



INSTITUT FÜR RADIOÖKOLOGIE UND
STRAHLENSCHUTZ

MASTERARBEIT

Berechnung isotopischer Fingerprints verschiedener Reaktortypen für die nukleare Forensik

David Ohm

10002318

unter Aufsicht von
Prof. Dr. Clemens WALTHER

28. August 2023

INHALTSVERZEICHNIS

1	Einleitung	1
2	Modellierungsgrundlagen für isotopische Fingerprints	2
2.1	Kernspaltung und Spaltprodukte	2
2.2	Transmutation, Wirkungsquerschnitte und Halbwertszeiten	4
2.3	Abbrand und Multiplikationsfaktor	6
2.4	Leistungsverteilung und Leckageeffekte	8
2.4.1	Brennzeit und Abklingzeit	9
2.5	Moderatoren und Kühlmittel	10
2.6	Wasserdichte und Dampfblasenkoeffizient	11
2.7	Selbstabschirmung	13
2.7.1	Energieselbstabschirmung	13
2.7.2	Räumliche Selbstabschirmung	14
2.8	Neutronenabsorber und Geometrie	14
3	Computercodes	16
3.1	SCALE	16
3.2	SCALE: ORIGIN	16
3.2.1	Isotopenberechnungsmethode	16
3.2.2	Leistungs- und Flussberechnungen	17
3.2.3	Interpolation	18
3.3	SCALE TRITON: Neutronentransportrechnung	19
3.3.1	KENO: Monte-Carlo-Transport	20
3.3.2	NEWT: Diskreter Transport	24
3.3.3	Neutronenenergie und Wirkungsquerschnittsbibliotheken	28
3.4	TRITON-Depletion	29
3.4.1	MCDancoff: Dancoff-Faktoren	30
3.5	TRITON Inputdateien	31
3.5.1	Composition-Block	31
3.5.2	Celldata-Block	31
3.5.3	Depletion-Block	32
3.5.4	Burndata-Block	33
3.5.5	Geometry-Block	33
3.6	Hilfsprogramme	34
3.6.1	Python	34
3.6.2	Excel	34
4	Experimentelle Daten als Benchmark	35
4.1	SFCompo 2.0	35
4.2	Druckwasserreaktor (DWR): Obrigheim-1	35
4.2.1	Messmethoden	36
4.2.2	Bestrahlungszeitraum	36
4.2.3	Besonderheiten	38
4.3	Siedewasserreaktor (SWR): Fukushima Daini-2	39
4.3.1	Messmethoden	40
4.3.2	Bestrahlungsdauer	41

4.4	RBMK-1000: Leningrad-1	41
4.4.1	Messmethoden	42
4.4.2	Bestrahlungsdauer	43
4.5	WWER-440: Kola-3	43
4.5.1	Messmethoden	45
4.5.2	Bestrahlungsdauer	46
5	Modellierung	47
5.1	Räumliche Auflösung der Simulation	47
5.1.1	KENO vs NEWT	50
5.2	Grundannahmen der Modellierung	50
5.3	Druckwasserreaktor: Obrigheim-1	52
5.3.1	Material	53
5.3.2	Moderator	55
5.3.3	Leistung und Bestrahlungsdauer	56
5.3.4	Geometrie	57
5.3.5	Allgemeines Modell	58
5.4	Siedewasserreaktor: Fukushima Daini-2	58
5.5	RBMK: Leningrad-1	60
5.5.1	Material	61
5.5.2	Moderator und Kühlmittel	62
5.5.3	Leistung und Bestrahlungsdauer	63
5.5.4	Geometrie	64
5.5.5	Allgemeines Modell	66
5.6	WWER-440: Kola-3	67
5.6.1	Material	68
5.6.2	Wasserdichte	69
5.6.3	Leistung und Brennzeit	71
5.6.4	Geometrie	71
5.6.5	alternative Designs	73
5.6.6	Allgemeines Modell	74
6	Americium im Reaktor	75
6.1	Das Isotop ^{242m}Am	75
6.2	Synthese von Americium im Reaktor	75
7	Auswertung der Daten	80
7.1	Druckwasserreaktor: Obrigheim-1	80
7.2	RBMK-1000: Leningrad-1	84
7.3	WWER-440: Kola-3	87
7.4	Americium in den Simulationen	90
7.4.1	^{242m}Am in den Simulationen	94
7.4.2	^{242m}Am in den Messdaten von SFCompo	95
7.5	Weitere Untersuchungen zu dem RBMK-1000	96
7.5.1	Einfluss von angrenzenden Brennelementen oder Kontrollstäben	96
7.5.2	RBMK-1000 Datenbank für die Forensik	99
8	Fazit	105
8.1	Ausblick	105

Literatur	107
A Siedewasserreaktor: Fukushima Daini-2	i
A.1 Modell	i
A.1.1 Material	ii
A.1.2 Moderator	iii
A.1.3 Leistung und Brennzzeit	iv
A.1.4 Geometrie	vii
A.2 Auswertung	viii
B Daten des ersten und zweiten WWER-440 Modells	x
B.1 Modell 1	x
B.2 Modell 2	xii
B.3 $^{241}\text{Am}/^{241}\text{Pu}$ -Verhältnis mit WWER-440	xiii
C Mittelwerte und Standardabweichungen für die Modelle	xiv
D Americium in den Messdaten aus SFCompo	xvii
D.1 ^{241}Am zu ^{243}Am Verhältnis in den Messdaten	xvii
D.2 ^{242m}Am in den Messdaten	xxi

„Nuclear power is one hell of a way to boil water“
-Karl Grossman, 1980-

1. EINLEITUNG

In den Disziplinen Radioökologie und nukleare Forensik ist die Untersuchung von mikroskopischen Partikeln essenziell, um Prozesse nachvollziehen zu können, die zu deren Freisetzung geführt haben. Dabei ermöglicht die Bestimmung von Isotopenverhältnissen Rückschlüsse auf die Entstehung, die Herkunft und das Alter der Probe [1]. Da die meisten freigesetzten Partikel mit radioaktivem Inhalt aus zivilen und militärischen kerntechnischen Anlagen entstammen, können isotopische Signaturen eine Eingrenzung der möglichen Ursachen und Umgebungen bieten, durch die die Freisetzung stattgefunden haben kann. Dabei können die Actinoidkonzentrationen einen Rückschluss auf das Reaktordesign und die Operationsparameter liefern. Die Partikel werden allerdings nicht zwangsläufig umgehend nach der Freisetzung gefunden, weswegen es nötig ist, die Umwelteinflüsse zu untersuchen. Diese lassen sich durch die Überwachung der Flüchtigkeit von kurzlebigen Radionukliden der Spaltprodukte in die Umwelt einschätzen. Dabei wird eine nicht-destruktive Untersuchungsmethode bevorzugt, um wiederholte Messungen durchführen zu können [2, 1]. Aufgrund der geringen Größe der Proben müssen die Analysetechniken daher ultrasensitiv sein, um eine geringe Anzahl an Atomen untersuchen zu können. Die Entwicklung und erfolgreiche Erprobung dieser Techniken [1] ermöglicht allerdings ebenfalls die Untersuchung von Radionukliden in Ultraspurenmengen. Zur Unterstützung dieser Analysetechniken ist die Kenntnis von den initialen Isotopenzusammensetzungen entscheidend, was die Notwendigkeit einer entsprechenden theoretischen Modellierung begründet. Innerhalb eines Reaktors nehmen eine Vielzahl von Faktoren Einfluss auf die Transmutationsprozesse des initialen Brennstoffs, wodurch eine komplexe Beziehung zwischen den reaktorspezifischen Parametern und den Isotopenverhältnissen in dem Brennmateriale entsteht [3, 4]. Ebenfalls können Unterschiede nicht nur zwischen den verschiedenen Reaktortypen sondern innerhalb der einzelnen Reaktoren selbst erkannt werden. So unterscheiden sich die Anreicherung und Zusammensetzung von einzelnen Brennelementen und teilweise auch von Brennstäben deutlich, wodurch unterschiedliche Abbrandprofile entstehen können. Diese werden ebenfalls durch radial und axial heterogene Leistungsverteilungen verstärkt, die von der geometrischen Konstruktion der Brennelemente beeinflusst werden. Zur näheren Untersuchung dieser Effekte auf die Isotopenzusammensetzung von Brennmateriale soll daher in dieser Arbeit die Modellierung von zwei westlichen Reaktordesigns, ein Druckwasserreaktor und ein Siedewasserreaktor, sowie zwei russischen Designs, ein WWER-440 und ein RBMK-1000, vorgenommen werden. Die Modelle sollen dann durch einen Benchmarkingprozess mit den Messdaten auf ihre Genauigkeit überprüft werden. Dabei werden insbesondere die Effekte auf die Americiumisotope untersucht. Aufgrund der neuen Möglichkeit, Ultraspurenmengen von dem langlebigen, metastabilen Isotop ^{242m}Am zu detektieren [1], soll anhand von theoretischen Überlegungen ermittelt werden, wie sich die verschiedenen Reaktorparameter auf die Konzentration des Isotops selbst und auf die am Transmutationsweg beteiligten Isotope auswirken, und ob sich daraus eine reaktorspezifische Signatur ableiten lässt. Dies soll dann anhand der Modelle überprüft werden.

2. MODELLIERUNGSGRUNDLAGEN FÜR ISOTOPISCHE FINGERPRINTS

Die Brennstoffzusammensetzung in einem Kernreaktor ändert sich aufgrund von verschiedenen Kern- und Reaktorprozessen, die im gesamten Reaktor simultan stattfinden, im Verlauf seines Betriebes kontinuierlich. Diese Prozesse haben ebenfalls einen Einfluss auf die sie umgebenden Prozesse und können daher bei kleinen Veränderungen das Abbrandverhalten in dem gesamten Reaktor nachhaltig beeinflussen. Für eine passende Modellierung der schlussendlichen Isotopenzusammensetzung nach einem Bestrahlungs- und Abklingzeitraum ist das Verständnis von diesen komplexen Zusammenhängen essenziell. Daher soll dieses Kapitel einen Überblick über die physikalischen Hintergründe geben.

2.1 KERNSPALTUNG UND SPALTPRODUKTE

Das Brennmaterial in einem Kernreaktor besteht aus spaltbaren Isotopen, meist aus ^{235}U oder ^{239}Pu , welche durch eine neutroneninduzierte Kerntransmutation in einen angeregten, instabilen und schwereren Atomkern umgewandelt werden. Eine Möglichkeit des Abregens ist die Kernspaltung mit sehr kurzer Halbwertszeit, wodurch Spaltfragmente und freie Neutronen entstehen [3].

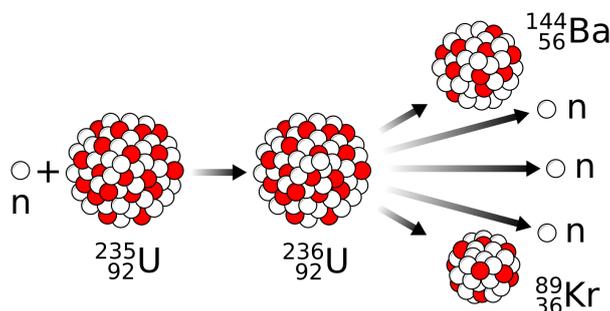


Abbildung 1: Diagramm der Kernspaltung von ^{235}U [5].

Bei diesen Spaltfragmenten handelt es sich um leichtere Atomkerne, welche zumeist paarweise, seltener ternär vorliegen. Es handelt sich bei der Spaltung jedoch um einen stochastischen Prozess, wodurch verschiedene Kombinationen von leichteren Atomkernen entstehen können. Aufgrund der Nukleonenerhaltung bilden sich aber zwei Maxima der Verteilungsfunktion bei neutronenreichen Atomkernen mit der Massenzahl 90 und der Massenzahl 140 aus (vgl. Abb. 2). Diese Maxima der Verteilungsfunktion können sich je nach Spaltmaterial und Neutronenspektrum leicht unterscheiden [4].

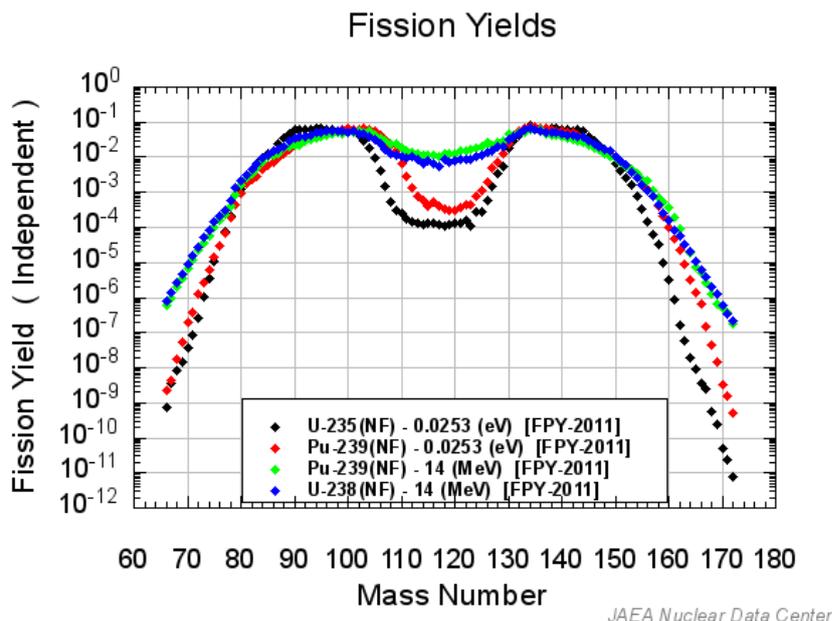


Abbildung 2: Spaltproduktausbeute von ^{235}U , ^{239}Pu und ^{238}U bei verschiedenen Absorptionsneutronenenergien [6].

Bei einer Kernspaltung werden aufgrund des höheren Massendefekts der Spaltprodukte im Vergleich zu dem Ausgangsnuklid ca. 200 MeV freigesetzt, wovon der größte Teil als kinetische Energie in die Spaltfragmente übergeht [3]. Ebenso werden zwei bis drei Neutronen freigesetzt, welche insgesamt eine Bewegungsenergie von 5 MeV aufweisen und daher als schnelle Neutronen klassifiziert werden. Damit die Kettenreaktion in einem Kernreaktor selbsterhaltend ist, müssen die Neutronen nun den nächsten Kern des Brennstoffmaterials spalten. Die Wahrscheinlichkeiten, dass ein Neutron von Nukliden eingefangen wird, sind allerdings bei schnellen Neutronen nicht so hoch wie bei sogenannten thermischen Neutronen, d.h. bei Neutronen, die auf eine Geschwindigkeit von $\frac{1}{40}$ eV abgebremst wurden [3]. In der Kernphysik werden diese Reaktionswahrscheinlichkeiten mit dem Wirkungsquerschnitt σ bemessen. Dies ist ein geometrisches Maß einer Reaktionswahrscheinlichkeit und wird in Barn [b] angegeben [3]. Ein Barn entspricht einem Flächeninhalt von $1 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$. Es können verschiedene Reaktionen auftreten, auf die im nächsten Abschnitt näher eingegangen wird. Anhand der Absorptionswahrscheinlichkeit eines Nuklides, auch Einfangquerschnitt genannt, lässt sich allerdings die Abhängigkeit des Querschnitts von dem Neutronenspektrum erkennen. So liegt der Einfangquerschnitt σ_{therm} bei ^{235}U von Neutronen im thermischen Bereich bei $584,3 \pm 1 \text{ b}$, wohingegen der Einfangquerschnitt σ_{fast} bei schnellen Neutronen in der Größenordnung von einem Barn liegt [7]. Dies bedeutet allerdings nicht, dass schnelle Neutronen nicht trotzdem eingefangen werden können, diese Reaktion ist nur unwahrscheinlicher. Wie der Wirkungsquerschnitt mit der Transmutation von Nukliden zusammenhängt, wird im nächsten Unterkapitel näher beleuchtet.

2.2 TRANSMUTATION, WIRKUNGSQUERSCHNITTE UND HALBWERTSZEITEN

In einem Atomkern können verschiedene Kernprozesse und -reaktionen stattfinden, welche einen Einfluss auf die Beschaffenheit des Atomkerns haben und somit das Nuklid verändern können. So kann ein Mutternuklid j unter Abstrahlung von Teilchen und Energie in ein Tochternuklid i zerfallen, wodurch sich die Anzahl an Nukliden N_i und N_j verändert. Diese zeitliche Veränderung einer Größe, welche von sich selbst abhängt, wird mathematisch mithilfe von Differentialgleichungen beschrieben und ist essenziell zum Modellieren von Isotopenveränderungen. Als Grundlage dient hierbei die Bateman-Gleichung, welche die zeitliche Veränderung der Nuklidkonzentration bei linearen und seriellen Zerfallsketten formuliert. Sie illustriert viele der für die Transmutation von Nukliden relevanten Parameter, weshalb die einzelnen Terme und ihre physikalische Bedeutung hier hergeleitet werden sollen, beginnend mit dem Zerfall des Atomkerns j zu i [3]:

$$\frac{dN_i}{dt} = \lambda_j N_j(t) \quad (2.1)$$

Die Zerfallskonstante λ_j ist dabei die mittlere Anteil an zerfallenen Kernen pro Zeiteinheit. Dies spielt eine große Rolle, da die Zerfallskonstanten der Radionuklide in einem Reaktor stark variieren können. So können Nuklide innerhalb von Sekundenbruchteilen zerfallen, allerdings auch mehrere Milliarden Jahre überdauern. Diese Zeitintervalle lassen sich besser durch die Halbwertszeit $T_{1/2}$ überblicken. Diese lässt sich über das exponentielle Zerfallsgesetz und die Zerfallskonstante als

$$T_{1/2} = \frac{\ln(2)}{\lambda}$$

ausdrücken und gibt die Zeit an, bis zu der, statistisch gesehen, nur noch die Hälfte der ursprünglichen Nuklide vorliegen [3]. Dies ist für unsere Betrachtung und die spätere Analyse des Reaktors von besonderer Relevanz, da besonders kurzlebige Atomkerne in einem schwach populierte Neutronenfeld, eine geringere Wahrscheinlichkeit besitzen, mit einem Neutronen zu interagieren bevor sie zerfallen, als sie es in einem stärker besetzten Neutronenfeld hätten. Dies verändert potentielle Zerfallswege, da diese durch eine Aufnahme von Neutronen unterbrochen werden können. Zusätzlich beeinflussen die nuklidspezifische Wirkungsquerschnitte dies.

Ebenfalls besitzen manche Mutternuklide nicht nur einen Zerfallsweg, sondern können auch unter Abgabe eines anderen Teilchens zu einem anderen Tochternuklid zerfallen. Diese Zerfallsmöglichkeiten werden als relative Ausbeute l von Nuklid i aus dem Zerfall von Nuklid j berücksichtigt [8, 4]:

$$\frac{dN_i}{dt} = \lambda_j l_{ij} N_j(t) \quad (2.2)$$

Zudem kann das Nuklid i nicht nur durch Zerfall, sondern auch durch die Aufnahme von einem Neutron erzeugt werden. Die Wahrscheinlichkeit der Neutronenaufnahme ist dabei sowohl von dem Mutternuklid j abhängig als auch von der Geschwindigkeit und dem Winkel des Neutrons. Da in einem Reaktor aufgrund der Moderation ein großes Spektrum an Neutronenenergien und Einfallswinkeln vorliegt, wird hier über diese Parameter integriert, dennoch bleibt die Neutronenflussdichte Φ zeitabhängig. Diese Interaktionswahrscheinlichkeiten mit dem Reaktionsnuklid sind dabei

im Wirkungsquerschnitt σ_j hinterlegt. Jedoch können auch hier mehrere Reaktionsmöglichkeiten vorliegen (Spaltung, (n, XY) -Reaktionen, usw.), weshalb die relative Ausbeute f_{ij} , dass bei der Neutronenaufnahme das Tochternuklid i entsteht, berücksichtigt werden muss:

$$\frac{dN_i}{dt} = \lambda_j l_{ij} N_j(t) + f_{ij} \sigma_j \Phi N_j(t) \quad (2.3)$$

Das Tochternuklid i selbst kann ebenfalls instabil sein und mit dem Neutronenfeld interagieren, weshalb wir zusätzlich noch Verlustterme erhalten [8, 4]:

$$\frac{dN_i}{dt} = (\lambda_j l_{ij} + f_{ij} \sigma_j \Phi) N_j(t) - (\lambda_i + \sigma_i \Phi) N_i(t) \quad (2.4)$$

Bei einem Reaktor handelt es sich allerdings nicht um ein geschlossenes System, da Stoffe von außen zugeführt werden können, um die Parameter in einem Reaktor zu beeinflussen (vgl. z. B. 2.8 oder das Austauschen von Brennelementen). Die extrinsisch zugefügten Nuklide werden mit einem zusätzlichen „feed“-Term $S_i(t)$ berücksichtigt, welcher wegfällt, wenn keine extrinsische Interaktion stattfindet [9, 4].

$$\frac{dN_i}{dt} = (\lambda_j l_{ij} + f_{ij} \sigma_j \Phi) N_j(t) - (\lambda_i + \sigma_i \Phi) N_i(t) + S_i(t) \quad (2.5)$$

Aufgrund der Vielzahl an Nukliden in einem Reaktor und der konstanten Neutronenbestrahlung durch die Kernspaltung, werden Zerfallsketten von Mutter- zu Tochternuklid kontinuierlich unterbrochen und es müssen alle möglichen Kernreaktionen, welche zu dem Tochternuklid i führen, berücksichtigt werden. Daher wird im letzten Schritt über all diese Brut- und Zerfallsterme der möglichen Mutternuklide j summiert, welche in dem Tochternuklid i resultieren. Daraus ergeben sich die vollständigen gewöhnlichen Bateman-Differentialgleichungen für die Erbrütung und den Zerfall von Nukliden [9, 4]:

$$\frac{dN_i}{dt} = \sum_{j \neq i} (l_{ij} \lambda_j + f_{ij} \sigma_j \Phi) N_j(t) - (\lambda_i + \sigma_i \Phi) N_i(t) + S_i(t) \quad (2.6)$$

Diese Gleichung bietet eine Grundlage zur Modellierung von Isotopenverhältnissen unter Bestrahlung in einem Reaktor. Wie diese Differentialgleichungen mithilfe von Computercodes gelöst werden, wird in Kapitel 3 näher beleuchtet. Anhand der Gleichungen 2.6 wird allerdings bereits deutlich, dass zur passenden Berechnung die Nuklideigenschaften sowie das Neutronenfeld bestimmt werden müssen. Die energieabhängigen Ausbeuten stehen in entsprechenden Datenbanken zur Verfügung. Die Wirkungsquerschnitte hingegen müssen modellspezifisch bestimmt und aktualisiert werden. Bisher wurde dafür der mikroskopische Wirkungsquerschnitt, also der Wirkungsquerschnitt für jedes einzelne Nuklid, betrachtet. Zur Reduzierung der Rechenzeit werden diese allerdings nicht einzeln betrachtet, weshalb ein makroskopischer Wirkungsquerschnitt Σ eingeführt wird. Für eine Materialzusammensetzung aus mehreren Isotopen berechnet sich dieser aus der Summe der mikroskopischen Wirkungsquerschnitte multipliziert mit der Kernzahldichte pro Volumeneinheit:

$$\Sigma = \sum_i N_i \sigma_i = \sum_i \Sigma_i \quad (2.7)$$

Diese sind bisher nur durch die Neutronenenergie vorgegebene Reaktionswahrscheinlichkeiten, wie z.B. die Absorption. Es existieren allerdings ebenfalls Kernreaktionen, bei denen Sekundärstrahlung entsteht. Dies kann gestreute Primärstrahlung sein oder sekundäre Teilchen, die bei der Reaktion entstehen. Dieser Sekundärstrahlung wird nach der Reaktion eine neue Raumrichtung Ω' zugewiesen, deren Intensitätsverteilung über den sogenannten differentiellen Wirkungsquerschnitt $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ angegeben wird. In dieser Arbeit wird von isotroper Streuung ausgegangen. Das heißt z.B., dass Neutronen auf alle Raumbereiche gleichmäßig verteilt werden, wenn sie gestreut werden [3].

$$\frac{d\sigma}{d\Omega'} = \sigma(\Omega \rightarrow \Omega') = \sigma(\cos \theta) = \text{const.} \quad (2.8)$$

Neben den Wirkungsquerschnitten ist das Neutronenfeld ein primärer Faktor, der die Isotopenkonzentrationen maßgeblich beeinflussen kann. Dabei wird es in den Gleichungen 2.6 in der energie- und winkelintegrierten Form berücksichtigt. Welche Faktoren einen Einfluss auf die Neutronenflussdichte und ihre Energien haben, soll in den folgenden Unterkapiteln näher erläutert werden.

2.3 ABBRAND UND MULTIPLIKATIONSFAKTOR

Mit Abbrand wird die erzeugte Wärmeenergie pro Masse des initialen Kernbrennstoffs bezeichnet. Als Einheit wird allgemeiner MWd/kgU_{init}, jedoch im Falle von UO₂-Brennstoff hauptsächlich Gigawatttage pro initialer Tonne Uran verwendet. In dieser Arbeit werden ausschließlich UO₂-Brennstoffe betrachtet, daher wird im Folgenden GWd/tU_{init} verwendet, wobei zumeist der Index weggelassen wird [10, 3]. Der Brennstoff liegt in den meisten Reaktoren allerdings nicht als Natururan vor, da in einem thermischen Neutronenspektrum nur das Isotop ²³⁵U verlässlich spaltbar ist. Den größten Anteil in natürlich vorkommendem Uran, etwa 99,27 %, macht das Isotop ²³⁸U aus, dessen Wirkungsquerschnitt für eine (n, f) -Spaltreaktion mit 0,3 μ b um sechs Größenordnungen kleiner ist als der von ²³⁵U. Jedoch ist der Einfangquerschnitt nicht vernachlässigbar, da die (n, γ) -Reaktion mit 2,68 b zu einem relevanten Verlust in der Neutronenpopulation führt, ohne neue Neutronen zu erzeugen [7]. Diese Neutronenbilanz ist ein bedeutender Teil der Kritikalität einer kerntechnischen Anlage, wird mit dem Multiplikationsfaktor k quantifiziert und mithilfe der Vierfaktorenformel in die relevanten Parameter unterteilt [3]:

$$k_{\infty} = \eta \varepsilon p f \quad (2.9)$$

Der Regenerationsfaktor η basiert dabei auf der in 2.1 eingeführten Neutronenausbeute von zwei bis drei Neutronen bei der Kernspaltung von ²³⁵U. Als Mittelwert der Neutronenausbeute ν wird dabei ungefähr 2,43 angegeben. Da allerdings die Spaltwahrscheinlichkeit σ_f beim Neutroneneinfang im Brennstoff nicht 100 % ist, muss diese in Relation mit dem gesamten Wirkungsquerschnitt für Neutronenabsorption σ_a gesetzt werden. Da der Brennstoff sowohl aus ²³⁸U und ²³⁵U zusammengesetzt ist, werden die makroskopischen Wirkungsquerschnitte angegeben. Mithilfe der jeweiligen Kernzahldichten N_{238} und N_{235} für ²³⁸U und ²³⁵U lassen sich diese ebenfalls durch die Anreicherung $e = \frac{N_{235}}{N_{238} + N_{235}}$ angeben. Mit den Wirkungsquerschnitten σ_{235} und σ_{238} für die Isotope ²³⁸U und ²³⁵U ergibt sich:

$$\eta = \nu \frac{\Sigma_f}{\Sigma_a} = \nu \frac{e \cdot \sigma_{235,f}}{e \cdot \sigma_{235,a} + (1 - e) \sigma_{238,c}} \quad (2.10)$$

Der Schnellspaltfaktor ε berücksichtigt, dass die Spaltwahrscheinlichkeiten bei schnellen Neutronen zwar geringer, jedoch nicht 0, sind.

$$\varepsilon = \frac{\text{Anzahl Kernspaltungen}}{\text{Anzahl Kernspaltungen durch thermische Neutronen}} \quad (2.11)$$

Um die Spaltwahrscheinlichkeit zu erhöhen, werden die Neutronen mithilfe eines Moderators in den thermischen Bereich abgebremst. Auf den Prozess wird in dem Unterkapitel 2.5 näher eingegangen. Hier sei jedoch bereits zu erwähnen, dass bei der Thermalisierung die Neutronen aufgrund entsprechender Resonanzen durch den Moderator, die Strukturmaterialien oder das umgebende ^{238}U aufgenommen werden können und so nicht mehr für die Kernspaltung zur Verfügung stehen. Diese Verluste werden in dem Faktor p zusammengefasst und als Moderationserfolg bzw. Resonanzdurchlasswahrscheinlichkeit bezeichnet [3]. Die Resonanzdurchlasswahrscheinlichkeit wird in 2.7 näher erläutert. Zuletzt werden ebenfalls die parasitären Absorptionen von thermischen Neutronen durch nicht spaltbare Materialien betrachtet. Hierfür wird der thermische Nutzfaktor f durch die Ausbeute der vom Brennstoff absorbierten thermischen Neutronen in Relation mit den insgesamt absorbierten thermischen Neutronen gesetzt [3].

$$f = \frac{\text{vom Brennstoff absorbierte therm. Neutronen}}{\text{insgesamt absorbierte therm. Neutronen}} = \frac{\sum_{a,f}}{\sum_a} \quad (2.12)$$

Der Multiplikationsfaktor k_∞ gilt jedoch nur für einen unendlich ausgedehnten, homogenen Reaktor. Beide Annahmen sind allerdings für einen realen Reaktor nicht zutreffend, da aufgrund der endlichen Ausdehnung Sicker-oder Leckageeffekte an der Reaktoroberfläche zu weiteren Neutronenverlusten führen und ebenfalls die homogene Mischung aller im Reaktor verwendeten Materialien nicht zutreffend ist. Daher ist der effektive Multiplikationsfaktor k_{eff} meistens geringer. Dennoch sind diese Betrachtungen essenziell für die Gestaltung des Reaktors, da verschiedene Parameter einen direkten Einfluss auf die Kritikalität nehmen und damit relevant für die Betriebsparameter eines Reaktors sind. So wird aufgrund dieser Verlustterme eine Anreicherung von ^{235}U in dem Brennmateriale vorgenommen. Je nach Reaktordesign unterscheidet sich diese Anreicherung [11]. Alternativ werden verschiedene Anreicherungen in einem Brennelement verwendet. Eine Erhöhung des Spaltmaterials und die damit einhergehende Erhöhung der Neutronenausbeute pro Generation muss daher mit den anderen Faktoren abgestimmt werden, um einen sicheren Betrieb des Kernreaktors gewährleisten zu können. Daher hat diese Betrachtung eine direkte Auswirkung auf die schlussendliche Nuklidzusammensetzung, da sowohl die zu Beginn vorliegende Konzentration von der Anreicherung des Brennstoffes abhängt, als auch die resultierenden Auswirkungen auf das Neutronenspektrum während der Bestrahlungszyklen einen Einfluss auf die Transmutationsprozesse haben. Die Erhöhung des ^{235}U -Anteils im Brennstoff sorgt ebenfalls für eine Erhöhung der umgesetzten Wärmeenergie pro initialer Masse, da mehr Material gespalten werden kann, und hat damit auch eine direkte Auswirkung auf den gemessenen und errechneten Abbrand. Des Weiteren sind die Leckageeffekte an den Enden eines Brennstabes bei der Modellierung von realen Reaktoren ebenfalls nicht zu vernachlässigen, da sie in einem geringeren Abbrand, dadurch in einer geringeren Neutronengeneration und damit in einem veränderten Neutronenfluss resultieren [12]. Welche Auswirkungen diese Effekte auf den axialen Abbrand und die entsprechende Leistungsverteilung haben, soll im Folgenden betrachtet werden.

2.4 LEISTUNGSVERTEILUNG UND LECKAGEEFFEKTE

Spaltneutronen können bei der Thermalisierung aus dem Reaktorkern entkommen und so für keine Transmutation von Nukliden im Reaktor sorgen. Dies wird als Sicker- oder Leckageeffekt bezeichnet und sorgt für einen zusätzlichen Verlust von sowohl schnellen (P_{FNL}), als auch thermischen Neutronen (P_{TNL}) an den Rändern eines Reaktors. Diese Effekte werden für den effektiven k -Faktor in der Sechsfaktorenformel durch zwei weitere Terme berücksichtigt [4].

$$k_{\text{eff}} = \eta \epsilon p f P_{\text{FNL}} P_{\text{TNL}} \quad (2.13)$$

und resultieren in einem nicht gleichförmigen Abbrand entlang der axialen Höhe eines Brennstabes. Sie sind daher für die Analyse von Messproben aus verschiedenen Höhen von Brennstäben entscheidend und begründen eine nähere Betrachtung der höhenabhängigen Abbrände [12]. Bei einer Modellierung kann man zu Beginn der Laufzeit eines Reaktors davon ausgehen, dass die Neutronenflussdichte einen nahezu sinusförmigen Verlauf entlang der Höhe eines Brennstabes annimmt, weswegen der Verlauf des initialen Abbrands durch die „chopped sine function“ beschrieben werden kann [13].

$$P(z) = p_{\text{max}} \sin\left(\pi \frac{z}{L}\right) \quad (2.14)$$

Dabei ist das Maximum im Zentrum mit dem höchsten relative Abbrand P_{max} gegeben, welches typischerweise bei 1,1- bis 1,2-mal dem durchschnittlichen Abbrand des Brennelementes liegt [12]. Je länger der Reaktor jedoch in Betrieb ist, desto flacher wird dieser Verlauf, da ein schneller Abbrand im Zentrum zu einer Reduktion der Reaktivität führt. Reaktivität ist ebenso wie der Multiplikationsfaktor k ein Maß für die Kritikalität eines Reaktors und wird mithilfe von k angegeben durch:

$$\rho = \frac{1 - k}{k} \quad (2.15)$$

Dadurch verlangsamt sich der Abbrand und gleicht sich der Umgebung an, wodurch ein Plateau in der Abbrandfunktion entsteht.

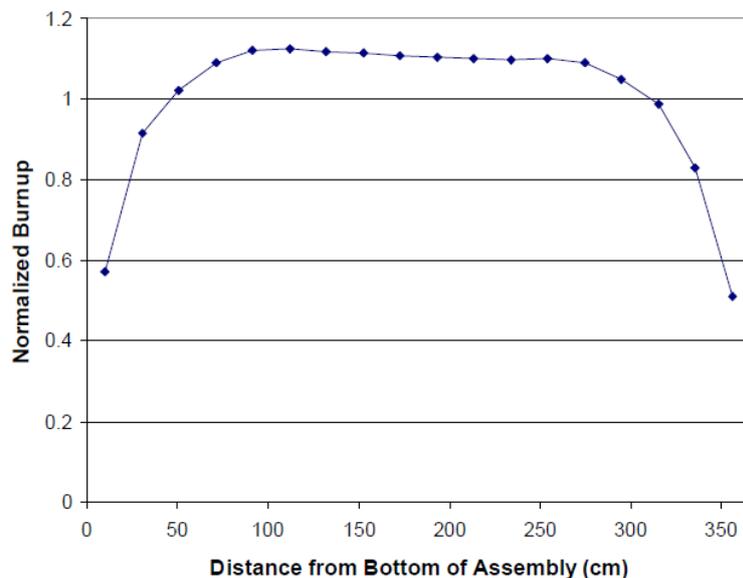


Abbildung 3: Modellhaftes Abbrandprofil in einem Druckwasserreaktor.

Diese Modellierung setzt die „fresh fuel assumption“ voraus, damit zu Beginn die sinusförmige Verteilung vorliegt, sowie die Annahme, dass das Brennelement symmetrisch aufgebaut sowie homogen befüllt wird. Abweichungen von diesen Annahmen durch sogenanntes „power distribution tailoring“, also dem Manipulieren der Leistungsverteilung und Neutronenflussdichten in einem Reaktor, beeinflussen und verkomplizieren dieses Abbrandprofil. Erreicht wird die Manipulation durch asymmetrische Brennstananordnungen, Brennstoffzusammensetzung und -befüllung, sowie das Einbringen von Neutronenabsorbern und Kontrollstäben. Je mehr Faktoren auf das Abbrandprofil einwirken, desto mehr Informationen benötigt man jedoch von den tatsächlichen Reaktorparametern in den jeweiligen Betriebszeiträumen, was die Komplexität des Modells drastisch erhöht und die allgemeine Aussagekraft verringert. Daher ist es wichtig, diese Faktoren hier zu nennen, da sie für die spätere Analyse von Bedeutung sind, jedoch aufgrund der Unpraktikabilität für eine allgemeine Modellierung nur eingeschränkt berücksichtigt werden. Ähnliche Effekte lassen sich auch in der radialen Ebene sowohl bei der Position der Brennstäbe in dem Brennelement, als auch bei der Position der Brennelemente in dem Reaktorkern erkennen. Da in dieser Arbeit allerdings ausschließlich einzelne Brennelemente betrachtet werden, wird hier nur die Brennstabposition näher beleuchtet. Diese hängt mit der Geometrie und dem Design der Brennelemente zusammen, die sich in verschiedenen Reaktordesigns stark unterscheiden können. Allerdings wird die Position der Brennelemente im Reaktor durchaus im Verlauf von Brennzyklen verändert, was Auswirkungen auf die durchschnittliche Brennleistung der einzelnen Brennelemente hat. Diese werden nicht näher modelliert, sorgen allerdings für eine extrinsische Veränderung der Anfangsparameter und -annahmen, welche bei der Berechnung spezieller Abbrandszenarien relevant sind (vgl. 5.3).

2.4.1 BRENNZEIT UND ABKLINGZEIT

Über den Abbrand wurde bereits eine Größe zur Messung des Umsatzes von Brennstoffmaterial bestimmt. Dies lässt sich ausdrücken als eine spezifische Leistung P über einen Zeitraum t , mit m als Masse des Brennstoffmaterials.

$$B = \frac{P \cdot t}{m} \quad (2.16)$$

Jedoch sinkt die Leistung eines Brennelementes, je mehr von dem Brennstoff bereits abgebrannt wurde (vgl. 2.4), weswegen die Brennelemente mit fortschreitender Lebensdauer weniger Leistung erbringen. Um einen optimalen Abbrand zu gewährleisten, wird daher die Bestrahlungsdauer in mehrere Brennzyklen aufgeteilt. Diese Brennzyklen bestehen aus einer Bestrahlungsperiode und einer Abklingperiode. Für die Berechnung von Nuklidkonzentrationen ist zu beachten, dass bei der Abklingperiode die Kettenreaktion im Reaktor gestoppt wird, wodurch die Transmutationsgleichungen 2.6 während dieses Zeitintervalls von den Zerfallstermen dominiert werden. Dieser Zeitraum wird ebenfalls genutzt, um die Brennelemente in dem Reaktor auszutauschen, da radial unterschiedliche Leistungsverteilungen aufgrund von Leckage-Effekten für unterschiedliche Abbrände in den Brennelementen sorgen. Zudem steigt die Leistung zu Beginn einer Bestrahlungsperiode an und sinkt am Ende einer Bestrahlungsperiode wieder ab. Um diese inhomogenen Faktoren durch eine konstante Leistungsverteilung anzunähern, wird die Bestrahlungsdauer in „Tage unter voller Leistung“ (engl.: Full Power Days) angegeben. Dies ermöglicht die Angabe

einer durchschnittlichen konstanten Leistung P_i über den Bestrahlungszeitraum, die zu dem effektiven Abbrand B_i in dem Brennstab i geführt hat.

$$P_i = \frac{B_i}{t_{\text{FPD}}} \quad (2.17)$$

Mithilfe dieser durchschnittlichen thermischen Leistung lässt sich die spezifische Leistung P_{BS} in einem Brennstab BS in einer bestimmten Höhe z durch den relativen spezifischen Abbrand $B_{\text{rel},z}$ in dieser Höhe berechnen:

$$P_{\text{BS},i}(z) = B_{\text{rel},z} \cdot P_{\text{BE},i} \quad (2.18)$$

$$\text{mit} \quad B_{\text{rel},z} = \frac{B_{\text{BS},z}}{B_{\text{BE,ges}}} \quad (2.19)$$

Wobei der Index BE hierbei die brennelementspezifische Leistung sowie den Abbrand kennzeichnet. Dies ermöglicht die direkte Berechnung der Leistungsverteilung, setzt allerdings voraus, dass die Abbrände in der jeweiligen Höhe bekannt sind.

2.5 MODERATOREN UND KÜHLMITTEL

In den vorherigen Kapiteln wurden bereits Moderatoren als notwendiges Medium zur Thermalisierung der schnellen Neutronen eingeführt. Bei der Thermalisierung stoßen sie mit den Kernen der umgebenden Materialien zusammen und geben ihre kinetische Energie ab, welche schlussendlich in Wärme umgewandelt wird. Auch wenn die Neutronen grundsätzlich mit allen umgebenden Nukliden zusammenstoßen können, eignen sich einige Atomkerne besser als Moderatoren als andere [3]. Um diese Eigenschaft zu quantifizieren, wird die Moderationsfähigkeit verwendet. Diese setzt sich zusammen aus dem Energiedekrement ξ , dem Quotienten des Wirkungsquerschnitts für elastische Neutronenstreuung σ_{el} und dem Wirkungsquerschnitt σ_γ für die (n, γ) -Reaktion [4].

$$\text{Moderationsfähigkeit} = \xi \frac{\sigma_{\text{el}}}{\sigma_\gamma} \quad (2.20)$$

Das Energiedekrement quantifiziert dabei durch den Logarithmus der Energiebilanz den Energieübertrag bei einem Zusammenstoß

$$\xi = \ln \frac{E_0}{E_n} \quad (2.21)$$

Das optimale Energiedekrement von 1 wird dabei bei der elastischen Streuung von Stoßpartnern mit ähnlicher Masse erreicht. Da freie Neutronen instabil sind, können diese nicht verwendet werden. Allerdings haben Protonen, welche als Wasserstoffkerne in Wassermolekülen vorhanden sind, eine ähnliche Masse, weshalb sich diese besonders eignen. Aufgrund der chemischen Verbindung verschlechtert sich das Energiedekrement leicht, allerdings ist reiner Wasserstoff als Moderator in einem Reaktor nicht praktikabel. Wasserstoff besitzt allerdings einen recht großen Neutroneneinfangquerschnitt, weshalb die Moderationsfähigkeit von Leichtwasser trotz des hohen ξ -Werts nicht überragend ist. Schweres Wasser, also Wassermoleküle mit dem schwereren Wasserstoffisotop Deuterium, ist ebenfalls stabil, hat allerdings aufgrund der doppelten Nukleonenzahl ein niedrigeres Energiedekrement, besitzt aber auch einen deutlich niedrigeren Neutroneneinfangquerschnitt. Da schweres Wasser selten

und kostenintensiv in der Herstellung ist, verwenden wenige Reaktoren DO_2 als Moderator, trotz der deutlich erhöhten Moderationsfähigkeit gegenüber Leichtwasser. Es gibt weitere Kandidaten für Moderatoren, allerdings soll hier nur noch das Graphit besprochen werden, da dies in den russischen Reaktoren des RBMK-Designs als Moderator verwendet wird. Graphit besitzt ebenfalls eine erhöhte Moderationsfähigkeit gegenüber Leichtwasser und ermöglicht so den Betrieb eines Reaktors mit geringerer Anreicherung von ^{235}U im Brennmateriale [14].

Moderator	ξ	σ_{el}	σ_γ	$\sigma_{el}/\sigma_\gamma$	Moderationsfähigkeit
Leichtwasser	0,920	25,47	0,33	77,17	71
Schweres Wasser	0,509	5,57	0,0005	11139,49	5670
Graphit	0,128	5,25	0,0035	1500	192

In einem Reaktor wird allerdings neben dem Moderator auch ein Kühlmittel benötigt, um den Brennstoff vor Überhitzung zu schützen.

2.6 WASSERDICHTHE UND DAMPFBLASENKOEFFIZIENT

Der Dampfblasenkoeffizient ist ein Maß für die Veränderung der Reaktivität eines Kernreaktors bei Veränderungen der Dichteverteilung in Moderator, Kühlmittel oder Flüssigbrennstoff aufgrund der Bildung von Dampfblasen. Die bei der Kernspaltung entstehende Abwärme wird durch das Kühlmittel aufgenommen und abtransportiert. Diese Abwärme wird genutzt, um eine Dampfturbine zur Stromerzeugung zu betreiben. Hierfür muss das Kühlmittel zum Verdampfen gebracht werden, was je nach Reaktordesign im primären oder sekundären Wasserkreislauf geschieht. Alle in dieser Arbeit untersuchten Reaktoren verwenden Wasser als Kühlmittel, weshalb nur dies hier betrachtet wird. Bei Reaktordesigns, die Wasser in dem primären Kühlmittelkreislauf verdampfen lassen, wird Wasser als unterkühlte Flüssigkeit von unten in die Brennelemente eingeführt. Unterkühlt bedeutet, dass die Temperatur der Flüssigkeit unterhalb der Siedetemperatur liegt und das Wasser daher einphasig vorliegt. Beim Durchströmen des Brennelements nimmt es die Umgebungswärme auf, wodurch die Flüssigphase die Sättigung überschreitet und das Wasser anfängt zu sieden. Es entsteht ein Zweiphasengemisch. Die Anteile der Flüssig- und der Gasphase hängen dabei von der Temperatur des Gemischs und dem Druck in dem Reaktordruckbehälter ab.

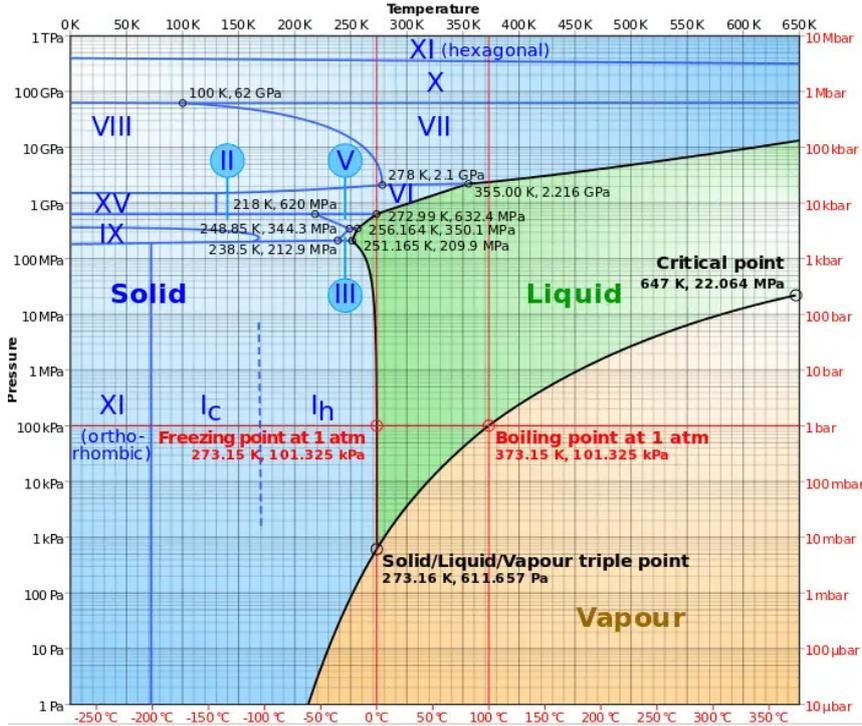


Abbildung 4: Phasendiagramm von Wasser [15].

