.2	Übersicht über die untersuchten Nuklide der Actinoide	22
Tab. 2.3	Kritische Kugelmasse [kg] für thermische und schnelle Systeme für Actinoide aus dem bisherigen <i>Handbuch zur Kritikalität</i>	23
Tab. 2.4	Details und Quellen zu den kritischen Kugelmassen für die thermischen Systeme aus dem bisherigen <i>Handbuch zur Kritikalität</i>	24
Tab. 2.5	Details und Quellen zu den kritischen Kugelmassen für schnelle Systeme (unmoderierte Metallkugeln) ohne Reflektor aus dem bisherigen <i>Handbuch zur Kritikalität</i>	25
Tab. 2.6	Details und Quellen zu den kritischen Kugelmassen für schnelle Systeme (unmoderierte Metallkugeln) mit H ₂ O-Reflektor aus dem bisherigen <i>Handbuch zur Kritikalität</i>	25
Tab. 2.7	Details und Quellen zu den kritischen Kugelmassen für schnelle Systeme (unmoderierte Metallkugeln) mit Stahlreflektor aus dem bisherigen <i>Handbuch zur Kritikalität</i>	26
Tab. 2.8	Kritische Parameter der Actinoide.....	29
Tab. 2.9	Kritische Experimentserien zur Überprüfung der neu gerechneten Parameter.....	35
Tab. 2.10	Werte des Reaktivitätsunterschieds Δk_{eff} , bzw. des Multiplikationsfaktors k_{eff} und deren Unsicherheiten aller Experimentserien.....	37
Tab. 2.11	Unsicherheiten von k_{inf} und M_k aufgrund von Unsicherheiten der nuklearen Daten	42
Tab. 2.12	Vergleich der kritischen Kugelmassen für das thermische System mit H ₂ O Reflektor.....	47
Tab. 2.13	Vergleich der kritischen Kugelmassen für das unmoderierte metallische System ohne Reflektor	48
Tab. 2.14	Vergleich der kritischen Kugelmassen für die unmoderierten metallischen Systeme mit H ₂ O und Stahl-Reflektor	48
Tab. 2.15	Vergleich von k_{inf} der Actinoide mit Vergleichsdaten aus /LAV 04/	50
Tab. 2.16	Anzahl an Experimenten für verschiedene Kriterien von c_k	59

Tab. 2.17	Statistische Auswertung der Abweichung zwischen Berechnung und Experiment (C-E) für Uransilizid.....	61
Tab. 2.18	Anzahl an Experimenten für verschiedene Kriterien von c_k	69
Tab. 2.19	Statistische Auswertung der Abweichung zwischen Berechnung und Experiment (C-E) für Uran-Molybdän.....	71
Tab. 3.1	Zuordnung der <i>SCALE</i> -Programmteile zu relevanten Schwerpunktthemen	79
Tab. 3.2	Abkürzungen der Experimenterserien von kritischen Experimenten und deren Systemerklärung.....	135
Tab. 3.3	Zusammenstellung der mit <i>CSAS5</i> modellierten experimentellen Konfigurationen aus dem <i>ICSBEP</i> Handbuch	137
Tab. 3.4	Übersicht aller gerechneten Kombinationen aus <i>SCALE</i> Version und ENDF/B-Wirkungsquerschnittsdaten-Bibliothek	138
Tab. 3.5	Vergleich der Rechnungen mit den experimentellen Werten.....	139
Tab. 3.6	Zusammenstellung der mit <i>CSAS5</i> modellierten experimentellen Konfigurationen aus dem <i>ICSBEP</i> Handbuch	145
Tab. 3.7	Zusammenstellung der mit <i>TSUNAMI-3D</i> modellierten experimentellen Konfigurationen aus dem <i>ICSBEP</i>	152
Tab. 3.8	Mit <i>TSUNAMI</i> und <i>XSUSA</i> berechnete relative Unsicherheiten $\Delta k/k$ in %	154
Tab. 3.9	Liste der vorgegebenen Validierungs-Experimente.....	172
Tab. 3.10	Zusammenfassung aller geometrischen Größen des Anwendungsfalls.....	174
Tab. 3.11	Parameter der <i>TSUNAMI</i> Rechnungen.....	179
Tab. 3.12	Ergebnisse aller Validierungs-Experimente.....	180
Tab. 3.13	Ergebnisse der Kritikalitätsrechnungen zum Lagerbehälter	181
Tab. 3.14	Beladepkurven für Fall 1: $USL = 0,95$ und Fall 2: zusätzliche Betrachtung der Validierung der Kritikalitätsrechnungen und deren Unsicherheit.....	188
Tab. 3.15	Beladepkurven für Fall 1 und Fall 2 unter Verwendung der nuklearen Datenbibliothek ENDF/B-VIII.0.....	189
Tab. 4.1	Typische Kenndaten von Reaktorarten, mit denen eine reaktorgetriebene Transmutation möglich ist	207

Tab. 4.2	δ und α -Werte für ein typisches Neutronen-Spektrum in einem Druckwasserreaktor für einige exemplarische Elemente.....	211
Tab. 4.3	Vergleichende Darstellung der Basisdaten von UO ₂ , U ₃ Si ₂ und UN.....	225
Tab. 4.4	Europäischen High Performance Research Reactors, (HPRR), ihre Betreiber und deren potenziellen Brennstoffsysteme für eine entsprechende Um-rüstung	230
Tab. 4.5	Innovationen die aus den im Rahmen des Projekts LEU-FOREvER-Projekt durchgeführten bzw. untersuchten Bestrahlungstests erzielt wurden.....	236
Tab. 4.6	Herstellungstechnologien und die erwarteten Innovationsergebnisse von EU-QUALIFY-Zielbrennstoffsystemen.....	238
Tab. 4.7	Stand der Technik und nächste Entwicklungsschritte der untersuchten Brennstoffsysteme.....	239

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

Schwertnergasse 1
50667 Köln

Telefon +49 221 2068-0

Telefax +49 221 2068-888

Boltzmannstraße 14

85748 Garching b. München

Telefon +49 89 32004-0

Telefax +49 89 32004-300

Kurfürstendamm 200

10719 Berlin

Telefon +49 30 88589-0

Telefax +49 30 88589-111

Theodor-Heuss-Straße 4

38122 Braunschweig

Telefon +49 531 8012-0

Telefax +49 531 8012-200

www.grs.de

ISBN 978-3-911727-45-7