Da die Gasphase von Wasser allerdings eine ungefähr um den Faktor 30 verringerte Dichte aufweist, verringert ein steigender Dampfanteil die durchschnittliche Dichte des Gemischs drastisch [16]. Die Dichte hängt direkt mit der Moderationsfähigkeit und dem möglichen Wärmetransport zusammen [3]. Sie ist daher essentiell bei der Bestimmung der Reaktivität und der Isotopengeneration, da sie einen direkten Einfluss auf das Neutronenfeld in der Umgebung hat. Daher müssen diese Veränderungen bei den Modellierungen berücksichtigt werden. Bei einem Zweiphasengemisch wird der volumetrische Anteil der Gasphase als Dampfblasenanteil bzw. als Void-Anteil und der entsprechende Massenanteil wird als Dampfqualität bezeichnet. Für die Modellierung des Dampfblasenanteils in verschiedenen Geometrien sind verschiedene Modelle erprobt worden, welche theoretische Annahmen mit empirischen Korrelationsfaktoren verbinden [17, 18, 19, 20]. In dieser Arbeit wird das Slip Ratio Modell verwendet, welches in Appendix A von [18] anschaulich hergeleitet wurde. Hier wird jedoch die Flussqualität nicht explizit über die thermohydraulischen Größen ausgerechnet, sondern über die Korrelationsfaktoren, die in [21] vorgestellt wurden, berücksichtigt.

$$\alpha(z) = \frac{1}{1 + \frac{1-x(z)}{x(z)} \frac{\rho_g}{\rho_f} \frac{v_g}{v_f}} \quad (2.22)$$

$$= \frac{1}{1 + \frac{1-x(z)}{x(z)} \frac{\rho_g}{\rho_f} S} \quad (2.23)$$

Dabei ist $\alpha(z)$ der höhenabhängige Blasenanteil, $x(z)$ die Dampfqualität, und ρ_g bzw. ρ_f sind die jeweilige Dichten der Gas- bzw. Flüssigphase in Abhängigkeit von der Temperatur $T(z)$. Das Verhältnis $\frac{v_g}{v_f}$ wird als Slip Ratio s bezeichnet und ist die relative Geschwindigkeit der beiden Phasen eines Gas-Flüssigkeit-Mediums. Da verschiedene Größen in 2.22 von der Temperatur abhängen, muss auch diese modelliert

werden. Mithilfe des Blasenanteils kann die Dichte des Gemischs bestimmt werden [12]:

$$\varrho(z) = \alpha(z)\varrho_g + (1 - \alpha(z))\varrho_f \quad (2.24)$$

Dabei wird die „chopped sine function“ zur Modellierung der höhenabhängigen Wärmeleistung im Brennelement verwendet [22]. In diesem Fall allerdings durch den Kosinus ausgedrückt.

$$T(z) = T_{\text{in}} + \frac{T_{\text{out}} - T_{\text{in}}}{2} \left(1 - \cos \frac{z\pi}{H}\right) \quad (2.25)$$

Bei einer verringerten Wasserdichte sinkt die Wahrscheinlichkeit, dass freie Neutronen mit den Wassermolekülen zusammenstoßen, wodurch die Moderationsfähigkeit des Wassers sinkt. In Reaktoren, wo Wasser sowohl als Kühlmittel als auch als primärer Moderator verwendet wird, sorgt dies für einen negativen Dampfblasenkoeffizienten. Dieser besagt, dass sich die thermische Leistung verringert, wenn sich die Moderatordichte aufgrund von Dampfblasen verringert. In graphitmoderierten Reaktoren, in denen Wasser als Kühlmittel, aber nicht als Moderator genutzt wird, ergibt sich dieser Effekt nicht. Diese Systeme werden als übermoderiert bezeichnet. Graphit erfährt keine derartigen Dichteänderungen, wodurch Neutronen weiterhin moderiert werden können. Daher erhöht sich die thermische Leistung, wenn sich Hohlräume bilden. Dies muss durch das Regelsystem kompensiert werden, mit Auswirkungen auf das Neutronenspektrum. Insbesondere in den oberen Bereichen eines Brennelementes, da dort die Temperatur des Kühlmittels, und damit der Dampfblasenanteil, am höchsten ist. Dieser Effekt tritt allerdings nur in Siedewasserreaktoren auf, in denen das Wasser im primären Kühlkreislauf zum Sieden gebracht wird. In Druckwasserreaktoren wird der Druck im Reaktorkern derart erhöht, dass keine Verdampfung stattfindet, sondern in einem Wärmeaustauscher ein sekundärer Wasserkreislauf zum Sieden gebracht wird.

2.7 SELBSTABSCHIRMUNG

Die Selbstabschirmungseffekte treten auf, wenn die heterogene Verteilung der Materialien in einem Reaktor in Betracht gezogen wird [4].

2.7.1 ENERGIESELBSTABSCHIRMUNG

Bei der Thermalisierung von Neutronen durch den Moderator durchlaufen die Neutronenenergien ebenfalls den Resonanzbereich von Nukliden im Reaktor, die nicht gespalten werden. Diese Resonanzen sorgen für erhöhte Absorptionswahrscheinlichkeiten der Neutronen und dementsprechend für eine Verringerung des energieabhängigen Neutronenflusses $\Phi(E)$. In der Vierfaktorenformel 2.9 wurde dieser Effekt als Resonanzdurchlasswahrscheinlichkeit einbezogen. Besonders ^{238}U ist hier zu berücksichtigen, da es der Hauptbestandteil von Brennstofftabletten ist, wodurch das Spaltmaterial von einer Matrix aus ^{238}U umgeben ist. Zusätzlich wird bei der Spaltung von ^{235}U Wärme freigesetzt, welche das umgebende UO_2 ebenfalls erwärmt, was wiederum die Dichte verringert. Eine geringere Dichte bedeutet eine geringere Wahrscheinlichkeit, dass ein Neutron das Nuklid trifft. Die zunehmende Temperatur sorgt allerdings aufgrund der Nuklidbewegung für eine Dopplerverbreiterung, wodurch der Absorptionspeak gestaucht wird.

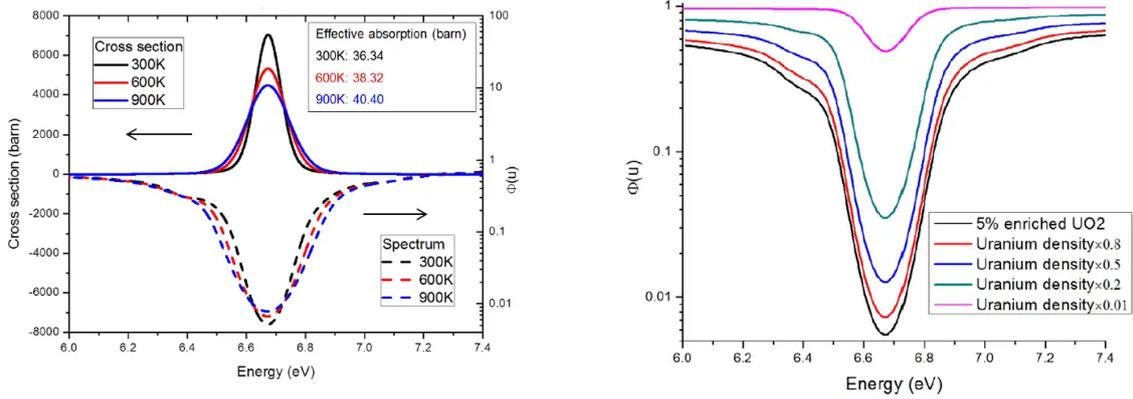


Abbildung 5: Energieselbstabschirmung: (links) Selbstabschirmung von ^{238}U bei verschiedenen Temperaturen, (rechts) Auswirkung der Brennstoffdichte auf den Neutroneneinfang [23]

2.7.2 RÄUMLICHE SELBSTABSCHIRMUNG

Neben der resonanten Selbstabschirmung gibt es auch die räumliche Selbstabschirmung. Dieser Effekt tritt auf, da Spaltneutronen zwar in den Brennstäben entstehen, aber hauptsächlich von dem umgebenden Moderator außerhalb der Brennstäbe thermalisiert werden. Wenn sie dann als thermische oder epithermische Neutronen wieder in den Brennstab eindringen, werden sie aufgrund der Resonanzen wahrscheinlicher in den äußeren Schichten absorbiert. Diese geringe Eindringtiefe resultiert in einer geringeren Neutronenflussdichte für thermische und epithermische Energien im Inneren von Brennstäben. Diese Abschirmung sorgt für einen asymmetrischen Abbrand der Brennstäbe von außen nach innen. Dieser asymmetrische Abbrand sorgt für eine unterschiedliche Oberflächen- und Kerntemperatur im Brennstoff. Diese Temperaturen beeinflussen die resonante Selbstabschirmung (vgl. 5). Innerhalb des hier verwendeten Programms SCALE werden allerdings die Brennstoffzusammensetzung als homogen angenommen, wodurch auch die Temperaturen einheitlich angegeben werden. Um dennoch diese Effekte zu berücksichtigen, wird die effektive Temperatur mit dem Rowland-Modell angegeben als [22, 4]:

$$T_{\text{eff}} = T_S + \frac{4}{9}(T_C - T_S) \quad (2.26)$$

mit T_C als Kerntemperatur und T_S als Oberflächentemperatur.

2.8 NEUTRONENABSORBER UND GEOMETRIE

Die Kernreaktivität lässt sich ebenfalls durch das Einbringen von Neutronenabsorbern manuell regulieren. Die Neutronenabsorber enthalten Nuklide mit großem Neutroneneinfangquerschnitt, die nicht spaltbar sind. Sie fangen daher freie Neutronen ein, ohne zu der Spaltkettenreaktion beizutragen, was zu einer Reduktion der Neutronenpopulation führt und dementsprechend die Reaktivität und Spaltleistung verringert. Je nach Reaktordesign werden diese Neutronenabsorber in verschiedener Form verwendet, beispielsweise kann in einem Druckwasserreaktor Borsäure in das Wasser eingebracht werden, was bei einem Siedewasserreaktor aufgrund der Verdampfung des Kühlmittels nicht möglich ist. Dort wird das Neutronenfeld hauptsächlich durch die Kontrollstäbe gesteuert, die sowohl über die gesamte wie auch nur

die halbe Länge der Brennelemente eingefahren werden können. Häufige Neutronenabsorber sind Gadolinium, Bor und Cadmium [3]. Bei der Herstellung der Ummantelungen der Brennstäbe aus Zircalloy können gegebenenfalls Spuren von Hafnium erhalten bleiben, welches ebenfalls einen hohen Neutroneneinfangquerschnitt besitzt. Ebenfalls hat das Vorhandensein einer Kanalwand, also einer äußeren Ummantelung der Brennelemente, und ihre geometrische Form eine Auswirkung auf die Neutronenstreuung beim Austreten aus dem Brennelementkanal. So werden Neutronen an einer runden Ummantelung anders gestreut als an einer geraden Oberfläche. Diese Effekte spielen zwar nur eine untergeordnete Rolle, können aber bei der Berechnung von Isotopen mit geringer Konzentration dennoch entscheidend sein. Diese Faktoren sind allerdings sehr variabel, sodass sie besser anhand der speziellen Reaktordesigns erläutern lassen und werden daher in Kapitel 5 näher behandelt.

3. COMPUTERCODES

3.1 SCALE

SCALE ist eine Sammlung von Modulen zur Modellierung und Simulation, um nukleare Sicherheit zu analysieren und Reaktordesigns zu entwickeln. Es wird entwickelt und verwaltet vom Oak Ridge National Laboratory [9]. Die verschiedenen Module erfüllen verschiedene Aufgaben, entsprechend der jeweiligen Problemstellung, können aber teilweise auch kombiniert werden, um verschiedene Teilaspekte der Modellierung bzw. der Simulation gleichzeitig untersuchen zu können. Für diese Arbeit wurde hauptsächlich das Modul TRITON gemeinsam mit ORIGEN verwendet. In Kombination ermöglichen sie die zeitabhängige Simulation von Neutronenflüssen und der dadurch entstehenden Abbrände im Reaktor unter Berücksichtigung der einflussnehmenden Faktoren, die in den Grundlagen 2 bereits hergeleitet wurden. Bei der Auslieferung von SCALE wurde eine umfassende Betriebsanleitung mitgeliefert, welche die meisten Funktionen und verwendeten Methoden dokumentiert und erläutert. In diesem Kapitel werden diese Methoden kurz vorgestellt, um ein grundlegendes Verständnis für die Implementierung der physikalischen Parameter und deren Lösung zu vermitteln. Dementsprechend wurden alle hier verwendeten Gleichungen und Erläuterungen, sofern nicht anders gekennzeichnet, dieser Anleitung entnommen.

3.2 SCALE: ORIGEN

3.2.1 ISOTOPENBERECHNUNGSMETHODE

ORIGEN ist ein vom Oak Ridge National Laboratory erstellter Computercode zur Berechnung des Aufbaus, Zerfalls und der Verarbeitung radioaktiver Materialien. Er verwendet dabei verschiedene numerische Methoden, um die Gleichungen 2.6 zu lösen. Diese Gleichungen besitzen allerdings noch keine räumliche Abhängigkeit, daher kann die Lösung als über das Volumen gemittelt angesehen werden. Daher ist auch der Neutronenfluss eine räumlich gemittelte Größe, wodurch die Reaktionsterme mithilfe einer Übergangsmatrix A umgeschrieben werden können.

$$\frac{d\vec{N}}{dt} = A\vec{N}(t) + \vec{S}(t) \quad (3.1)$$

$$\text{mit } A = A_\sigma\Phi + A_\lambda \quad (3.2)$$

Dabei enthält A_σ die Reaktionsterme, welche von dem Neutronenfluss Φ abhängen, und A_λ die Zerfallsterme. Dies ermöglicht eine numerische Lösung mit konstanten Koeffizienten für diskrete Teilschritte. Für jeden Teilschritt wird eine Übergangsmatrix mit konstanten Reaktions-, Fluss- und feed-Koeffizienten generiert. Über einen Zeitabschnitt $t_{n-1} \leq t \leq t_n$ erhalten wir die Gleichung:

$$\frac{d\vec{N}}{dt} = (A_{\sigma,n}\Phi_n + A_\lambda)\vec{N}(t) + \vec{S}_n \quad (3.3)$$

Damit enthält jedes Matrixelement a_{ij} der Übergangsmatrix eine Transmutationskonstante mit den Informationen zur Generierung von Nuklid i aus Nuklid j

$$a_{ij} = \begin{cases} l_{ij}\lambda_j + f_{ij}\sigma_j\Phi & i \neq j \\ -\lambda_i - \sigma_i\Phi & \text{ansonsten} \end{cases} \quad (3.4)$$

Diese Übergangsmatrix muss für jeden Teilschritt mit den neuen Parametern aktualisiert werden. Dabei werden die Zerfallskonstanten $l_{ij}\lambda_j$ und λ_i aus der ORIGEN Zerfallsdatenbank entnommen. Die Reaktionskoeffizienten $f_{ij}\sigma_j$ und σ_j werden in zwei Schritten generiert. Im ersten Schritt werden die Daten aus Reaktions-, Spalt- und Reaktionsausbeutedatenbanken mit dem aktuellen Neutronenfluss verrechnet. Diese Datenbanken werden ebenfalls mit ORIGEN mitgeliefert. Da Wirkungsquerschnitte und Ausbeuten jedoch von vielen Parametern abhängen, können die Daten aus den Datenbanken nicht zutreffend für spezielle Berechnungen sein. Daher lassen sich in Zusammenarbeit mit anderen SCALE-Modulen (z.B. TRITON) fallspezifische Wirkungsquerschnittsdatenbanken erstellen. Diese neuen Wirkungsquerschnitte überschreiben die Werte aus den bereits vorhandenen Datenbanken und ermöglichen eine bessere Berechnung für spezifische Situationen. ORIGEN löst diese Gleichungen nun mithilfe der Matrixexponential/Linearketten-Methode (MATREX).

$$\vec{N}(t) = \exp(At)\vec{N}(0) \quad (3.5)$$

$$= \sum_{k=0}^{\infty} \frac{(At)^k}{k!} \vec{N}(0) \quad (3.6)$$

Dieser Lösungsalgorithmus wird intern durch alternative iterative Methoden ergänzt, sollte ein Problem aufgrund der Präzisionslimitierung von Computern auftreten. Diese Ausführungen führen hier allerdings zu weit und können im Betriebsbuch von SCALE [9] nachgeschlagen werden.

3.2.2 LEISTUNGS- UND FLUSSBERECHNUNGEN

Für die Modellierung ist es von großem Interesse, den Verlauf der Abbrände in einem Zeitraum angeben zu können. Daher ist der Neutronenfluss und die spezifische Leistung in dem Brennelement entscheidend. Hier soll nun eine Formel zur Berechnung dieser spezifischen Leistung bzw. der Neutronenflüsse eingeführt werden. In dem vorherigen Kapitel wurde bereits erläutert, dass die Berechnungsmethoden von ORIGEN konstante Koeffizienten in den diskreten Teilschritten verwenden. Ein konstanter Neutronenfluss bedeutet allerdings nicht, dass die Leistung ebenfalls konstant in diesem Zeitschritt verläuft, da aufgrund der Wirkungsquerschnitte der beteiligten Nuklide Kernreaktionen zufällig auftreten können. Daher ergibt sich die Leistung zum Zeitpunkt t als:

$$P(t) = \sum_i (\kappa_{fi}\sigma_{fi} + \kappa_{ci}\sigma_{ci}) \Phi [N_i(t)] \quad (3.7)$$

Die κ_{fi} -Terme enthalten dabei die nuklidabhängige Energie, die bei einer Spaltung freigesetzt wird. Für die übrigen Kernreaktionen, bei denen ebenfalls Neutronen eingefangen und Energien abgegeben werden, wird der gesammelte Term κ_{ci} verwendet. Die jeweiligen Wirkungsquerschnitte für die Reaktionen σ_{fi} und σ_{ci} werden der problemspezifischen Übergangsmatrix entnommen und die Energien aus einer ORIGEN-Datenbank ausgelesen. Analog lässt sich auch ein variabler Neutronenfluss über eine konstante Leistung definieren:

$$\Phi(t) = \frac{P}{\sum_i (\kappa_{fi}\sigma_{fi} + \kappa_{ci}\sigma_{ci}) [N_i(t)]} \quad (3.8)$$

Das heißt, bei der Berechnung von Abbränden muss für die diskreten Zeitintervalle entweder ein konstanter Neutronenfluss oder eine konstante thermische Leistung angenommen werden (vgl. Abb. 6).

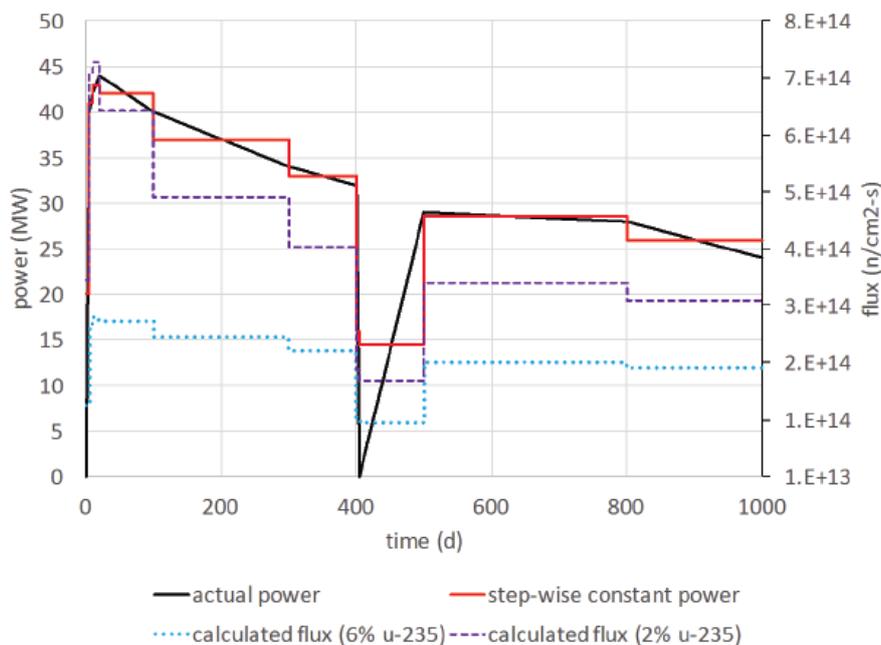


Abbildung 6: Leistungs-/Neutronenfluss-Approximation mit konstanten Koeffizienten in diskreten Zeitintervallen [9].

Oft sind die spezifischen thermischen Leistungen von Brennelementen eher bekannt als die spezifischen Neutronenflüsse, weswegen zumeist Gleichung 3.7 verwendet wird. Bei der Berechnungen des Abbrands von Brennstäben wird daher die „deplete by power“-Methode, also mit konstanter Leistung, verwendet. Bei Kontrollstäben hingegen, welche einen Neutronenabsorber enthalten, wird ein konstanter Fluss verwendet. Dies liegt an den hohen Neutroneneinfangquerschnitten der Absorber, welche aufgrund der räumlichen Selbstabschirmung Schicht für Schicht abgebrannt werden. Dies wird als „deplete by flux“ bezeichnet.

3.2.3 INTERPOLATION

Um eine möglichst genaue Berechnung von Abbränden und Isotopenkonzentrationen zu ermöglichen, ist es notwendig, die Operationsparameter der Brennelemente akkurat wiederzugeben. Das beinhaltet die Anreicherung des Brennstoffs, aber auch die Höhe des maximalen Abbrands, die Geometrie der Brennelemente, die Dichte der Moderatoren, der Brennmaterialien und Kühlmittel, sowie starke Veränderungen der Betriebsparameter z.B. durch Dampfblasenbildung oder das Einbringen von Brennstäben. Die individuelle Berechnung von den Auswirkungen auf das Neutronenfeld und die Leistung ist allerdings sehr ressourcenintensiv. Berechnungen mit Neutronentransportgleichungen können Tage bis Monate dauern, je nach Komplexität des hinterlegten Modells. Neutronentransportrechnungen werden nicht von ORIGEN selbst durchgeführt, sondern mithilfe von Abbranddatenbanken rekonstruiert oder interpoliert. Für die Berechnungen selbst wird das Modul TRITON verwendet, welches die Neutronentransportgleichungen für verschiedene Reaktorparameterkonfigurationen löst und die Neutronenflussparameter in reaktorspezifischen Wirkungsquerschnittsdatenbanken speichert. Diese Datenbanken lassen sich dann durch das Schnittstellenmodul ARP (Automatic Rapid Processing) für verschiedene Leistungen, Abbrände, Anreicherungen und Moderatordichten lösen. Dabei ist jedoch von dem jeweiligen Modellierer einzuschätzen, ob eine Interpolation zwischen zwei

Parametern sinnvoll ist oder ob die Auswirkungen auf das Gesamtsystem zu gravierend sind und eine neue Berechnung der Transportgleichungen für die entsprechende Konfiguration sinnvoller ist.

3.3 SCALE TRITON: NEUTRONENTRANSPORTRECHNUNG

Die in 2.6 hergeleitete Gleichung ist bisher eine 0-dimensionale Beschreibung der Transmutation von Nukliden. Um nun eine Ortsabhängigkeit von dieser Gleichung zu erreichen, müssen zwei Teilaspekte miteinander verbunden werden: Einerseits müssen die Informationen, welche Nuklide an welchem Ort in welcher Menge vorliegen, hinterlegt werden, und zweitens muss die räumliche Veränderung des Neutronenflusses und die Interaktion des Neutronenfeldes mit diesen Nukliden berechnet werden. Dieser zweite Faktor wird als Neutronentransport bezeichnet. Grundlage zur Berechnung ist die lineare Boltzmann-Neutronentransportgleichung. In der Integro-Differentialen-Form lässt sich diese mit Gleichgewichtsbedingungen folgendermaßen schreiben:

$$\hat{\Omega} \cdot \vec{\nabla} \psi(\vec{r}, \hat{\Omega}, E) + \Sigma_t(\vec{r}, E) \psi(\vec{r}, \hat{\Omega}, E) = Q(\vec{r}, \hat{\Omega}, E) \quad (3.9)$$

mit

- $\psi(\vec{r}, \hat{\Omega}, E) \hat{=}$ Winkelfluss bei Position \vec{r} pro Volumeneinheit in Richtung $\hat{\Omega}$ pro Raumwinkel und bei Energie E pro Energieeinheit
- $\Sigma_t(\vec{r}, E) \hat{=}$ Gesamter makroskopischer Wirkungsquerschnitt bei Position \vec{r} und Energie E
- $Q(\vec{r}, \hat{\Omega}, E) \hat{=}$ Quelle bei Position \vec{r} pro Volumeneinheit in Richtung $\hat{\Omega}$ pro Raumwinkel bei Energie E pro Energieeinheit

Der Gleichgewichtszustand ermöglicht eine zeitunabhängige Darstellung. Diese Gleichung hängt dabei von dem (Neutronen-)Winkelfluss $\psi(\vec{r}, \hat{\Omega}, E)$ ab. Dies ist eine mathematische Definition ohne präzise physikalische Relevanz, jedoch steht sie in einem Verhältnis zur Populationsdichte $n(\vec{r}, \hat{\Omega}, E)$ über die Definition [4]:

$$\psi(\vec{r}, \hat{\Omega}, E) \hat{=} E n(\vec{r}, \hat{\Omega}, E) \quad (3.10)$$

Der Quellterm Q beschreibt alle Interaktionen, die zu einer Veränderung des Neutronenwinkelflusses führen. Dieser wird in drei Unterterme aufgeteilt:

$$S_s(\vec{r}, \hat{\Omega}, E) = \int_{4\pi} d\hat{\Omega}' \int_0^\infty dE' \sigma_s(\vec{r}, \hat{\Omega}' \rightarrow \hat{\Omega}, E' \rightarrow E) \psi(\vec{r}, \hat{\Omega}', E') \quad (3.11)$$

$$F(\vec{r}, \hat{\Omega}, E) = \chi(\vec{r}, E) \int_0^\infty dE' \nu(\vec{r}, E') \Sigma_f(\vec{r}, E') \psi(\vec{r}, \hat{\Omega}, E') \quad (3.12)$$

$$S_e(\vec{r}, E) \quad (3.13)$$

$S_s(\vec{r}, \hat{\Omega}, E)$ berücksichtigt dabei alle Streuinteraktionen sowie die Diffusion von Neutronen und alle (n, xn) -Reaktionen. Die entsprechenden Interaktionswahrscheinlichkeiten werden in dem makroskopischen, differentiellen Wirkungsquerschnitt $\Sigma_s(\vec{r}, \hat{\Omega}' \rightarrow \hat{\Omega}, E' \rightarrow E)$ angegeben.

Der Term $F(\vec{r}, \hat{\Omega}, E)$ beinhaltet die Spaltreaktionen. Es wird von einer isotropischen Spaltquelle ausgegangen, weswegen $F(\vec{r}, \hat{\Omega}, E) = \frac{1}{4\pi} F(\vec{r}, E)$ [4]. Das Spaltspektrum

$\chi(\vec{r}, E)$ und die Neutronenausbeute $\nu(\vec{r}, E')$ geben dabei die Anzahl sowie die Energien der entstehenden Neutronen an.

$S_e(\vec{r}, E)$ ist eine externe Neutronenquelle.

Als Lösung dieser Boltzmann-Gleichung erhält man den Neutronenwinkelfluss, welcher durch Integration in einen Neutronenfluss umgerechnet werden kann. Da die Boltzmann-Transportgleichung jedoch nur selten analytisch berechnet werden kann, wurden verschiedene Methoden entwickelt, um sie zu lösen.

3.3.1 KENO: MONTE-CARLO-TRANSPORT

Monte-Carlo-Verfahren Der Transport von Neutronen durch Materie ist, auf einem fundamentalen Level betrachtet, ein stochastischer Prozess. Sowohl die Wahrscheinlichkeit einer Interaktion mit der Materie als auch die Art der Interaktion unterliegt einer stochastischen Wahrscheinlichkeitsverteilung. Diese Wechselwirkungswahrscheinlichkeiten werden in der Kernphysik über die verschiedenen Wirkungsquerschnitte veranschaulicht. Das Monte-Carlo-Verfahren benutzt diesen stochastischen Zusammenhang, um den Neutronenfluss als Durchschnitt der Neutronenverteilungsfunktion darzustellen [24]. Zur Erstellung dieser Verteilungsfunktion wird eine große Anzahl von zufälligen und unabhängigen Neutronenlebenszyklen untersucht. Dabei endet ein Lebenszyklus, wenn das Teilchen entweder aus den Grenzen des Modells austritt (Leckage) oder „vernichtet“ wird. Jedes Neutron entstammt dabei einer Quelle und erhält bei seiner Geburt einen Satz von Anfangsparametern. Ausgehend von einer zeitunabhängigen Transportgleichung setzen sich die Anfangsparameter aus der Energie E , der Richtung $\hat{\Omega}$ und dem räumlichen Ort \vec{r} zusammen und werden zufällig aus den zugrundeliegenden Verteilungen entnommen. Da bei der ersten Neutronengeneration davon ausgegangen wird, dass es sich um Spaltneutronen handelt, wird der Energieparameter aus dem Spaltspektrum χ entnommen. Die Spaltquelle wird als isotrop angenommen, weshalb der Richtungsparameter eine Zufallszahl aus der entsprechend Verteilung ist. Der Geburtsort unterliegt ebenfalls einer räumlichen Verteilung, welche später näher erläutert wird. Die Bewegung des Neutrons kann daher nach seiner Geburt als geradlinig angenommen werden, bis es mit einem Interaktionspartner kollidiert. Die Distanz bis zu einer Kollision hängt dabei von den Wirkungsquerschnitten der umliegenden Teilchen ab, welche in dem makroskopischen Wirkungsquerschnitt Σ_t zusammengefasst werden. Dabei ist die Kollisionswahrscheinlichkeit bei einer Weglänge von s entlang des Flugweges gegeben als [24]:

$$T(s) = \Sigma_t(s) \exp\left(-\int_0^s \Sigma_t(s') ds'\right) \quad (3.14)$$

Hierbei wird zunächst nur festgestellt, dass ein Kollisionsort vorliegt und wo dieser sich befindet, nicht jedoch die Art der Interaktion. Über die Materialkompositionen gepaart mit den Wirkungsquerschnitten wird dann eine Verteilungsfunktion erstellt und durch das Ziehen einer Zufallszahl der genaue Kollisionspartner festgelegt. Die entsprechende Kernreaktion wird dann durch das Ziehen einer weiteren Zufallszahl aus der Wahrscheinlichkeitsverteilung der Kernreaktionen bestimmt. Daher ergibt sich die Wahrscheinlichkeit für eine Kernreaktion vom Typ x mit einem Nuklid des Isotops i als [24]:

$$p_{ix} = \frac{N_i \sigma_{ix}}{\sum_{i,x} N_i \sigma_{ix}} \quad (3.15)$$

Dabei ist N_i die Anzahldichte von Nuklid i , σ_{ix} ist der mikroskopische Wirkungsquerschnitt von Reaktion x von Nuklid i bei der jeweiligen Neutronenenergie. Bei diesen Kollisionen mit einem Teilchen verändern sich die Parameter des Neutrons und eine neue Quelle wird an dem Kollisionsort erschaffen. Die jeweilige Kernreaktion bestimmt dabei die Art der Quelle, welche sich grundsätzlich in zwei Gruppen zusammenfassen lässt (vgl. Abb. 7). Die Absorptionsreaktionen stellen dabei das Ende des Lebenszyklus dar, wodurch das Neutron vernichtet und der Reaktionsort gespeichert wird. Die Streureaktionen hingegen verändern nur die Richtungs- und Energieparameter des Neutrons. Daher werden diese hier neu berechnet und an das Neutron übergeben, welches sich danach dementsprechend erneut geradlinig fortbewegt, bis es auf einen neuen Kollisionsort trifft. Wird das Teilchen schlussendlich absorbiert oder verlässt es die Modellgrenzen, so endet der Lebenszyklus und ein neues Neutron mit neuen zufälligen und unabhängigen Anfangsparametern wird erschaffen, für das dieser Vorgang wiederholt wird.

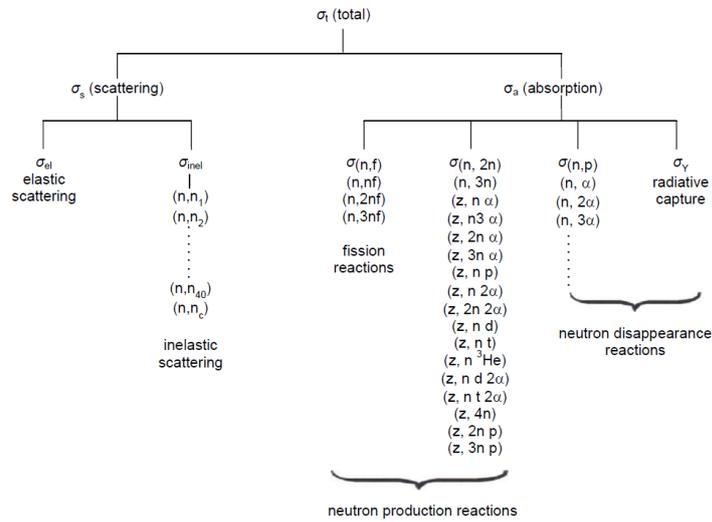


Abbildung 7: Die verschiedenen Kernreaktionen und ihre Kategorisierung [9]. Die Kernreaktionsbezeichnungen entstammen dem ENDF-Format [25]. (n,xxx) sind hierbei alle Reaktionen verursacht durch ein Neutron und (z,xxx) bezeichnet alle Reaktionen verursacht durch Neutronen, geladene Teilchen und Photonen. Mit dem Index i bei einer (n,n_i) -Reaktion wird der Anregungszustand des Stoßpartners nach der Reaktion angegeben.

Da es sich hierbei um eine stochastische Untersuchung handelt, unterliegen die Ergebnisse einem statistischen Rauschen. Dieses lässt sich durch den zentralen Grenzwertsatz abschätzen:

$$\text{stat. Rauschen} \leq \frac{\sigma}{\sqrt{N}} \quad (3.16)$$

Dabei sei N die Anzahl der untersuchten Neutronenlebenszyklen und σ die Standardabweichung. Dieses Verfahren birgt den Vorteil, dass der statistische Fehler, theoretisch, beliebig klein werden kann, wird jedoch durch die praktisch zur Verfügung stehende Rechenleistung begrenzt. Ein weiterer Vorteil ist, dass die untersuchten Modelle keinen geometrischen Begrenzungen unterliegen, sondern beliebig komplex gewählt werden können. Im Gegensatz zu den deterministischen Methoden müssen hier keine Ströme an geraden Berechnungszellwänden bekannt sein, um unbekannte abschätzen zu können. Das macht den Code wesentlich flexibler in der geometrischen

Anwendung, besonders in der Untersuchung von häufig auftretenden Ereignissen. Werden allerdings Ereignisse untersucht, die eine geringe Eintrittswahrscheinlichkeit haben, muss die Anzahl an Wiederholungen drastisch erhöht werden, um statistisch aussagekräftige Ergebnisse zu erhalten [4]. Da dies allerdings nicht praktikabel ist, werden alternativ verschiedene Methoden zur Reduktion der Varianz verwendet, die sich je nach Monte-Carlo-Code unterscheiden können. Zumeist werden die zugrundeliegenden Verteilungen derart angepasst, dass ihr Mittelwert erhalten bleibt, ihre Varianz aber reduziert wird [24]. Dies hängt allerdings von der Art der Implementierung des Monte-Carlo-Verfahrens in den speziellen Codes ab. Für SCALE soll diese im nächsten Paragraphen erläutert werden.

Implementierung in KENO KENO ist ein Monte-Carlo-basierter Lösungsalgorithmus für die Boltzmann-Transportgleichung. Er verwendet dabei die Generationenmethode, um die Kritikalität eines Reaktorsystems zu bestimmen. Dafür werden die Lebenszyklen von n Neutronen im Verlauf einer Generation betrachtet. Sobald alle Lebenszyklen beendet sind, werden die Kollisionsorte, an denen ein Spaltereignis stattgefunden hat als Quellen für die nächste Generation verwendet, von wo aus die neuen Lebenszyklen beginnen und betrachtet werden. Der Multiplikationsfaktor k ergibt sich dann aus dem Verhältnis der Neutronenanzahl n in Generation j durch die Neutronenanzahl in der vorangegangenen Generation [3]:

$$k_j = \frac{n_j}{n_{j-1}} \quad (3.17)$$

Hierbei ist allerdings zu beachten, dass die Boltzmann-Transportgleichung in 3.9 für den Gleichgewichtszustand verwendet wurde. Daher müssen hier die Neutronenanzahlen mit dem k -Faktor normalisiert werden. Unter der Annahme, dass keine Neutronen durch externe Quellen zugeführt werden, ergibt sich daher [9]:

$$Q(\vec{r}, \hat{\Omega}, E) = \int \int dE' d\hat{\Omega}' \psi(\vec{r}, \hat{\Omega}', E') \Sigma_s(\vec{r}, \hat{\Omega}' \cdot \hat{\Omega}, E' \rightarrow E) + \frac{1}{k} F(\vec{r}, \hat{\Omega}, E) \quad (3.18)$$

Hierbei handelt es sich um ein Eigenwertproblem, welches die Neutronenpopulation über den k -Faktor angibt. Hierbei werden Spaltreaktionen als einzige Reaktionen gewertet, welche Neutronen für die nächste Generation erzeugen. Allerdings nur für die Transportberechnungen, für die Reaktionsgleichung in 2.6 werden die übrigen Absorptionsreaktionen sehr wohl berücksichtigt. Die Quellenverteilung der folgenden Generationen wird dabei an die zuvor bestimmte Verteilung der Kollisionsorte mit Spaltreaktion angepasst, wodurch der Multiplikationsfaktor durch Erhöhung der Generationenanzahl an die reale Neutronenquellverteilung konvergiert [3]. Für die initiale Neutronenverteilung können entweder Zufallswerte, Ergebnisse aus zuvor durchgeführten Monte-Carlo-Simulationen, oder Ergebnisse aus deterministischen Berechnungen verwendet werden. Je nach Wahl kann es sinnvoll sein, die Ausgabe der ersten Generationen zu überspringen, bis sich die Werte eingependelt haben.

Neutronengewichtung Um die benötigten Rechenressourcen zu verringern und dennoch statistisch relevante Ergebnisse zu erhalten, werden die Verteilungen, aus denen die Zufallsvariablen gezogen werden, angepasst. Dabei wird nicht der Mittelwert sondern die Varianz reduziert [9, 24]. Dies wird systemische Abweichung (engl.: biasing) genannt. KENO führt hierfür Neutronengewichtungen ein. In Abbildung 7 werden neben der Spaltung noch weitere Absorptionsreaktionen, wie z.B. die

(n, xn) -Reaktionen, aufgelistet, welche ebenfalls neue Neutronen erschaffen können. Um diese Interaktionen dennoch zu betrachten, werden insgesamt drei verschiedene Kollisionsgewichtungen eingeführt. Es wird dabei zwischen Streuung, Absorption und Spaltung unterschieden. Nach jedem Kollisionsevent werden die Neutronengewichtungen neu berechnet [9]:

$$\omega_s = \frac{\sigma_s^i(E)}{\sigma_t^i(E)} \omega_b \quad (3.19)$$

$$\omega_a = \frac{\sigma_a^i(E)}{\sigma_t^i(E)} \omega_b \quad (3.20)$$

$$\omega_f = \frac{\bar{\nu}^i(E) \sigma_f^i(E)}{\sigma_t^i(E)} \omega_b \quad (3.21)$$

mit

$\sigma_s^i(E) \hat{=}$ mikroskopischer Streuwirkungsquerschnitt für Nuklid i bei Energie E

$\sigma_a^i(E) \hat{=}$ mikroskopischer Absorptionswirkungsquerschnitt für Nuklid i bei Energie E

$\sigma_f^i(E) \hat{=}$ mikroskopischer Spaltwirkungsquerschnitt für Nuklid i bei Energie E

$\sigma_t^i(E) \hat{=}$ mikroskopischer Gesamtwirkungsquerschnitt für Nuklid i bei Energie E

$\bar{\nu}^i(E) \hat{=}$ durchschnittliche Neutronenausbeute pro Spaltung von Nuklid i bei Energie E

$\omega_b \hat{=}$ Gewichtung vor der Kollision

Das Gewicht eines jeden Neutrons sinkt also mit jeder Kollision. Nach diesem Ereignis wird durch Ziehen einer Zufallszahl eine „Russisch Roulette“-Abfrage getätigt. Diese eliminiert alle Neutronen mit einem Gewicht unterhalb der durch die Zufallszahl bestimmten Grenze und setzt die Gewichtung für alle Überlebenden zurück. Für eine (n, xn) -Reaktion wird die Entstehung von neuen Neutronen durch eine multiplikative Erhöhung der Neutronengewichtung ($\omega = x \cdot \omega_b$) berücksichtigt. In einem realen Reaktor liegen ungefähr 10^{15} Neutronen vor, welche in einer Monte-Carlo-Simulation nicht praktikabel sind. Um dennoch eine reale Spaltquellenverteilung approximieren zu können, erhält die Spaltreaktion hier ebenfalls einen Gewichtungsfaktor. Dabei wird eine minimale Anzahl an Punkten definiert, an denen ein Neutron eine Spaltung erzeugen muss, um genügend Spaltungen entsprechend dem k -Faktor zu erhalten. Diese Anzahl ist für das 99 %-Konfidenzintervall gegeben durch[9]:

$$SP_{\min} = \frac{3.0\bar{k}}{\sqrt{n}} \quad (3.22)$$

mit

$\bar{k} \hat{=}$ durchschnittlicher k -Faktor in der aktuellen Generation

$n \hat{=}$ Neutronenanzahl pro Generation

Ist das Spaltgewicht ω_f in einem Kollisionsort größer als 0, also handelt es sich um ein spaltbares Material, dann wird dies durch eine Zufallszahl R geteilt, um das Pseudo-Spaltgewicht zu berechnen:

$$\omega_{pf} = \frac{\omega_f}{R} \quad (3.23)$$

Ist dieses Pseudo-Spaltgewicht größer als SP_{\min} , dann wird dieser Kollisionsort als Spaltquelle gespeichert. Das Neutron erhält, analog zur Streuung, eine neue Energie, eine neue Richtung und das Spaltgewicht sinkt um den Wert SP_{\min} . Dieser Vorgang wird wiederholt, bis das Spaltgewicht kleiner als 0 ist.

3.3.2 NEWT: DISKRETER TRANSPORT

Alternativ zu den Monte-Carlo-Verfahren kann der Neutronenfluss auch ohne stochastische Methoden berechnet werden. Diese deterministische Verfahren bedienen sich wiederum verschiedener numerischer Verfahren, um die Transportgleichung zu lösen. Dabei ist eine geeignete Approximierung der Problemgeometrie entscheidend. Zur Lösung wurden verschiedene Methoden entwickelt, hier soll aber die „Diskrete Ordinaten-Methode“ näher beleuchtet werden. Diese unterteilt den Raumwinkel $\hat{\Omega}$ in diskrete Teilrichtungen Ω_n durch geeignete Darstellung mit der Kosinusfunktion. Diese Darstellungen werden so gewählt, dass die zu integrierenden Polynome mit maximaler Genauigkeit gelöst werden können. Ziel der hier folgenden Herleitung ist es, die grundlegenden Zusammenhänge der physikalischen Größen und der mathematischen Diskretisierungen herzustellen und so ein Verständnis für die Möglichkeiten und Grenzen dieser Methode zu schaffen. Da hier die physikalischen Zusammenhänge mit den durch den Code vorgegebenen Limitierungen im Vordergrund stehen, wird auf eine detaillierte Herleitung aller mathematischen Formeln verzichtet. Diese können allerdings in den angegebenen Quellen nachvollzogen werden.

Die lineare Boltzmann-Transportgleichung erster Ordnung kann für zweidimensionale kartesische Koordinaten ausgedrückt werden als [24]:

$$\mu_n \frac{\partial \psi(\Omega_n)}{\partial x} + \eta_n \frac{\partial \psi(\Omega_n)}{\partial y} + \Sigma_t \psi(\Omega_n) = Q(\Omega_n) \quad (3.24)$$

Die beiden Raumvariablen μ und η sind Raumquadraturen, die für die jeweilige geometriebabhängige Diskretisierung S_N bestimmt werden müssen. Sie werden über den Kosinus definiert als:

$$\mu = \cos \theta \quad (3.25)$$

$$\eta = \sqrt{1 - \mu^2} \cos \omega \quad (3.26)$$

Dabei wird durch die Anzahl der Diskretisierungsschritte S_N die Anzahl an Raumvariablen vorgegeben indem μ_1 gewählt wird, die im Folgenden unter der Bedingung $\mu_n = \eta_n$ [24] über die rekursive Vorschrift

$$\mu_n^2 = \mu_1^2 + 2(n-1) \frac{1 - 3\mu_1^2}{N-2} \quad (3.27)$$

bestimmt werden. Die Quellterme Q können außerdem durch Kugelflächenfunktionen dargestellt werden:

$$Q(\Omega_n) = \sum_{l=0}^L \sum_{m=0}^l (2 - \delta_{m0}) Y_{lm}(\Omega_n) \Sigma_{sl} \phi_l^m + S(\Omega_n) \quad (3.28)$$

mit ϕ_l^m als Flussmoment in der Diskreten Ordinaten Näherung:

$$\phi_l^m = \frac{1}{4} \sum_{n=1}^{\frac{N(N+2)}{2}} w_n Y_{lm}(\Omega_n) \psi(\Omega_n) \quad (3.29)$$

Mithilfe dieser Diskretisierung lassen sich nun Gitterzellen erstellen, für die konstante Parameter angenommen werden. Insbesondere sind dies hier die Wirkungsquerschnitte. Die Ränder dieser Zellen werden über $x_{i-\frac{1}{2}} < x < x_{i+\frac{1}{2}}$ und $y_{j-\frac{1}{2}} < y < y_{j+\frac{1}{2}}$ definiert, mit Mittelpunkt in (x_i, y_j) . Für diese Gitterzellen lassen sich mithilfe des Volumens $\Delta x_i \Delta y_j$ aus den beiden Rändern $\Delta x_i = x_{i+\frac{1}{2}} - x_{i-\frac{1}{2}}$ und $\Delta y_j = y_{j+\frac{1}{2}} - y_{j-\frac{1}{2}}$ die volumengemittelten Winkelflüsse und Quellen berechnen:

$$\psi_n^{ij} \equiv \frac{1}{\Delta x_i \Delta y_j} \int_i dx \int_j dy \psi_n(x, y) \quad (3.30)$$

$$Q_n^{ij} \equiv \frac{1}{\Delta x_i \Delta y_j} \int_i dx \int_j dy Q_n(x, y) \quad (3.31)$$

$$(3.32)$$

Da in den Zellrändern keine Quellen liegen können, werden dort nur die oberflächengemittelten Flüsse bestimmt.

$$\psi_n^{i+\frac{1}{2},j} \equiv \frac{1}{\Delta y_j} \int_j dy \psi_n(x_{i+\frac{1}{2}}, y) \quad (3.33)$$

$$\psi_n^{i,j+\frac{1}{2}} \equiv \frac{1}{\Delta x_i} \int_i dx \psi_n(x, y_{j+\frac{1}{2}}) \quad (3.34)$$

Dies sind die Fluss- und Quellterme aus der Gleichung 3.24. Integrieren über diese liefert die Neutronenbilanzrelation:

$$\frac{\mu_n}{\Delta x_i} \left(\psi_n^{i+\frac{1}{2},j} - \psi_n^{i-\frac{1}{2},j} \right) + \frac{\eta_n}{\Delta y_j} \left(\psi_n^{i,j+\frac{1}{2}} - \psi_n^{i,j-\frac{1}{2}} \right) + \Sigma_t^{ij} \psi_n^{ij} = Q_n^{ij} \quad (3.35)$$

Über die „diamond difference method“ können dabei die volumengemittelten Flüsse mit den oberflächengemittelten in ein Verhältnis gesetzt werden [24].

$$\psi_n^{ij} = \frac{1}{2} \left(\psi_n^{i+\frac{1}{2},j} + \psi_n^{i-\frac{1}{2},j} \right) = \frac{1}{2} \left(\psi_n^{i,j+\frac{1}{2}} + \psi_n^{i,j-\frac{1}{2}} \right) \quad (3.36)$$

Diese Flüsse werden nun durch ein Sweepverfahren ermittelt. Es ist allerdings sinnvoll, zwischen einfallenden ($\psi_n^{i-,j}$, $\psi_n^{i,j-}$) und ausgehenden Flüssen ($\psi_n^{i+,j}$, $\psi_n^{i,j+}$) zu unterscheiden [4].

$$\psi_n^{i-,j} = \begin{cases} \psi_n^{i-\frac{1}{2},j} & \text{für } \mu > 0 \\ \psi_n^{i+\frac{1}{2},j} & \text{für } \mu < 0 \end{cases} \quad \psi_n^{i+,j} = \begin{cases} \psi_n^{i+\frac{1}{2},j} & \text{für } \mu > 0 \\ \psi_n^{i-\frac{1}{2},j} & \text{für } \mu < 0 \end{cases} \quad (3.37)$$

$$\psi_n^{i,j-} = \begin{cases} \psi_n^{i,j-\frac{1}{2}} & \text{für } \eta > 0 \\ \psi_n^{i,j+\frac{1}{2}} & \text{für } \eta < 0 \end{cases} \quad \psi_n^{i,j+} = \begin{cases} \psi_n^{i,j+\frac{1}{2}} & \text{für } \eta > 0 \\ \psi_n^{i,j-\frac{1}{2}} & \text{für } \eta < 0 \end{cases} \quad (3.38)$$

Mit dieser Unterscheidung folgt für die Sweepmethode [24]:

$$\psi_n^{ij} = \left(\Sigma_t^{ij} + \frac{2\mu_n}{\Delta x_i} + \frac{2\eta_n}{\Delta y_i} \right)^{-1} \left(\frac{2\mu_n}{\Delta x_i} \psi_n^{i-\frac{1}{2},j} + \frac{2\eta_n}{\Delta y_i} \psi_n^{i,j-\frac{1}{2}} + Q_n^{ij} \right) \quad (3.39)$$

Über diese Terme lassen sich die ausgehenden Flüsse mithilfe der Relation 3.36 bestimmen:

$$\psi_n^{i+,j} = 2\psi_n^{ij} - \psi_n^{i-,j} \quad (3.40)$$

$$\psi_n^{i,j+} = 2\psi_n^{ij} - \psi_n^{i,j-} \quad (3.41)$$

Die numerische Näherung des Flusses ψ_n^{ij} für den Winkel Ω_n lässt sich also durch bekannte Quellen Q_n^{ij} und die einfallenden Flüsse $\psi_n^{i-,j}$ und $\psi_n^{i,j-}$ berechnen. Aus diesen lassen sich die ausgehenden Flüsse $\psi_n^{i+,j}$ und $\psi_n^{i,j+}$ berechnen, welche wiederum die einfallenden Flüsse der benachbarten Zellen sind. Welche Zellen das sind, wird durch die Bewegungsrichtung der ausgehenden Flüsse bestimmt.

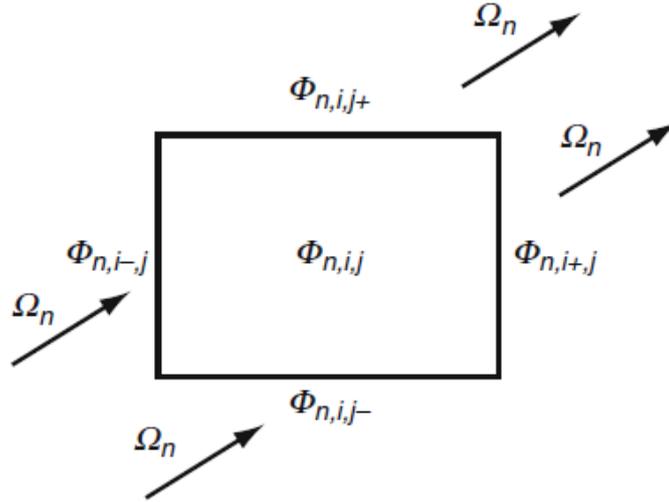


Abbildung 8: Ein- und ausfallende Flüsse für eine Gitterzelle in diskreten Ordinaten [4]

In dieser Methode müssen allerdings die Ränder der Gitterzellen senkrecht aufeinanderstehen. Für allgemeinere Geometrien wurden daher Weiterentwicklungen von dieser klassischen Diskreten Ordinaten-Methode durchgeführt, welche im Folgenden erläutert werden. Sie bauen allerdings auf der hier vorgestellten Methode auf, weshalb diese hier im Detail erklärt wurde.

MOC: Step Characteristics Die MOC unterteilt ebenfalls die Raumrichtungen in diskrete charakteristische Richtungen in einer Berechnungszelle. Entlang dieser Richtung wird eine Achse s definiert. Das ermöglicht die Umschreibung des Strömungsterms der Boltzmann-Transportgleichung zu [9]

$$\hat{\Omega} \nabla \psi(\vec{r}, \hat{\Omega}, E) = \frac{d\psi(s, E)}{ds} \quad (3.42)$$

Mit diesem Strömungsterm lässt sich die Boltzmann-Transportgleichung 3.9 in der charakteristischen Form schreiben [9]:

$$\frac{d\psi(s, E)}{ds} + \Sigma_t(s, E)\psi(s, E) = Q(s, E) \quad (3.43)$$

Unter Vernachlässigung der Energieabhängigkeit lässt sich der Winkelfluss in Richtung s durch Integrieren schreiben als:

$$\psi(s) = \psi_0 e^{-\Sigma_t s} + e^{-\Sigma_t s} \int_0^s Q e^{\Sigma_t s'} ds' \quad (3.44)$$

s sei hierbei die Distanz entlang der Achse s und ψ_0 der bekannte Winkelfluss bei $s = 0$. Die „Step Characteristics“ Methode von Lathrop beruft sich dabei auf die MOC. In dieser Methode werden der makroskopischen Gesamtwirkungsquerschnitt σ_t und die Quellterme Q als konstant angenommen, wodurch sich das Integral vereinfacht zu:

$$\psi(s) = \psi_0 e^{-\Sigma_t s} + \frac{Q}{\sigma_t} (1 - e^{-\Sigma_t s}) \quad (3.45)$$

Zusammen mit den zuvor hergeleiteten Relationen lassen sich daraus unbekannte Flüsse aus Lineargewichtungen der durchschnittlichen Beiträge aus den bekannten Flüssen an bekannten Rändern berechnen (vgl. 3.36, 3.39, 3.40). Diese Methode setzt also nur die Bekanntheit der Zusammenhänge der Ränder entlang der charakteristischen Richtung voraus, nicht aber eine rechteckige Zelle. Daher wurde diese Methode zu der „Extended Step Characteristics“ weiterentwickelt, welche in NEWT verwendet wird.

NEWT NEWT (New ESC-based Weighting Transport code) ist ein Modul zur Lösung der zweidimensionalen Transportberechnungen. Es ist eine Weiterentwicklung des CENTAUR-Codes und ermöglicht eine Diskretisierung von Ebenen in einer willkürlichen Gitteranordnung von Polygonen. Es beruft sich daher auf zwei grundsätzliche Annahmen [9]:

1. Die Eigenschaften innerhalb eine Zelle sind konstant (z.B. σ_t und Q)
2. Die Zellgrenzen bestehen aus geraden Linien

Mit dieser Methode lassen sich daher, theoretisch, willkürliche Polygone berechnen, da keine Vorgaben für die Form oder Seitenanzahl existieren. Jede Seite des Polyons erfüllt dabei, entlang einer charakteristischen Richtung $\hat{\Omega}_k$, eine von drei Kategorien (vgl. Abb. 9)

- i. Neutronenflüsse können durch diese Seite in die Zelle eintreten (F, E)
- ii. Neutronenflüsse können durch diese Seite aus der Zelle austreten (B, C)
- iii. Neutronenflüsse können parallel zu dieser Seite verlaufen (A, D)

Diese Eigenschaften werden mit einem Normalenvektor \hat{n}_i für die Seite i ausgedrückt als:

$$\text{Kategorie 1} \quad \hat{\Omega}_k \cdot \hat{n}_i < 0 \quad (3.46)$$

$$\text{Kategorie 2} \quad \hat{\Omega}_k \cdot \hat{n}_i > 0 \quad (3.47)$$

$$\text{Kategorie 3} \quad \hat{\Omega}_k \cdot \hat{n}_i = 0 \quad (3.48)$$

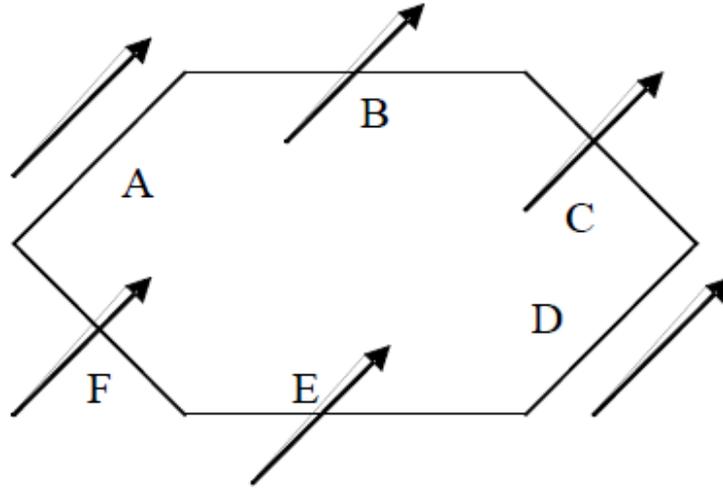


Abbildung 9: Eintretende, austretende und parallele Flüsse bei einem Polygon in NEWT [9]

Analog zu 3.40 können so die austretenden Flüsse durch die einfallenden Flüsse bestimmt werden. Diese werden dabei durch die Randbedingungen oder angrenzende Zellen vorgegeben. Der untersuchte Modellbereich wird daher in eine globale Zelle, welche die Randbedingungen vorgibt, sowie endlich viele kleinere Zellen innerhalb dieser globalen Zelle, aufgeteilt. Über die hier dargestellten Zusammenhänge teilen sich daher Zellen an den angrenzenden Seiten die Werte für den Winkelfluss. Die Sweepmethode wird daher so gewählt, dass die Lösung für eine Zelle genug Randbedingungen für die angrenzenden Zellen liefert, damit diese gelöst werden können. Sobald die Winkel Flüsse für alle Seiten bestimmt sind, kann über die Neutronenbilanz (3.35) der durchschnittliche Winkelfluss in der Zelle bestimmt werden. Für die Interaktionen innerhalb der Zelle benötigt man allerdings die skalare Größe des Neutronenflusses [9]. Hierfür ist es sinnvoll, die charakteristischen Größen entsprechend einer geeigneten Quadratur zu wählen (vgl 3.3.2). In diesen Quadraturen können Richtungsgewichtungen bestimmt werden, welche mit den Winkelflüssen verrechnet werden können. Durch Aufsummieren erhält man dann die Lösung für den skalaren Neutronenfluss innerhalb der Zelle. Da die Eigenschaften innerhalb der Zelle als konstant angenommen werden, muss eine geeignet feine Unterteilung der Modellgeometrie gewählt werden, um reale Umstände bestmöglich widerspiegeln zu können und dabei die benötigte Rechenzeit so gering wie möglich zu halten.

Dieses Verfahren liefert einen Ansatz zur Diskretisierung der Variable $\hat{\Omega}$. Zusätzlich wird in NEWT auch eine Multigruppennäherung verwendet, welche die Transportgleichung von der Energievariable entkoppelt. Diese soll im nächsten Abschnitt näher beleuchtet werden.

3.3.3 NEUTRONENENERGIE UND WIRKUNGSQUERSCHNITTSBIBLIOTHEKEN

In den hier verwendeten Codes gibt es zwei fundamentale Betrachtungen der Neutronenenergien. Die grundsätzliche Boltzmann-Transportgleichung ermöglicht die Beschreibung von Neutronen in einem kontinuierlichen Energiespektrum. Da allerdings die meisten Größen darin ebenfalls von der Energie abhängen, erfordert dies einen erheblichen Rechenaufwand und die Kenntnis von der kontinuierlichen Verteilung

von diesen Parametern, wie zum Beispiel der Wirkungsquerschnitte. Hingegen die Multigruppennäherung (engl.: multigroup approximation) diskretisiert dieses kontinuierliche Spektrum in Energieuntergruppen:

$$E_{\min} = E_G < E_{G-1} < \dots < E_g < E_{g-1} < \dots < E_2 < E_1 = E_{\max} \quad (3.49)$$

Für diese Gruppen wird angenommen, dass die Neutronen mit einer einheitlichen Geschwindigkeit vorliegen, wodurch über die energieabhängigen Eigenschaften gemittelt werden kann. Da in vielen Methoden zum Lösen der Transportgleichungen numerische Verfahren verwendet werden, kann dies den Berechnungsvorgang erheblich vereinfachen. Es ermöglicht eine Summierung über die Energiegruppen, anstatt über das gesamte Energiespektrum zu integrieren. Mit den in 3.3.2 hergeleiteten diskreten Raumwinkeln Ω_n folgt für die Boltzmann-Transportgleichung in der Energiegruppe E_g [24]:

$$\Omega_n \cdot \nabla \psi_g(r, \Omega_n) + \Sigma_t^g \psi_g(r, \Omega_n) = Q^g(r, \Omega_n) \quad (3.50)$$

Diese Gleichung lässt sich mit den zuvor hergeleiteten Verfahren für alle Energiegruppen einzeln errechnen. Dabei müssen E_{\min} und E_{\max} so gewählt werden, dass die Neutronen mit Energien, die nicht in diesem Intervall liegen, vernachlässigbar sind [4]. Die Anzahl an Untergruppen ist dabei nicht festgesetzt und von der jeweiligen Datenbank abhängig. Sie müssen jedoch passend gewählt werden, um die relevanten Resonanzen von den im Modell vorliegenden Isotopen abzubilden. Meist werden die Gruppen anhand des Energiedekrements definiert, da schnelle Neutronen pro Stoßvorgang mehr Energie abgeben als niederenergetische Neutronen (vgl. Energiedekrement 2.5). Die Energieintervalle werden daher bei zunehmender Thermalisierung feiner. Zudem ist damit eine Abhängigkeit von dem Moderator gegeben, da Neutronen bei Stoßvorgängen mit schwereren Nukliden weniger Energie abgeben. Dies erfordert eine zusätzliche Bewertung der passenden Energiegruppenunterteilung in Abhängigkeit von den gegebenen Problemparametern. Um dies zu umgehen, wird in dieser Arbeit hauptsächlich die ENDF/B-VII.1 mit 252 Energieuntergruppen verwendet, welche das feinste Gitter darstellt.

3.4 TRITON-DEPLETION

Die Abbrandsequenzen von TRITON (engl.: TRITON depletion sequences) ermöglichen es nun, die Abbrandberechnung von ORIGEN mit den Transportberechnungen von TRITON zu koppeln. TRITON liefert dabei die raum- und energieaufgelösten Neutronenflussverteilungen, die energie- und temperaturabhängigen Wirkungsquerschnitte, Materialkonzentration, sowie die Materialvolumina. ORIGEN hingegen sorgt für die Normalisierung des Flusses sowie für die zeitabhängigen Transmutationen der definierten Materialien. Die Abfolgen der entsprechenden Berechnungsprozesse werden automatisiert von den Abbrandsequenzen für die vom Nutzer definierten Zeitintervalle vorgenommen [9]. Die Zeitintervalle unterteilen sich in Brennzeiträume und Abklingzeiträume. Ein Brennzeitraum ist dabei durch eine konstante Leistung charakterisiert (vgl. Abb. 6) und kann von einem weiteren Brennzeitraum mit einer anderen Leistung oder von einem Abklingzeitraum gefolgt werden. Während einer Brennperiode verändert sich die Isotopenzusammensetzung des Brennmaterials durch Transmutation, wodurch sich die Wirkungsquerschnitte, Neutronenflussverteilungen, Leistungsverteilungen und Transmutationsraten verändern.

Daher können diese Zeiträume noch unterteilt werden, damit TRITON die Parameter korrigieren und aktualisieren kann. TRITON verwendet dafür eine „Vorhersage-Korrektur-Methode“ (engl.: predictor-corrector approach). In dieser Methode werden die Wirkungsquerschnitts- und Transportberechnungen anhand von vorhergesagten Nuklidkonzentrationen zur Mitte des Abbrandzwischen schritts getätigt. Die Abbrandberechnungen werden dann mit diesen Werten für den gesamten Zwischenschritt bis zur Mitte des nächsten Zwischenschritts durchgeführt. Dabei ist unerheblich, ob ein Abklingzeitraum durchschritten wird. An dieser Stelle werden dann die neuen Wirkungsquerschnitts- und Transportberechnungen durchgeführt. Dies wird iterativ fortgesetzt, bis alle Brennzeiträume berechnet wurden. Die erste Iteration wird dabei anhand der initialen Nuklidzusammensetzung durchgeführt, für die die entsprechenden initialen Wirkungsquerschnitte und Transportparameter berechnet werden (T_0).

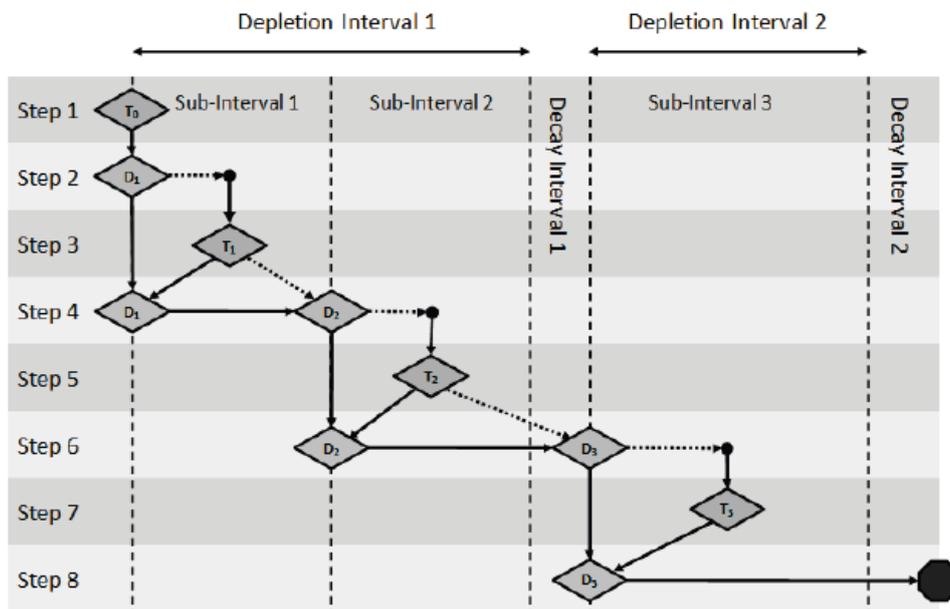


Figure 3.1.1. Predictor/corrector depletion algorithm used by TRITON.

Abbildung 10: TRITONs predictor-corrector approach, T_i : Transportrechnungen, D_i : Abbrandrechnung, Quelle: Scale 6.2 Manual

3.4.1 MCDANCOFF: DANCOFF-FAKTOREN

Zur Berechnung der resonanten Selbstabschirmung wird generell ein einzelner Brennstab, umgeben von einem unendlichen Moderator, angenommen. Dabei wird die Präsenz von anderen Brennstäben in dem Brennelementgitter durch den Dancoff-Korrekturfaktor berücksichtigt. Die Genauigkeit dieses Korrekturfaktors hängt dabei von der Komplexität und Irregularität der hinterlegten Geometrie ab [26]. SCALE berechnet diese Dancoff-Faktoren inhärent durch die Geometrieangaben im Celldata-Block durch den ausgewählten Wirkungsquerschnittsverarbeitungsalgorithmus (vgl. 3.5.2). Diese Berechnungen können aber durch inhomogene Gittereffekte ungenau werden. Daher wird die explizite Berechnung der Dancoff-Faktoren bei heterogenen Reaktordesigns, wie dem Siedewasserreaktor, empfohlen [27]. MCDancoff bedient sich dabei der Monte-Carlo-Methode (3.3.1), um die Korrekturfaktoren für beliebige

3D-Geometrien für kontinuierliche Energiespektren zu bestimmen. Diese errechneten Dancoffaktoren lassen sich dann in dem Celldata-Block manuell eingeben.

3.5 TRITON INPUTDATEIEN

Die Charakteristiken des Reaktormodells werden für SCALE-Simulationen in Inputdateien an die Programmmodule übergeben. Die Module in SCALE werden keyword-basiert angesprochen, d.h. Informationen werden über bestimmte Schlüsselwörter in Informationsblöcken übergeben. Dabei ist die grundsätzliche Struktur für alle Anwendungen sehr ähnlich und es müssen nur bestimmte Parameter angepasst werden. Dies ermöglicht die Erstellung von Modellblaupausen, in denen die charakteristischen Modellparameter wie Geometrie und grundsätzliche Materialkompositionen konstant bleiben und nur durch fallspezifische Parameter, wie Anreicherung oder Brennleistung/-dauer, ergänzt werden müssen.

3.5.1 COMPOSITION-BLOCK

Im Composition-Block werden die einzelnen Materialien, welche in dem Modell verwendet werden, spezifiziert. Das SCALE-Modul XSPProc ermöglicht dabei die Erstellung von Materialien aus Mixturen, Elementen, Isotopen, Legierungen und Spalllösungen. Für diese Materialkompositionen werden initiale Parameter festgesetzt, wie die Temperatur, die Dichte und die Isotopenzusammensetzung, anhand derer die problemspezifischen Wirkungsquerschnitte bestimmt werden. Diese müssen dann durch die Berechnung der Selbstabschirmungsparameter angepasst werden. Jedes Material erhält dabei eine Identifikationsnummer, die in den folgenden Blöcken abgerufen werden kann, um die entsprechenden Berechnungen vorzunehmen.

3.5.2 CELLDATA-BLOCK

Der Celldata-Block berechnet die initialen Selbstabschirmungsparameter für die spezifizierten Materialien. Zu diesem Zweck werden Zellen (ähnlich zu den Zellen in NEWT und KENO) definiert, welche die umgebenden Eigenschaften des untersuchten Objektes, meistens Brennstäbe, am besten widerspiegeln. Man kann dabei aus vier verschiedenen Zelltypen wählen, in dieser Arbeit werden aber lediglich zwei verwendet. Für reguläre Brennstäbe wird zumeist eine Gitterzelle (engl.: latticecell) verwendet. Bei diesen Gitterzellen wird davon ausgegangen, dass der untersuchte Brennstab unendlich lang ist und in einem unendlichen Gitter aus identischen Brennstäben vorliegt. Diese Annahmen sind besonders für DWR hinreichend genau. Bei der geometrischen Bestimmung des Gitters wird dabei allerdings zwischen einer quadratischen (engl.: square pitch) und einer schrägen Ausrichtung (engl.: triangular pitch) der Brennstäbe unterschieden, da dies die Zellengeometrie verändert. Eine quadratische Ausrichtung benutzt dabei eine quadratische Zelle und eine schräge Ausrichtung ein hexagonales Prisma (vgl. 11). Innerhalb dieser Zelle werden nun die geometrischen Dimensionen definiert und mit den entsprechend Materialien aus dem Composition-Block versehen. Es sind dabei nicht beliebig viele Regionen definierbar, sondern nur die, welche für den Gittertyp vorgesehen sind. Für die Gittertypen in Abbildung 11 sind diese Regionen Brennmaterial, Lücke, Ummantelung, sowie Moderator. Als Zweites wird in dieser Arbeit der „Multiregion“-Zelltyp verwendet. Dieser wird eingesetzt, wenn die Geometrie des Brennmaterials eine große

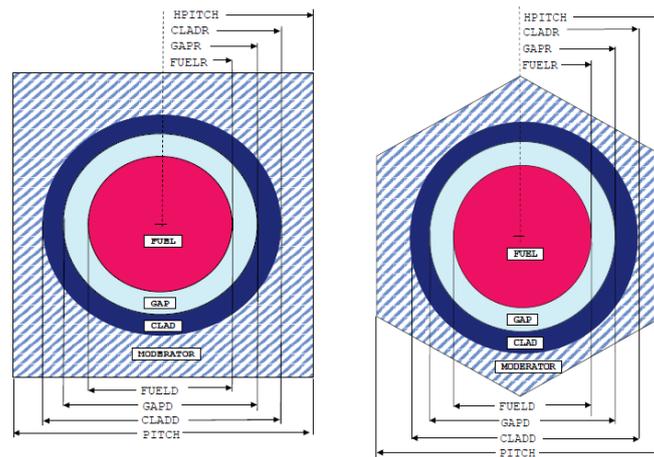


Abbildung 11: Quadratische und hexagonale Gitterzellen [9].

Auswirkung auf die räumliche Selbstabschirmung hat, diese aber nicht mit der herkömmlichen Gitterzelle definiert werden kann. Dies ist der Fall bei Brennstoffen mit Neutronenabsorbern, welche Schicht für Schicht abgebrannt werden (vgl. 2.7). Da für eine Simulation fünf bis zehn konzentrische Zylinder mit gleichem Volumen an Brennstoff empfohlen werden [28], lassen sich diese nicht durch die festgeschriebene Anzahl an Regionen aus der Gitterzelle definieren. Eine „Multiregion“-Zelle kann eine beliebige Anzahl an konzentrischen Zylindern verarbeiten. Jedoch eignet sich dieser Zelltyp nicht für den regulären Brennstoff, da die Gittereffekte in dieser Anordnung nicht genau genug approximiert werden [9]. Für diese Zellen werden nun die initialen Selbstabschirmungsparameter und Wirkungsquerschnitte mit dem ausgewählten Algorithmus bestimmt (CENTRM oder BONAMI).

3.5.3 DEPLETION-BLOCK

Im Depletion-Block werden die Materialien definiert, für die der Abbrand berechnet werden soll. Dabei wird spezifiziert, auf welche Art und Weise diese Berechnung vorgenommen werden soll. Für die regulären Brennstoffe wird der Abbrand mit der „deplete by power“-Methode berechnet und für Materialien mit Neutronenabsorbern mit der „deplete by flux“-Methode (vgl. 3.2.2).

Des Weiteren wird hier spezifiziert, ob die im Burndata-Block angegebene Leistung als Durchschnitt für alle im Modell verwendeten Brennstäbe verwendet wird, oder ob diese für einen spezifischen Brennstab bzw. eine spezifische Brennstabregion berechnet wurden. In radiochemischen Analysen ist zumeist der Abbrand von spezifischen Brennstäben bekannt und anhand dessen sollen entsprechende Nuklidkonzentrationen modelliert werden. Der Brennstab sollte allerdings nicht isoliert modelliert werden, sondern das gesamte Brennelement, um die im Kapitel 2 vorgestellten Einflussfaktoren zu berücksichtigen. Die brennstabspezifische Leistung wird dann als Normierung ausgewählt, wodurch die Neutronenflüsse in dem Brennelement derart angepasst werden, dass in dem ausgewählten Brennstab die Leistung über die Bestrahlungsdauer erhalten bleibt.

3.5.4 BURNDATA-BLOCK

In diesem Block wird der operative Verlauf des Brennelementes bzw. Brennstabes in diskreten Zeitintervallen festgehalten. Die Bestrahlungs- und Abklingdauer wird hier in Tagen, die spezifische Leistung dieser Periode in MW/tU definiert. Entweder wird diese spezifische Leistung als durchschnittlicher Wert für das gesamte Brennelement genommen oder kann als spezifischer Wert für ein bzw. mehrere Materialien verwendet werden. Außerdem wird hier definiert, wie oft für den entsprechenden Brennzyklus Zwischenschritte eingefügt werden, um die Wirkungsquerschnitte zu aktualisieren und den Neutronenfluss durch den Neutronentransport neu berechnen zu lassen. Die Übergangsmatrizen und der Neutronenfluss werden dabei in der Mitte eines Zwischenschrittes aktualisiert.

3.5.5 GEOMETRY-BLOCK

Hier wird die grundsätzliche Geometrie für die Transportcodes NEWT und KENO definiert. Obwohl in dem Celldata-Block bereits geometrische Parameter eingegeben wurden, werden sie dort nur zur Berechnung der Selbstabschirmung verwendet und haben daher keine Bedeutung für NEWT und KENO. Die verwendeten Parameter können sich daher auch von den in diesem Block erstellten Zellen unterscheiden. Aufgrund der verschiedenen Lösungsstrategien zur Lösung der Boltzmann-Transportgleichung 3.9 unterscheiden sich die Freiheitsgrade dieser Transportcodes bei der Erstellung der benötigten Geometrien. Beide verwenden aber die Nomenklatur des SCALE Generalized Geometry Packages (SGGP), wodurch die Modelle recht einfach ineinander überführbar sind. KENO ist ein 3D-Transportcode und kann daher auch Figuren aus vielen geometrischen Körpern generieren, wohingegen NEWT ein 2D-Transportcode ist, welcher aufgrund seiner Aufteilung in einzelne Zellen nur die folgende Teilmenge dieser Körper zulässt:

- Quader
- Zylinder
- hexagonales Prisma
- gedrehtes hexagonales Prisma
- Keil

Aufgrund der gleichen Nomenklatur werden hier Namen für Körper verwendet, auch wenn NEWT nur die 2D-Version dieser Figur verwenden kann. Aus diesen generalisierten Formen werden nun die Brennelemente zusammengefügt. Dabei werden räumliche Regionen abgegrenzt, die mit den Materialien aus dem Composition-Block bestückt werden. Oft ist es sinnvoll, die Parameter hier an die bereits benutzten Parameter aus dem Celldata-Block anzupassen und so ebenfalls eine Gitteranordnung aus einzelnen Brennstabzellen zu erschaffen. Die Gitter können dabei sowohl quadratisch als auch hexagonal sein.

Dabei ist für NEWT zu beachten, dass sich die Figuren nicht überlappen dürfen und die Grenzen zwischen zwei Zellen aufgrund des ESC-Ansatzes (vgl 3.3.2) immer aus geraden Linien bestehen müssen. Daher ist es hier nicht möglich, ein Gitter aus angrenzenden runden Zellen zu erschaffen. Es ist aber möglich, Zellen in einer

sie umgebenden größeren Zelle zu platzieren, solange sie nicht über deren Grenze hinausragen. Daher können runde Zellen in rechteckige oder hexagonale Zellen eingebettet und mit einem eigenen Unterteilungsraster versehen werden.

3.6 HILFSPROGRAMME

3.6.1 PYTHON

Aufgrund der hohen Datenmengen wurden einige Programme in Python geschrieben, um die Erstellung von Inputfiles zu automatisieren und die resultierenden Daten zu analysieren. Die selbsterstellten Graphen entstammen aus diesem Programm. Ebenfalls wurde für die Berechnungen der Dampfblasenanteile ein Pythonprogramm zur Lösung der entsprechenden gekoppelten Gleichungen geschrieben.

3.6.2 EXCEL

Für die Berechnung der Werte aus den Tabellen wurde Excel verwendet.

4. EXPERIMENTELLE DATEN ALS BENCHMARK

In dieser Arbeit wurden die Brennelemente von vier verschiedenen Reaktordesigns modelliert, zwei westliche Leichtwasserreaktoren, sowie zwei russische Designs. Diese Modelle wurden dann mit den Messungen verglichen, um die Genauigkeit der Simulation abschätzen zu können.

4.1 SFCOMPO 2.0

Bei SFCompo 2.0, im Folgenden meist nur SFCompo genannt, handelt es sich um eine öffentliche Datenbank mit experimentellen Daten zur Analyse von Isotopenkonzentrationen in abgebrannten Brennstäben. Sie wurde von der NEA in Zusammenarbeit mit dem ORNL entwickelt und die hinterlegten Daten durchliefen einen iterativen Reviewprozess durch eine Expertengruppe der NEA. Das Ziel dieser Datenbank ist eine Aggregation aller notwendigen Informationen, Parameter, Betriebsbedingungen und Charakteristiken eines Reaktors zur Modellierung und Simulation der Veränderung von Isotopenkonzentrationen im Brennstoff während der Bestrahlung. Gleichzeitig bietet die Datenbank Messdaten zum Vergleich, um eine Abschätzung der Genauigkeit der Modelle zu ermöglichen. Diese Daten bilden daher die Grundlage für die hier vorgestellten Modelle. Der Detailgrad der bekannten Reaktor-, Brennelement- und operativen Parameter ist nicht einheitlich, weshalb diese in den folgenden Kapiteln vorgestellt und ggfs. durch externe Quellen ergänzt werden. Auch wurden die in SFCompo vorgestellten Daten keiner formellen Evaluation unterzogen, weshalb diese, soweit möglich, ebenfalls durch (referenzierte) externe Quellen bestärkt werden [10, 11, 29]. Dieses Kapitel beschäftigt sich mit den Messungen der Daten, weshalb hier primär die grundlegenden Reaktor- und Messdaten vorgestellt werden. Detaillierte Modellparameter wie geometrische Daten, initiale Nuklidzusammensetzung von Brennstoff, etc. werden in Kapitel 5 vorgestellt.

4.2 DRUCKWASSERREAKTOR (DWR): OBRIGHEIM-1

Als erstes Modell wurde der Reaktor Obrigheim-1 ausgewählt. Hierbei handelt es sich um einen Druckwasserreaktor, welcher von 1964 bis 2000 in Deutschland in Betrieb war. Der Reaktor besitzt eine thermische Nennleistung von 907,5 MW und besteht aus 121 Brennelementen. Diese Brennelemente haben eine Dimension von 14x14, wovon insgesamt 16 Plätze für Führungsrohre vorgesehen sind, in die Kontrollstäbe oder Messinstrumente eingeführt werden können. In dieser Arbeit wurde das Brennelement BE124 modelliert, weshalb hier nur diese Werte für das Benchmarking verwendet werden. Dieses Brennelement wurde ausgesucht, da insgesamt vier Brennstäbe untersucht wurden, welche unterschiedliche Umgebungsbedingungen bei der Bestrahlung erfahren haben. Daher können verschiedene Effekte, wie der Effekt von einem benachbarten Führungsrohr und die radialen Leistungsunterschiede an den Rändern mit der Mitte des Brennelements verglichen werden. Die genauen Positionen sind in Abbildung 12 verzeichnet. Des Weiteren wurden Messpunkte an bis zu fünf verschiedenen Höhe verzeichnet, sowohl an den beiden Enden der Brennstäbe als auch in der axialen Mitte. Für die Messpunkte P1-P5 wurden dabei immer die gleichen Höhen für alle Brennstäbe gewählt.

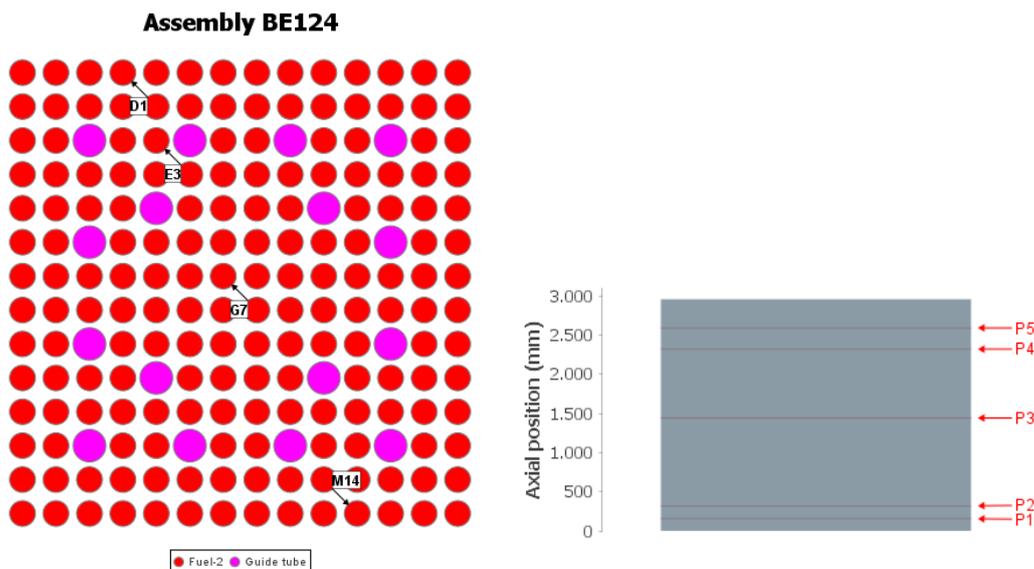


Abbildung 12: Messpunkte OBR-Brennelement BE124: (links) Brennstabposition im Brennelement, (rechts) Messhöhe. [29]

4.2.1 MESSMETHODEN

Bei diesem Brennelement wurde die Isotopenvermessung von zwei verschiedenen Messlaboren des JRC Programms durchgeführt, Karlsruhe und Ispra. Die genaue Auflistung, welches Messlabor welchen Messpunkt vermessen hat, ist in 1 aufgetragen [30]. Die hauptsächlichen radiochemischen Analysetechniken umfassten die IDMS für die U-, Pu-, Am- und Nd-Isotope. Zudem wurden die γ -Spektrometrie für die Isotope ^{134}Cs , ^{137}Cs und ^{154}Eu sowie die α -Spektrometrie für ^{238}Pu , ^{241}Am , ^{242}Cm und ^{244}Cm verwendet. Das Karlsruher Messlabor verwendete allerdings die α -Spektrometrie nur für die Messung von ^{241}Am . Für die Abbrände wurden hingegen mehrere Methoden vorgestellt, weswegen dies hier kurz ausführlicher beleuchtet wird, da diese wichtig für die spätere Bestimmung der Leistung sind. Die Ermittlung der Abbrände erfolgte durch destruktive Verfahren anhand der ^{148}Nd - und ^{137}Cs -Methode, aber auch nicht destruktiv anhand der ^{137}Cs -Methode. In einer Untersuchung von Devida et al. wurde die Ermittlung von dem Abbrand durch Berechnung mit den ^{148}Nd -Wert und der Gamma-Spektrometrie von ^{137}Cs verglichen [31]. Diese ergab, dass die Berechnungen anhand des Isotops ^{148}Nd genauere Ergebnisse liefert. Dies deckt sich ebenfalls mit den angegebenen Unsicherheiten bei den Ergebnissen. Dabei wird für die ^{148}Nd -Methode eine Unsicherheit von 1,5 %, für die destruktive Analyse von ^{137}Cs 2,5 % und für die nicht destruktive Analyse mittels ^{137}Cs 5 % angegeben. In Tabelle 1 werden diese Werte festgehalten. Für den Messpunkt D1-P2 liegen keine Isotopenmesswerte, jedoch aber die Abbrandwerte anhand der nicht destruktiven ^{137}Cs -Methode, vor. Der Vollständigkeit halber wird dieser Messpunkt daher hier ebenfalls modelliert.

4.2.2 BESTRAHLUNGSZEITRAUM

Das Brennelement wurde in den Brennzyklen 2, 4 und 5 bestrahlt und hat dabei die Position bei jedem Brennzklus im Reaktorkern gewechselt.

Tabelle 1: Gemessene Abbrände für die Messpunkte des Brennelementes BE124 des jeweiligen Messlabors in Abhängigkeit von der Höhe.

Probe	Labor	Höhe [cm]	^{148}Nd - Methode [GWd/tU]	destr. ^{137}Cs - Methode [GWd/tU]	n. destr. ^{137}Cs - Methode [GWd/tU]
D1-P1	Karlsruhe	15,0	21,17	-	19,52
D1-P2 ^a	Ispra	31,5	-	-	27,91
D1-P3	Ispra	143,5	33,75	33,16	33,76
E3-P1	Ispra	15,0	20,18	19,54	19,42
E3-P2	Karlsruhe	31,5	35,10	-	29,35
E3-P3	Ispra	143,5	36,26	35,22	35,51
E3-P4	Ispra/Karlsruhe	231,5	30,89 ⁱ /30,94 ^k	30,64 ⁱ	28,14 ⁱ
E3-P5	Ispra	258,5	22,86	22,57	22,92
G7-P1	Ispra/Karlsruhe	15,0	17,13 ⁱ /22,70 ^k	16,70 ⁱ	17,49 ⁱ
G7-P2	Ispra	31,5	25,83	24,88	26,24
G7-P3	Ispra/Karlsruhe	143,5	31,50 ⁱ /31,14 ^k	31,40 ⁱ	31,92 ⁱ
G7-P4	Ispra	231,5	27,71	27,42	29,46
G7-P5	Karlsruhe	258,5	25,81	-	28,83
M14-P1	Karlsruhe	15,0	15,60	-	15,79
M14-P3	Ispra	143,5	29,36	28,80	27,20
M14-P4	Karlsruhe	231,5	24,90	-	27,46

^akeine Isotopendaten

ⁱIspra ^kKarlsruhe

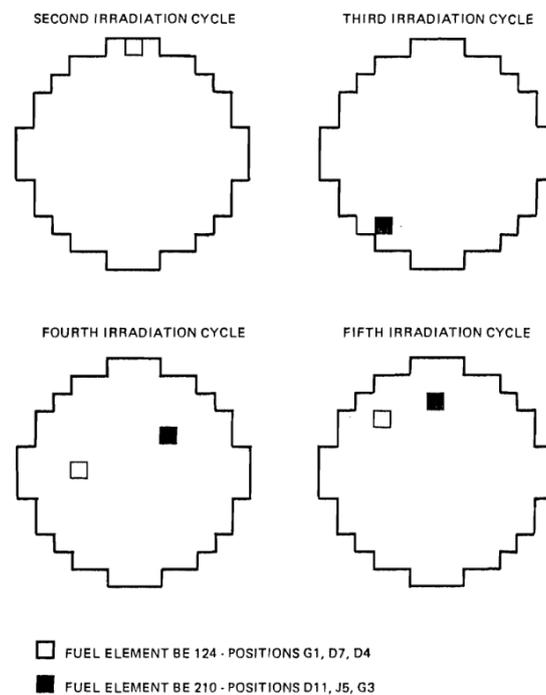


Abbildung 13: Position des Brennelementes BE124 im Reaktorkern über die Bestrahlungszeiträume [30].

Die Bestrahlungs- und Abklingzeiträume können aus den Betriebsbüchern des Reak-

tors entnommen werden [30]. Die Bestrahlungsdauer wird dabei sowohl als gesamte Bestrahlungsdauer (T_{ges}), als auch in Tagen mit voller Leistung angegeben (T_{eff} , vgl. 2.4.1)

Tabelle 2: Bestrahlungs- und Abklingzeiträume der Brennzyklen 2-5.

Brennzyklus	Phase	Start	Ende	Tage ges.	Tage eff.
2	Bestrahlung	30.09.1970	12.08.1971	316	258
	Abklingen	13.08.1971	29.09.1971	47	-
3	Bestrahlung	30.09.1971	07.09.1972	343	295
	Abklingen	08.09.1972	04.10.1972	26	-
4	Bestrahlung	05.10.1972	01.09.1973	331	283
	Abklingen	02.09.1973	24.09.1973	22	-
5	Bestrahlung	25.09.1973	16.08.1974	325	229
	Abklingen	-	-	-	-

Da das Brennelement 124 in Brennzyklus 3 nicht bestrahlt wurde, wird dieser Zeitraum als zusätzliche Abklingzeit gewertet. Ebenfalls wurden die kumulativen durchschnittlichen Abbrände am Ende der Bestrahlungsperioden angegeben.

Tabelle 3: Kumulativer Abbrand und effektive Tage unter Vollast für das Brennelement BE124 in den Brennzyklen 2-5 [30]

Brennzyklus	Brennzeit	kumulativer Abbrand [MW/tU]
2	258	6600
3	0	6600
4	283	18600
5	229	29000

4.2.3 BESONDERHEITEN

Die Messungen von Americium und Curium, welche von Ispra gemeldet wurden, wurden mit der α - und der Massenspektrometrie durchgeführt. Dabei wurden große Unsicherheiten durch Interferenzen in der α -Spektrometrie festgestellt. Ebenfalls führt die Zeitkorrektur der Daten bei ^{241}Am zu einer Unsicherheit von bis zu 100 %. Daher wurde in dem Datenvergleich des ORNL [22] die Variabilität der Daten für die Curium- und Americiumwerte als zu unpassend für einen Vergleich mit den Simulationsdaten bewertet. Ähnliche Bedenken wurden ebenfalls im Vergleich mit den anderen Reaktoren vorgebracht, weshalb sich hier dafür entschieden wurde, bei diesem Reaktor zu verbleiben und die Americium und Curiumdaten trotzdem in den Datenvergleich mit aufzunehmen, da diese relevant für das Isotop ^{242m}Am sind. Daher sind allerdings ebenfalls größere Abweichungen von den gemessenen zu den simulierten Konzentrationen zu erwarten.

4.3 SIEDEWASSERREAKTOR (SWR): FUKUSHIMA DAINI-2

Zur Modellierung eines Siedewasserreaktors wurde der japanische Reaktor Fukushima Daini-2 mit dem Brennelement 2F2DN23 ausgewählt. Der kommerzielle Betrieb begann am 03.02.1984 und wurde offiziell am 30.09.2019 eingestellt. De facto wurde der Reaktorblock allerdings bereits im März 2011 aufgrund des Erdbebens abgeschaltet. Der Reaktor besitzt eine thermische Nennleistung von 3293 MW und wird mit 764 Brennelementen betrieben. Die Brennelemente selbst werden in einem 8x8-4 Gitter angeordnet, bzw. im Fall von dem hier untersuchten Brennelement 2F2DN23 in einem 8x8-2 Gitter. Die Brennstäbe werden mit insgesamt sechs verschiedenen Brennstoffzusammensetzungen mit Anreicherungen von 2,0 % bis 3,91 % befüllt (vgl 14). Die vier bzw. zwei übrigen Positionen werden durch Führungsrohre, welche mit Wasser befüllt werden, besetzt.

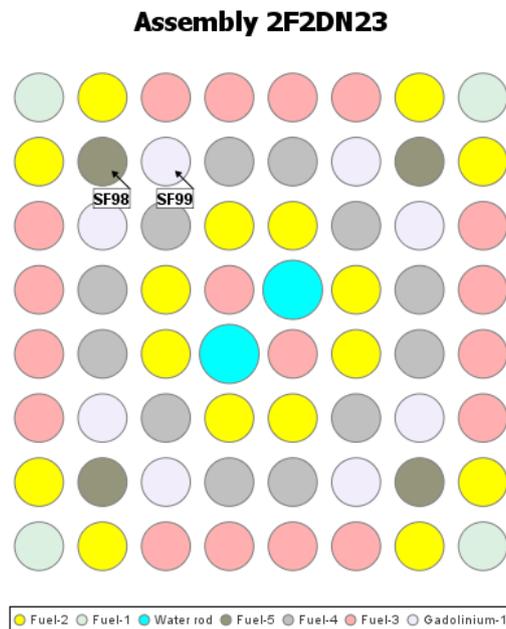


Abbildung 14: Brennelementdesign und Zusammensetzung für das Brennelement 2F2DN23 des Reaktors Fukushima Daini-2 [29].

Alle Brennstäbe besitzen an ihrem Ende eine 15,46 cm dicke Schicht an Natururan. Zusätzlich liegen in den Gadolinium-1 Brennstäben zwei unterschiedliche Konzentrationen des Neutronenabsorbers Gadolinium (Gd_2O_3) in Abhängigkeit von der Höhe vor [18].

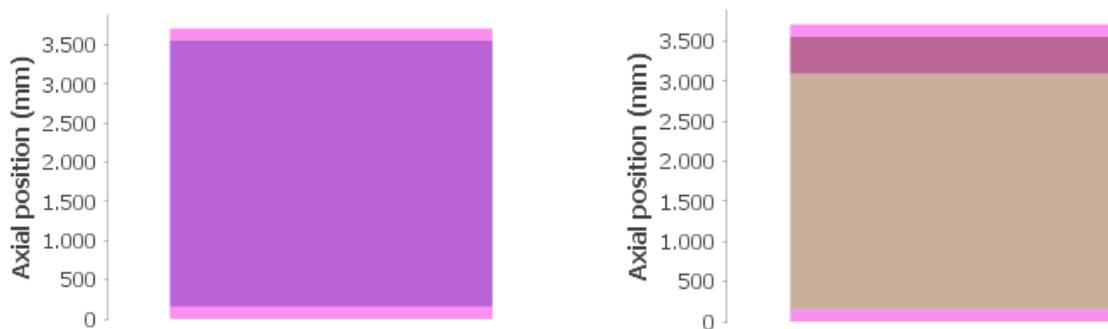


Abbildung 15: (links) Beispielhafte Befüllung eines Brennstabes ohne Neutronenabsorber, (rechts) Befüllung eines Gadolinium-1-Brennstabes [29].

4.3.1 MESSMETHODEN

Die Messergebnisse von zwei Brennstäben, SF98 und SF99, aus diesem Brennelement wurden von der japanischen Kernkraftbehörde JAEA veröffentlicht [32]. Da diese Berichte auf japanisch vorgestellt wurden, wird sich hier in dieser Arbeit auf die Informationen von [18] bezogen, welche ihrerseits die JAEA als ihre Quelle angeben. Beim Brennstab SF98 handelt es sich um einen Brennstab mit einer Anreicherung von 3,91 %, welcher in acht verschiedenen Höhen untersucht wurde.

Die Abbrände wurden durch nicht destruktive γ -Messungen entlang der axialen Höhe bestimmt. Die Bestimmung der Isotopenkonzentrationen hingegen wurden durch die JAEA mithilfe von destruktiven Messmethoden durchgeführt. Dabei wurden 0,5 mm lange Messproben von den verschiedenen axialen Höhen entnommen und in Säure gelöst. Die Isotopenkomposition von U, Pu, Am und Nd wurden mithilfe von ^{233}U , ^{150}Nd und ^{242}Pu durch die IDMS vermessen. Die Verhältnisse von ^{234}U , ^{237}Np , ^{238}Pu , ^{241}Am , ^{243}Am , ^{242}Cm und ^{244}Cm zu Uran wurden mit der α -Spektroskopie ermittelt und die Verhältnisse von ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{154}Eu und ^{144}Ce mit der γ -Spektroskopie. Diese Konzentrationen wurden dann für das Ende der Bestrahlungszeit normalisiert [18].

Tabelle 4: Brennstoffzusammensetzung der Messproben im Brennstab SF98.

Probe ID	Messhöhe [cm]	Abbrand [GWd/tU]	Brennstofftyp
SF98-1	3,9	4,15	Natururan
SF98-2	16,7	26,51	3,91 % ^{235}U
SF98-3	42,3	36,94	3,91 % ^{235}U
SF98-4	69,2	42,35	3,91 % ^{235}U
SF98-5	121,4	43,99	3,91 % ^{235}U
SF98-6	205,0	39,92	3,91 % ^{235}U
SF98-7	275,7	39,41	3,91 % ^{235}U
SF98-8	339,7	27,18	3,91 % ^{235}U

Der Brennstab SF99 enthält den Neutronenabsorber Gadolinium. Die ^{235}U Anreicherung im Gadoliniumstab beträgt 3,4 % und die Gadoliniumkonzentration wird mit 3,0 % bzw. 4,5 % natürlich vorkommendem Gadolinium angegeben. Es wurde insgesamt in zehn verschiedenen Höhen gemessen.

Tabelle 5: Brennstoffzusammensetzung der Messproben im Brennstab SF99.

Probe ID	Messhöhe [cm]	Abbrand [GWd/tU]	Brennstofftyp
SF99-1	13,4	7,53	Natururan
SF99-2	28,6	22,63	3,4 % ^{235}U + 4,5 % Gd_2O_3
SF99-3	50,2	32,44	3,4 % ^{235}U + 4,5 % Gd_2O_3
SF99-4	68,6	35,42	3,4 % ^{235}U + 4,5 % Gd_2O_3
SF99-5	118,9	37,41	3,4 % ^{235}U + 4,5 % Gd_2O_3
SF99-6	206,1	32,36	3,4 % ^{235}U + 4,5 % Gd_2O_3
SF99-7	274,4	32,13	3,4 % ^{235}U + 4,5 % Gd_2O_3
SF99-8	338,8	21,83	3,4 % ^{235}U + 3,0 % Gd_2O_3
SF99-9	354,0	16,65	3,4 % ^{235}U + 3,0 % Gd_2O_3
SF99-10	367,6	7,19	Natururan

4.3.2 BESTRAHLUNGSDAUER

Das Brennelement wurde in drei Brennzyklen insgesamt 1174 Tage im Zeitraum 14.01.1989 bis 16.11.1992 bestrahlt. Aufgrund der sehr detaillierten Aufschlüsselung der Leistungen der Brennstäbe kann hier eine höhere Anzahl an effektiven Tagen angegeben werden. Die Subintervalle werden dann in der entsprechenden Leistungstabelle angegeben.

Tabelle 6: Bestrahlungs- und Abklingzeiträume der Brennzyklen 5-7 im Siedewasserreaktor Fukushima Daini-2.

Brennzyklus	Phase	Start	Ende	Tage ges.	Tage eff.
5	Bestrahlung	14.01.1989	08.03.1990	418	413
	Abklingen	08.03.1990	04.07.1990	118	-
6	Bestrahlung	04.07.1990	24.08.1991	416	407
	Abklingen	24.08.1991	14.11.1991	82	-
7	Bestrahlung	14.11.1991	14.11.1992	366	366
	Abklingen	-	-	-	-

4.4 RBMK-1000: LENINGRAD-1

Der Leningrad-1 Reaktor ist ein RBMK Reaktor sowjetischer Bauart. Der kommerzielle Betrieb begann 1974 und wurde 2018 eingestellt. Es handelt sich hierbei um einen graphitmoderierten, wassergekühlten Siedewasser-Druckröhren-Reaktor des Designs RBMK-1000. Dieser besitzt eine elektrische Nennleistung von 1000 MW, was einer thermischen Leistung von 3200 MW entspricht. Der Reaktorkern besteht aus 1884 Kanälen, von denen 1661 mit Brennelementen ausgestattet werden. Die übrigen Kanäle sind für Kontrollvorrichtungen und Neutronenquellen vorgesehen. Die Brennelemente liegen in einem 25x25 cm Graphitblock und bestehen aus insgesamt 36 Brennstäben, die in zwei Bauteile unterteilt werden. Die 18 Brennstäbe pro Bauteil werden in zwei konzentrischen Kreisen um die Trägerröhre im Zentrum positioniert. Die Bauteile selbst werden mit einem Abstand von 14 cm im kalten Zustand übereinander angebracht (vgl. Abb. 17).

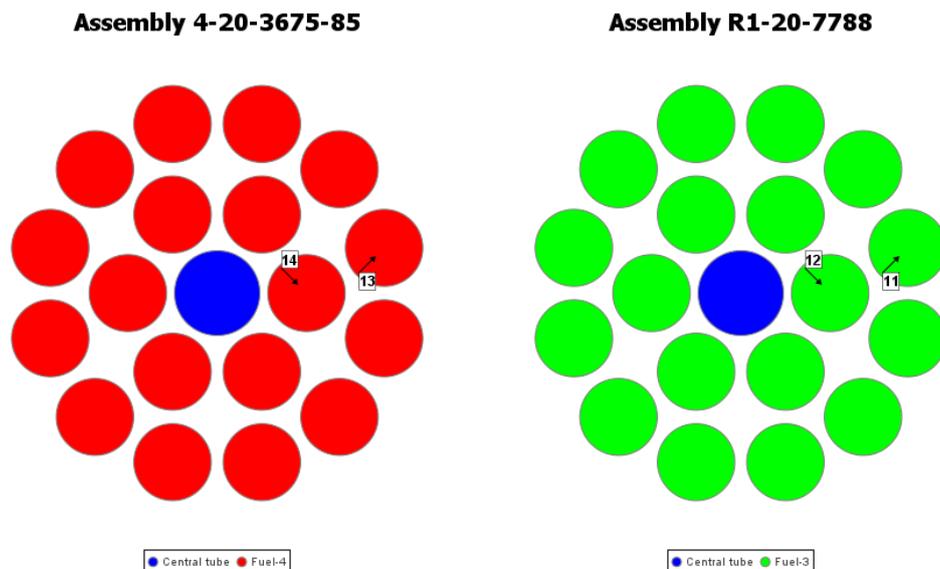


Abbildung 16: Brennelementdesign und -zusammensetzung.

Da in dem RBMK-Reaktor Graphit als primärer Moderator verwendet wird, können Brennstoffe mit relativ geringen Anreicherungen im Bereich von 1,8 % - 2,6 % verwendet werden. In dieser Arbeit wurden die Brennelemente 4-20-3675-85 und R1-20-7788 betrachtet. Bei beiden Brennelementen wurden sechs Messungen an einem äußeren sowie eine Messung an einem inneren Brennstab durchgeführt. Es wurden hier zwei Brennelemente gewählt, da diese beiden Brennelemente ähnlich lang bestrahlt wurden (1413 Tage gegen 1230 Tage), die Brennelemente allerdings recht unterschiedliche Abbrandintervalle abbilden. So liegt der Abbrand von Brennstab 11 zwischen 10,33-27,7 GWd/tU und der von Brennstab 13 zwischen 9,91-22,8 GWd/tU. Ebenfalls liegen die untersuchten Brennstäbe in beiden Brennelementen nebeneinander und ermöglichen so eine Abschätzung des Abschirmungseffektes der inneren Brennstäbe.

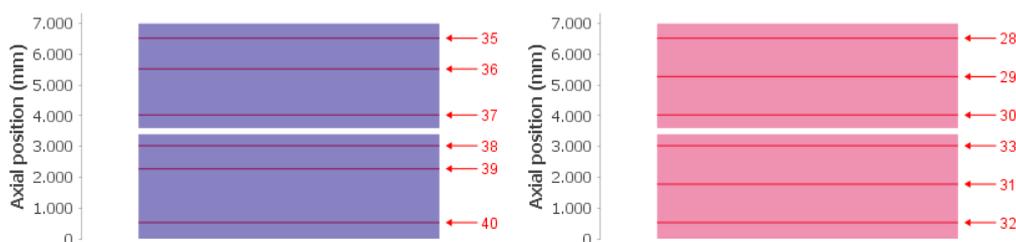


Abbildung 17: Messpunkte für die Brennelemente (links) 4-20-3675-85 und (rechts) R1-20-7788.

4.4.1 MESSMETHODEN

Das Khlopin Radium Institut hat eine destruktive Analyse von 41 Proben aus insgesamt zehn Brennelementen des Leningrad-1 Reaktors durchgeführt. Dafür wurden 5 cm lange Messproben von verschiedenen Höhen entnommen und in Säure gelöst. Die Isotopenverhältnisse wurden dann anhand der IDMS und der IDAS bestimmt. Die Abbrände wurden durch die Gruppe von Makarova et al. durch die relativen

Massen des initialen Brennstoffes und der gespaltenen schweren Atome berechnet [33]. Diese wurden zusammen mit den Messhöhen in Tabelle 7 aufgetragen.

Tabelle 7: Gemessene Abbrände der Brennstäbe 11-14 in Abhängigkeit von der Höhe.

Brennelement ID	Brennstab ID	Probe ID	Messhöhe [cm]	Abbrand [GWd/tU]
4-20-3675-85	13	40	50	12,98
	13	39	225	19,51
	13	38	300	22,8
	13	37	400	20
	13	36	550	18,4
	13	35	650	9,91
	14	41	600	9,7
R1-20-7788	11	32	50	16,67
	11	31	175	25,6
	11	33	300	25,9
	11	30	400	27,7
	11	29	525	25,9
	11	28	650	10,33
	12	34	400	20,72

4.4.2 BESTRAHLUNGSDAUER

Die kontinuierlichen Bestrahlungsdauern der beiden Brennelemente sind mit 1230 bzw. 1413 Tagen deutlich höher als die Brennzeiten von den untersuchten Brennelementen anderer Reaktordesigns. Ebenfalls überschneiden sich die beiden Bestrahlungszeiträume um ein halbes Jahr. Dies ist möglich, da man die Brennelemente von einem RBMK im laufenden Betrieb mithilfe einer Maschine austauschen kann.

Tabelle 8: Bestrahlungszeitraum der Brennelemente R1-20-7789 und 4-20-3675-85.

Brennelement	Zyklus	Start	Ende	Tage ges
R1-20-7789	9	17.04.1984	28.02.1987	1413
4-20-3675-85	10	17.07.1986	01.12.1989	1233

4.5 WWER-440: KOLA-3

Als zweites russisches Reaktordesign wurde hier der Wasser-Wasser-Energie-Reaktor-440, kurz WWER-440, modelliert. Dieser ist eine russische Version des Druckwasserreaktors und teilt sich daher ebenfalls sehr viele Eigenschaften mit diesem. Das „Wasser-Wasser“ im Namen entstammt dabei dem verwendeten Moderator und Kühlmittel, da in diesem Design, ebenfalls wie bei den westlichen Reaktoren, Leichtwasser sowohl für die Kühlung als auch für die Moderation verwendet wird. Dies gibt dem Reaktor, im Gegensatz zum RBMK, einen negativen Dampfblasenkoeffizienten. WWER-Reaktoren werden in verschiedenen Leistungsklassen und Designs konstruiert. Bei dem Reaktorblock Kola-3 handelt es sich um das WWER-440/213 Design.

Damit besitzt der Reaktor eine elektrische Nennleistung von 440 MW, was einer thermischen Leistung von 1375 MW entspricht. Die Version 213 ist eine Weiterentwicklung des ursprünglichen WWER-440 und wird als Reaktor der zweiten Generation klassifiziert [34]. Der kommerzielle Betrieb begann 1982 und wurde bisher noch nicht eingestellt.

Die Brennelemente eines WWER werden üblicherweise als Brennstoffkassetten bezeichnet, sind im Gegensatz zu den westlichen Pendanten hexagonal angeordnet (vgl. Abb. 18) und werden mit einer äußeren Ummantelung konstruiert. Sie besitzen keine gesonderten Führungsröhren sondern nur eine zentrale Instrumentröhre, die für Detektoren und als Halterung vorgesehen ist [35]. Diese ist meist mit Helium geflutet. Insgesamt besteht der Reaktorkern aus 349 Brennstoffkassetten, von denen 312 „arbeitende“ (engl.: working assemblies) und 37 Kontrollbrennstoffkassetten (engl.: ERC) sind. Hier wird die „arbeitende“ Brennstoffkassette 144-46879 untersucht.

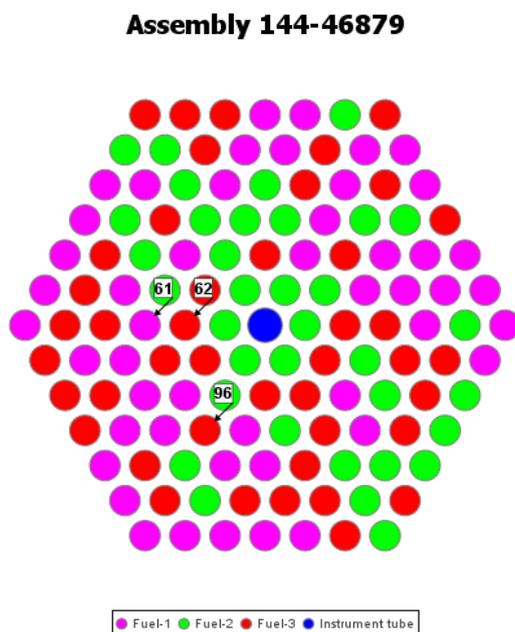


Abbildung 18: Messpunkte in der WWER-Brennstoffkassette 144-46879.

Da dieser Reaktortyp ebenfalls Wasser als Moderator und Kühlmittel verwendet, muss bei dem verwendeten UO_2 Brennstoff eine höhere Anreicherung erzielt werden als beim RBMK. In Abb. 18 aus SFCompo werden drei verschiedene Brennstoffzusammensetzungen angegeben. Diese unterscheiden sich jedoch nur marginal. So besitzen Brennstoff 1 und 2 beide eine Anreicherung von 4,37 %, für Brennstoff 1 ist allerdings eine Dichte von $10,64 \text{ g/cm}^3$ angegeben und für Brennstoff 2 eine Dichte von $10,63 \text{ g/cm}^3$. Für Brennstoff 3 ist eine leicht höhere Anreicherung von 4,38 % bei einer niedrigeren Dichte von $10,62 \text{ g/cm}^3$ angegeben. Diese Parameter wurden der SFCompo Datenbank entnommen, da das referenzierte Paper von Pavlov [36] zum Zeitpunkt dieser Arbeit nicht zur Verfügung stand und daher nicht unabhängig geprüft werden konnte. Da es aber von mehreren sekundären Quellen angegeben wurde [37], sowie die Daten in dem OECD-NEA Bericht [29] ebenfalls referenziert wurden, werden die Daten von SFCompo dennoch für eine Validierung des Modells verwendet.

4.5.1 MESSMETHODEN

Bei dem Reaktorblock Kola-3 wurden insgesamt drei Brennstäbe untersucht. Die Höhen der Entnahme und des insgesamt angegebenen Abbrands wurden in Tabelle 9 sowie in Abb. 19 aufgetragen.

Die Messungen von Nuklidkonzentrationen in abgebranntem Brennstoff von WWER-440 Reaktoren wurden mithilfe von destruktiven Analysemethoden in Russland durchgeführt [35]. Als Messinstitut wurde das „Scientific Research Institute of Atomic Reactors“ angegeben. Bei den Untersuchungen sollen etwa 1 cm lange Segmente vom Brennstab entnommen und in Säure gelöst worden sein. Die Lösung wurde dann radiochemisch mit verschiedenen Methoden untersucht, unter anderem mit Massen- und Gamma-Spektroskopie. Diese Messdaten von drei verschiedenen WWER-440-Reaktoren, inklusive Kola-3, sollen in der Datenbank SFCompo hinterlegt worden sein [35]. Als Messmethode wurden für Am, Cm und ^{238}Pu die α -Spektroskopie und Massenspektrometrie angegeben, für U, Nd, Eu, Sm und die übrigen Plutoniumisotope die IDA-MS. Bei dem Isotop ^{237}Np wurde hingegen die Spektrophotometrie als Messmethode verwendet. Die Abbrände wurden durch die γ -Spektroskopie von ^{137}Cs und ^{134}Eu bestimmt [35, 10].

Tabelle 9: Gemessene Abbrände der Brennstäbe 61, 62 und 96 in Abhängigkeit von der Höhe.

Brennstab ID	Proben ID	Abbrand [GWD/tU]	Anreicherung wt%	Abklingzeit [a]	Messhöhe [mm]
96	5	35	4,38	7,3	66
96	169	40,8	4,38	7,3	109
96	63	51,2	4,38	7,3	196
96	98	58,3	4,38	7,3	355
96	718	61,4	4,38	7,3	549
61	124	32,7	4,37	7,3	43
61	76	42,3	4,37	7,3	108
61	13	47,9	4,37	7,3	185
61	189	57,6	4,37	7,3	314
61	53	62,7	4,37	7,3	825
62	81	31,8	4,38	7,3	44
62	165	40,8	4,38	7,3	107

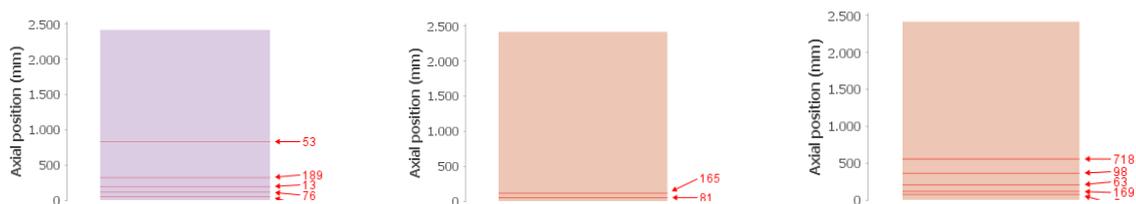


Abbildung 19: Messhöhen bei den Brennstäben 61 (links), 62 (mitte) und 96 (rechts)

4.5.2 BESTRAHLUNGSDAUER

Der WWER-Reaktor wird analog zu den westlichen Druckwasserreaktoren in Brennzyklen betrieben. So wurden die Brennstoffkassette in den Zyklen 12-17 von 21.10.1994 bis 13.08.2002 bestrahlt. Der Brennzyklus 14 wurde dabei in zwei Phasen, *a* und *b*, unterteilt, die jeweils aus einer Bestrahlungs- und einer Abklingzeit bestehen. Es wurden also effektiv sieben Brennzyklen angegeben.

Tabelle 10: Bestrahlungszeiträume der Brennzyklen 12-17 der Brennstoffkassette 144-46879.

Brennzyklus	Phase	Start	Ende	Tage ges.	Tage eff. ^a
Zyklus 12	Bestrahlung	21.10.1994	25.10.1995	369	319
	Abklingen	25.10.1995	28.12.1995	64	-
Zyklus 13	Bestrahlung	28.12.1995	15.04.1997	474	319,3
	Abklingen	15.04.1997	19.06.1997	65	-
Zyklus 14a	Bestrahlung	19.06.1997	09.05.1998	324	274
	Abklingen	09.05.1998	28.06.1998	50	-
Zyklus 14b	Bestrahlung	28.06.1998	28.02.1999	245	117,5
	Abklingen	28.02.1999	08.05.1999	69	-
Zyklus 15	Bestrahlung	08.05.1999	15.04.2000	343	272,3
	Abklingen	15.04.2000	05.06.2000	51	-
Zyklus 16	Bestrahlung	05.06.2000	28.07.2001	418	316,9
	Abklingen	28.07.2001	13.09.2001	47	-
Zyklus 17	Bestrahlung	13.09.2001	13.08.2002	334	252
	Abklingen	-	-	-	-

5. MODELLIERUNG

5.1 RÄUMLICHE AUFLÖSUNG DER SIMULATION

In dieser Arbeit wurden Modelle für zwei verschiedene Transportcodes erstellt, NEWT und KENO. Es sollte eine 3D-Modellierung der Brennelemente ausgearbeitet werden, um die räumlichen Effekte bei der Bestrahlung eines Brennstabes besser untersuchen zu können. Dabei lässt sich die räumliche Auflösung in drei Punkte unterteilen:

1. Brennstabposition im Brennelement
2. Axiale Höhe des Brennstabes
3. Radiale Schicht des Brennstabes

Die Ursachen für einen unterschiedlichen Abbrand können vielfältig sein und sich untereinander bestärken. Die physikalischen Grundlagen wurden in dem Einstiegs-kapitel 2 diskutiert. So spielen entlang der axialen Höhe die Leistungsverteilung im Reaktor aber auch die unterschiedlichen Wasserdichten eine große Rolle, wohingegen die radialen Schichten eines Brennstabes ebenfalls, aufgrund von Selbstabschirmungseffekten, unterschiedlich schnell abgebrannt werden. Der asymmetrische Abbrand in den Brennstäben an unterschiedlichen Positionen im Brennelement kommt hauptsächlich von Interaktionen mit den sie umgebenden Brennelementen und der Heterogenität in dem Brennstabgitter. Daher ist ein 3D-Modell sehr hilfreich für das Verständnis der Abbrandsituation, bedarf allerdings auch einer umfassenden Berücksichtigung aller Parameter.

Der 3D-Code KENO berechnet die Transportgleichungen von Neutronen anhand von geometrischen Berechnungsregionen, in welchen die beeinflussenden Parameter als konstant angesehen werden. Diese Parameter werden dann durch die Transportberechnungen aktualisiert. Daher ist es nicht möglich, einen Brennstab als ein einziges Objekt zu modellieren, da die axialen Veränderungen, z.B. für Temperatur und Abbrand, nicht aufgelöst werden können, sondern als Durchschnitt angegeben werden. Daher muss eine Nodalisierung, also eine Aufteilung der Berechnungsregionen in kleinere Gebiete, vorgenommen werden. Bei dieser Aufteilung sollen relevante Veränderungen in den operativen Parametern berücksichtigt werden. Je feiner man allerdings diese Nodalisierung vornimmt, desto höher wird die Berechnungszeit für die Simulation, da die relevanten Parameter für alle Regionen kontinuierlich angepasst werden müssen. Eine solche Berechnung kann von Tagen bis zu Monaten dauern [38]. Daher müssen geeignete Symmetrieachsen gefunden und nur die direkte Umgebung der untersuchten Region fein strukturiert werden.

Eine beispielhafte Nodalisierung für einen Druckwasserreaktor ist in Tabelle 11 aufgetragen. Dabei wurden die Brennstäbe in drei Kategorien eingeteilt, welche durch die erste Ziffer der Material ID angegeben werden. Die erste ist der gemessene Brennstab, welcher die feinste Struktur erhält. Dabei werden besonders die Enden in schmale Regionen unterteilt, um die stark abfallenden Veränderungen in der Leistung abbilden zu können (vgl. Abb. 3). Die zweite Kategorie sind die Brennstäbe aus der direkten Umgebung, welche nur noch in drei Regionen unterteilt werden. Die dritte Kategorie bilden die übrigen Brennstäbe, welche zur Zeitoptimierung der Berechnungen in nur zwei Regionen unterteilt werden.

Tabelle 11: Nodalisierung bei einem Druckwasserreaktor in KENO VI. Die erste Ziffer der ID gibt die Brennstabkategorie an und die darauffolgenden die Node der jeweiligen Kategorie.

sonstige Brennstäbe	umgebende Brennstäbe	gemessener Brennstab	Höhe
31	21	11	12,5
		12	25
		13	25
32	22	14	37,5
		15	50
		16	50
32	23	17	37,5
		18	25
		19	25
		110	12,5

Es ist zu beachten, dass innerhalb der Abbrandberechnung mithilfe von TRITON-6 keine individuelle Festlegung der Leistungsverteilung auf die unterschiedlichen Brennstoffregionen möglich ist. Es ist entweder möglich, einen Durchschnitt für das gesamte Brennelement festzulegen, oder eine spezifische Leistung für eine Brennstoffregion. Der Neutronenfluss wird dann in dem Brennelement angepasst, sodass diese Leistung in der Region konstant gehalten wird. Es wurden beide Versionen ausprobiert und die Ergebnisse untersucht.

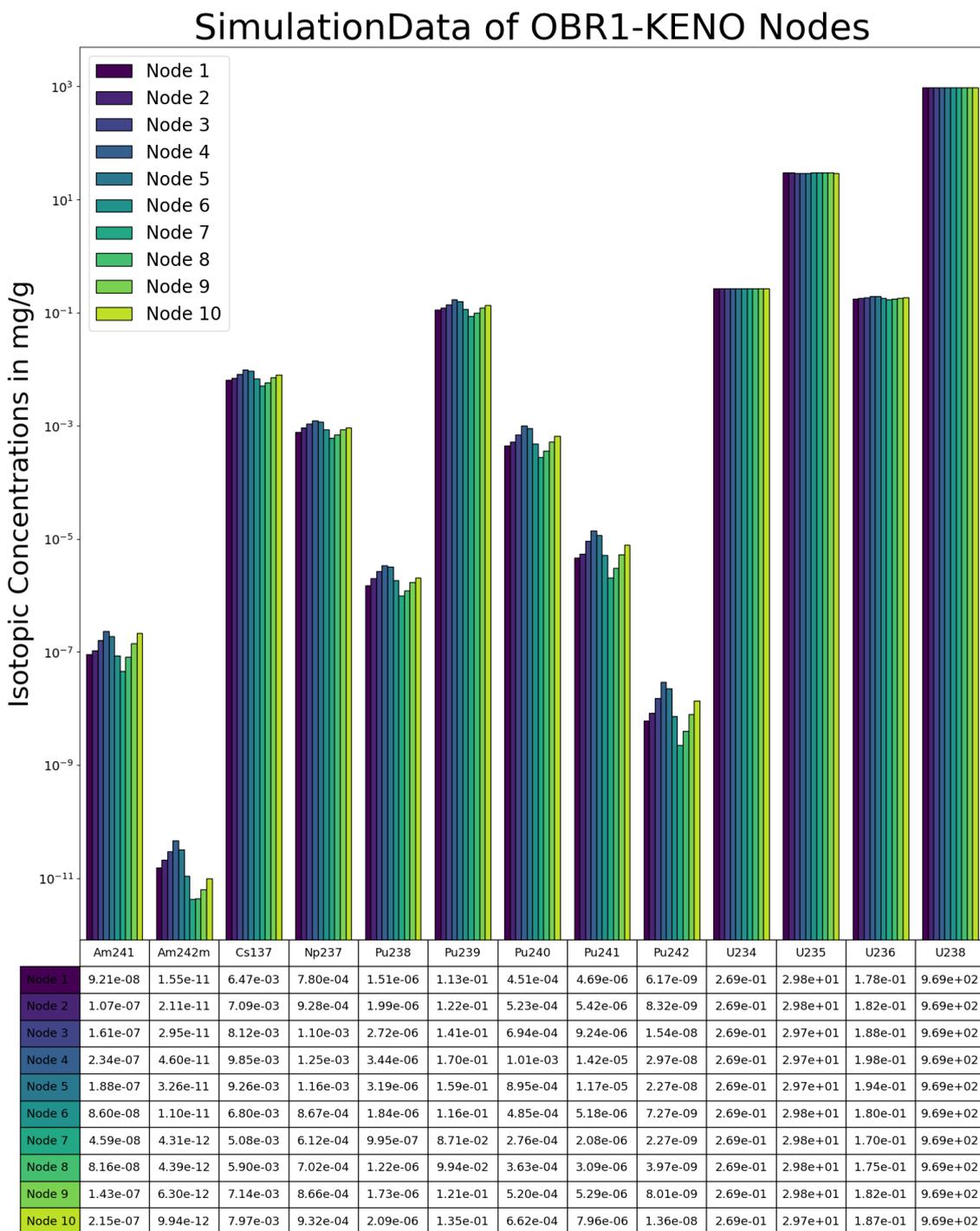


Abbildung 20: KENO-3D-Modell für den DWR Obrigheim-1 ohne Normierung. Die Noden 1-10 entsprechen den Material IDs 11-110

Bei den Ergebnissen der Simulation kann allerdings die zu erwartende Leistungsverteilung nicht beobachtet werden. Der Abbrand ist zu homogen entlang der axialen Ebene und kann daher den realen Fall nicht passend wiedergeben. Es wurde ebenfalls ein 3D-KENO-Modell für den RBMK erstellt, welches zu den gleichen Ergebnissen geführt hat. Die fehlende Möglichkeit, die Leistungsverteilung einstellen zu können, macht einen Vergleich mit den Messdaten unmöglich, da die Abbrandparameter zu unterschiedlich sind. Ebenfalls können bei KENO operative Parameter nicht im Verlauf der Berechnungen angepasst werden, da das Monte-Carlo-Verfahren keine ex-

ternen Änderungen der Anfangsbedingungen zulässt. Dies setzt einen gleichförmigen Abbrandprozess und konstante operative Parameter für die betrachteten Intervalle voraus. Diese müssen allerdings nicht zwangsweise gegeben sein, da z.B. der Borsäuregehalt während eines Brennszyklus sinkt, wodurch die Reaktivität beeinflusst wird [39]. Ebenfalls können Dichteveränderungen in dem Kühlmittel auftreten, welche die Reaktivität, je nach Dampfblasenkoeffizient, beeinflussen können.

5.1.1 KENO VS NEWT

Aufgrund des numerischen Verfahrens von NEWT können solche alternativen Berechnungen durchgeführt werden, da keine zufällige Auswahl der Startparameter aus einer vorgegebenen Verteilung vorgenommen wird. Zudem bietet NEWT einige zusätzliche Features, welche für die Analyse der Messergebnisse von Vorteil sind. Diese Defizite führen zusammen mit der langen Berechnungszeit von Monte-Carlo-Simulationen und dem daraus resultierenden langsamen Verbesserungsprozess der Modelle dazu, dass NEWT hauptsächlich als Transportcode für die weitere Erstellung der Modelle verwendet wird. Dieser Code kann allerdings nur zweidimensionale Geometrien untersuchen, wodurch kontinuierliche Veränderungen nicht berücksichtigt werden. Um dennoch eine räumliche Auflösung entlang der axialen Höhe zu erhalten, werden daher mehrere Querschnitte durch den Reaktor gelegt und so eine räumliche Auflösung generiert. Innerhalb des Benchmarkingprozesses wurden verschiedene Verfahren zur Einschätzung der höhenabhängigen operativen Parameter ermittelt. Es wird dann, ähnlich zu der Nodalisierung im 3D-Verfahren, eine Unterteilung der Brennelemente in Zwischenbereiche vorgenommen. Die so erstellten Daten können dann bei der Auswertung interpoliert werden, um die Vorgänge in den Zwischenbereichen abschätzen zu können. Diese Erstellung von axial disjunkten Querschnitten durch das Brennelement ermöglicht es ebenfalls, dass Parameterpaare gewählt werden, welche nicht dem Regelbetrieb eines Reaktors in diesem Bereich entsprechen. Für die Modellierung müssen, je nach Detailgrad der zur Verfügung stehenden Informationen, starke Homogenisierungsannahmen getroffen werden, um numerisch berechenbare Intervalle zu erhalten. Durch den Interpolierungsansatz kann hier eine größere Bandbreite an möglichen Szenarien eingefangen werden, um diese im Anschluss detaillierter zu untersuchen. Allerdings ist der Aspekt der disjunkten Erstellung nicht zu vernachlässigen. Sollte sich eine Parameterkonfiguration als geeignet für eine Messprobe erweisen, so muss eine genaue Analyse des Kontextes ergeben, ob diese Kombination sinnvoll unter Berücksichtigung realer Umstände ist.

5.2 GRUNDANNAHMEN DER MODELLIERUNG

Die Aufgabe der Modellierung ist, die Ergebnisse der Messungen aus Kapitel 4 möglichst genau wiederzugeben. Die exakte Reproduktion aller beeinflussenden Parameter ist allerdings aufgrund der Vielzahl und der Komplexität der Faktoren nicht möglich. Daher gilt es, treffende Annahmen zu machen, die einen Verlauf für den untersuchten Zeitraum möglichst genau wiedergeben. Diese Annahmen hängen dabei stark von den vorliegenden Informationen ab und können daher verschieden scharf formuliert werden. Die Grundlage dabei liefern immer die theoretischen Überlegungen, die in Kapitel 2 hergeleitet wurden. Grundsätzlich eignet es sich, bei der Erstellung von Modellen einen Satz von Grundannahmen zu etablieren, unter welchen diese entwickelt werden. Aufgrund der unterschiedlichen Datenlage für die jeweiligen Re-

aktoren und der recht unterschiedlichen Funktionsweise wird hier allerdings darauf verzichtet, einen umfassenden Katalog zu erstellen, sondern diese Annahmen werden individuell auf den Reaktor angepasst. Daher werden die meisten Modellüberlegungen in den jeweiligen Unterkapiteln diskutiert. Hier lassen sich aber dennoch ein paar Punkte festhalten, die für alle Reaktoren gelten.

- Eine Studie des JAERI [40] hat ergeben, dass die Auswirkungen von Brennstofftemperaturänderungen auf die Isotopenkonzentrationen bei langen Bestrahlungszeiträumen vernachlässigbar werden. Jedoch werden in den hier vorgestellten Modellen soweit möglich dennoch diese Überlegungen und Berechnungen getätigt, um einen möglichst präzisen Isotopenabbrandsverlauf zu erhalten.
- Wassertemperatur und -dichte werden hier axial, jedoch nicht radial unterschiedlich betrachtet. Unterschiedliche Effekte können zu einer asymmetrischen radialen Leistungsverteilung in einem Brennelement führen, welche das umgebende Kühlmittel unterschiedlich stark erwärmt. Diese Effekte hängen allerdings sehr stark von thermohydraulischen Effekten ab, welche hier nicht modelliert werden.
- Die Ummantelungstemperatur ist konstant für die ganze Höhe. Da die Elemente in den Ummantelungen so gewählt wurden, dass sie möglichst wenig Auswirkungen auf den Neutronenfluss haben, werden Veränderungen in der Neutronenabsorptionsfähigkeit hier vernachlässigt.
- Grundsätzlich werden in den Modellen immer eigene Material-IDs für den Messbrennstab und die umliegenden Brennstäbe erstellt, um eigene Selbstabschirmungsparameter für den direkten Einflussbereich der Messung zu erhalten. Alle anderen Brennstäbe werden entsprechend dem Brennelementdesign mit einheitlichen Material-IDs entsprechend ihrer Materialzusammensetzung befüllt. Dies führt dazu, dass die Brennstäbe mit gleicher Material-ID die gleichen initialen Selbstabschirmungsparameter erhalten. Dies hat je nach Reaktordesign unterschiedliche Auswirkungen und wird daher detailliert in dem jeweiligen Unterkapitel besprochen. Das grundsätzliche Verfahren ist aber bei jedem Reaktor und jedem Brennelement dasselbe.
- Es liegen keine Informationen über umliegende Brennelemente vor. Diese können allerdings die radialen Abbrände in dem Brennelement beeinflussen.
- Für das Benchmarking werden Leistungsprofile für einzelne Brennstäbe bestimmt. Daher werden die Leistungen auf diese Material-ID normiert, um einen konstante Bestrahlung für diesen Brennstab zu erzeugen. Der Neutronenfluss im Brennelement wird von TRITON dementsprechend angepasst, um diese konstante Bestrahlung zu ermöglichen.

5.3 DRUCKWASSERREAKTOR: OBRIGHEIM-1

Tabelle 12: Grundlegende Parameter für den Druckwasserreaktor Obrigheim-1

Allgemeine Parameter	Daten
Brennelement-ID	BE 124
Design	Siemens 14x14 DWR
Geometrie	quadratisch
Brennelementabstand	20,03 cm
Anreicherung	3,0 % ²³⁵ U
Brennzyklen	2, 4, 5
Kumulativer Abbrand	29000 MWd/tU
Brennstabdaten	
Abstand	1,43 cm
Aktive Länge	275 cm
Brennstoffpellet Durchmesser (kalt)	0,913 cm
Lineare Dichte	6,68 g/cm
Ummantelungsdurchmesser innen	0,9318 cm
Ummantelungsdurchmesser außen	1,074 cm
Ummantelungsmaterial	Zirkalloy-4
Ummantelungstemperatur	605 K
Führungsröhre Daten	
Durchmesser innen	1,292 cm
Durchmesser außen	1,372 cm
Kontrollstabdaten	
Absorbermaterial	Ag 15-In 5-Cd
Ummantelung	Edelstahl
Moderatordaten	
Druck	148 bar
Einlasstemperatur	556 K
Auslasstemperatur	585 K
Temperatur - Durchschnitt	571 K
Dichte - Durchschnitt	0,7299 g/cm ³
Borsäureanteil - Durchschnitt	450 ppm

Die Modellierung des Druckwasserreaktors Obrigheim-1 wurde bewusst für den Einstieg ausgewählt, da dieses System den niedrigsten Komplexitätsgrad aller hier untersuchten Reaktoren besitzt. Ebenfalls ist der Obrigheimreaktor bereits im Kontext von SCALE 5.1 untersucht worden, wodurch sich hier einige Modellierungsannahmen ableiten lassen [22]. Dennoch ist eine erneute Untersuchung der Modellierungsgrundlagen sinnvoll, da SCALE mittlerweile mit der Version 6.2.4 einige Aktualisierungen für die mitgelieferten Wirkungsquerschnitts- und Zerfallsdatenbanken erhalten hat, außerdem wurde der Wirkungsquerschnittbearbeitungsalgorithmus CENTRM freigeschaltet [9]. Ebenfalls beinhaltet das Paper von 2010 keine Simulationsdaten von ^{242m}Am , da diese auch kein Messgegenstand der Laboruntersuchungen waren. Für die Untersuchungen in dieser Arbeit sind sie allerdings relevant. Außerdem wird damit ein zusätzliches Benchmarking mit den Simulationswerten der Gruppe vom ORNL ermöglicht, da nicht alle verwendeten Formeln und Daten öffentlich zugänglich sind, sondern auf einer CD gespeichert wurden. Die allgemeinen Reaktorparameter wurden dabei in Tabelle 12 aufgetragen.

5.3.1 MATERIAL

Die Brennstäbe sind einheitlich mit 3 % angereichertem ^{235}U befüllt. Im Brennstoff liegen ebenfalls die untergeordneten Uranisotope ^{234}U und ^{236}U in frischen Uranpellets vor. Diese Werte können je nach Herstellungsland des Brennstoffes und Anreicherungsmethode stark variieren. Der initiale ^{236}U -Anteil ist dabei nicht von großer Bedeutung, da das Isotop durch Neutroneneinfang vom ^{235}U kontinuierlich produziert wird und aufgrund des relativ niedrigen thermischen Einfangquerschnitts langsamer abbrennt. Das ^{234}U -Isotop wird kaum erbrütet, weswegen die initiale Konzentration entscheidend für die finalen Werte ist. Für Brennstoff aus den vereinigten Staaten wurde mithilfe der Massenspektrometrie eine empirische Formel erstellt, welche die Isotopenkonzentration in Abhängigkeit von der Anreicherung von ^{235}U bestimmt [22]. Für die hier vorliegenden Anreicherungen ergibt das für die UO_2 -Zusammensetzung die in 13 angegebenen Werte.

Tabelle 13: Isotopenzusammensetzung des UO_2 -Brennstoffs im Obrigheim-1-Reaktor.

Isotop	Konzentration [wt%]
^{234}U	0,027
^{235}U	3
^{236}U	0,014
^{238}U	96,96

Da diese Formel nicht für den deutschen Brennstoff ausgelegt ist, können die tatsächlichen Werte von den errechneten abweichen. Aus den vorher genannten Gründen ist es aber dennoch sinnvoll, mit den Verunreinigungen zu rechnen. Die lineare Dichte des Brennmaterials wird mit 6,68 g/cm angegeben [30], was einer kalten volumetrischen Dichte von 10,42 g/cm³ entspricht. Jedoch dehnen sich die Materialien bei den hohen Temperaturen im Brennmaterial aus, wodurch sich die Radien und Dichten verändern können. Ebenfalls haben diese Temperaturänderungen eine Auswirkung auf Selbstabschirmungseffekte und Wirkungsquerschnitte. Da die Kernspaltungen im Brennstoff zur Erwärmung der umliegenden Materialien führen, ist es daher von großer Bedeutung, diese hier zu betrachten. In dem Paper [22] wurden spezifische Temperaturen für den Messpunkte des Brennstoffs in den Brennzyklen angegeben. Es ist allerdings nicht möglich, auf diese Quelle zuzugreifen, weshalb die Brennstofftemperatur hier bestimmt werden

soll. Die radiale Temperatur lässt sich mithilfe der Formel [41]:

$$T(r) = T_s + \frac{q_l}{4\pi k} \left(1 - \frac{r^2}{r_u^2} \right) \quad (5.1)$$

berechnen. Diese beinhaltet die Parameter

- $q_l \hat{=}$ lineare Heizrate
- $k \hat{=}$ temperaturabhängige Wärmeleitfähigkeit von UO_2
- $r_u \hat{=}$ Radius der Brennstofftablette
- $T_s \hat{=}$ Oberflächentemperatur der Brennstofftablette

Mit dieser Formel lässt sich die Temperatur abhängig vom Radius bestimmen. Innerhalb von SCALE können allerdings keine Temperaturgradienten für Materialien angegeben werden, weshalb die effektive Temperatur (vgl. Kapitel 2, Gleichung 2.26) im Modell verwendet wird. Diese beschreibt eine parabolische Temperaturverteilung nach dem Rowland-Modell [4]. Über die Wärmeleistung q_l besteht ein direkter Bezug zu der spezifischen höhenabhängigen Leistung in einem Brennstab. Die temperaturabhängige Wärmeleitfähigkeit k lässt sich aus den Materialtabellen der IAEA entnehmen [42] und der Radius des Brennstofftablette ist eine geometrische Eingabe für das Modell und wird in 5.3.4 näher beschrieben. Die Oberflächentemperatur T_s ist allerdings nicht bekannt, weshalb passende Annahmen getroffen werden müssen. Untersuchungen von David Anders et al. [43] haben gezeigt, dass die Oberflächentemperatur des Brennmaterials in DWR mit ähnlicher Leistungsdichte nur leicht erhöht gegenüber der Ummantelungstemperatur ist. Dies liegt an der Wärmeleitfähigkeit der beteiligten Materialien und den entsprechenden Wärmeaustauscheffekten. Diese Oberflächentemperatur ist ebenfalls nicht konstant, weshalb sie analog zu den anderen höhenabhängigen Größen mithilfe des Sinus modelliert wird:

$$T_s(z) = \Delta T \sin\left(\pi \frac{z}{L}\right) + T_{s,\min} \quad (5.2)$$

Diese Kurve ist in den Daten allerdings leicht versetzt (vgl. [43]), was hier durch den Sinus nicht berücksichtigt wird. So liegt das Maximum der Temperaturfunktion nicht exakt in der axialen Mitte des Brennstabes, sondern leicht nach oben versetzt. Dies führt ebenfalls dazu, dass an dem oberen Ende des Brennstabes eine höhere Temperatur vorliegt als am unteren Ende. Für das Benchmarking werden die probenspezifischen Leistungen zur Bestimmung der Brennstofftemperatur verwendet. Diese wurden in Tabelle 14 zusammen mit den Leistungen aufgetragen und deren Berechnung wird in 5.3.3 besprochen. Da die probenspezifische Leistungsberechnung die asymmetrische Leistungsverteilung im Brennstab bereits berücksichtigt, wird die asymmetrische Temperaturverteilung, welche durch den Sinus vernachlässigt wurde, korrigiert. Mit diesen Annahmen konnten jedoch die Temperaturen, welche in dem Paper [22] angegeben wurden, nicht genau rekonstruiert werden. Die Temperaturen an den Enden des Brennstabes fallen schneller ab, als es hier errechnet wird. Durch Variation des Temperaturgradienten an der Brennstabhöhe kann dieser Effekt zwar minimiert werden, jedoch müsste die Temperaturdifferenz zwischen der Mitte des Brennstabes und den Enden mehr als 120 K betragen. Dies deckt sich nicht mit den Beobachtungen von [43]. Ebenfalls wird so eine durchschnittliche Ummantelungstemperatur von 605 K unwahrscheinlich. Die hier verwendeten Werte

nehmen daher eine minimale Temperatur von 560 K im 2. Zyklus, 585 K im 4. und 590 K im 5. Zyklus an. Mit einem Temperaturgradienten von 10 K ergibt sich eine durchschnittliche Oberflächentemperatur von ca. 603 K.

5.3.2 MODERATOR

Als Moderator wird in diesem Modell Wasser verwendet. Als Einlasstemperatur wird dabei 556 K angegeben und als Auslasstemperatur 585 K, was bei einem Druck von 148 bar einer Dichte von 0,758-0,698 g/cm³ entspricht. Aufgrund der höheren Leistung im axialen Mittel der Brennstäbe wird die Temperaturzunahme mithilfe der Formel 2.25 berechnet und die Dichte anhand von Wasserdampftabellen [16] bestimmt. Der Verlauf ist in Abbildung 21 dargestellt. Hierbei wird allerdings davon ausgegangen, dass die Wasserdichte in dem gesamten Brennelement radial gleichmäßig vorliegt und die axialen Unterschiede für jeden Brennstab gleich sind. Aufgrund von Konvektion und dem hohen Durchfluss sind Auswirkungen der spezifischen Brennstableistungen auf die Wassertemperatur hier zu vernachlässigen.

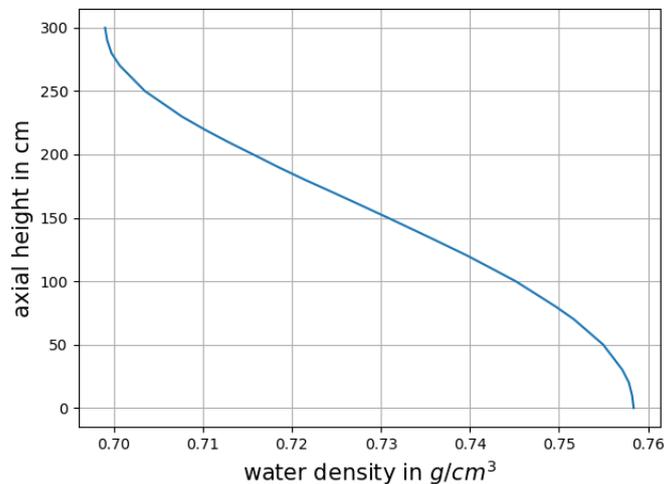


Abbildung 21: Axiale Wasserdichte im Brennelement 124.

Zusätzlich ist Borsäure in dem Wasser als Neutronenabsorber gelöst, mit einem durchschnittlichen Anteil von 450 ppm. Der genaue Verlauf des Borsäureanteils ist nicht bekannt, weswegen hier eine lineare Abnahme angenommen wird (vgl. [44, 45]). Für die Veränderungen des Borsäureanteils wird die „Timetable“-Funktion von SCALE verwendet. So kann ein anfänglicher Anteil von 900 ppm angenommen werden, der im Verlauf des Brennzzyklus auf 0 absinkt. Zum Beginn des nächsten wird dieser Bestand erneut aufgefüllt. Dabei ist nicht bekannt, ob die Konzentration während eines Brennzzyklus wirklich auf 0 absinkt, da diese kontinuierlich während des Betriebs den Bedürfnissen entsprechend angepasst werden können. Jedoch haben Untersuchungen von John C. Wagner et al. ergeben, dass die Berechnung der Abnahme von Borsäure zur Verbesserung der Berechnungen von Isotopenkonzentrationen führt [46]. In dieser Arbeit wurden ebenfalls die durchschnittlichen Werte durch eine lineare Abnahme bis zu einem Wert 0 modelliert, weshalb hier auch so vorgegangen wurde.

5.3.3 LEISTUNG UND BESTRAHLUNGSDAUER

Die Bestrahlungszeiträume wurden in der Tabelle 2 bereits aufgetragen. Für das Modell sind hier die verzeichneten Leistungen in den Zeiträumen entscheidend. Für die Brennintervalle muss eine konstante Leistung angenommen werden, weswegen hier nur die Tage mit voller Leistung verwendet werden. Für den Benchmarkingprozess werden möglichst exakte Leistungsverteilungen benötigt. Da diese allerdings nicht in den operativen Daten hinterlegt wurden, müssen sie hier bestimmt werden. In dem Paper vom ORNL wurden die messprobenspezifischen Leistungen ermittelt, allerdings liegt die Datei, mit der diese berechnet wurden, nicht vor, weshalb sie an dieser Stelle anhand der Zyklusabbrände selbst bestimmt und in Tabelle 14 angegeben werden. Verwendet wurde Gleichung 2.18. Die hier erhaltenen Werte stimmen mit denen vom ORNL mit Ausnahme von Rundungsungenauigkeiten überein, weswegen diese vermutlich auf dem gleichen Weg bestimmt wurden.

Tabelle 14: Leistungsberechnungen und effektive Brennstofftemperatur für das Obrigheim-1-Brennelement BE124

BE124		Abbrand	Zyklus 2		Zyklus 4		Zyklus 5	
		[GWd/tU]	[MW/tU]	[K]	[MW/tU]	[K]	[MW/tU]	[K]
P1	D1	21,2	18,701	723	30,998	832	33,200	855
	E3	20,2	17,819	715	29,536	819	31,634	842
	G7	17,1	15,084	692	25,003	781	26,779	801
	M14	15,6	13,761	681	22,810	762	24,430	781
P2	D1 ^a	28	24,699	773	40,941	915	43,849	945
	E3	35,1	30,962	826	51,322	1003	54,968	1039
	G7	25,8	22,759	757	37,724	888	40,404	916
	M14	-	-	-	-	-	-	-
P3	D1	33,7	29,727	816	49,275	986	52,775	1020
	E3	36,2	31,933	834	52,930	1017	56,690	1053
	G7	31,5	27,610	798	45,766	956	49,017	989
	M14	29,4	25,934	784	42,988	933	46,041	963
P4	D1	-	-	-	-	-	-	-
	E3	30,9	27,257	795	45,181	951	48,390	983
	G7	27,7	24,435	771	40,502	912	43,379	941
	M14	24,9	21,965	750	36,408	877	38,994	904
P5	D1	-	-	-	-	-	-	-
	E3	22,8	20,112	735	33,337	851	35,705	876
	G7	25,8	22,759	757	37,724	888	40,404	916
	M14	-	-	-	-	-	-	-
durchschnittl. Leistung			25,581		42,403		45,415	

^akeine Isotopendaten

In diese Zyklen wurde alle 50 Tage ein Zwischenschritt eingefügt, damit TRITON die Wirkungsquerschnitte aktualisiert. Empfohlen wird alle 3 GWd/tU [28]; da hier allerdings Nuklide mit niedriger Konzentration von Interesse sind, werden kleinere Intervalle gewählt, um Unterdrückungseffekte zu minimieren.

5.3.4 GEOMETRIE

Als Geometrie wurden hier einzelne quadratische Berechnungszellen erstellt. Die äußeren Maße dieser Zellen entsprechen dem Brennstababstand. Die zylindrischen Parameter für die Brennstäbe und die Führungsröhren wurden der Tabelle 12 entnommen. Es wurden allerdings zwei Anpassungen aufgrund der Temperaturen vorgenommen. So wurde der Durchmesser von den Brennstofftabletten auf 0,925 cm erhöht, um die thermische Ausdehnung zu berücksichtigen. Diese Ausdehnung verringert die Dichte des UO_2 auf $9,742 \text{ g/cm}^3$. Diese Dichte wurde dann für alle Simulationen und alle Messproben verwendet. Es wurde für jeden untersuchten Brennstab und für jede Höhe eine eigene Simulation durchgeführt. Dabei wurde der Messbrennstab und alle angrenzenden Brennstabzellen mit eigenen Material-IDs versehen (vgl. Abbildung 22).

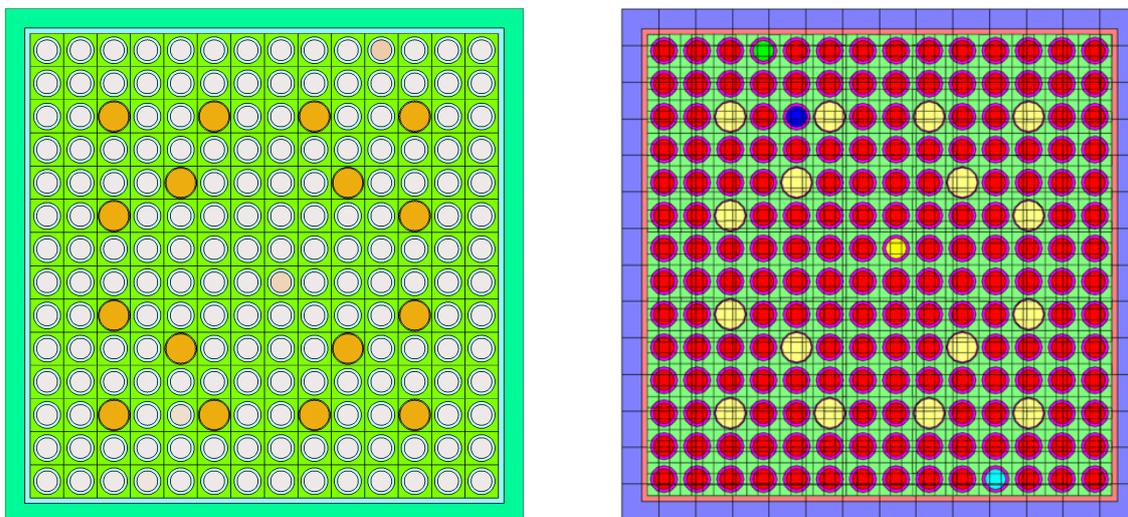


Abbildung 22: (links) Geometrische Darstellung zu OBR 14x14 Brennelement Design, (rechts) NEWT-Grafik zu dem OBR BE124-Brennelement mit den simulierten Brennstäben: Grün (D1), Blau (E3), Gelb (G7), Cyan (M14).

Zur Optimierung der Simulationszeit wurde nur $\frac{1}{8}$ des Brennelements erstellt. An den Symmetrieachsen wurden reflektive Randbedingungen eingestellt. Dies ist möglich, da die Brennstäbe in einem PWR in einem relativ homogenen Bestrahlungsfeld vorliegen, das wenige Störungen aufweist. Dabei muss allerdings darauf geachtet werden, dass die an den Untersuchungspunkt angrenzenden Brennstäbe innerhalb des modellierten Teilstücks liegen. Da der durchschnittliche freie Weg eines Neutrons größer ist als der Brennstababstand, haben angrenzende Brennstäbe eine Auswirkung auf den initialen Dancoff-Faktor. Die übrigen Brennstäbe, welche nicht in direkter Umgebung zu dem untersuchten Brennstab liegen, werden mit der gleichen Brennstabmaterial-ID bestückt. Dies ist zwar im Bezug auf die Materialkomposition kein Problem, da diese einheitlich ist, sorgt allerdings dafür, dass all diese Brennstäbe die gleichen initialen Wirkungsquerschnitte besitzen. Dies kann nur aufgrund von idealisierten Umständen angenommen werden. Grob können die hier vorliegenden Brennstäbe in vier Kategorien eingeteilt werden:

1. Randbrennstäbe
2. Eckbrennstäbe

3. Innere Brennstäbe
4. Brennstäbe nah den Führungsrohren

Diese vier Kategorien unterscheiden sich in ihrer direkten systemischen Umgebung, welche bei den initialen Berechnungen der Dancoff-Faktoren berücksichtigt wird. In diesem Modell können diese allerdings vernachlässigt werden, da das Brennelement keine Ummantelung besitzt, welche die Neutronenstreuung in der direkten Umgebung beeinflusst. Ebenfalls liegt das Brennelement in den Brennzyklen 4 und 5 im Inneren des Reaktorkerns vor. Dies ermöglicht die Annahme, dass BE124 während dieser Zyklen von charakteristisch gleichen Brennelementen umgeben war, weswegen reflektive Randbedingungen verwendet werden können. Bei Brennzklus 2 liegt das Brennelement zwar am Rand vor, aufgrund des niedrigen Abbrands sind die Effekte hier allerdings zu vernachlässigen bzw. wurden aufgrund dessen bereits berücksichtigt. Einzig bei der Bewertung der simulierten Daten von Brennstab D1 sollte auf diese Effekte geschaut werden.

5.3.5 ALLGEMEINES MODELL

Die hier vorgestellte Modellierung anhand des Obrigheim-1-Reaktors lässt sich auf weitere Druckwasserreaktordesigns erweitern. Aufgrund des Gitterdesigns der Berechnungszellen lassen sich Anpassungen der Gittergröße und der geometrischen Strukturen recht einfach vornehmen. Dabei ist allerdings zu beachten, dass in einigen Designs, z.B. bei Three Mile Island-1, Gadoliniumbrennstäbe verwendet werden. Diese müssen anhand der „deplete by flux“-Methode in fünf bis zehn Ringen mit gleich großem Flächeninhalt berücksichtigt werden.

5.4 SIEDEWASSERREAKTOR: FUKUSHIMA DAINI-2

Zu dem Modell vom Siedewasserreaktor Fukushima Daini-2 gibt es bereits ein Paper vom ORNL mit sehr ausführlichen Modellannahmen und Voraussetzungen [18]. Ursprünglich wurde dieses Modell ausgesucht, um einen Benchmarkingvergleich mit einem Siedewasserreaktor und eine Basis für die Herleitung eines Dampfblasenmodells für den RBMK zu haben. Im Verlauf der Modellierung stellte sich allerdings heraus, dass das abgeleitete Dampfblasenmodell zwar zu dem RBMK passt, nicht aber zu dem Siedewasserreaktor. Ebenfalls besitzt ein SWR viele weitere Heterogenitäten, wie zum Beispiel der Einsatz von Kontrollstäben außerhalb und innerhalb des Brennelements, verschiedene Zusammensetzungen des Brennmaterials in der radialen und axialen Ebene, sowie weniger Symmetrieachsen. Diese Störfaktoren müssen detailliert untersucht werden, um passende Annahmen für eine allgemeinere Modellierung ableiten zu können. Aufgrund der relativ guten Datenlage zu westlichen Siedewasserreaktoren wurde sich hier allerdings entschieden, den RBMK zu priorisieren. Daher wurde dieses Modell nicht weiterentwickelt. Ebenfalls aus diesem Grund wurde sich dazu entschieden, dieses Modell nicht in dem Hauptteil vorzustellen, da hier nur die Ergebnisse basierend auf der Erarbeitung von U. Mertyurek et al. [18] reproduziert werden. Ebenfalls weichen die so erstellten Simulationsdaten deutlich stärker von den Messdaten ab als in dem Paper und liegen sogar außerhalb des Akzeptanzbereiches dieser Arbeit, daher werden sie nicht in den Auswertungen berücksichtigt. Der Vollständigkeit halber wird das Modell und die Messergebnisse dennoch im Vorbild der anderen Ausführungen im Appendix A vorgestellt. Ebenfalls

werden dort noch einige Grafiken zur Analyse von Americium im SWR im Vergleich mit den anderen Reaktordesigns beigefügt. Aufgrund der hohen Abweichungen werden diese allerdings nicht als aussagekräftig für die generelle Betrachtung angesehen.

5.5 RBMK: LENINGRAD-1

Tabelle 15: Grundlegende Parameter für den RBMK Leningrad-1 [47, 48].

Allgemeine Parameter	Daten
Design	6-12
Geometrie	zylindrisch
Brennelementabstand	25 cm
Brennstabdaten	
Abstand	1,604 cm
Aktive Höhe	343 cm (2x)
Reaktorkernhöhe	700 cm
Brennstofftabletteradius	0,575 cm
Brennstoffdichte (theor.)	10,42 g/cm ³
Ummantelungsradius innen	0,5975 cm
Ummantelungsradius außen	0,68 cm
Ummantelungsdichte	6,45 g/cm ³
	Zr: 98,97 %
Ummantelungsmaterial	Nb: 1 %
	Hf: 0,03 %
Trägerröhre	
Radius innen	0,625 cm
Radius außen	0,75 cm
Dichte	6,45 g/cm ³
	Zr: 97,47 %
Material	Nb: 2,5 %
	Hf: 0,03 %
Brennelement	
Radius innen	4 cm
Radius außen	4,4 cm
	Zr: 97,5 %
Material	Nb: 2,5 %
Radius des inneren Brennstabkreises	3,101 cm
Radius des äußeren Brennstabkreises	1,605 cm
Moderator und Kühlmittel	
Kühlmittel	Leichtwasser
Einlasstemperatur	541 K
Auslasstemperatur	555 K
Dampfqualität	14,5 %
Moderator	Graphit
Temperatur (max)	970K
Dichte	1,65g/cm ³

Der RBMK ähnelt in seiner Funktionsweise dem westlichen Siedewasserreaktor. Jedoch ist er als graphitmoderierter Reaktor mit einem positiven Dampfblasenkoeffizienten behaftet, was zu inhomogenen Abbränden führen kann. Ebenfalls ist das runde Design und der lange Bestrahlungszeitraum ein großer Unterschied zu den anderen Reaktoren. Die allgemeinen Parameter wurden dem Paper zur ORIGEN-RBMK Wirkungsquerschnittsbibliothek vom ORNL [47] und dem Paper zur Stilllegungsstrategie des Leningrad-1-Reaktors vom PNNL [48] entnommen. Da die Modelle von beiden Brennelementen sich nur in den Anreicherungen und den Leistungs- und Bestrahlungsparametern unterscheiden, werden diese hier parallel besprochen.

5.5.1 MATERIAL

Die Brennstäbe in den Brennelementen sind einheitlich mit einer Anreicherung von 2,09 % bzw. 2,02 % befüllt. Da es sich hierbei um sowjetischen Brennstoff mit einer deutlich geringeren Anreicherung handelt, ist es nicht sinnvoll, die zuvor vorgestellte Formel zur Berechnung der initialen Brennstoffzusammensetzung zu verwenden.

Tabelle 16: Isotopenzusammensetzung für die Brennelemente 4-20-3675-85 und R1-20-7788

Isotop	Konzentration [wt%]	
^{234}U	0,028	0,020
^{235}U	2,09	2,02
^{236}U	0,38	0,135
^{238}U	97,502	97,8

Für das Isotop ^{236}U liegen Messdaten in SFCompo vor, für ^{234}U nicht. Die initiale Konzentration von ^{234}U lässt sich allerdings anhand der Messdaten modellieren. Da ^{234}U nur aus Neutroneneinfang vom ^{233}U , welches einen deutlich höheren Spaltwirkungsquerschnitt besitzt, und durch $(n,2n)$ -Reaktionen mit ^{235}U entstehen kann, wird es in einem Reaktor nur in äußerst geringen Anteilen produziert. Hauptsächlich nimmt die Konzentration durch Neutroneneinfang ab. Dieser Zusammenhang ist ebenfalls in den Messergebnissen aus dem Paper von Makarova et al. erkennbar [33]. Trägt man die ^{234}U Konzentration gegen den Abbrand

auf, so lässt sich eine klare lineare Abnahme erkennen. Durch einen linearen Fit lässt sich dann die initiale Konzentration extrapolieren (vgl. Abb. 23) für die beiden Brennelemente in Tabelle 16.

Für die Materialzusammensetzung der Ummantelungen wird die Komposition aus Tabelle 15 entnommen. Es liegen keine genauen Daten zu der Temperatur der Ummantelung während des Betriebs vor, weswegen diese hier abgeschätzt werden müssen. Untersuchungen von Sukhikh et al. haben ergeben, dass die Temperaturen der Ummantelung bis zu einer axialen Höhe von 3 m von 570 K auf 610 K steigen [49]. Dafür wurden RBMK-1000 Brennelemente in einem Leistungsintervall von 1,7-2,2 MW untersucht, in welchem ebenfalls die beiden hier untersuchten Brennelemente liegen. Es wurde jedoch nur bis zu einer Höhe von 3,5 m gemessen. Da die Temperatur der Ummantelung aufgrund der niedrigen Wirkungsquerschnitte kaum einen Einfluss auf den Neutronenfluss hat, kann die genaue Temperatur hier vernachlässigt und mit 600 K abgeschätzt werden. Die Ummantelungstemperatur hilft allerdings, ähnlich zu den Annahmen beim DWR, bei der Abschätzung der Oberflächentemperatur des Brennstoffs, wodurch sich die Temperaturen berechnen lassen. Diese wurden in Tabelle 17 aufgetragen. Die Untersuchungen von V. N. Babaytsev et al. haben ergeben, dass die Brennstofftemperaturen von RBMK-Reaktoren tendenziell eher unterschätzt werden [50]. Ebenfalls ist der Radius der hier verwendeten Brennstofftablette höher, wodurch der Brennstoffkern wärmer bleibt [51]. Aufgrund

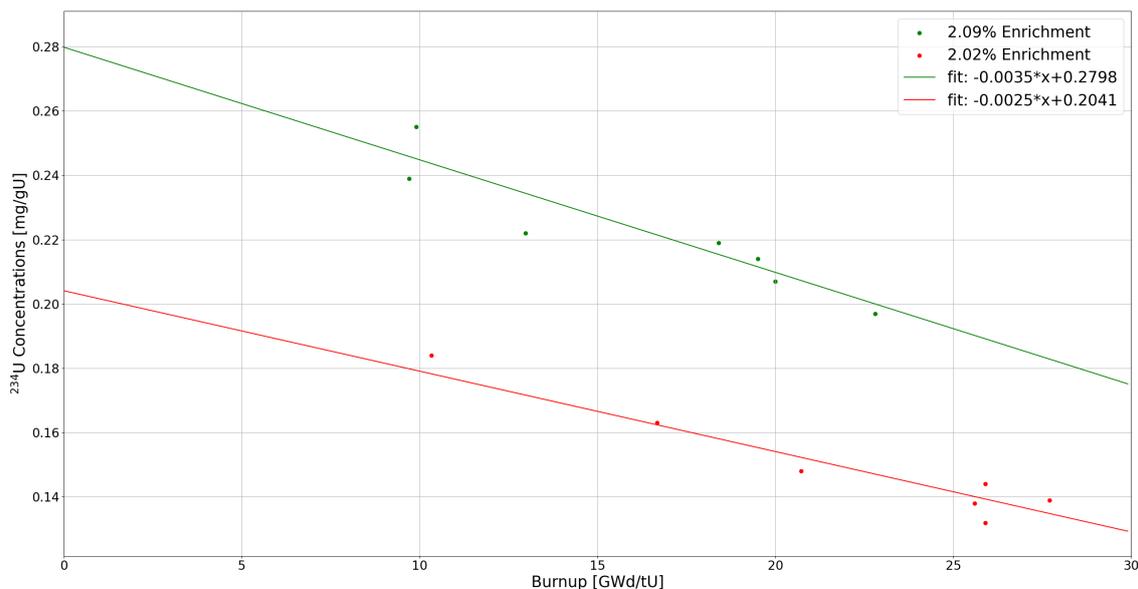


Abbildung 23: ^{234}U Konzentration in Abhängigkeit vom Abbrand für die Brennelemente 4-20-3675-85 und R1-20-7788 aus den Daten von Makarova et al. [33].

dieser Betrachtungen und im Vergleich mit den verwendeten Temperaturen in anderen RBMK-Modellen von 870-1150 K, wurde sich hier entschieden, die mit 5.1 berechneten Temperaturen direkt zu verwenden [52].

5.5.2 MODERATOR UND KÜHLMITTEL

Bei einem graphitmoderierten Reaktor werden ungefähr 6 % der gesamten thermischen Energie in dem Moderator freigesetzt. Dieser liegt in dem RBMK in einem Gemisch aus Stickstoff und Helium vor, wodurch die Wärme in das Brennelement und durch das Wasser als Kühlmittel abtransportiert wird. Bei einem normalen Betrieb liegt die durchschnittliche Temperatur des Graphites bei 873 K (vgl. [47]). Da sich die thermischen Eigenschaften des Graphits bei einer realistischen Temperaturvariation nicht stark ändern, wird hier davon ausgegangen, dass diese durchschnittliche Temperatur und die Dichte konstant bleiben [53].

Für die Modellierung des Leichtwassers werden ähnliche Annahmen getroffen wie für einen SWR. Das Wasser tritt mit einer Eingangstemperatur von 541 K in den Reaktor ein und wird auf den sieben Metern bis zum Ausgang auf 555 K erwärmt. Dabei beginnt es, bei ungefähr 2,5 m zu sieden, weswegen sich ab hier ein Zweiphasengemisch ausbildet. Der Gasanteil erhöht sich dabei stetig und senkt dementsprechend die Wasserdichte. Der Dichteverlauf ist bei einem RBMK allerdings nicht so glatt wie bei einem SWR, da bei diesem mehr „power distribution tailoring“ betrieben wird. Es gibt Untersuchungen zu den Dampfblasenanteilen in RBMK-ähnlichen Szenarien [54] und für den RBMK-1500 [52], allerdings konnte keine explizite Quelle für den RBMK-1000 gefunden werden. Daher wird der Dampfblasenanteil hier mithilfe des Slip-Modells berechnet und mit den ähnlichen Modellen verglichen.

Für den RBMK wird eine durchschnittliche Dampfqualität am Ausgang von 14,5-15 % angegeben [47]. Hier wird davon ausgegangen, dass die Dampfqualität bis zu der Siedehöhe von 2,5 m 0 % ist. Dies vernachlässigt das unterkühlte Sieden von Wasser bei der Berührung der Kanalwände, welches sehr stark von den thermohydraulischen Parametern abhängt, welche nicht vorliegen. Für dieses Slip-Modell wurden

verschiedene Korrelationsparameter für den zwei-Phasen-Fluss von Wasser von der Arbeitsgruppe von Tran et al. verglichen [21]. Dabei konnte die „Smith-Korrelation“ mit $k = 0,2$ bei den vertikalen Tests am besten abschneiden. Die Smith-Korrelation bestimmt die Slip Ratio durch die Dampfqualität und den Korrelationsfaktor k :

$$s = k + (1 - k) \sqrt{\frac{\frac{\rho_l}{\rho_g} + \frac{k(1-x)}{x}}{1 + \frac{k(1-x)}{x}}} \quad (5.3)$$

Die temperaturabhängigen Dichten der jeweiligen Phase wurden dabei den Dampftabellen vom NIST [16] entnommen. Für die Berechnung der Dichten wurde eine stückweise definierte Funktion in Python programmiert (vgl. 2.24):

$$\rho_{\text{mix}}(z) = \begin{cases} \rho_l(z) & \text{für } z \leq \text{Siedehöhe} \\ \alpha(z)\rho_g(z) + (1 - \alpha(z))\rho_f(z) & \text{für } z > \text{Siedehöhe} \end{cases} \quad (5.4)$$

Die Dichten wurden dabei in 0,1 großen Temperaturschritten entnommen, wohingegen die Funktion von einer kontinuierlichen Temperaturverteilung ausgeht. Daher werden bei jedem Zwischenschritt die Dichten angenommen, deren Temperaturentsprechung am nächsten zu der berechneten Temperatur liegt.

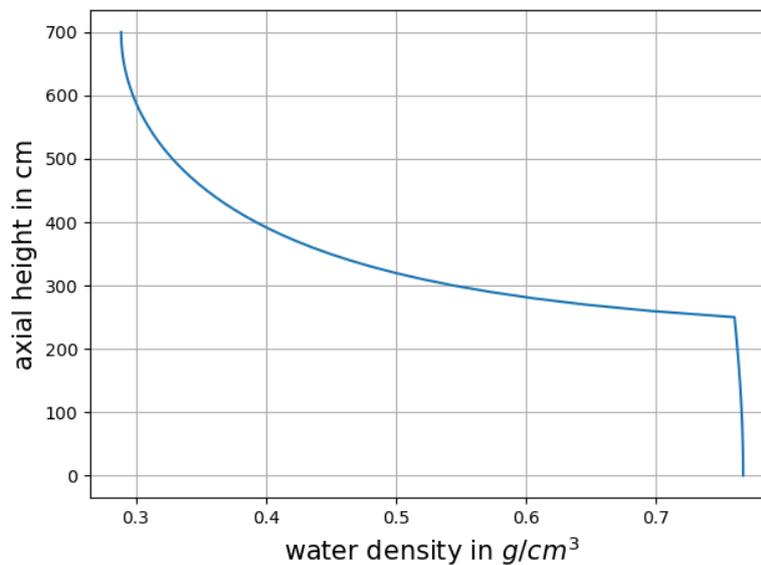


Abbildung 24: Modellierung des Dichteverlaufs des Wassers innerhalb der Brennelemente im Leningrad-1-Reaktor.

Dieser Verlauf deckt sich sehr gut mit den Untersuchungen zu dem RBMK-1500-Reaktor von Tonkunas et al. [52]. Der hier berechnete Verlauf der Wasserdichte nimmt allerdings einen sehr homogenen Betrieb an, welcher in der Analyse berücksichtigt werden muss.

5.5.3 LEISTUNG UND BESTRAHLUNGSDAUER

Bei einem RBMK können die Brennelemente in laufendem Betrieb ausgetauscht werden. Daher müssen keine effektiven Tage mit voller Leistung bestimmt werden. Dies bedeutet ebenfalls, dass sich die durchschnittliche Leistung der Messproben aus

dem gemessenen Abbrand und der Gesamtbestrahlungsdauer sofort berechnen lässt. Die entsprechenden Werte für die Wasserdichte und Brennstofftemperatur nach 5.1 werden ebenfalls in Tabelle 17 angegeben.

Tabelle 17: Probenspezifische Leistung für die Brennelemente R1-20-7788 und 4-20-3675-85. Die Abfolge der Messproben-IDs von Brennelement R1-20-7788 stimmen allerdings nicht mit der Abfolge der Messhöhen überein (vgl. 7).

Brennelement ID	Brennstab ID	Messprobe ID	Abbrand [GWd/tU]	Leistung [MW/tU]	Temperatur [K]
R1-20-7788	11	28	10,33	7,31	825
	11	29	25,9	18,33	1163
	11	30	27,7	19,6	1202
	11	33	25,9	18,33	1163
	11	31	25,6	18,12	1157
	11	32	16,67	11,8	963
	12	34	9,70	14,66	1050
4-20-3675-85	13	35	9,91	8,04	847
	13	36	18,4	14,92	1058
	13	37	20	16,22	1098
	13	38	22,8	18,49	1168
	13	39	19,51	15,82	1086
	13	40	12,98	10,53	923
	14	41	9,7	7,87	824

5.5.4 GEOMETRIE

Die RBMK-Geometrie kann durch ihr rundes Design nicht mit quadratischen/hexagonalen Berechnungszellen erstellt werden. Daher wurde hier das „Hole“-Feature von NEWT verwendet. Dies ermöglicht die manuelle Platzierung von Zellen in andere Trägerzellen, solange das Objekt innerhalb der Grenzen liegt und diese nicht schneidet. Der äußere Graphitblock wurde daher als globale Zelle verwendet, in welches das runde Brennelement platziert wurde. Die Brennstabpositionen wurden mithilfe der angegebenen Radien berechnet und äquidistant platziert (vgl. Abb. 25). Hier wurde ebenfalls von einer Ausdehnung des Brennmaterials aufgrund der Betriebstemperaturen ausgegangen, weswegen sich die Dichte auf $9,742 \text{ g/cm}^3$ verringert und sich der Brennpelletradius auf $0,5975 \text{ cm}$ erhöht. Aufgrund der runden Ummantelung des Brennelementes werden hier „white boundaries“, also isotrope Randbedingungen, gewählt. Die initiale Berechnung der Wirkungsquerschnitte wurde mit einem triangular versetzten Gitter vorgenommen. Aufgrund des runden Designs besitzt ein RBMK-Brennelement sehr viele Symmetrieachsen, jedoch sorgen die versetzten Brennstäbe für ein ungleichmäßiges Gitter, welches für die Selbstabschirmungsparameter zu beachten ist. Zusätzlich ist das umgebende Leichtwasser nicht der primäre Moderator, weshalb die durchschnittliche freie Weglänge der Neutronen höher als in einem westlichen Brennelement ist. Um diese Effekte auszugleichen, wird hier $\frac{1}{4}$ des Brennelementes für die Berechnungen verwendet.

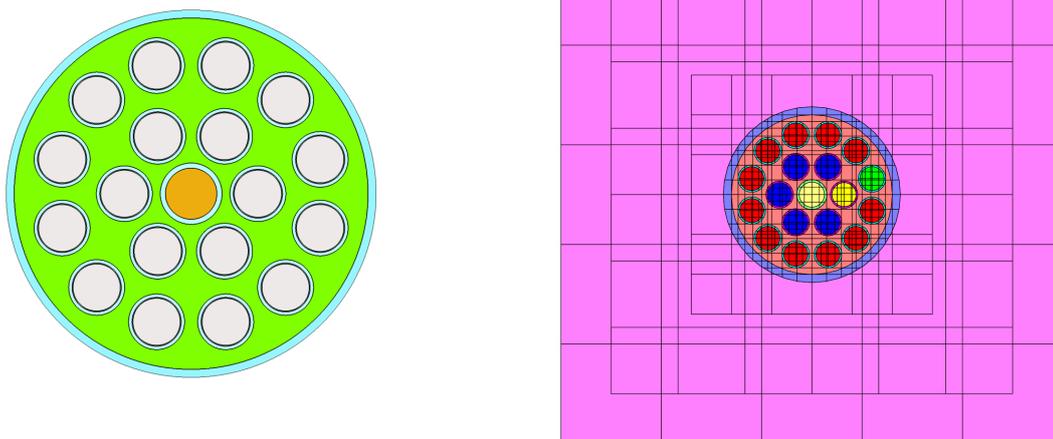


Abbildung 25: (links) Geometrische Darstellung des Leningrad-1-RBMK-Brennelementdesigns, (rechts) NEWT-Grafik zu den Brennelementdesigns mit den Berechnungszellen.

Die heterogene Dichteverteilung des Wassers sorgt ebenfalls für eine starke Veränderung der Selbstabschirmungsparameter entlang der axialen Höhe der Brennstäbe. Daher wird bei großen Änderungen empfohlen, die Dancoff-Faktoren separat mit dem MCDancoff-Modul zu berechnen. Dieses verwendet die in 3 erläuterten Monte-Carlo-Methoden, um die Effekte auf die resonante Selbstabschirmung von benachbarten Brennstäben in ungleichmäßigen Gittern zu bestimmen. Dafür wurde ein 3D-KENO Modell erstellt, mit analogen Annahmen zu dem 2D-NEWT-Modell. Als Höhe wurde dabei, entsprechend der Schnittlänge für die Messproben, ein Zentimeter gewählt.

Die Berechnungen ergaben eine Abweichung von 11 % zwischen den Dancoff-Faktoren im äußeren Ring und dem inneren Ring 26 bei einer Teilchenzahl von 10000 und 1000 Generationen.

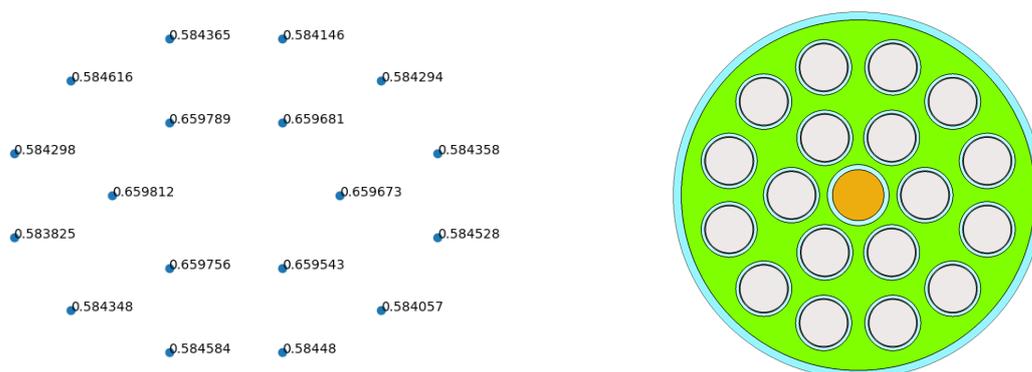


Abbildung 26: (links) Dancoff Faktoren für jeden Brennstab im Brennelement bei einer Wasserdichte von $0,35 \text{ g/cm}^3$, (rechts) RBMK-Brennelementdesign zum Vergleich.

Diese Faktoren wurden für alle relevanten Wasserdichten bestimmt und in die initiale Wirkungsquerschnittsberechnungen eingefügt. Innerhalb der Ringe weichen diese allerdings nicht stark voneinander ab, weswegen jeweils ein Wert für die entsprechende Brennstabgruppe angenommen wird.

5.5.5 ALLGEMEINES MODELL

Aufgrund des kanalbasierten Designs ist die geometrische Ausarbeitung des RBMK-Modells für die meisten Anwendungen verwendbar. Ebenfalls ist die Modellierung des Dampfblasenanteils und der daraus resultierenden Kühlmitteldichte auf verschiedene Siedehöhen und Temperaturgradienten erweiterbar. Dabei wurden die thermohydraulischen Effekte allerdings nur mithilfe eines Korrelationskoeffizienten berücksichtigt und nicht eigenständig modelliert. Außerdem wurde in neueren Brennelementen die Anreicherung des Brennstoffes auf bis zu 2,8 % erhöht und der Neutronenabsorber Erbium in den Brennstoff eingearbeitet [55]. Diese beiden Anpassungen lassen sich allerdings in der Materialbeschreibung des TRITON-Modells einfügen.

5.6 WWER-440: KOLA-3

Tabelle 18: Grundlegende Parameter für den WWER-440 Kola-3-Reaktor.

Allgemeine Parameter	Daten
Brennstoffkassette-ID	144-46879
Design	Brennstoffkassette
Geometrie	hexagonal
Brennelementabstand	14,7 cm
Anreicherung	4,37-4,38 % ^a
Brennzyklen	12-17
Kanalummantelungsmaterial	E125 Zirkalloy
Brennstabdaten	
Abstand	1,22 cm
Aktive Höhe	242 cm
Brennstoffpellet Durchmesser (kalt)	0,757 cm
Brennstoffpellet Durchmesser innen	0,12 cm
Dichte	10,62-10,64 g/cm ³
Ummantelungsdurchmesser innen	0,772 cm
Ummantelungsdurchmesser außen	0,91 cm
Ummantelungsmaterial	E110 Zirkalloy
Ummantelungstemperatur	536-577,5 K
Trägerröhre Daten	
Durchmesser innen	0,88 cm
Durchmesser außen	1,03 cm
Ummantelungsmaterial	E110 Zirkalloy
Kontrollstabdaten	
Absorbermaterial	Gd ₃ O ₂
Moderatordaten	
Druck	122,6 bar
Einlasstemperatur	540 K
Auslasstemperatur	573 K
Borsäureanteil	1340-3640 ppm

^a SFCompo

Der WWER-440/213 ist in seiner Funktionsweise sehr ähnlich zu dem westlichen Druckwasserreaktor, daher können viele der dort getroffene Annahmen hier verwendet werden. Innerhalb von SFCOMPO sind sehr detaillierte Operationsdaten für den Kola-3-Reaktor hinterlegt. Die angegebenen Quellen können jedoch zum Zeitpunkt dieser Arbeit nicht nachgeprüft werden, da das Paper nicht verfügbar ist [36]. Daher wurde ein erstes Modell anhand der zur Verfügung stehenden Daten erstellt. Jedoch widersprechen die dort hinterlegten Designs denjenigen aus Literaturquellen [4, 56, 37]. Da die spätere Auswertung der erstellten Daten ebenfalls einen großen Unterschied zu den Messungen ergeben hat, wurden zwei weitere Modelle mit den in der Literatur vermerkten Designs formuliert. Diese unterscheiden sich in der Materialzusammensetzung und dem geometrischen Design der Brennstoffkassetten. Für die operativen Parameter wurden allerdings identische Werte verwendet.

5.6.1 MATERIAL

In den Messdaten von SFCompo wurden drei verschiedene Brennstoffzusammensetzungen angegeben, die sich allerdings nur leicht unterscheiden. So liefert ein Unterschied von 4,37 % Anreicherung zu 4,38 % Anreicherung sowie ein Dichteunterschied von 10,62-10,64 g/cm³ keine messbaren Änderungen in den Simulationsdaten. Daher werden hier einheitliche Materialkompositionen verwendet. Mit einem ²³⁵U-Anteil von 4,38 %, ist der Anreicherungsgrad deutlich höher gewählt als der von dem Obrigheim-1-Reaktor. Dies resultiert in einer längeren Bestrahlungsdauer sowie einem höheren erreichten Abbrand. Die angegebenen Konzentrationen von den untergeordneten Uranisotopen liegen auf einem ähnlichen Level wie das der westlichen Reaktoren.

Tabelle 19: Brennstoffzusammensetzung der Brennstoffkassette 144-46879 im Kola-3-Reaktor nach SFCompo.

Isotop	Konzentration [wt%]
²³⁴ U	0,0437
²³⁵ U	4,37
²³⁶ U	0,02
²³⁸ U	95,5663

In den operativen Daten wurden ebenfalls Messwerte für die Brennstofftemperatur angegeben. Die angegebenen Daten erscheinen allerdings recht niedrig für die Temperatur im Zentrum des Brennstabes. Im Paper von Gündüz et al. [57] wurde eine durchschnittliche Temperatur des Brennstoffs bei Normalbetrieb von 1250 K in der axialen Mitte und von 800 K an den Enden des Brennstabes gemessen. Die in SFCompo dargelegten Daten liegen größtenteils unterhalb dieses Intervalls, allerdings besitzen die hier untersuchten Brennstofftabletten einen zylindrischen Hohlraum in der Mitte, wodurch sich die Temperatur reduziert [56]. Für Brennstoff mit einem zylindrischen Hohlraum kann daher nicht Formel 5.1 verwendet werden, sondern muss entsprechend angepasst werden [58].

$$T(r) = T_{\text{in}} - \frac{Qr^2}{4k} \left(1 - \frac{r_{\text{in}}^2}{r^2} \right) + \frac{Qr_{\text{in}}^2}{2k} \ln \frac{r}{r_{\text{in}}} \quad (5.5)$$

verwendet, mit den Parametern

- $T_{\text{in}} \hat{=}$ innere Brennstofftemperatur
- $r_{\text{in}} \hat{=}$ innerer Radius bzw. Radius des Hohlraums
- $Q \hat{=}$ volumetrische Heizrate

Der Term $\frac{Qr_{\text{in}}^2}{2k} \ln\left(\frac{r}{r_{\text{in}}}\right)$ ist dabei die Korrektur, die durch die zweite Oberfläche am inneren Brennstoffradius entsteht. Aus der Gleichung 5.5 lässt sich die Oberflächentemperatur T_s am äußeren Radius mit $r = r_{\text{out}}$ bestimmen. Die Oberflächentemperatur am inneren Radius bestimmt sich dann durch Umformen der Gleichung nach T_{in} .

$$T_s = T_{\text{in}} - \frac{Qr_{\text{out}}^2}{4k} \left(1 - \frac{r_{\text{in}}^2}{r_{\text{out}}^2}\right) + \frac{Qr_{\text{in}}^2}{2k} \ln\left(\frac{r_{\text{out}}}{r_{\text{in}}}\right) \quad (5.6)$$

$$T_{\text{in}} = T_s + \frac{Qr_{\text{out}}^2}{4k} \left(1 - \frac{r_{\text{in}}^2}{r_{\text{out}}^2}\right) - \frac{Qr_{\text{in}}^2}{2k} \ln\left(\frac{r_{\text{out}}}{r_{\text{in}}}\right) \quad (5.7)$$

Mit der linearen Heizrate $q_l = Q\pi(r_{\text{out}}^2 - r_{\text{in}}^2)$ ergibt sich für T_{in} :

$$T_{\text{in}} = T_s + \frac{qr_{\text{out}}^2}{4\pi k(r_{\text{out}}^2 - r_{\text{in}}^2)} \left(1 - \frac{r_{\text{in}}^2}{r_{\text{out}}^2}\right) - \frac{qr_{\text{in}}^2}{2\pi k(r_{\text{out}}^2 - r_{\text{in}}^2)} \ln\left(\frac{r_{\text{out}}}{r_{\text{in}}}\right) \quad (5.8)$$

$$= T_s + \frac{q_l}{4\pi k} \left(\frac{r_{\text{out}}^2}{(r_{\text{out}}^2 - r_{\text{in}}^2)} \left(1 - \frac{r_{\text{in}}^2}{r_{\text{out}}^2}\right) - \frac{2r_{\text{in}}^2}{(r_{\text{out}}^2 - r_{\text{in}}^2)} \ln\left(\frac{r_{\text{out}}}{r_{\text{in}}}\right) \right) \quad (5.9)$$

$$= T_s + \frac{q_l}{4\pi k} \left(1 - \frac{2r_{\text{in}}^2}{(r_{\text{out}}^2 - r_{\text{in}}^2)} \ln\left(\frac{r_{\text{out}}}{r_{\text{in}}}\right) \right) \quad (5.10)$$

Da der Wärmeleitungskoeffizient hier ebenfalls höher ist, kann für den Hohlraum-brennstoff nicht das gleiche Modell für die effektive Temperatur verwendet werden. Für diesen Brennstoff wird daher die durchschnittliche Temperatur \bar{T} verwendet, welche aus dem Integral von 5.5 über die Fläche berechnet wird [58], woraus sich die Formel 5.11 ergibt:

$$\bar{T} = T_s + \frac{q_l}{8\pi k} \left(1 - \frac{2r_{\text{in}}^2}{(r_{\text{out}}^2 - r_{\text{in}}^2)} - \frac{4r_{\text{in}}^4}{(r_{\text{out}}^2 - r_{\text{in}}^2)^2} \ln\left(\frac{r_{\text{in}}}{r_{\text{out}}}\right) \right) \quad (5.11)$$

Mit dieser Formel ergeben sich die hier verwendeten Temperaturen, welche ebenfalls in der Leistungstabelle vermerkt wurden. Diese Temperaturen liegen nun in dem gemessenen Spektrum von Gündüz et al. und werden daher hier verwendet. In Tabelle 21 sind die errechneten durchschnittlichen Temperaturen aufgetragen, im Anhang wurden zusätzlich die errechneten Temperaturen für die Oberflächen des inneren Radius vermerkt. Die hier errechneten Durchschnittstemperaturen sind vergleichbar mit denen vom westlichen DWR, jedoch sei hier vermerkt, dass die Messproben alle aus dem unteren Drittel des Brennstabes stammen, wodurch kein direkter Vergleich mit Proben aus der axialen Mitte möglich ist. Allerdings sollte sich das Temperatur- und Leistungsprofil aufgrund der hohen Abbrände (vgl. Kapitel 2 Abb. 2.4) entlang der axialen Höhe angeglichen haben, wodurch in der Mitte des Brennstabes ähnliche Temperaturen zu erwarten sind.

Im Gegensatz zu dem älteren RBMK Reaktor werden hier keine Hafniumanteile in der Ummantelung mehr angegeben, jedoch wird bei der Legierung E110 ein drei- bis vierfach höherer Hafniumanteil (300-400 ppm) gemessen, als bei den westlichen Zirkalloy-4-Kompositionen [59]. Da diese Anteile jedoch unterhalb der Promillegrenze liegen und für E125 keine entsprechenden Daten vorliegen, werden diese hier ebenfalls vernachlässigt.

5.6.2 WASSERDICHTHE

In den Daten zum Kola-3 wurde in SFCompo die Einlasstemperatur des Wassers mit 540 K und die Auslasstemperatur mit 573 K angegeben. Bei einem Druck von

122,6 bar entspricht dies einer Wasserdichte zwischen $0,782 \text{ g/cm}^3$ und $0,720 \text{ g/cm}^3$ [16]. Wird die Temperaturverteilung mit Formel 2.25 modelliert, decken sich diese Werte mit den angegebenen Werten für Brennstoffzyklus 12. Für die anderen Brennstoffzyklen liegen unterschiedliche Leistungen vor, daher ist davon auszugehen, dass die angegebenen Ein- und Auslasstemperaturen nur durchschnittliche Richtwerte sind.

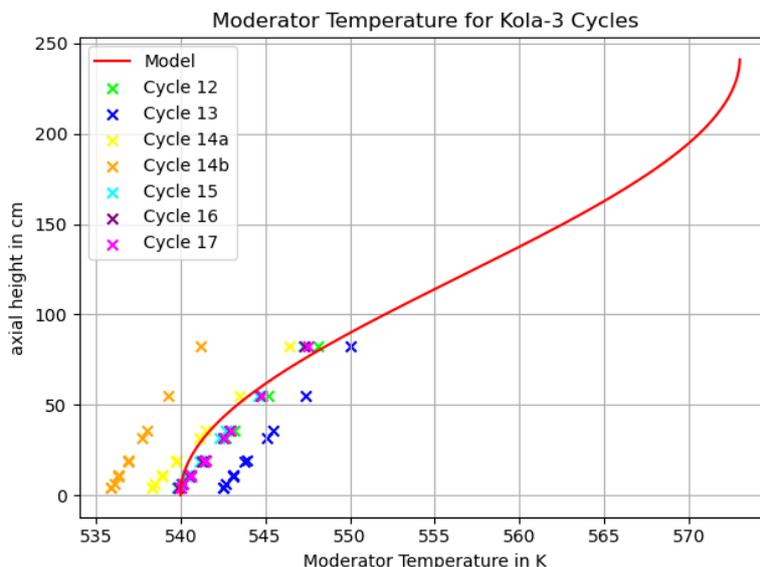


Abbildung 27: Verteilung der Wassertemperaturen nach Zyklen im Kola-3-Reaktor.

Für diese angegebenen Schwankungen verändert sich die Wasserdichte allerdings nur geringfügig. So liegt die Dichte bei dem gegebenen Druck für eine Einlasstemperatur von 535 K bei $0,790 \text{ g/cm}^3$ und bei 545 K bei $0,777 \text{ g/cm}^3$. Ähnliche Differenzen sind bei der Auslasstemperatur erkennbar. Diese Schwankungen sind zu gering, um einen messbaren Unterschied zu erhalten und werden daher vernachlässigt. Die Borsäurekonzentrationen für die einzelnen Brennstoffzyklen wurden ebenfalls in SFCompo angegeben.

Tabelle 20: Borsäurekonzentrationen für die Brennstoffzyklen der Brennstoffkassette 144-46879 im Kola-3-Reaktor.

Zyklus-ID	Dauer [T_{eff}]	Borsäure-Konzentration [ppm]
12	319	2540
13	319,3	2630
14a	274	3640
14b	117,5	1340
15	272,3	2520
16	316,9	3280
17	252	2400

Hierbei wurde erneut eine lineare Abnahme der Konzentration, ähnlich zu dem DWR, mit der „Timetable“-Funktion von TRITON modelliert. Aufgrund der sehr hohen Konzentrationen wird hier allerdings davon ausgegangen, dass die in Tabelle 20 angegebenen Werte als initiale Konzentrationen und nicht als durchschnittliche Werte zu verstehen sind. Diese Annahme stützt sich auf dem Vergleich mit dem DWR Obrigheim-1 und der in der Literatur beschriebene Verwendung von Brennstäben, die mit dem Neutronenabsorber Gd_2O_3 versetzt wurden (vgl. Abb. 29).

5.6.3 LEISTUNG UND BRENNZEIT

Die Leistungs- und Brennzeitparameter werden den SFCompo-Daten entnommen und sind mit der effektiven Brennstofftemperatur in Tabelle 21 zusammengefasst.

5.6.4 GEOMETRIE

Für die Geometrie des Reaktors wurden hier hexagonale Prismen als Berechnungszellen erstellt, welche in einem Gitter angeordnet werden. Die Zellen werden mit den zylinderförmigen Brennstäben und Ummantelungen bestückt und der Rest wird mit Wasser aufgefüllt. Brennstoffkassetten habe eine hexagonale Form, weswegen die Ummantelung ebenfalls hexagonal gewählt wurde. Aufgrund der zum Zentrum gerichteten Wände werden hier isotrope Randbedingungen gewählt.

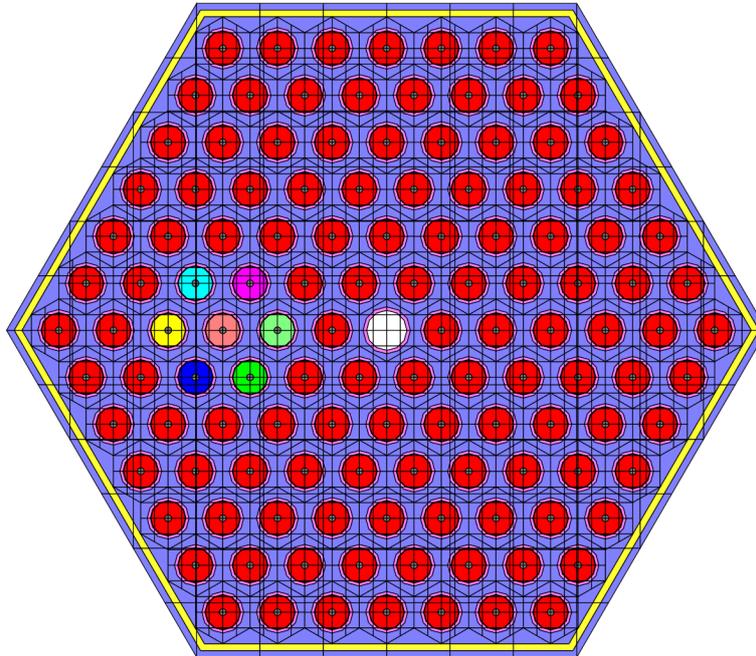


Abbildung 28: NEWT-Modell für den Brennstab 61 im SFCompo-Modell des WWER-440 Kola-3. Brennstab 61 ist orange dargestellt. Die farbigen Brennstäbe um diesen herum wurden für bessere Simulationsergebnisse mit einer eigenen Material-ID versehen, unterscheiden sich in der Zusammensetzung aber nicht von den roten.

Tabelle 21: Probenspezifische Leistungs- und Temperaturverteilung für die Brennstoffkassette 144-46879 des WWER-440 Kola-3.

Stab ID	Proben ID	Zyklus													
		12		13		14a		14b		15		16		17	
		Leistung [MW/tU]	Temp. [K]												
	124	15,4	743	822	826	22	826	23,8	848	19,5	795	6,8	636	17,9	775
	76	20,8	811	908	903	28,3	903	30,2	926	24,9	862	8,7	659	22,3	829
61	13	25,1	864	964	942	31,6	942	33,1	960	27,4	892	9,9	674	24	850
	189	31,6	942	1051	1013	37,6	1013	38,6	1025	32,2	949	12,1	701	28	899
	53	36,2	997	1096	1041	40	1041	39,9	1040	34,2	973	13,7	721	29,8	921
62	81	15,5	744	816	816	21,2	816	22,8	835	18,9	787	6,8	636	17,2	766
	165	20,5	807	894	887	27	887	28,8	909	23,9	849	8,7	659	21,4	819
	5	16,6	758	850	847	23,7	847	25,3	866	20,9	812	6,2	628	19,3	792
	169	19,6	796	901	894	27,6	894	29,4	916	24,3	854	7,3	623	22,4	831
96	63	26,3	878	996	973	34,2	973	35,8	992	29,6	918	9,1	664	26,8	885
	98	31,8	945	1065	1021	38,3	1021	39,1	1031	32,7	955	10,6	682	29,5	917
	718	34,4	975	1093	1040	39,9	1040	40	1041	34	970	11,3	692	30,6	930

5.6.5 ALTERNATIVE DESIGNS

In dem Paper von A. A. Gagarinskiy et al. [37] wurden zwei weitere Brennstoffkassettendesigns vorgestellt. Eines hat dabei eine durchschnittliche Anreicherung von 4,38 %, was den Werten aus SFCompo entsprechen würde. Andererseits wird in der Arbeit ebenfalls erwähnt, dass der Kola-3-Reaktor zwei Blöcke mit dem Brennstoffkassettendesign der zweiten Generation verwendet. Dieses zweite Design wird allerdings mit einer durchschnittlichen Anreicherung von 4,25 % angegeben. Beide alternative Designs verfügen über mehrere Brennstoffzusammensetzungen sowie Brennstäbe mit Gd_2O_3 -Anteil, was in den Daten von SFCompo nicht verzeichnet wurde. Die genauen Zusammensetzungen sind in Abb. 29 zu sehen.

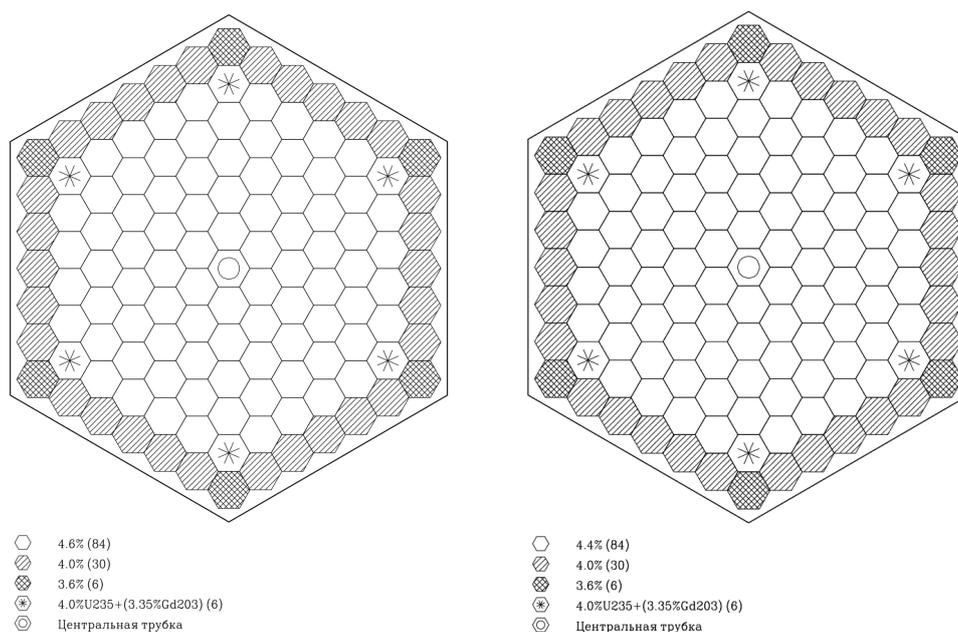


Abbildung 29: Alternative WWER-440/213-Brennstoffkassettendesigns mit einer durchschnittlichen Anreicherung von 4,38 % bzw. 4,25 % [56].

Da nicht ersichtlich ist, welches der drei Designs das zu den Daten passende ist, werden die anderen beiden Designs ebenfalls modelliert. Für diesen Brennstoff lässt sich allerdings kein Anteil für ^{234}U und ^{236}U entsprechend der vorliegenden Daten errechnen, daher wird hier die gleiche Formel wie für den DWR verwendet [22]. Für die Zusammensetzung ergeben sich dann die Werte aus Tabelle 22.

Tabelle 22: Brennstoffzusammensetzung für die Brennstäbe in den alternativen Brennstoffkassettendesigns.

Isotop	Konzentration [wt%]				
	3,6 %	4,0 %	4,4 % ^b	4,6 % ^c	4,0 %+3,35 %Gd ₂ O ₃
Brennstoff					
²³⁴ U	0,032	0,036	0,032	0,041	0,036
²³⁵ U	3,6	4,0	4,4	4,6	4,0
²³⁶ U	0,018	0,018	0,020	0,021	0,018
²³⁸ U	96,351	95,946	95,541	95,338	95,946
Gd ₂ O ₃ ^a	-	-	-	-	3,35

^avon gesamter Zusammensetzung

^bBrennelementdesign mit durchschnittlich 4,25 % Anreicherung

^cBrennelementdesign mit durchschnittlich 4,38 % Anreicherung

5.6.6 ALLGEMEINES MODELL

Es wurden hier insgesamt drei Modelle vorgestellt, von denen die zwei alternativen eher den Literaturbeschreibungen entsprechen. Daher ist davon auszugehen, dass die meisten WWER-440-Reaktoren eher die alternativen Designs verwenden. Eine Vergrößerung dieses Modells auf das WWER-1000-Design ist ebenfalls möglich, da hier hauptsächlich das hexagonale Gitter auf 21 Brennstäbe in der Hauptachse ausgeweitet werden muss. Es muss hier allerdings der brennkassettenspezifische Neutronenabsorber beachtet werden, so verwendet z. B. die Brennkassette 1591 aus dem WWER-1000-Reaktor Balakovo-3 einen aluminium- und borbasierten Neutronenabsorber. Es wurde hier ebenfalls eine Methode zur Berechnung der Temperaturverteilung bzw. der effektiven Temperatur in einer Hohlraumbrennstofftablette vorgestellt. Diese bietet viele Vorteile aufgrund ihrer niedrigeren Kerntemperatur und wird als Brennstoff in verschiedenen Reaktortypen erforscht [60, 61].

6. AMERICIUM IM REAKTOR

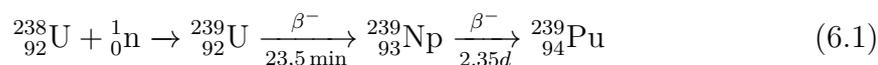
Innerhalb dieser Arbeit ist das Isotop ^{242m}Am von besonderer Bedeutung, da es auf seine Aussagekraft für die Unterscheidung verschiedener Reaktortypen untersucht werden soll. Dieses Isotop und seine Konzentration in dem verbrauchten Brennstoffmaterial wurde für die hier verwendeten Brennelemente nur selten durch die Messlabore gemeldet und wird daher im Vergleich der Mess- und Simulationsdaten nicht auftauchen. Die in SFCompo hinterlegten Konzentrationen enthalten allerdings zumeist die Messwerte von Isotopen, die Teil des Transmutationsweges von ^{242m}Am sind. Daher ist es wichtig, dass die Messwerte der Plutonium-, Americium- und Curiumisotope möglichst genau durch die Simulationswerte wiedergegeben werden, um passende ^{242m}Am -Werte zu erhalten. Die Charakteristiken der einzelnen Isotope beeinflussen allerdings diesen Transmutationsweg dramatisch, weswegen die Zusammenhänge in diesem Kapitel anhand der Bedeutung und der Erzeugung von ^{242m}Am aufgezeigt werden soll.

6.1 DAS ISOTOP ^{242M}AM

Das metastabile Isotop ^{242m}Am ist ein langlebiges Isotop mit einer Halbwertszeit von etwa 141 Jahren, welches durch den Neutroneneinfang aus ^{241}Am erbrütet wird. Der Wirkungsquerschnitt für die Spaltung durch thermische Neutronen übersteigt den von ^{235}U und ^{239}Pu um fast eine Größenordnung und ist damit mit 6700 b der höchste bisher gemessene Wert aller Nuklide [62]. Dieser sehr hohe Wirkungsquerschnitt, gepaart mit der hohen Neutronenausbeute bei der Spaltung von etwa 3,6, resultierte in den Überlegungen, ^{242m}Am als Spaltmaterial in nuklearen Batterien oder in nuklear gepumpten Lasern zu verwenden [63]. Jedoch ist die Verfügbarkeit dieses Nuklides begrenzt, was auf eine notwendige Erbrütung im Reaktor zurückzuführen ist. Aufgrund der einzigartigen Kombination von kernphysikalischen Eigenschaften wie Lebensdauer, Einfangquerschnitt und dem Transmutationsweg, soll in diesem Kapitel nun untersucht werden, ob das Nuklid eine Aussage über die Prozesse im Reaktor zulässt.

6.2 SYNTHESE VON AMERICIUM IM REAKTOR

Zuerst soll in diesem Kontext der Syntheseweg näher beleuchtet werden. Das Nuklid ^{242m}Am wird aus der Reaktion $^{241}\text{Am}(n,\gamma)^{242m}\text{Am}$ erbrütet. Der thermische Wirkungsquerschnitt für die Neutroneneinfangsreaktion ist in der ENDF/B-VII-Datenbank mit $621,6\text{ b}$ angegeben und liegt damit in der Größenordnung der Kernspaltung von ^{235}U [7]. Da Americium allerdings als Transuran in dem Brennstoffmaterial nicht natürlich vorkommt, wird dieses erst im Reaktor durch die Kernprozesse erbrütet. Es entsteht als Nebenprodukt der Plutoniumkette, welche durch den Neutroneneinfang vom ^{238}U beginnt:



Aufgrund der hohen Neutronendichte in einem Reaktor und der relativ hohen Einfangquerschnitte von Plutonium (vgl. Tabelle 23) werden so die weiteren Plutoniumisotope durch weiteren Neutroneneinfänge bis zum ^{243}Pu erzeugt.

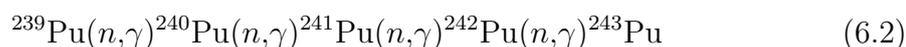


Tabelle 23: Wirkungsquerschnitte und Halbwertszeiten der Isotope des ^{242m}Am -Transmutationsweges.

Isotop	Wirkungsquerschnitt ^a [barn]			Halbwertszeit	Zerfallsart (Häufigkeit)	
	Gesamt	Spaltung	n-Einfang		primär	sekundär
^{238}Pu	600,7	17,09	563,8	87,7 a	$\alpha(1)$	-
^{239}Pu	1033	751,4	273,7	24114 a	$\alpha(1)$	-
^{240}Pu	292	0,063	291	6563 a	$\alpha(1)$	-
^{241}Pu	1387	1013	364	14,33 a	$\beta^-(1)$	-
^{242}Pu	26,95	0,001	19,27	373500 a	$\alpha(1)$	-
^{243}Pu	289,2	181,5	88,17	4,956 h	$\beta^-(1)$	-
^{241}Am	636,1	3,153	626	432,8 a	$\alpha(1)$	-
^{242}Am	7622	2103	5507	16,04 h	$\beta^-(0,827)$	$ec(0,173)$
^{242m}Am	8065	6700	1359	141 a	$IT(0,995)$	$\alpha(0,005)$
^{243}Am	83,92	0,074	75,35	7360 a	$\alpha(1)$	-
^{242}Cm	30,75	3,026	16,9	162,93 d	$\alpha(1)$	-
^{243}Cm	759,9	617,8	130,2	30 a	$\alpha(0,998)$	$ec(0,002)$
^{244}Cm	23,04	1,035	14,44	18 a	$\alpha(1)$	-
^{245}Cm	2492	2132	349,3	8500 a	$\alpha(1)$	-

^athermisch (ENDF/B-VII.1-Bibliothek)

^{243}Pu besitzt eine Halbwertszeit von 4,956 Stunden und ebenfalls einen deutlich höheren Spalt- als Einfangquerschnitt. Daher wird ^{244}Pu nur selten hergestellt. Das Americiumisotop ^{241}Am wird nun durch den Beta-Zerfall erzeugt, welches durch Neutroneneinfang zu ^{242m}Am wird:



Diese Ausbeuten auf dem Weg zum ^{242m}Am sind allerdings nicht immer 100 %, wodurch eine komplexe Verflechtung entsteht, welche in Abb. 32 aufgezeichnet ist [64]. Die dort dargestellten Übergangswahrscheinlichkeiten wurden anhand der ORLIBJ32-Bibliothek für westliche DWR und SWR berechnet, sind jedoch sensitiv für die vorliegenden Neutronenflüsse. Sie sollen daher primär die Transmutationswege visualisieren und einen groben Richtwert für die Übergänge bieten. Es ist allerdings dennoch ersichtlich, dass das ^{242m}Am dabei nur untergeordnet durch den Neutroneneinfang mit einer Ausbeute von 10 % hergestellt wird.

Für die Erzeugung von Americium sind also die Plutoniumisotope von großer Bedeutung. Diese besitzen allerdings neben den Einfangquerschnitten auch recht große Spaltquerschnitte. Daher wird die Erzeugung der schweren Plutoniumisotope durch die Spaltreaktion unterdrückt. Ebenfalls liegen in dem Reaktor nicht nur Neutronen im thermischen, sondern auch im schnellen, Resonanz- und epithermischen Bereich vor. Während der Thermalisierung durchqueren sie den Resonanzbereich der Plutoniumisotope, wodurch die Reaktionswahrscheinlichkeiten verändert werden (vgl. Abb. 30).

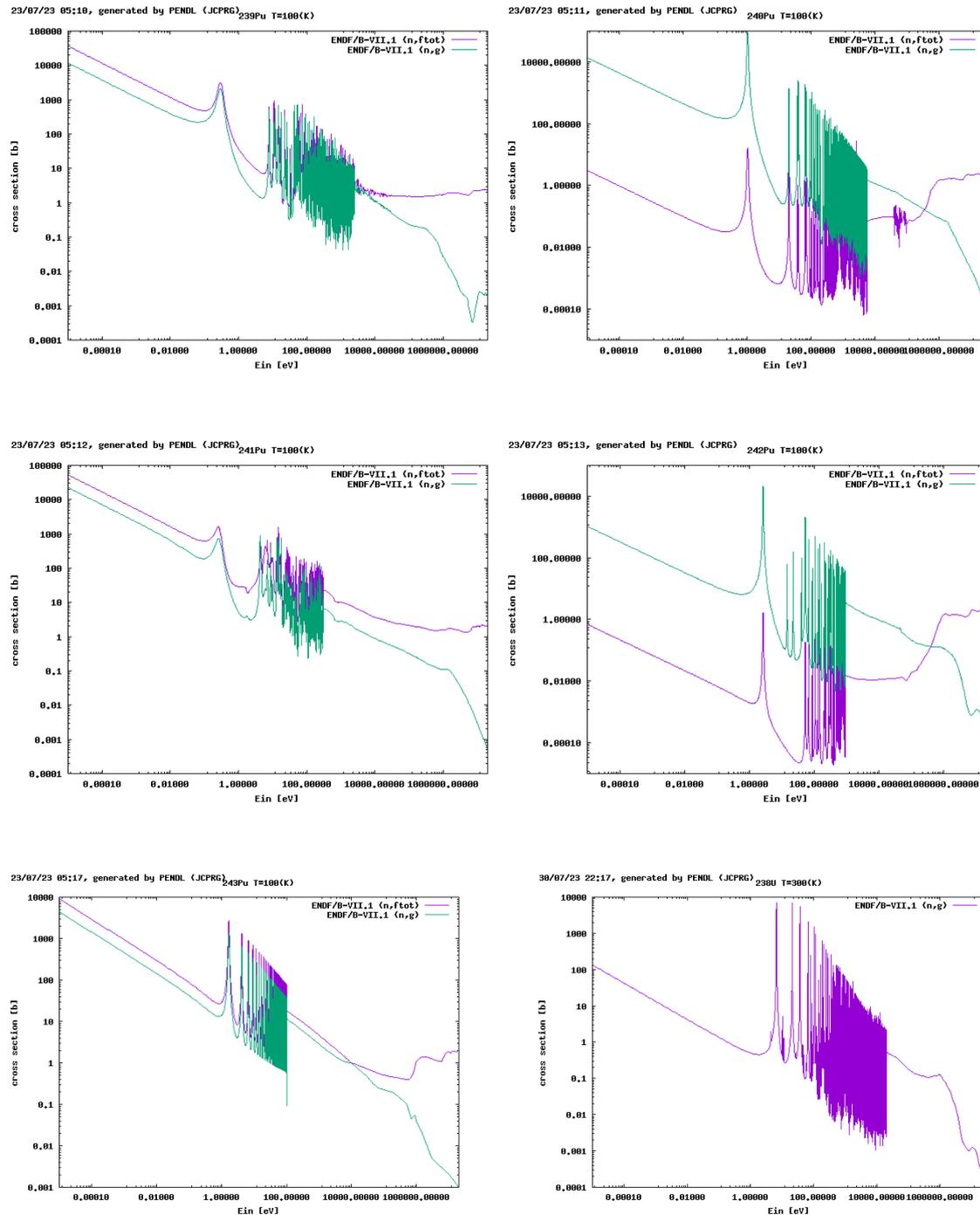


Abbildung 30: Resonanzbereiche der Plutoniumisotope und ^{238}U für die (n, γ) - und (n, f) -Reaktionen aus der ENDF/B-VII.1-Querschnittsbibliothek [7].

Die Integrale I_{RS} über diese Resonanzbereiche liefern Wirkungsquerschnitte, welche mit der Lethargiebreite des Bereichs in durchschnittliche Wirkungsquerschnitte umgerechnet werden können [3]:

$$\bar{\sigma}_{\text{RS}} = I_{\text{RS}} \ln \left(\frac{E_1}{E_2} \right)^{-1} \quad (6.4)$$

Resonanzbereiche liegen für alle Nuklide im Reaktor vor und die Summe der Resonanzabsorptionen werden in der Resonanzdurchlasswahrscheinlichkeit p des k -Faktors berücksichtigt. Besonders ist hier auch noch das ^{238}U hervorzuheben, da

dieses im Reaktorbrennstoff am häufigsten vorliegt, und dessen Resonanzbereich ebenfalls zu der Produktion von Plutonium beiträgt. Zudem werden diese Bereiche durch die Temperatur des Materials aufgrund von Dopplerverbreiterungen beeinflusst (vgl. 2.7). Diese ganzen Effekte wurden als Selbstabschirmung eingeführt und werden, unter anderem, über die Dancoff Faktoren berücksichtigt. Insgesamt bedeutet dies, dass ein Reaktor mit einer niedrigeren Resonanzdurchlasswahrscheinlichkeit eine höhere Ausbeute an Plutonium und demzufolge auch an Americium haben sollte. Für die schlussendliche Konzentration von ^{242m}Am sind dabei allerdings zwei weitere Resonanzen von entscheidender Bedeutung. Der Spaltquerschnitt von ^{242m}Am liegt in den meisten Bereichen oberhalb des Einfangquerschnitts der Mutter ^{241}Am . Das bedeutet, dass die neu entstehenden Tochternuklide im Neutronenspektrum eines thermischen Reaktors recht schnell wieder gespalten werden, wodurch die Konzentrationen sehr niedrig bleiben. Bei den meisten radioaktiven Abfällen macht ^{242m}Am 0,4 % des gesamten Americiumanteils aus [63].

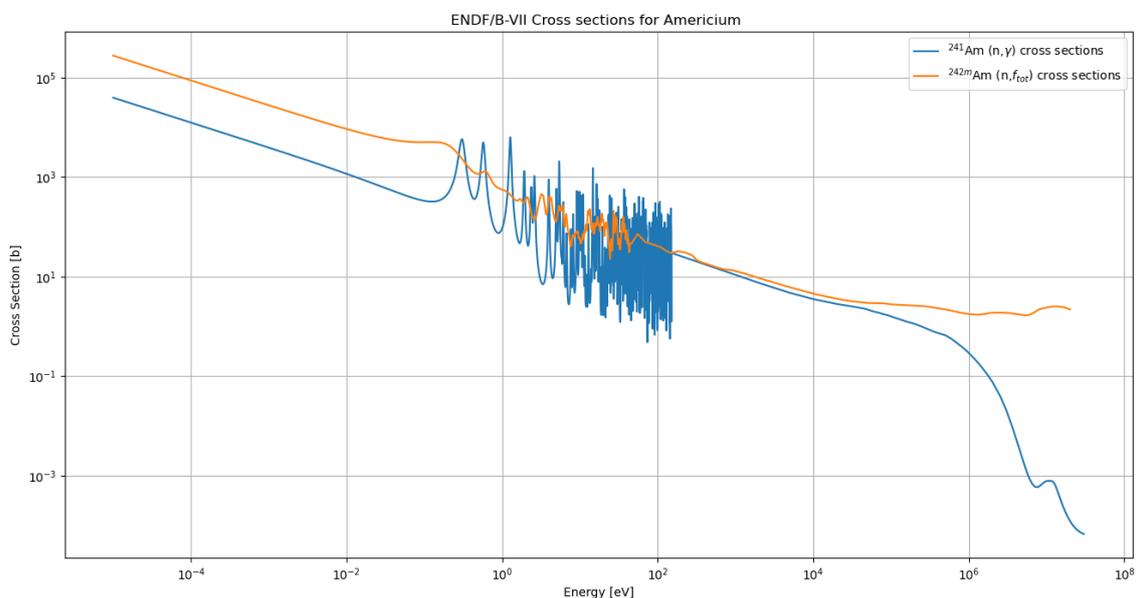


Abbildung 31: Wirkungsquerschnitte für (n,γ) -Reaktion von ^{241}Am und die (n, f) -Reaktion von ^{242m}Am aus der ENDF/B-VII-Datenbank.

In dem Resonanzbereich hingegen kann der Einfangquerschnitt der Mutter höhere Werte als der Spaltquerschnitt der Tochter annehmen. Wird daher das Mutternuklid ^{241}Am von der thermischen Neutronenstrahlung abgeschirmt, z. B. durch eine hohe Konzentration von Neutronenabsorbieren wie Gd oder Cd, dann kann in diesem lokalen Bereich eine höhere Konzentration erzielt werden [63].

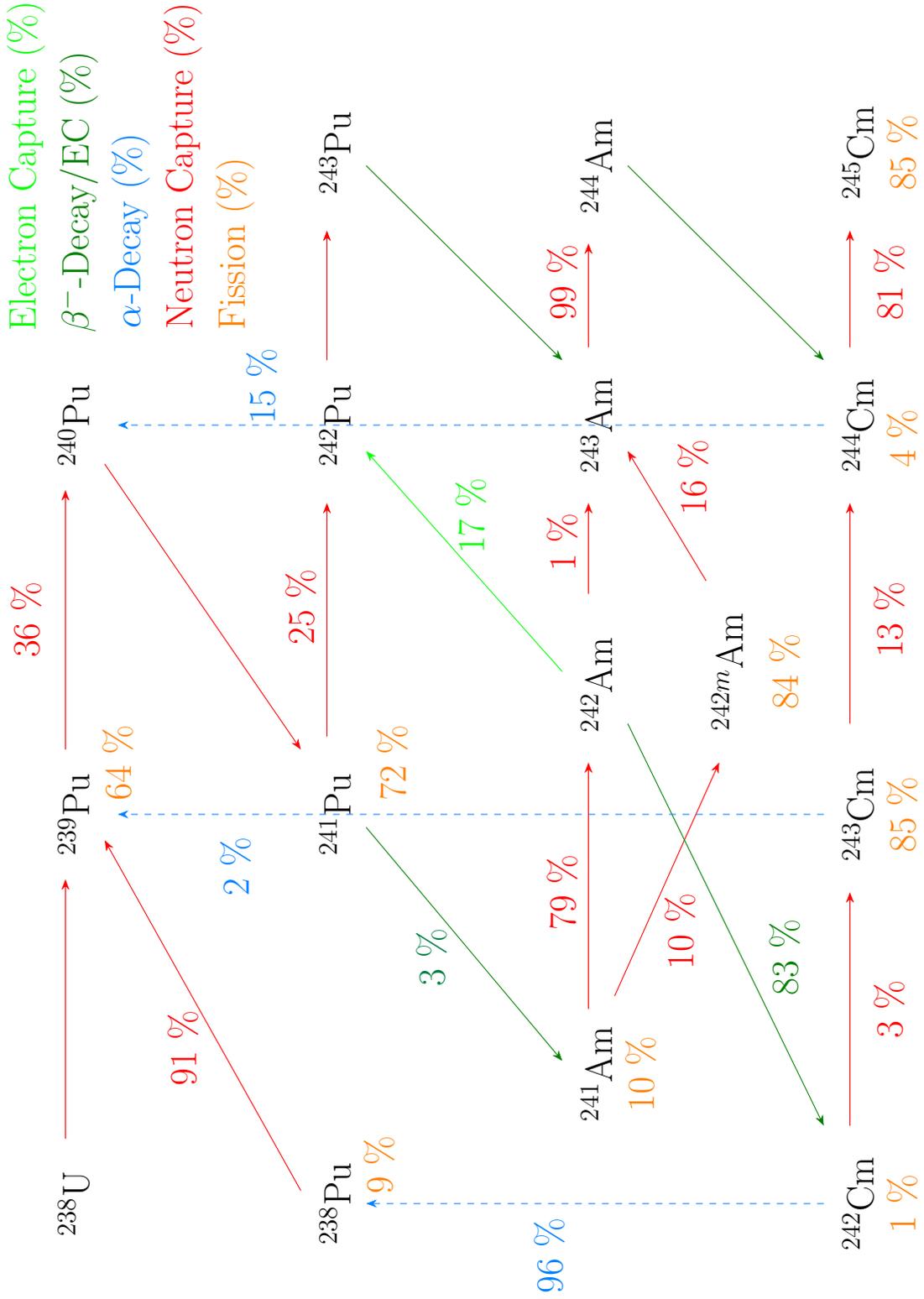


Abbildung 92: Synthese von ^{242m}Am mit Anteilen der relevanten Kernreaktion. Wird keine Übergangswahrscheinlichkeit angegeben, ist sie ca. 100 %.

7. AUSWERTUNG DER DATEN

Für die Auswertung der Modelle werden die Simulationsdaten mit den Messergebnissen verglichen. Bei den Simulationen wurden die exakten Zeiträume verwendet, die in den Bestrahlungsdaten angegeben wurden. Die Daten wurden also für den Brennstab erstellt, der frisch aus dem Reaktorkern entnommen wurde. Aufgrund der radiochemischen Analyse ist das bei den Messdaten nicht der Fall, allerdings werden die Messdaten zumeist mit einem entsprechenden Korrekturfaktor versehen, um die zusätzliche Abklingzeit zu kompensieren. Innerhalb von SFCompo liegen die Daten in den Einheiten mg/gU_i vor, weswegen die Simulationsdaten mit dem initialen Urangehalt gemittelt werden müssen. Da das Volumen nicht bei allen Brennstäben gleich groß ist, werden daher die Isotopenkonzentrationen aller Uranisotope zum Zeitpunkt $t = 0$ aufsummiert. Die restlichen Daten werden dann mit diesem Wert normiert. Für alle Modelle wurden die Werte für die 700 Isotope mit der höchsten Konzentration zu jedem TRITON-Rechenschritt ausgegeben. Die experimentellen Daten wurden mit der entsprechenden Messungenauigkeit angegeben. Da allerdings hier hauptsächlich die Verhältnisse der Messdaten zu den Simulationsdaten untersucht werden und für die Simulation ohne ausführliche Ungenauigkeitsanalyse keine Fehlerabschätzung möglich ist, wurde sich hier entschieden, die Fehlerbalken nicht in die Grafiken mit aufzunehmen. Aufgrund der Vielzahl an Modellannahmen wird als Richtwert innerhalb der hier durchgeführten Auswertung für die aus ^{235}U , ^{238}U und ^{239}Pu folgenden Isotope eine Abweichung von $\pm 10\%$ als akzeptabler Bereich angesehen. Dieser Richtwert kann allerdings für bestimmte Isotope nicht zutreffend sein, da mit fortschreitender Verzweigung der Transmutationsketten zusätzliche Ungenauigkeiten entstehen können. Da die angegebenen Messungenauigkeiten zumeist kleiner als dieser Akzeptanzbereich sind, werden sie hier vernachlässigt. Für Isotope, bei denen dies einen Unterschied macht, werden sie in der Analyse erwähnt. Alle Verhältnisse wurden hier zur besseren Darstellung einer Über- oder Unterschätzung auf 0 normiert, sodass eine Überschätzung der Konzentrationen seitens der Simulation als negativer Wert und eine Unterschätzung als positiver Wert abgebildet wird. Für die Americium und Curiumisotope liegen zumeist recht hohe Abweichungen zwischen den Mess- und den Simulationsdaten vor. Dies war zu erwarten, da für Messwerte eine recht hohe Ungenauigkeit und Schwankung vorliegt [10]. Dies ist ebenfalls der Grund, warum diese Werte bei anderen Modellierungsarbeiten nicht zur Validierung verwendet wurden [22, 65]. Aufgrund der Signifikanz für das Isotop ^{242m}Am werden sie hier dennoch betrachtet (vgl. Abb. 32) und in einem eigenen Unterkapitel 7.4 in einen Kontext gesetzt. Dabei soll erläutert werden, inwiefern die Modellwerte zu den theoretischen Überlegungen passen.

7.1 DRUCKWASSERREAKTOR: OBRIGHEIM-1

Die simulierten Isotopenkonzentrationen für den Obrigheim-1-Reaktor wurden mit den entsprechenden Messwerten der Labore verglichen. Dabei ist hier zu beachten, dass zwei unterschiedliche Messlabore die Untersuchungen durchgeführt haben (vgl. Tabelle 1). In den meisten wurden allerdings nur Messwerte von einem Labor hinterlegt und in denen, in welchen beide Labore gemessen haben, wurden die Werte des Ispra-Labors bevorzugt. Ebenfalls wurden nicht für alle Messstäbe alle Isotope gemessen. So lagen Messwerte für das Isotop ^{243}Am nur für die zwei Messpunkte

P1 und P2 im Brennstab G7 vor. Die Isotopenkonzentrationen für das Modell des Druckwasserreaktors Obrigheim-1 decken sich sehr gut mit den gemessenen Werten. Besonders bei den Actinoiden Uran und Plutonium liegen die Abweichungen für die meisten Messpunkte deutlich innerhalb des $\pm 10\%$ -Intervalls. Die Ausreißer sind dabei die Messpunkte E3-P2, sowie D1-P1. E3-P2 weist eine Abweichung von 41,2 % im Vergleich zu den gemessenen Werten auf. Dies deutet auf einen zu hohen Abbrand hin. Dieser ist allerdings mit der verwendeten Methode zur Bestimmung des Abbrandes zu erklären. Es wurden verschiedene Methoden zur experimentellen Messung des Abbrandes verwendet und hier wurde sich hauptsächlich entschieden, die Werte der ^{148}Nd -Methode zu verwenden. Für diese spezielle Messung weichen diese allerdings von der ebenfalls durchgeführten nicht destruktiven ^{137}Cs -Methode um 5,8 GWd/tU ab (vgl. 1). Dementsprechend ist von einer Überschätzung des Abbrandes durch die ^{148}Nd -Methode auszugehen. Wird daher der Abbrand durch die ^{137}Cs -Methode verwendet, verbessern sich die Werte deutlich 35.

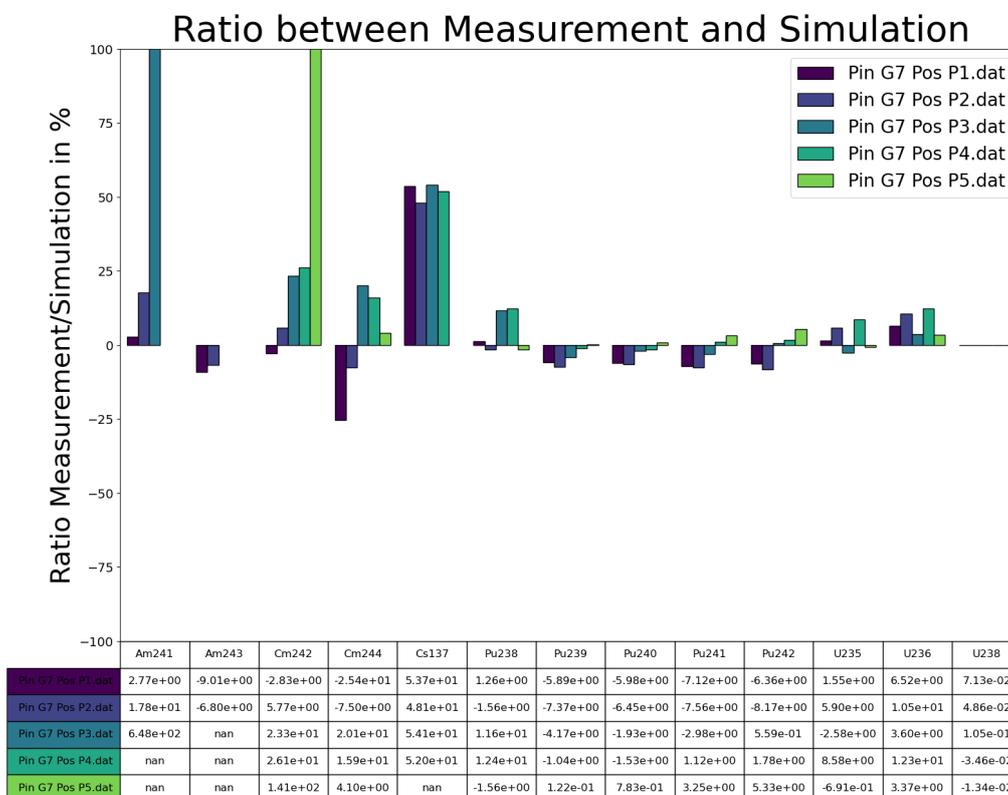


Abbildung 33: Verhältnis Messdaten/Simulation DWR Obrigheim-1-Brennstab G7.

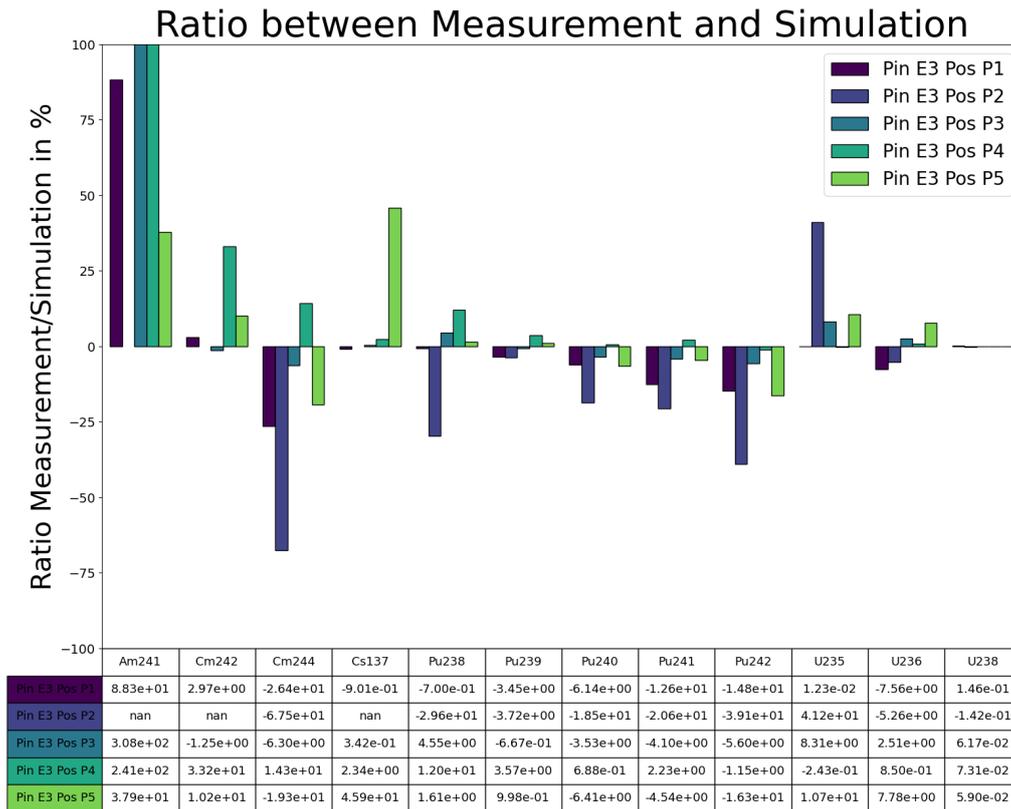


Abbildung 34: Verhältnis Messdaten/Simulation DWR Obrigheim-1-Brennstab E3 mit der ^{148}Nd -Methode.

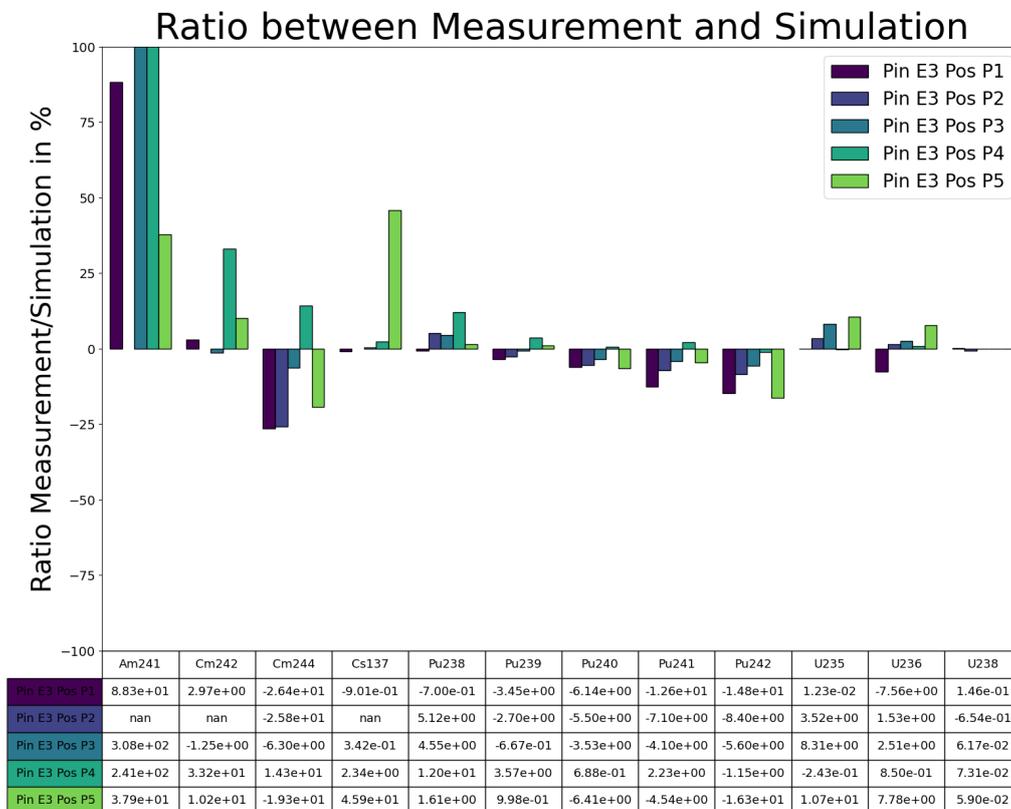


Abbildung 35: Verhältnis Messdaten/Simulation DWR Obrigheim-1-Brennstab E3 mit nicht destruktiver ^{137}Cs -Methode.

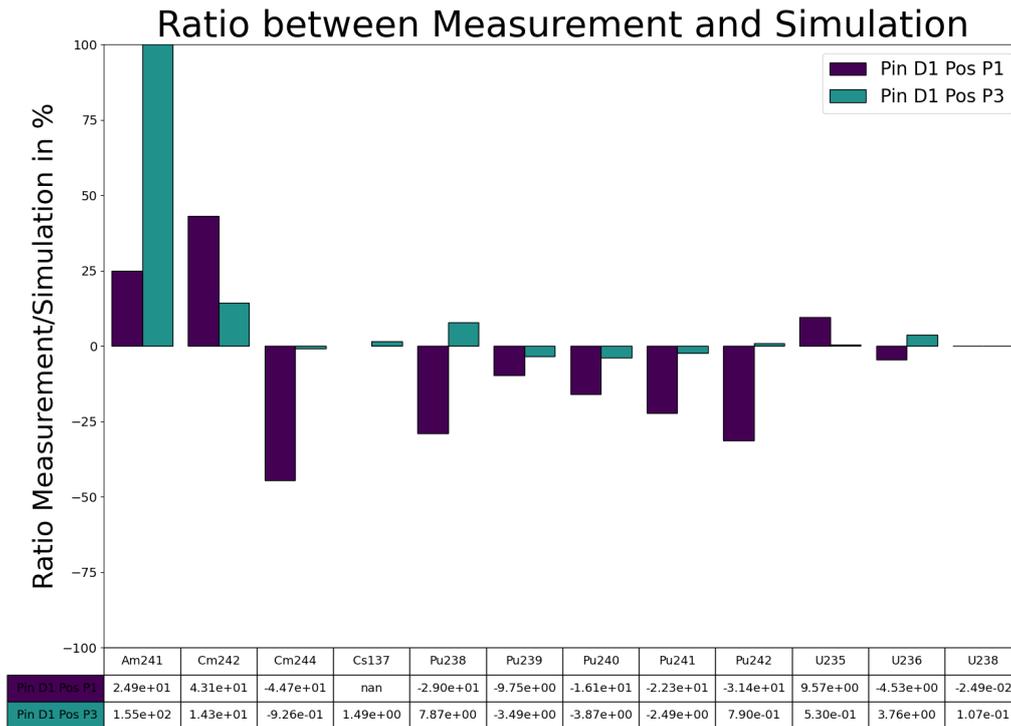


Abbildung 36: Verhältnis Messdaten/Simulation DWR Obrigheim-1-Brennstab D1.

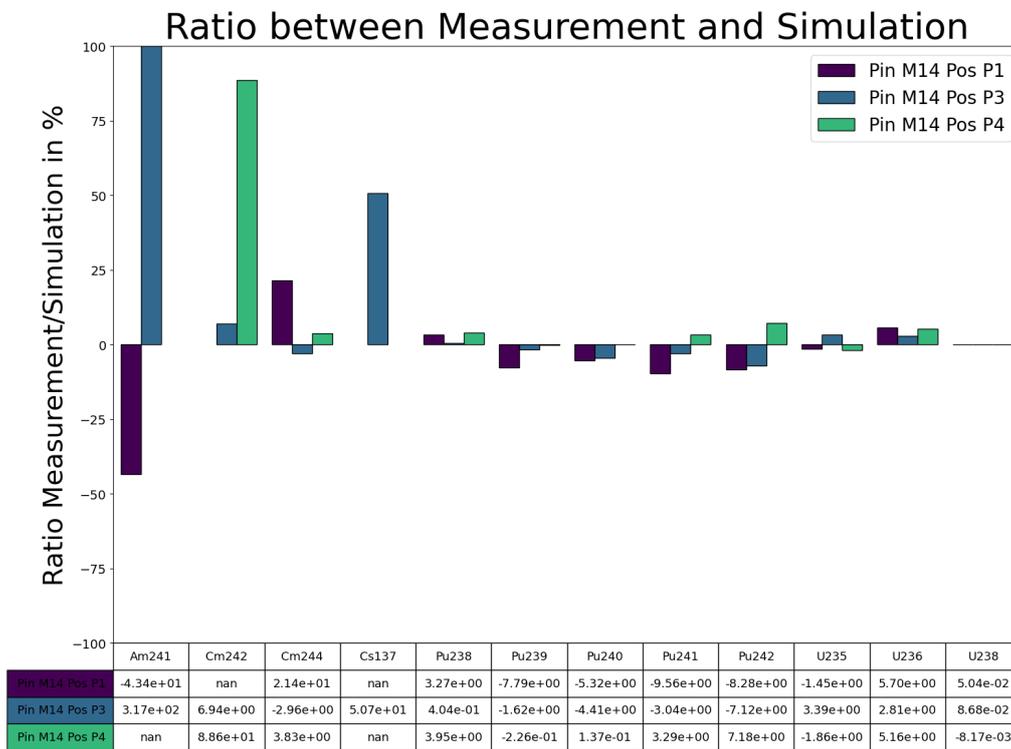


Abbildung 37: Verhältnis Messdaten/Simulation DWR Obrigheim-1-Brennstab M14.

7.2 RBMK-1000: LENINGRAD-1

Bei dem RBMK liegen die Werte der äußeren Brennstäbe für das Brennelement 4-20-3675-85, abgesehen von Americium, in einem guten Bereich. Hier ist hervorzuheben, dass die Extrapolation für die initialen ^{234}U -Werte sehr gut funktioniert hat. Auch die Werte für die übrigen Uran- und vieler Plutoniumisotope liegen innerhalb des $\pm 10\%$ -Intervalls, weshalb das Modell im Allgemeinen als geeignet angesehen wird. Es sind hier dennoch starke Trends entlang der axialen Höhe zu sehen. So nehmen die Abweichungen von den Messwerten zu den Enden des Brennstabes hin merklich zu, was besonders bei der Plutoniumkette zu erkennen ist. Dies lässt sich mithilfe der Abweichungen der ^{235}U -Werte erklären. Da es sich hierbei um eine zweidimensionale Simulation handelt, findet der gesamte Neutronenfluss in einer Ebene statt. Der Neutronenfluss wird dann anhand der festgelegten Leistung und dem vorhandenen Spaltmaterial durch die Wirkungsquerschnitte festgelegt. Da für den RBMK ebenfalls eine konstante Leistung für den gesamten Bestrahlungszeitraum gewählt wurde, muss die Neutronenpopulation dementsprechend angepasst werden, damit genug Spalt Ereignisse passieren, um diese Leistung zu gewährleisten. Diese verändert sich ebenfalls mit den generierten spaltbaren Isotopen, wird allerdings dennoch hauptsächlich durch die Konzentration des ^{235}U bestimmt. Aufgrund der zweidimensionalen Simulation können allerdings keine Neutronen die Ebene verlassen, was besonders bei dem hohen Neutronenfluss in der axialen Mitte des Brennelementes dazu führt, dass die entstehenden Spaltneutronen nur in der gleichen Ebene weitere Spaltungen durchführen können. Dies wird mit Korrekturkoeffizienten, wie der Leistungsanpassung durch den gemessenen Abbrand, auszugleichen versucht, dennoch kann so kein direkter Einfluss auf die umgebenden axialen Raumwinkel berücksichtigt werden. So ergibt sich ein höherer Abbrand in der Mitte des Brennelements, was insbesondere bei einer Betrachtung der direkten Isotopenkonzentration zu sehen ist (vgl. Abb. 39). Jedoch sind die einzelnen Ebenen trotzdem disjunkt, was bei einem realen Reaktor nicht der Fall ist. Daher werden in einer Ebene zu hohe Neutronenflüsse angenommen, was zu einer Überproduktion von schweren Plutoniumisotopen führt, was besonders bei ^{242}Pu sichtbar ist. Dies ist eine Schwäche der zweidimensionalen Modellierung gegenüber der dreidimensionalen. Dennoch können hier so die Effekte der Moderatorichte berücksichtigt werden. Da der RBMK ein übermoderierter Reaktor ist, hat das Wasser als Kühlmittel keine primäre Moderationsfunktion [66, 3]. Trotzdem lässt sich ein kleiner Effekt der Wasserdichte in den hier vorgestellten Messdaten und in den Neutronenflussspektren erkennen. Hierauf wird näher in dem Unterkapitel 7.4 eingegangen. Eine weitere Erklärung ist eine zu hohe angenommene Leistung. Bei der Messposition P2 beim Brennstab E3 vom DWR Obrigheim-1 konnte die Auswirkung einer ungenauen Abbrandsbestimmung bereits aufgezeigt werden. Für den RBMK liegen allerdings keine Vergleichswerte vor. Ebenfalls wurden die Abbrände nicht direkt durch die ^{148}Nd - oder ^{137}Cs -Methode bestimmt, sondern mithilfe einer Formel [33]. Daher lassen sich Ungenauigkeiten hier nicht näher abschätzen. Für den inneren Brennstab werden ebenfalls die Neutronenflüsse überschätzt. Dies liegt vermutlich an der Normierung des Neutronenflusses auf diesen Brennstab. Die Neutronen werden durch das Graphit außerhalb des Brennelementes thermalisiert. Wenn diese dann zurück in das Brennelement gelangen, liegen die inneren Brennstäbe im „Schatten“ der äußeren Brennstäbe. Durch diese Positionierung verändern sich die Selbstabschirmungsfaktoren [67]. Dies soll durch eine manuelle Berechnung der Dancoff-Faktoren verbessert werden, die Leistungsnormierung erhöht dadurch

allerdings den Neutronenfluss zu stark. Dies wird sowohl durch die Plutoniumkonzentrationen als auch durch die ^{236}U -Konzentration deutlich, da dieses nur durch den Neutroneneinfang von ^{235}U produziert wird. Die Abweichung von ^{239}Pu liegt allerdings in der Größenordnung der anderen Messpositionen, was nicht ausschließlich durch die Überproduktion der folgenden Plutoniumisotope zu erklären ist. Dies lässt vermuten, dass die manuelle Berechnung der Dancoff-Faktoren die heterogenen Gittereffekte des Brennelementes durchaus verbessert hat. Daher wird bei diesem Brennstab der Fehler gänzlich beim zu hohen Neutronenfluss vermutet. Wird allerdings die angegebene Leistung nicht auf den inneren Brennstab normiert, sondern als durchschnittlicher Wert für das Brennelement eingesetzt, sollten diese Effekte verbessert werden.

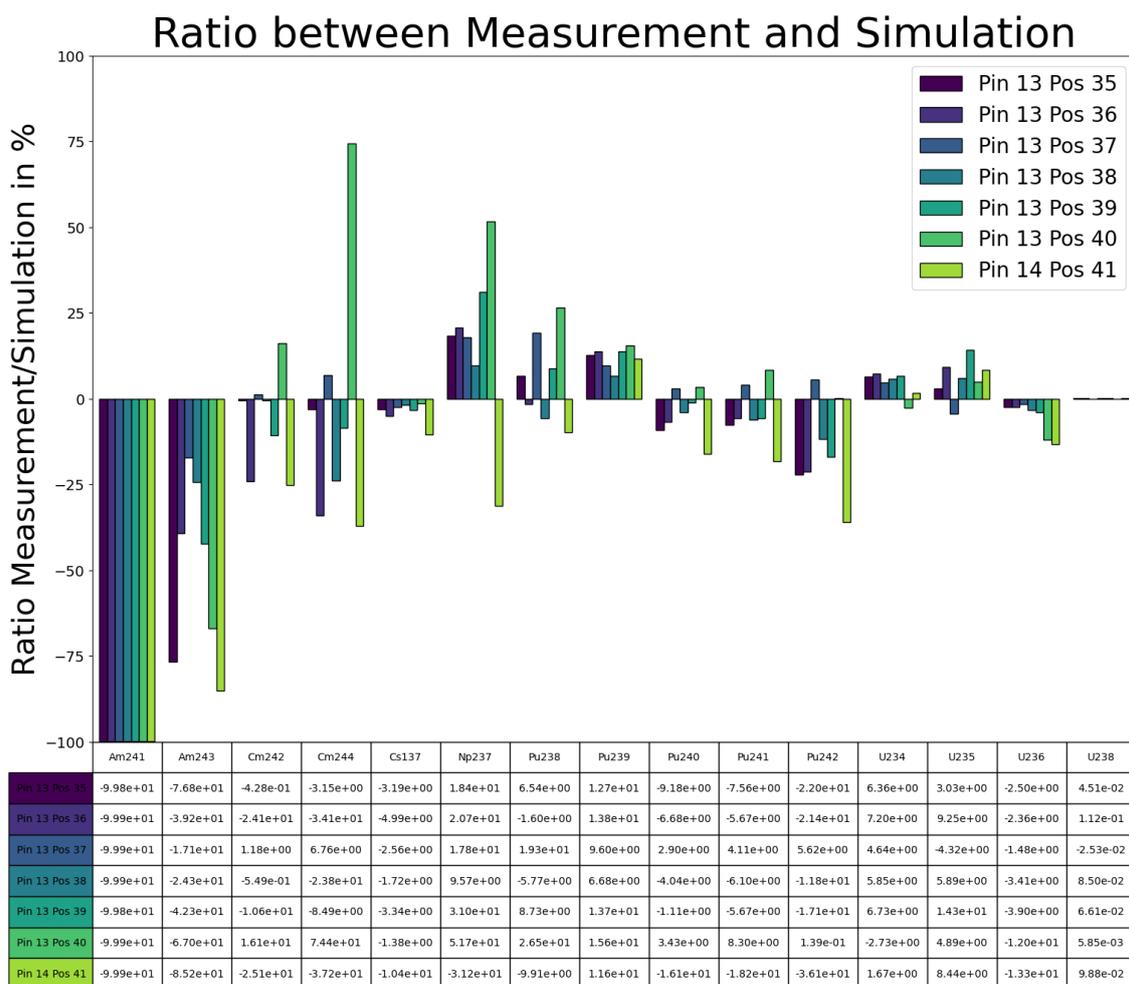


Abbildung 38: Verhältnis Messdaten/Simulation für die Brennstäbe 13 (außen) und 14 (innen) im Brennelement 4-20-3675-85 im RBMK Leningrad-1.

Für das Brennelement R1-20-7788 sind die Werte ebenfalls gut, allerdings ist hier die Extrapolation der ^{234}U -Werte nicht passend, da die Konzentrationen deutlich überschätzt werden. Auch wurden die Konzentrationen in der axialen Mitte (P29, P30 und P31) von ^{235}U mit bis zu 34 % stark unterschätzt. Dies würde auf einen zu hohen Neutronenfluss seitens des Modells schließen lassen, was durch die zu niedrigen ^{239}Pu und die zu hohen ^{242}Pu ebenfalls bestätigt wird. Dies würde bedeuten, dass zu wenig ^{241}Am und zu viel ^{243}Am produziert wurde. Für das ^{243}Am ist dies ebenfalls zu erkennen, allerdings fällt die Konzentration von ^{241}Am aus diesem Schema raus. Auf

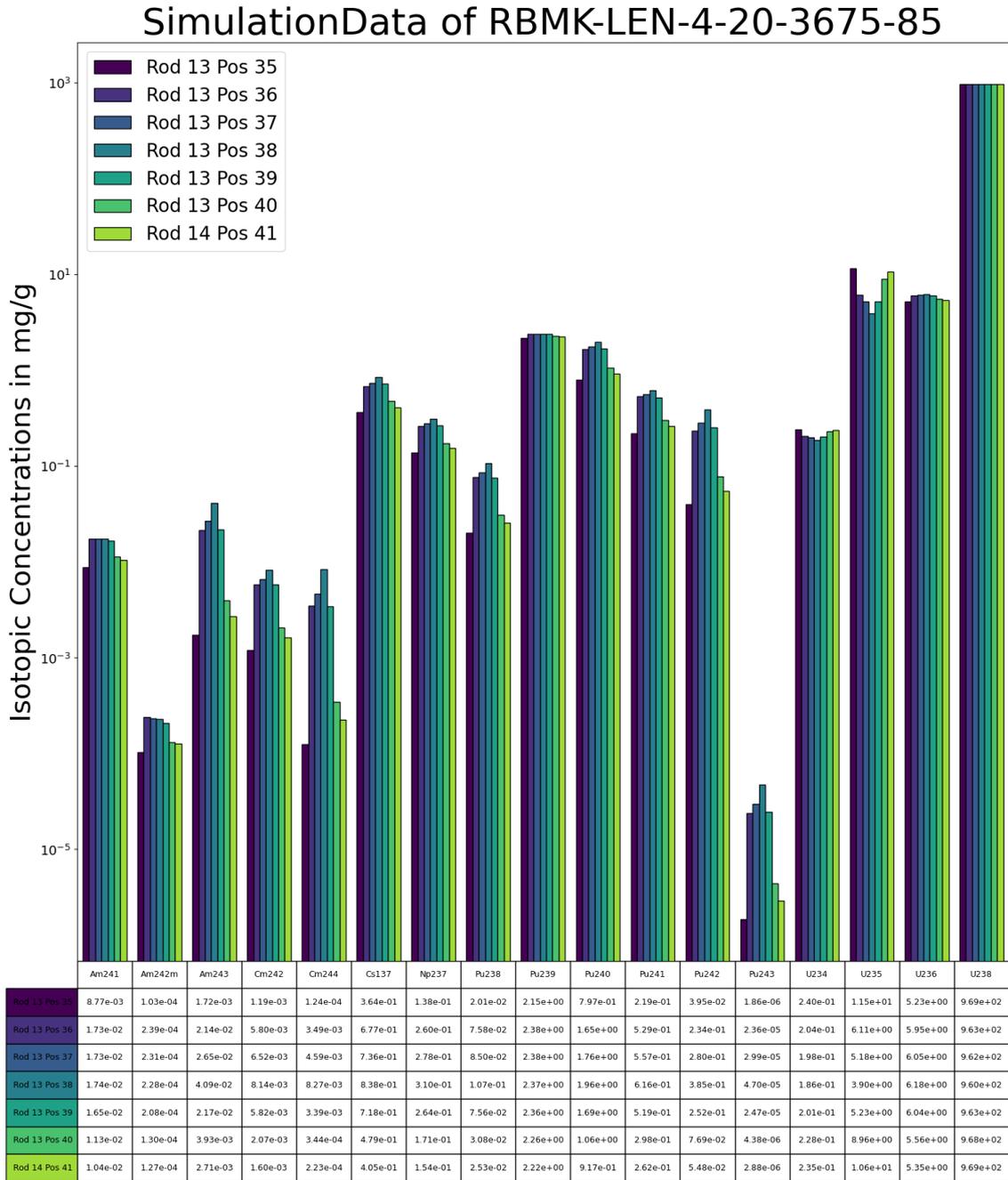


Abbildung 39: Isotopenverhältnisse in den Simulationsdaten des RBMK Leningrad-1 für das Brennelement 4-20-3675-85

die Americiumwerte wird genauer in Kapitel 7.4 eingegangen. Für die Abweichungen des inneren Brennstabes werden die gleichen Gründe wie bei Brennstab 14 vermutet.

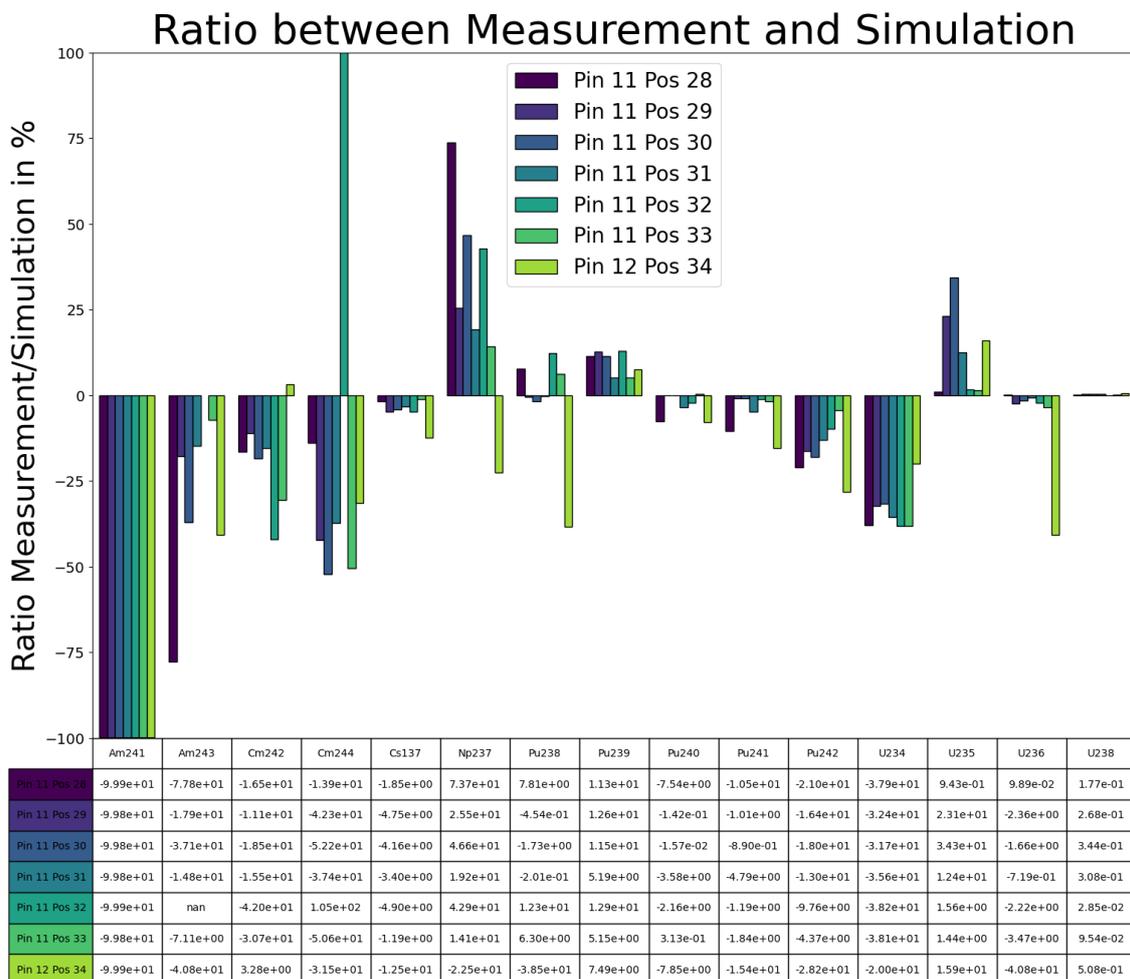


Abbildung 40: Verhältnis Messdaten/Simulation für die Brennstäbe 11 (außen) und 12 (innen) aus Brennelement R1-20-7788 im RBMK Leningrad-1.

7.3 WWER-440: KOLA-3

Für den WWER-440 wurden drei verschiedene Modelle erstellt (vgl. 5).

1. SFCompo Modell
2. Durchschnittliche Anreicherung von 4,38 % mit Gd₂O₃ Brennstäben
3. Durchschnittliche Anreicherung von 4,25 % mit Gd₂O₃ Brennstäben

In der Auswertung der Daten unterscheiden sich diese Modelle jedoch nur geringfügig. Dies ist wahrscheinlich auf die untersuchten Brennstäbe zurückzuführen. Diese liegen im Inneren des Brennelements und sind umgeben von gleichartigen Brennstäben. Daher haben die sechs Brennstäbe mit einem 3,35 %-igen Anteil an Gd₂O₃ in den Modellen 2 und 3 kaum eine Auswirkung für diese speziellen Brennstäbe. Auch das heterogenere Anreicherungsprofil im Brennelement wird so ausgeglichen. Der einzige Unterschied ist die leicht abweichende UO₂-Anreicherung in den untersuchten Brennstäben von 4,37-4,38 % im ursprünglichen Modell und 4,4 % bzw. 4,6

% in den alternativen Designs. Für alle drei Modelle liegen allerdings sehr hohe Abweichungen von den Messdaten vor. Diese werden hier anhand des Modells mit den passendsten Werten aufgezeigt, die Werte für die übrigen Modelle sind in Anhang B zu finden. Insgesamt weichen die Werte von Modell 2 am stärksten von den Messwerten ab. Allerdings liegen bei den Modellen ebenfalls zum ersten Mal Abweichungen von der ^{238}U -Konzentration im Prozentbereich vor. Da ^{238}U das häufigste Isotop im Brennstoff ist, sind diese Abweichungen sehr signifikant. Dies ist mit der berechneten Resonanzdurchlasswahrscheinlichkeit zu erklären. Diese ist mit 0,6055-0,556 deutlich niedriger als die von dem DWR und dem RBMK. Auf diesen Zusammenhang wird näher in Unterkapitel 7.4 eingegangen. Allerdings bedeutet dies, dass zu viel ^{238}U in ^{239}Pu transmutiert, wodurch die Überschätzung der Plutoniumwerte zu erklären ist. Dies lässt ebenfalls auf eine Überschätzung der Resonanzselbstabschirmungsfaktoren schließen. Für die Auswertung bedeutet dies, dass diese Werte nicht passend genug sind und sich keine aussagekräftigen Resultate daraus ableiten lassen.

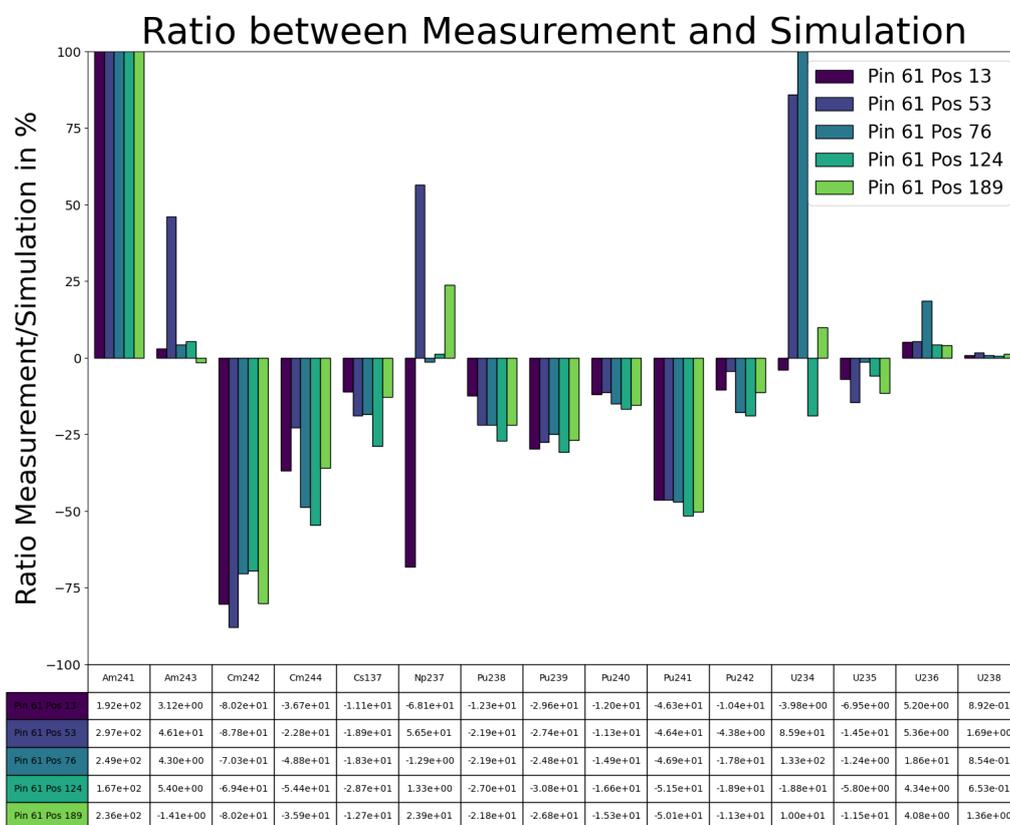


Abbildung 41: Verhältnis Messdaten/Simulation WWER-440-Kola-3-Brennstab 61 für Modell 3.

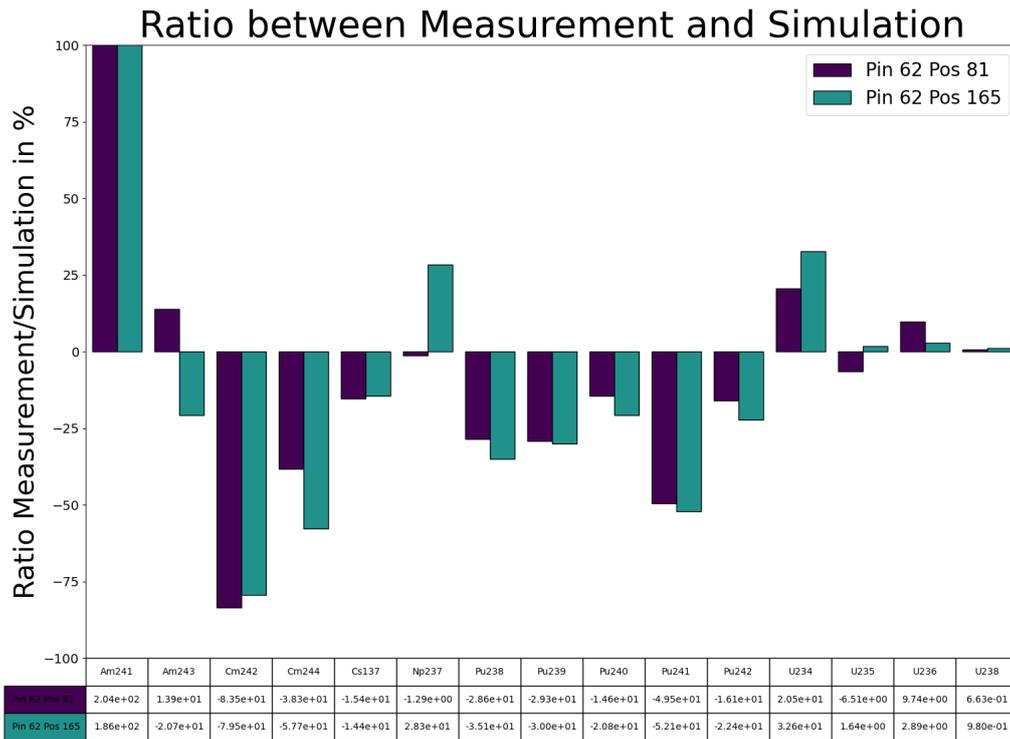


Abbildung 42: Verhältnis Messdaten/Simulation WWER-440-Kola-3-Brennstab 62 für Modell 3.

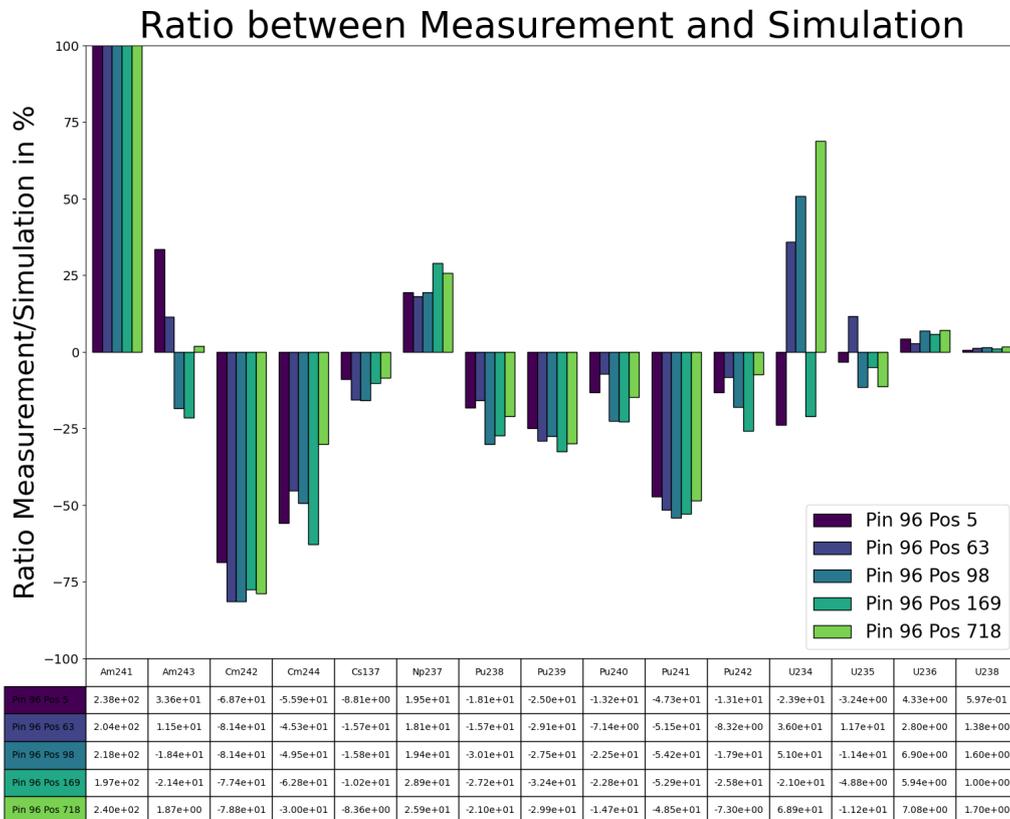
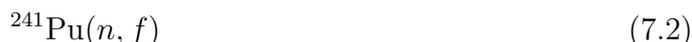


Abbildung 43: Verhältnis Messdaten/Simulation WWER-440-Kola-3-Brennstab 96 für Modell 3.

7.4 AMERICIUM IN DEN SIMULATIONEN

In den hier untersuchten Reaktoren sind die simulierten Americiumkonzentrationen deutlich unterschiedlich im Vergleich zu den gemessenen. Daher soll diese Beziehung hier noch einmal genauer untersucht werden. Wie in Kapitel 6 bereits beleuchtet wurde, entsteht das Isotop ^{241}Am durch den β^- -Zerfall vom ^{241}Pu , welches eine Halbwertszeit von 14,72 Jahren besitzt. Aufgrund des Neutronenflusses in einem Reaktor wird dieser Vorgang allerdings durch weitere Kernreaktionen unterdrückt. Insgesamt konkurrieren also die Reaktionen



Je nach vorliegendem Neutronenfluss und -spektrum werden die Übergangswahrscheinlichkeiten beeinflusst, wobei jedoch der Spaltquerschnitt stets höher ist als der Einfangquerschnitt (vgl. 30). Im thermischen Bereich kommen daher die Wahrscheinlichkeiten zustande, welche in der Abbildung 32 verzeichnet wurden. Der Resonanzbereich kann diese Übergänge beeinflussen, allerdings handelt es sich bei allen hier untersuchten Reaktoren um thermische Reaktoren, d. h. die meisten Kernreaktionen finden mit thermischen Neutronen statt. Dies wird ebenfalls durch die Resonanzdurchlasswahrscheinlichkeit bestätigt, welche für diese drei Reaktoren jeweils für den ersten und den letzten TRITON-Berechnungsschritt in Tabelle 24 angegeben wurde.

Tabelle 24: Durchlasswahrscheinlichkeit für den schnellen und den Resonanzenergiebereich für den Obrigheim-1, Leningrad-1 und Kola-3 Reaktor.

Reaktor	Durchlasswahrscheinlichkeit			
	Schnell		Resonanz	
	Start	Ende	Start	Ende
DWR Obrigheim-1	0,962	0,962	0,683	0,636
RBMK Leningrad-1 ^a	0,977	0,978	0,7835	0,7555
WWER-440 Kola-3	0,965	0,965	0,6055	0,556

^a durchschnittl.

Dabei besitzen der DWR und WWER-440 deutlich niedrigere Resonanzdurchlasswahrscheinlichkeiten als der RBMK, wobei diese für die gesamte axiale Höhe relativ konstant sind. Beim RBMK hingegen verringert sich die Resonanzdurchlasswahrscheinlichkeit mit abnehmender Wasserdichte von 0,803 zu 0,765. Dies ist ebenfalls durch das Plotten des kritischen Flusses sichtbar. Dieser gibt den relativen Anteil an Neutronen in den 252 Energiegruppen an.

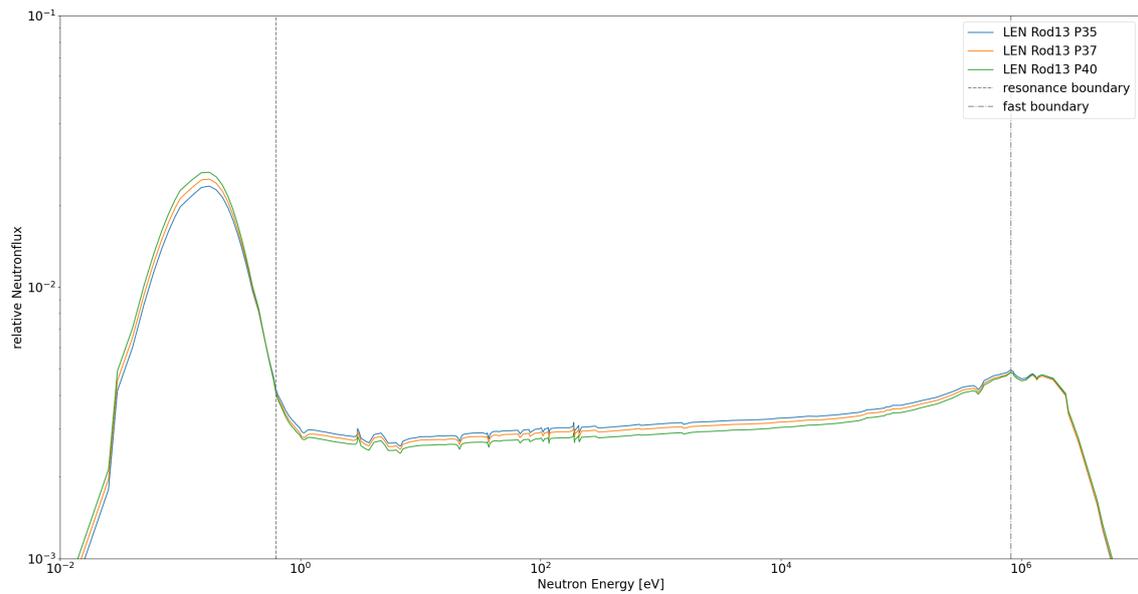


Abbildung 44: Relativer Neutronenfluss nach Energiegruppe für verschiedene Wasserdichten im RBMK Leningrad.

Der hier dargestellte Verlauf wirkt allerdings nicht korrekt, da zwar die Effekte sichtbar sind, welche zuvor angesprochen wurden, allerdings die Absorptionstäler im Resonanzbereich sehr klein ausfallen. Ebenfalls ist das schnelle Neutronenspektrum sehr flach. Die vergleichbaren Spektren des DWR Obrigheim-1, hier am Beispiel vom Messpunkt G7P3, und dem WWER-440 Kola-3, hier beispielhaft am Messpunkt 165, zeigen die Resonanzabsorption deutlich besser. Das flachere thermische Spektrum bei dem WWER-440 entsteht dabei durch den deutlich höheren Anteil an Borsäure im Reaktor und die Einführung von Gd_2O_3 in manche Brennstäbe, was den thermischen Nutzfaktor verringert.

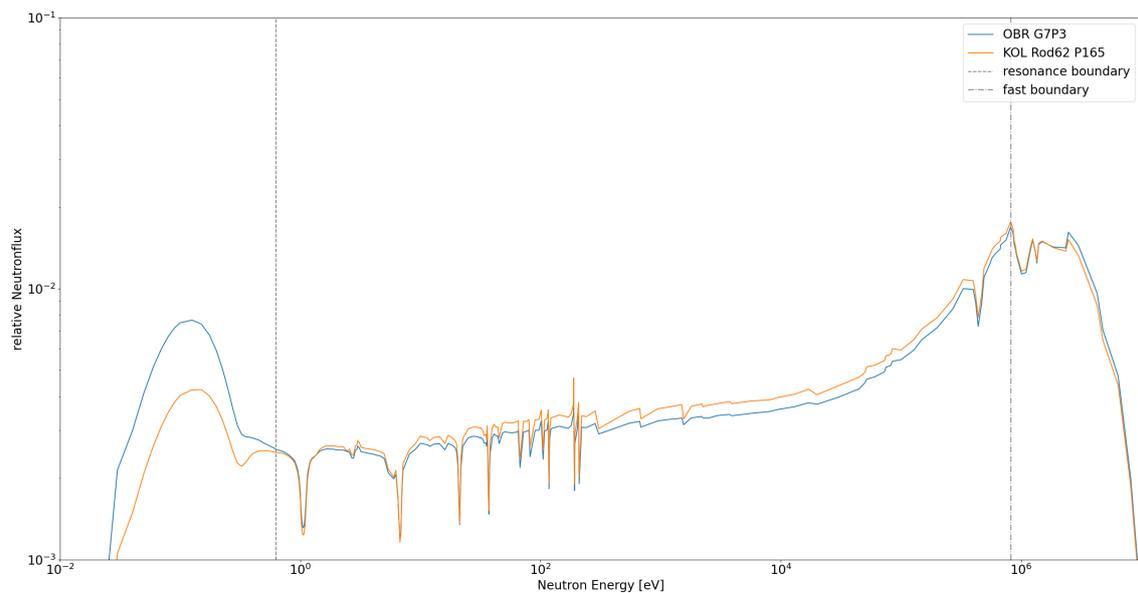


Abbildung 45: Relativer Neutronenfluss nach Energiegruppe für die Messpunkte G7P3 (OBR) und Brennstab 62 P165 (KOL).

Der Verlauf des RBMK rührt wahrscheinlich daher, dass die Moderierung im Gra-

phitmoderator stattfindet. Der Graphitmoderator wurde allerdings zur Optimierung der Berechnungszeit mit einem deutlich größeren Gitter an Berechnungszellen versehen, wodurch über einen größeren Teilbereich gemittelt wird. Es bedarf hier also weiterer Untersuchungen, um die genauen Ursachen ermitteln zu können. Die Resonanzabsorption erhöht also die Wahrscheinlichkeit, dass ^{241}Pu reagiert ohne zu zerfallen. Hierbei ist allerdings zu beachten, dass der größte Teil an Resonanzneutronen durch ^{238}U eingefangen wird. Dies führt zu einer höheren Plutoniumproduktion beim DWR und WWER-440. Dadurch, dass TRITON einen konstanten Abbrand in den Bestrahlungsperioden voraussetzt, wird mit steigendem Abbrand der Neutronenfluss entsprechend angepasst, sodass dieser erhalten bleibt. Dadurch ist der Neutronenfluss eine direkte Funktion der Leistung und des Anteils an spaltbarem Material in Abhängigkeit der Wirkungsquerschnitte und der Verluste. Ein höherer Neutronenfluss bedeutet eine höhere Reaktionswahrscheinlichkeit, wodurch die Zerfallsreaktion unterdrückt wird. Insgesamt bedeutet dies, dass in einem Druckwasserreaktor mehr ^{241}Pu produziert wird, allerdings das Verhältnis von ^{241}Am zu ^{241}Pu geringer sein sollte. Dies wird ebenfalls durch die Simulationsdaten bestätigt. Die $^{241}\text{Am}/^{241}\text{Pu}$ Verhältnisse wurden hier gegen den Abbrand aufgetragen. Da für den jeweiligen Reaktor die Bestrahlungszeiten gleich groß sind, bedeutet ein höherer Abbrand einen höheren Neutronenfluss. Der Kola-3-Reaktor wurde in den Simulationsdaten hier nicht berücksichtigt, da die Abweichungen der simulierten von den Messdaten als zu groß eingeschätzt wurde. Allerdings wurde die gleiche Grafik ebenfalls mit diesem Reaktor im Anhang erstellt (vgl. Abb. 72).

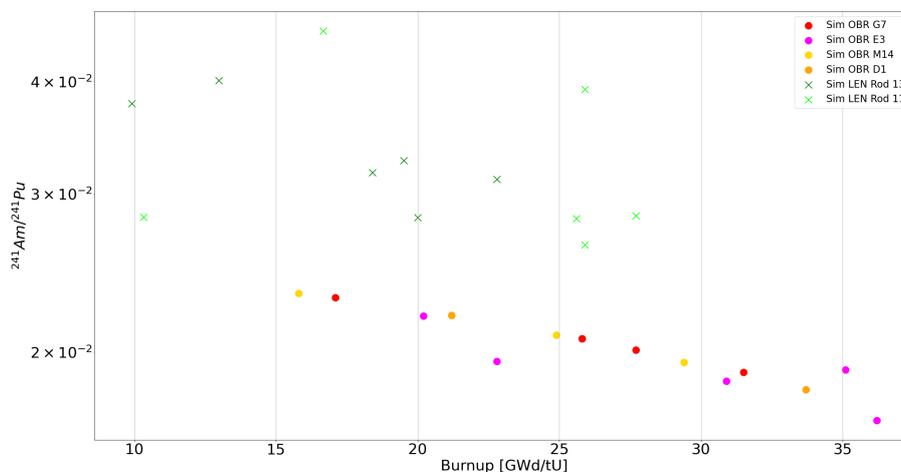


Abbildung 46: $^{241}\text{Am}/^{241}\text{Pu}$ in den Simulationsdaten vom Obrigheim-1- und Leningrad-1-Reaktor.

Hier ist eine klare Abnahme bei höheren Abbränden, also höheren Neutronenflüssen, sowie ein geringeres Verhältnis im Druckwasserreaktor zu erkennen. Die Messdaten hingegen können dies nicht bestätigen. Für den RBMK-Reaktor und den WWER-440 sind die Verhältnisse relativ konstant bei steigendem Abbrand, bei dem DWR hingegen wächst das Verhältnis sogar mit steigendem Neutronenfluss.

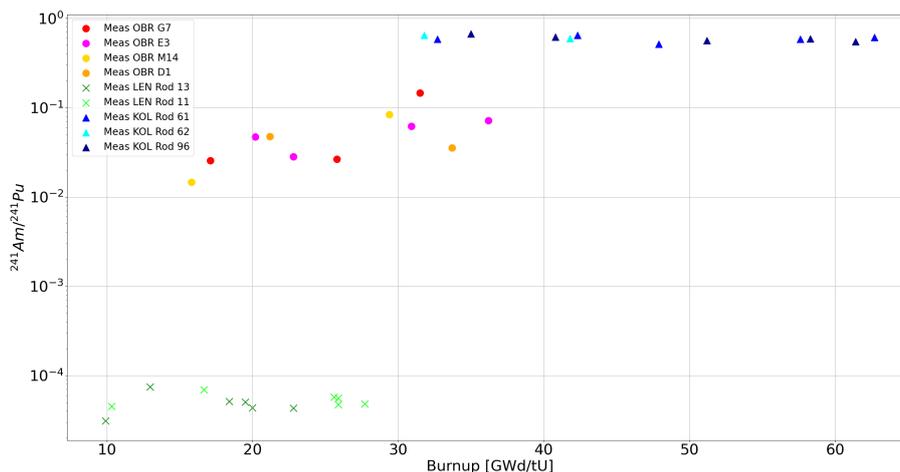


Abbildung 47: $^{241}\text{Am}/^{241}\text{Pu}$ in den Messdaten vom Obrigheim-1-, Kola-3- und Leningrad-1-Reaktor.

Dies bedeutet, dass mit steigendem Abbrand weniger ^{241}Pu -Nuklide ein Neutron einfangen. Dies wird allerdings nicht durch die Abweichungen der Isotopenverhältnisse wiedergegeben. Wenn in den Messdaten weniger Neutronen eingefangen werden würden, müssten in den Simulationsdaten die ^{242}Pu -Konzentrationen überschätzt werden. Das ist allerdings in dem Messdatenvergleich nicht zu erkennen. Dies deutet auf eine Überschätzung der Americiumwerte in den Messdaten hin, was die Abweichungen in dem Datenvergleich erklärt. Für die Messwerte wurden ebenfalls relativ hohe Messgenauigkeiten von 72 % gemeldet [30, 10]. Für Americium wurde in [22] kein Vergleich mit den Messdaten vorgenommen, daher ist hier ein Vergleich mit dem ORNL-Modell nicht möglich.

Für den RBMK hingegen ist es umgekehrt. Die Messdaten suggerieren, dass nur sehr wenige Zerfälle vom ^{241}Pu zum ^{241}Am vorliegen. Der Unterschied zwischen den Simulationsdaten und den Messdaten ist hier mit drei Größenordnungen besonders hoch. Allerdings wird in dem Datenvergleich ebenfalls eine Überschätzung der ^{242}Pu -Konzentration seitens der Simulation wiedergegeben. Dies widerspricht sich, da das ^{241}Pu entweder zerfallen oder reagieren muss. Da die Diskrepanz nicht durch die Spaltreaktion allein zu erklären ist, müssen hier die Americiumkonzentrationen, welche drei Größenordnungen niedriger sind als die Simulationsdaten, durch das Messlabor unterschätzt worden sein. Ebenfalls würde ein hoher Neutronenfluss, welcher zu einer geringeren ^{241}Am -Konzentration führt, ebenfalls in einer höheren ^{242}Pu - und ^{243}Am -Konzentration resultieren. Allerdings sind die Konzentrationen für beide Isotope in den Simulationsdaten ebenfalls für alle Messhöhen, ausgenommen P37 beim ^{242}Pu , größer als in den Messdaten. Es wird zwar auch ^{243}Am aus ^{241}Am über ^{242}Am bzw. ^{242m}Am generiert, allerdings sind hier die Übergangswahrscheinlichkeiten sehr gering (vgl. Abb. 32). Anhand der ^{235}U -Werte ist tendenziell eher davon auszugehen, dass in dem Modell ein zu hoher Neutronenfluss angenommen wird, wodurch die Überschätzungen an Plutonium zu erklären sind. Dies bedeutet allerdings ebenfalls, dass in dem Modell eine Unterschätzung von ^{241}Am vorliegen sollte, welche hier nicht vorliegt. In dem Datenvergleich der Modellierungen eines RBMK und eines ORNL wurden ebenfalls die Abweichungen mitgeteilt, allerdings nur gemittelt über alle Simulationen. Dort wurde die ^{243}Am -Konzentration im Modell durchschnittlich 67 % überschätzt, allerdings mit einer relativen Standardabweichung von 124,1 % [65]. Es liegt allerdings nicht vor, anhand welcher Daten dieser Vergleich

vorgenommen wurde. Daher ist kein direkter Vergleich mit den hier ermittelten Daten durchführbar. Dennoch wurden die Werte ebenfalls für dieses Modell berechnet. Dabei wurde die ^{243}Am -Konzentration durchschnittlich um 38,3 % überschätzt mit einer relativen Standardabweichung von 63,32 %; es konnten also vorraussichtlich Verbesserungen an dem Modell vorgenommen werden. Die einzelnen Werte wurden im Anhang beigefügt C. Ebenfalls werden dort noch weitere Abbildungen bzgl. der Isotopenverhältnisse von Americium aus den Messdaten von SFCompo ergänzt D.

7.4.1 $^{242\text{m}}\text{Am}$ AM IN DEN SIMULATIONEN

Aufgrund der hohen Abweichungen der Americiumwerte für die Simulation und die Messungen kann kein klares Bild für die Generierung von $^{242\text{m}}\text{Am}$ abgeleitet werden. Allerdings sollen die in 6 aufgestellten Überlegungen hier dennoch für die Simulationsdaten überprüft werden. So wurde vermutet, dass eine Abschirmung von ^{241}Am von der thermischen Neutronenstrahlung sowie eine erhöhte Resonanzabsorption zu einer erhöhten $^{242\text{m}}\text{Am}$ -Konzentration führt. Dieser Effekt ist in den Simulationsdaten für die untersuchten Brennstäbe ebenfalls zu finden. So ist der Neutronenabsorberanteil im WWER-440 am größten und die Resonanzdurchlasswahrscheinlichkeit am kleinsten, wodurch dieser das größte Verhältnis $^{242\text{m}}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ aufweist. Die Brennstäbe aus dem Benchmarking liegen allerdings nicht in der Nähe des Gd_2O_3 -Kontrollstabes, wodurch diese Erhöhung auf die Borsäure im Moderator zurückzuführen ist. Die ^{241}Am -Konzentration ist in dem Modell im Vergleich mit den Messdaten allerdings deutlich unterschätzt, wodurch die erhöhten Verhältnisse wieder relativiert werden können. In dem Druckwasserreaktor wurde ebenfalls Borsäure in dem Moderator angenommen, allerdings eine geringere Konzentration als im WWER-440, wodurch das Verhältnis geringer ist. Im Vergleich mit den anderen Reaktoren kann hier bereits kein großer Unterschied mehr zu den Simulationenwerten für den RBMK gefunden werden.

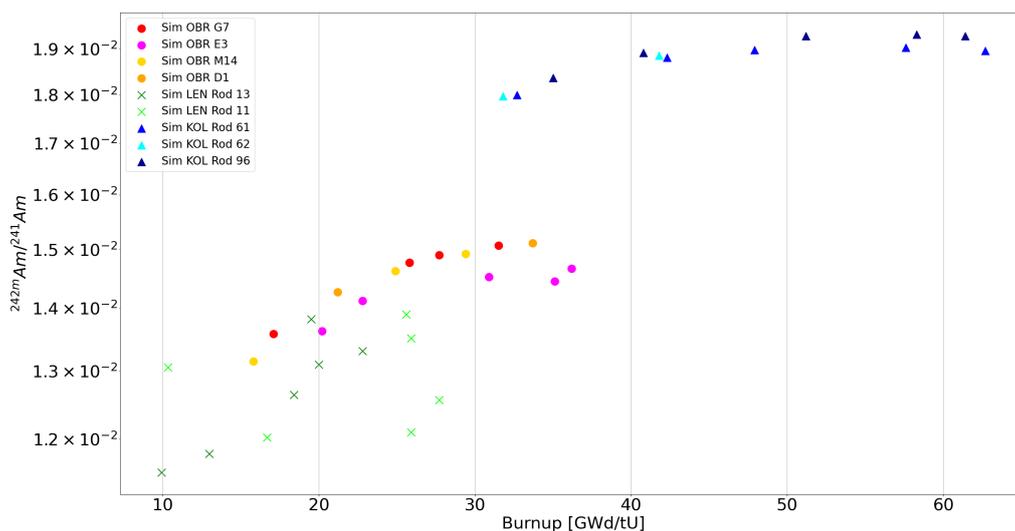


Abbildung 48: $^{242\text{m}}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ -Verhältnis in den Simulationsdaten vom Obrigheim-1-, Kola-3- und Leningrad-1-Reaktor.

7.4.2 ^{242m}Am AM IN DEN MESSDATEN VON SFCOMPO

Zum Vergleich wurden ebenfalls die in SFCompo hinterlegten Messdaten zu dem Isotop ^{242m}Am untersucht. Dabei wurden alle Messungen ausgewählt, für die ebenfalls die Konzentrationen von den Americiumisotopen ^{241}Am und ^{243}Am sowie die der Plutoniumisotope ^{239}Pu bis ^{242}Pu vorliegen. Dabei wurden sowohl abbrandspezifische als auch charakteristische Verhältnisse in dem Übergang von ^{241}Am zu ^{242m}Am in Abhängigkeit vom $^{241}\text{Am}/^{241}\text{Pu}$ -Verhältnis untersucht. In den Abbildungen hier wird zur besseren Sichtbarkeit eine Farbe pro Reaktortyp verwendet. In Anhang D.2 wurden diese Grafiken ebenfalls mit einer eigenen Farbe pro untersuchtem Reaktor sowie weitere Isotopenverhältnisse dargestellt.

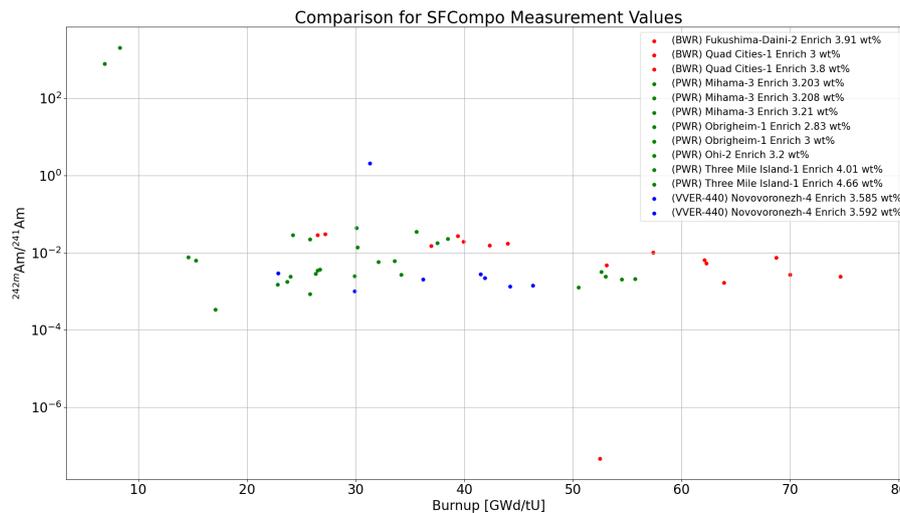


Abbildung 49: $^{242m}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ Verhältnis gegen den Abbrand in verschiedenen Reaktoren.

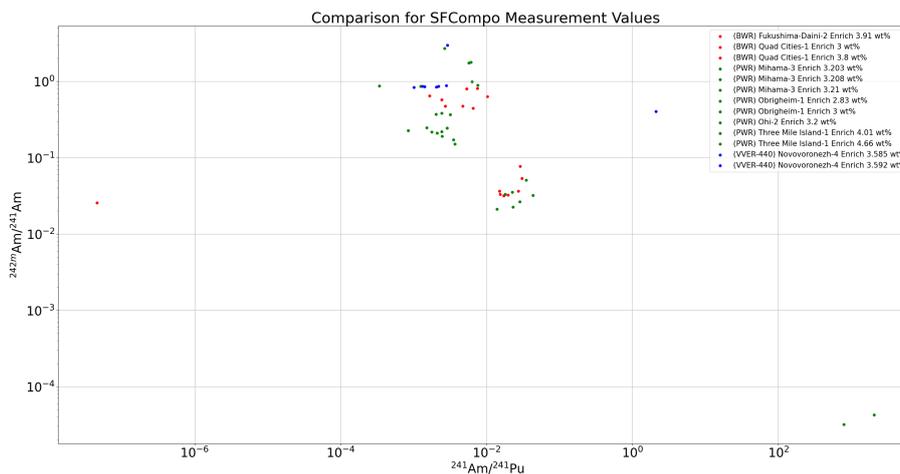


Abbildung 50: $^{242m}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ Verhältnis gegen das $^{241}\text{Am}/^{241}\text{Pu}$ Verhältnis in verschiedenen Reaktoren.

Hierbei können keine charakteristischen Verläufe festgestellt werden, die eine Unterscheidung der verschiedenen Reaktortypen ermöglichen. Allerdings spielt hier ebenfalls die große Unsicherheit in den Messmethoden von Americium eine Rolle, die eine hohe Variabilität in den Messwerten verursacht.

7.5 WEITERE UNTERSUCHUNGEN ZU DEM RBMK-1000

Simulationsdaten für den RBMK-1000 sind für die nukleare Forensik aufgrund des Unfalls in Tschernobyl von großer Bedeutung. Außerdem ist dieser Reaktortyp noch nicht so weitgehend erforscht wie die westlichen Reaktoren. Da die Simulationswerte für den RBMK-Reaktor in einem akzeptablen Bereich liegen, werden im folgenden weitere Untersuchungen zu diesem Reaktortyp durchgeführt.

7.5.1 EINFLUSS VON ANGRENZENDEN BRENNELEMENTEN ODER KONTROLLSTÄBEN

Zuerst soll der Einfluss von angrenzenden Kanälen auf das Brennelement untersucht werden. Im zuvor verwendeten Modell wird davon ausgegangen, dass es von Brennelementen mit ähnlichen operativen Daten umgeben ist. Dies war eine Homogenisierungsannahme, um ein einzelnes Brennelement betrachten zu können. Jedoch zeigt Abbildung 51, dass die Brennelemente von unterschiedlichen Instrumentkanälen umgeben sein können, welche, im Falle von Kontrollstäben, den Neutronenfluss nachhaltig beeinflussen können. In dem RBMK wird dabei Borcarbid (B_4C) als Absorber verwendet [68].

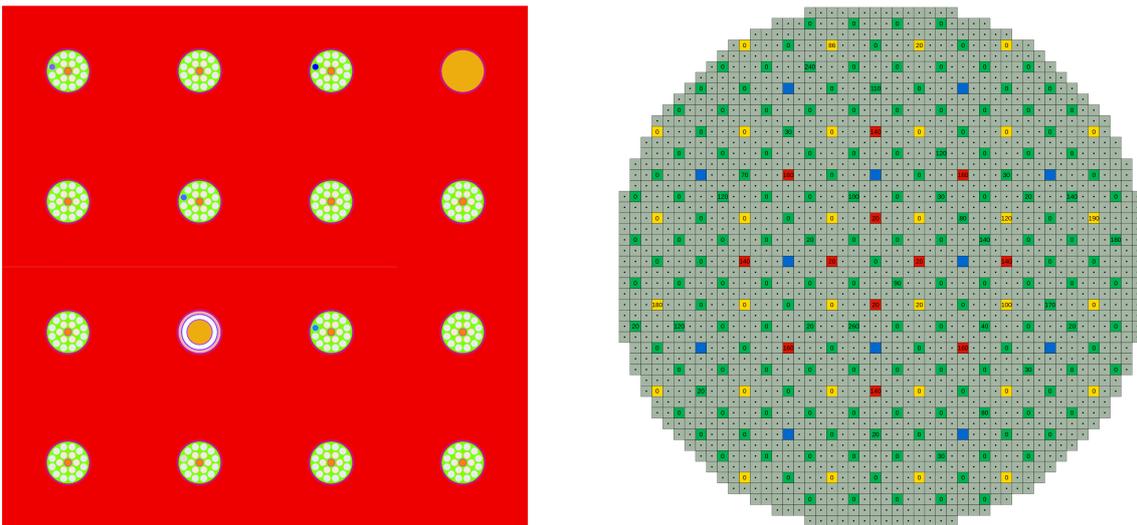


Abbildung 51: (links) Modellierung eines 4×4 -Ausschnitts eines RBMK-1000-Kerns, um den Einfluss von angrenzenden Brenn-/Kontrollstabkanälen zu untersuchen.

(rechts) Design eines RBMK-1000-Kerns. (Blau) Neutronenquellen, (Grün) Kontrollstäbe, (Gelb) kurze Kontrollstäbe aus dem Boden, (Rot) automatische Kontrollstäbe, (Grau) Brennstäbe.

Um den Einfluss zu untersuchen, wurde hier ein Modell aus 16 Kanälen in einer 4×4 -Anordnung erstellt. 14 davon sind Brennelemente und zwei sind für Kontrollstäbe vorgesehen. Ein Kontrollstab ist dabei eingefahren, der andere nicht, weswegen an dieser Stelle ein Wasserrohr vorliegt. Der Ausschnitt wurde so gewählt, dass vier unterschiedliche Brennelementumgebungen vorhanden sind:

1. Ein Brennelement, an welches andere Brennelemente grenzen (ID 114)
2. Ein Brennelement mit einem Kontrollstab in der direkten Umgebung (ID 117 und 112)
3. Ein Brennelement mit einem „Wasserloch“ in der direkten Umgebung (ID 116 und 113)
4. Ein Brennelement mit einem Kontrollstab und einem „Wasserloch“ diagonal angrenzend (ID 115)

Dabei wurde die gleiche Gittergröße wie für das zuvor entwickelte Modell verwendet. In die vier Brennelemente, die den unterschiedlichen Umgebungen entsprechen, wurde jeweils ein Brennstab mit einer eigenen Material-ID eingesetzt, um die Isotopenkonzentrationen auswerten zu können. Da dieses Modell 16-mal so groß ist wie das bisherige, wurden keine weiteren Brennstäbe ausgewertet, um die Simulationszeiten zu reduzieren. Hier müssen ebenfalls Neutronenflüsse über die Brennelementengrenzen hinaus berechnet werden, weshalb keine Symmetrieffekte ausgenutzt werden können. Für das globale Element wurden reflektive Randbedingungen gewählt. Ebenfalls wurden drei unterschiedliche Wasserdichten, $0,75\text{-}0,25\text{ g/cm}^3$ untersucht. Hierbei wurde davon ausgegangen, dass in allen Brennstäben die gleiche Siedehöhe und dementsprechend der gleiche Dichteverlauf vorherrscht. Dies wird in einem realen Reaktor nicht der Fall sein, da die Brennelemente in Druckbehältern vorliegen und die Siedehöhe von der eigenen Leistung bestimmt wird. Allerdings sollte dieser Effekt auf das Neutronenfeld klein genug sein (vgl. Abb. 44), sodass er für eine erste Abschätzung vernachlässigbar ist.

Es können dabei klar unterschiedliche Abbrände erkannt werden (vgl. Abb. 52). Den Erwartungen entsprechend ist der Abbrand bei Brennelement 114 am höchsten und bei den Brennelementen 117 und 112 am niedrigsten. Dies ist besonders in den Konzentrationen von ^{242}Pu und in den Konzentrationen von ^{243}Am zu sehen. Auffällig ist hier ebenfalls, dass mehr ^{243}Am generiert wurde als ^{241}Am . Dies lässt sich allerdings mit der eingestellten Leistung erklären. Als durchschnittlicher Wert über das gesamte Gitter wurde hier 14 MW/tU gewählt. Diese Leistung ist für eine Brennstabhöhe, bei der eine Wasserdichte von $0,75\text{ g/cm}^3$ zu erwarten ist, recht hoch. Allerdings ermöglicht dies eine bessere Sichtbarkeit der Unterschiede in den Abbränden der einzelnen Brennelemente und liegt dennoch unterhalb der maximalen Leistung, die in den vorherigen Modellierungen errechnet wurden. Die hier gewählte Strukturierung eignet sich für eine erste Visualisierung der unterschiedlichen Neutronenflüsse bei unterschiedlichen angrenzenden Kanälen.

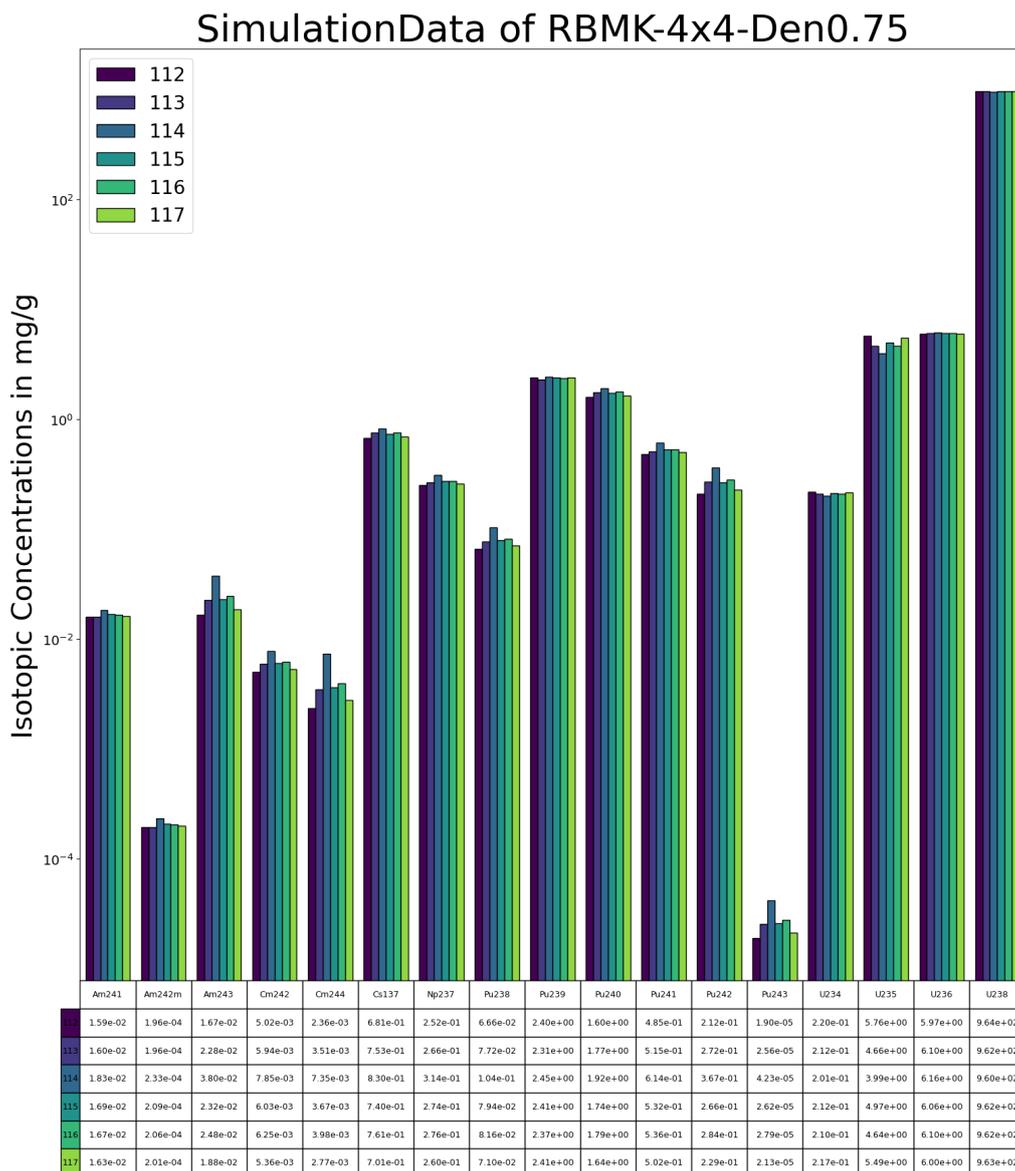


Abbildung 52: Isotopenkonzentration bei den Betrachtungen eines Gitters aus 4x4-RBMK-Brennelementen für eine Wasserdichte von $0,75 \text{ g/cm}^3$.

Für eine detailliertere Betrachtung ist es allerdings nicht geeignet. Hier wird die Leistung auf das gesamte Gebiet normiert, wodurch keine adäquate Berechnung der Leistungsverteilung im Bezug auf die einzelnen Brennelemente möglich ist. Für die Betrachtung von Interaktionen zwischen Brennelementen sind „nodal core simulator codes“ besser geeignet. Dabei können die TRITON-Berechnungen in diesen Codes weiterverwendet und durch sogenannte Zweigberechnungen erweitert werden. Die Brennelemente verhalten sich beim Betrieb eines Reaktors nicht homogen. So kann es, gerade in einem RBMK-Reaktor, aufgrund des positiven Dampfblasenkoeffizienten, zu plötzlichen Leistungsspitzen wegen abruptem Verdampfen des Kühlmittels kommen. Diese Störungen können in Zweigberechnungen berücksichtigt und an die entsprechenden Kernsimulationscodes übergeben werden. Diese Codes wiederum können dann den Neutronenfluss über die Brennelementsgrenzen hinaus durch „assembly discontinuity“ anpassen und so realistischere Brennelementinteraktionen darstellen [69]. Allerdings ist hier bemerkenswert, dass, wenn man die Isotopenverhältnisse für die verschiedenen Wasserdichten gegeneinander aufträgt, sich ein deut-

licher Effekt auf die schwereren Plutoniumisotope und die Folgeprodukte, besonders ^{243}Am und ^{244}Cm , erkennen lässt. Dabei unterscheiden sich die Konzentrationen um bis zu 38,2%.

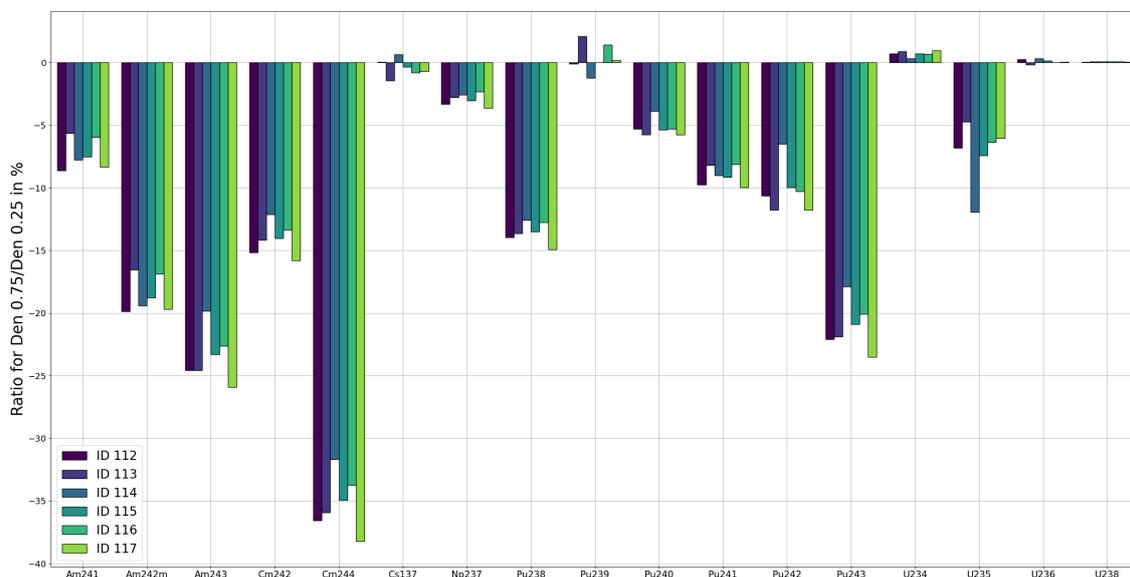


Abbildung 53: Verhältnis der Isotopenkonzentrationen für das 4×4 -Brennelementgitter für die Wasserdichten $0,75 \text{ g/cm}^3$ und $0,25 \text{ g/cm}^3$.

Die Werte deuten darauf hin, dass eine niedrigere Wasserdichte dazu beiträgt, dass die schwereren Plutoniumisotope aus dem ^{239}Pu produziert werden. In Abbildung 44 konnte bereits aufgezeigt werden, dass eine niedrigere Wasserdichte zu einem höheren thermischen Fluss führt. Dies lässt auf weniger Verluste durch das Wasser schließen, wodurch wiederum mehr Neutronen durch das Plutonium absorbiert werden können und so die schwereren Isotope erzeugen können. Da die Konzentrationen aufeinander aufbauen entstehen so ebenfalls bei zunehmender Transmutationsverkettung wachsende Abweichungen. Zur besseren Untersuchung der Effekte von einzelnen Parametern ist es allerdings sinnvoller, ein einzelnes Brennelement zu betrachten, um äußere Effekte ausschließen zu können. Zu diesem Zweck wurde eine Datenbank mit verschiedenen Parameterkombinationen für ein einzelnes Brennelement erstellt, die im Folgenden vorgestellt werden soll.

7.5.2 RBMK-1000 DATENBANK FÜR DIE FORENSIK

In den bisherigen Untersuchungen haben sich die drei Größen Leistung, Moderator-/Kühlmitteldichte und Anreicherung als die größten Faktoren in der Veränderung der Isotopenkonzentration herausgestellt. Da die Modellierung durch NEWT durchgeführt wurde, können hier nur zweidimensionale Querschnitte durch die Brennelemente untersucht werden. Dies liefert allerdings auch die Möglichkeit, die Parameter frei wählen zu können. Daher wurde im Folgenden eine Datenbank mit verschiedenen Operationsparameterkombinationen zu dem RBMK erstellt. Sie umfasst insgesamt 525 Simulationen in den Intervallen:

- Anreicherung: 1,7 % - 2,2 % in 0,1-Schritten
- Wasserdichte: 0,75 g/cm³ - 0,15 g/cm³ in 0,1-Schritten
- Leistung: 8 MW - 22 MW (nicht normiert)
- Abbrand: bis zu 30 GWd/tU

Die Isotopenkonzentrationen wurden dabei jeweils bei 1 GWd/tU ausgegeben. Dieses Zeitintervall ist dabei von der Leistung abhängig, wodurch niedrigere Leistungen einer längeren Bestrahlungsperiode entsprechen (8 MW → 125 Tage) als höhere Leistungen (22 MW → 45 Tage). Es wurde keine Normierung der Leistung auf einen Brennstab vorgenommen, was einen unbeeinflussten Abbrand in dem Brennelement erlaubt. Dabei wurden die Werte für einen äußeren Brennstab und einen inneren Brennstab gesammelt, um Abschirmungseffekte der inneren Brennstäbe durch äußere besser betrachten zu können. Ebenfalls wurden die gemittelten Werte für das gesamte Brennelement, den äußeren sowie den inneren Ring hinterlegt.

Um eine passende Analyse mithilfe dieser Datenbank durchführen zu können, muss man sich im Klaren sein, was die Aussagekraft dieser ist. Einige von diesen Kombinationen sind in realen Reaktoren nicht anzutreffen, da ein dauerhafter Betrieb mit einer Wasserdichte von 0,15 g/cm³ und einer konstanten Leistung von 8 MW bis zu einem Abbrand von 30 GWd/tU nicht möglich wäre. Die Datenbank dient vielmehr zur Erkennung von Trends in dem Abbrand- und Isotopenprofil unter bestimmten Bedingungen anstatt ein konkretes Abbrandprofil darzustellen. Nur in seltenen Fällen erreicht ein Probe aus einem RBMK-Brennstab einen Abbrand von 30 GWd/tU. Aufgrund der gewählten Intervallgröße lassen sich allerdings auch Simulationswerte zu früheren Zeitpunkten entnehmen, welche dann über das Zerfallsgesetz mit einer zusätzlichen Abklingzeit versehen werden können. Diese Werte ermöglichen eine Eingrenzung der möglichen passenden Operationsparameter. Im Anschluss dieser ersten Analyse lässt sich dann ein konkretes Modell anhand der abgeschätzten operativen Daten erstellen, welches die fallspezifischen Daten passender darstellt.

Hierbei ist allerdings zu beachten, dass die Aussagekraft dieser Datenbank nicht in der Darstellung von Bestrahlungsvorgängen von spezifischen Brennelementen liegt, sondern in der Bereitstellung von Daten zur Erkennung von Trends in dem Abbrandprofil. Da bei der initialen Untersuchung von Proben die möglichen Intervalle der Operationsparameter nicht bekannt sind, müssen diese in einer ersten Analyse eingeschränkt werden, um ein konkretes Modell für diese spezifische Probe erstellen zu können. Daher wurden ebenfalls Parameterpaare gewählt, die in einem realistischen Reaktor nicht vorfindbar sind. So ist ein dauerhafter Betrieb mit einer Wasserdichte von 0,15 g/cm³ und einer konstanten Leistung von 8 MW bis zu einem Abbrand von 30 GWd/tU nicht möglich. Ebenfalls ist ein Abbrand von 30 GWd/tU nur selten bei Proben aus einem RBMK-Brennstab vorzufinden. Allerdings wurden die Intervallgrößen so gewählt, dass, aufgrund der konstanten Leistung, bereits Werte zu früheren Zeitpunkten entnommen werden können. Eine zusätzliche Abklingzeit kann dann durch eine Korrektur mit dem Zerfallsgesetz ebenfalls berücksichtigt werden. Diese Werte ermöglichen dann eine Eingrenzung der möglichen Operationsparameter, die für diese Probe vorgeherrscht haben können. Im Anschluss an diese erste Analyse kann dann ein konkretes Modell anhand der hier vorgestellten Methoden und Vorlagen erstellt werden, in welchem die fallspezifischen Parameter konkret überprüft werden können.

Forensische Untersuchungen Ebenfalls ermöglicht diese Datenbank eine Abschätzung der erreichbaren Verhältnisse in einem RBMK. Das Isotop ^{236}U wird dabei in einem Reaktor aus der (n, γ) -Reaktion produziert. Das Isotopenverhältnis ist daher sensitiv für die initialen Anreicherungen von ^{235}U . Durch die Messung des Isotopenverhältnisses $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ lässt sich daher die initiale Anreicherung des Brennstoffes abschätzen.

Bei allen folgenden Graphen wurden alle Kombinationen der Betriebsparameter dargestellt, jedoch wurde jeweils einer davon farblich markiert, um die Unterschiede bzgl. dieser Einflussgröße besser visualisieren zu können. Zudem wurde der Isotopenverlauf auf drei Jahre Betriebszeit begrenzt. Dies führt bei den unterschiedlichen Leistungen zu einem unterschiedlichen erreichten Abbrand. Dieses Zeitintervall wurde gewählt, da es eher einem RBMK-Betrieb entspricht, zeigt aber ebenfalls die Modularität der Datenbank.

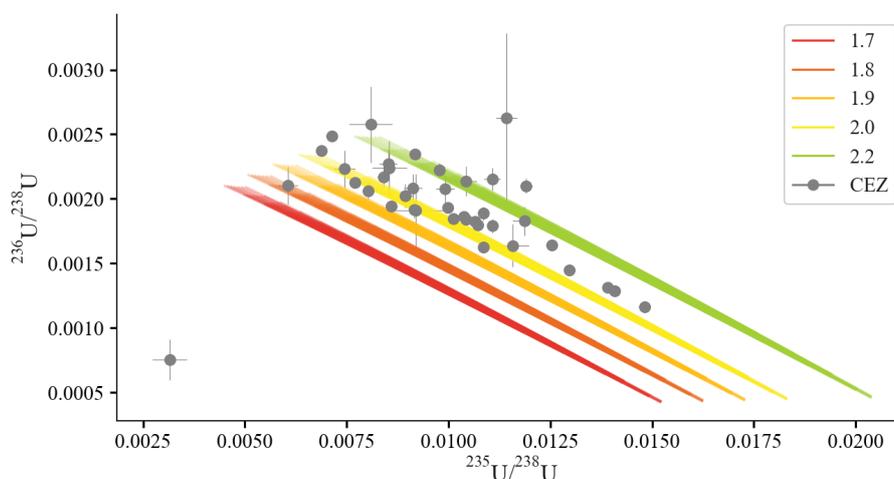


Abbildung 54: Isotopenverhältnisse von $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ gegen $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ für verschiedene initiale Anreicherungen. Die Proben wurden dabei der Sperrzone von Tschernobyl (engl.: Chernobyl Exclusion Zone (CEZ)) entnommen [2].

Hier lässt sich eine klare Korrelation der Isotopenverhältnisse mit der initialen Anreicherung erkennen. Die anderen beiden Parameter, Wasserdichte und Leistung, haben hingegen nur einen kleinen Effekt bei der Verbreiterung der Anreicherungsgraphen. Bei der Betrachtung der Isotopenverhältnisse von $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ lassen sich ebenfalls starke Abhängigkeiten von der initialen Anreicherung erkennen. Dabei ist hier ebenfalls ein starker Unterschied in dem äußeren und inneren Brennstab zu sehen.

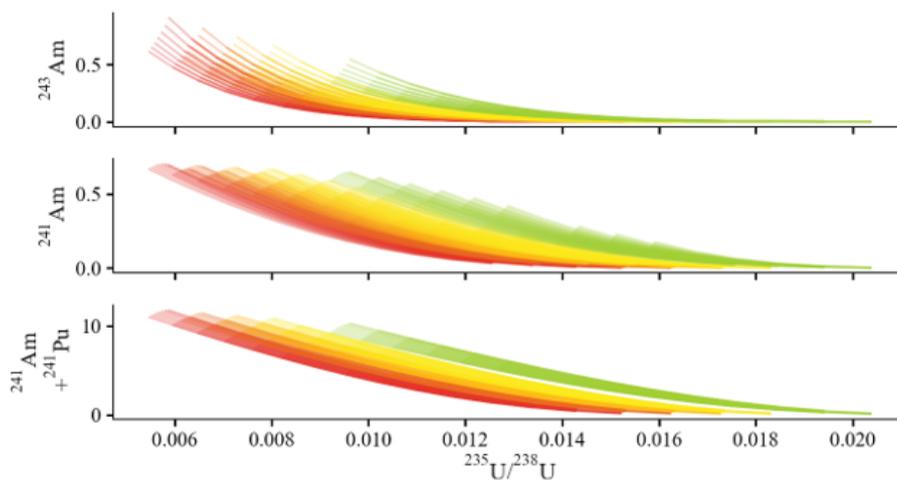


Abbildung 55: Isotopenkonzentration in $100 \mu\text{g/gU}$ für die Isotope ^{243}Am , ^{241}Am und $^{241}\text{Am} + ^{241}\text{Pu}$ in Abhängigkeit von der initialen Anreicherung eines inneren Brennstabs in einem RBMK Brennelement.

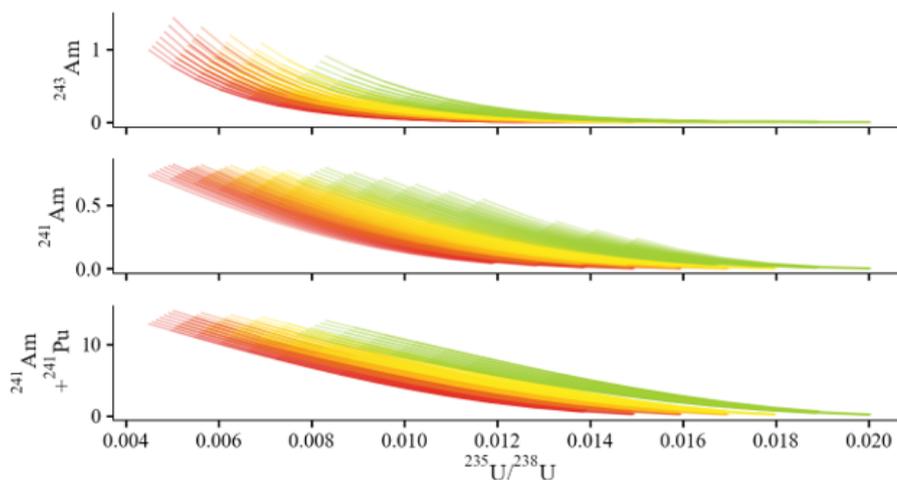


Abbildung 56: Isotopenkonzentration in $100 \mu\text{g/gU}$ für die Isotope ^{243}Am , ^{241}Am und $^{241}\text{Am} + ^{241}\text{Pu}$ in Abhängigkeit von der initialen Anreicherung für einen äußeren Brennstab in einem RBMK Brennelement.

In den Abbildungen 55 und 56 wird deutlich, dass die Produktion von ^{243}Am im inneren Brennstab nur halb so groß ist wie im äußeren. Es lassen sich auch leichte Unterschiede bei der Produktion von ^{241}Am erkennen, diese fallen allerdings geringer aus. Dies bestärkt die Annahme, dass die inneren Brennstäbe im „Schatten“ der äußeren liegen. Dies hat ebenfalls Anwendungen für die nukleare Forensik. Bei der Untersuchung von Umweltproben sind besonders die Actinoide und Spaltprodukte von besonderem Interesse [2]. Das Verhältnis von $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ könnte dabei einen Rückschluss auf die Verflüchtigung von Americium aus dem Partikel ermöglichen, da ^{243}Am , aufgrund der kurzen Halbwertszeit von ^{243}Pu ($T_{1/2} = 5,36 \text{ h}$), fast ausschließlich während und kurz nach der Bestrahlung erzeugt wird, wohingegen der Zerfall des ^{241}Pu über mehrere Jahre hinweg weiteres ^{241}Am produziert. Werden daher die Verhältnisse für den inneren und äußeren Brennstab gegeneinander aufgetragen, lässt sich in Abbildung 57 erkennen, dass der innere Brennstab nicht die Verhältnisse der oberen Messpunkte erreicht, der äußere hingegen schon [2].

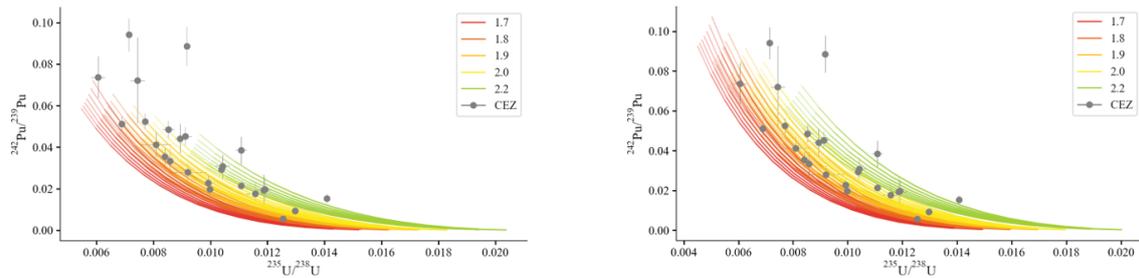


Abbildung 57: Isotopenverhältnisse von $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ gegen $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$. (links) Farbige Markierung der verschiedenen Anreicherungen für einen inneren Brennstab, (rechts) farbige Markierung der verschiedenen Anreicherungen für einen äußeren Brennstab. Messpunkte aus der CEZ [2].

Aufgrund des Produktionsprozesses ist es bei der experimentellen Bestimmung zu meist sinnvoll, die Americiumverhältnisse gegen das Verhältnis $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ aufzutragen. Nach der Eingrenzung auf den äußeren Brennstab lassen sich nun auch die Effekte der anderen Parameter untersuchen. Dabei wird in Abbildung 58 deutlich, dass nur die Anreicherung und die Wasserdichte einen kleinen Effekt auf die Isotopenverhältnisse haben. Die Leistungswerte hingegen geben nur den maximal erreichbaren Wert vor, überschneiden sich allerdings sehr stark, wodurch keine Unterschiede zu erkennen sind.

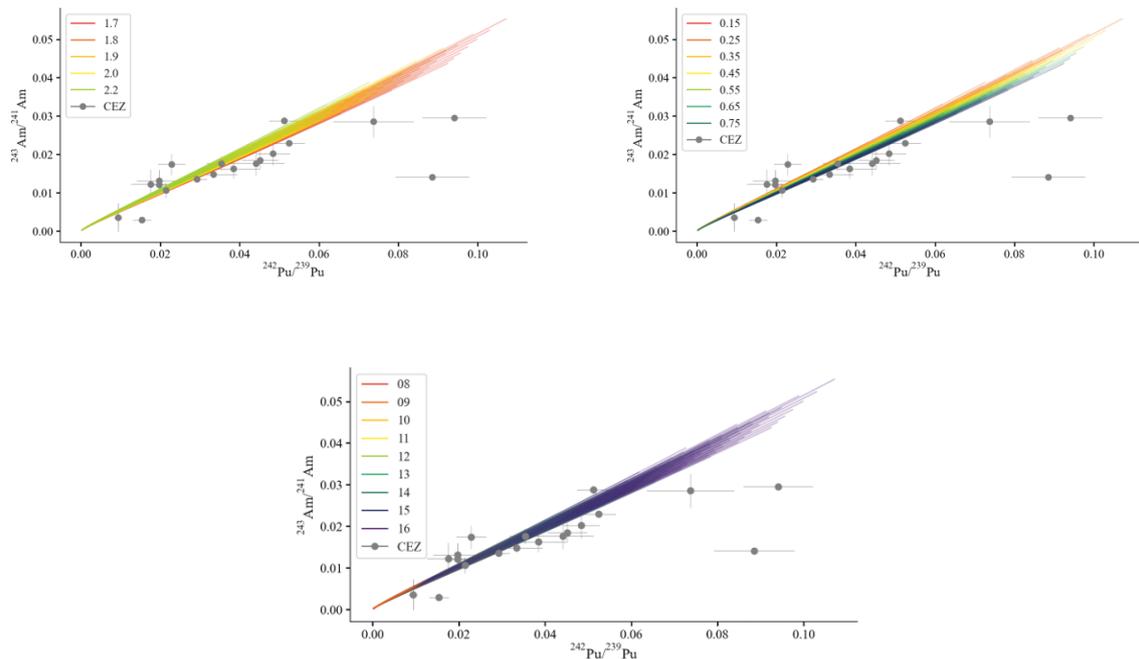


Abbildung 58: Isotopenverhältnisse von $^{241}\text{Am}/^{243}\text{Am}$ gegen $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$. (links) Farbige Markierung der verschiedenen Anreicherungen, (unten) farbige Markierung der verschiedenen Leistungen, (rechts) farbige Markierung der verschiedenen Wasserdichten. Messpunkte aus der CEZ [2].

Diese Unterschiede lassen sich ebenfalls bei der Betrachtung von Spaltprodukten erkennen, wobei hier die Unterschiede jedoch sehr klein werden. Bei der Betrachtung der Isotopenverhältnisse von $^{137}\text{Ba}/^{138}\text{Ba}$ lassen sich ebenfalls die Effekte von verschiedenen Leistungen erkennen (vgl. Abbildung 59).

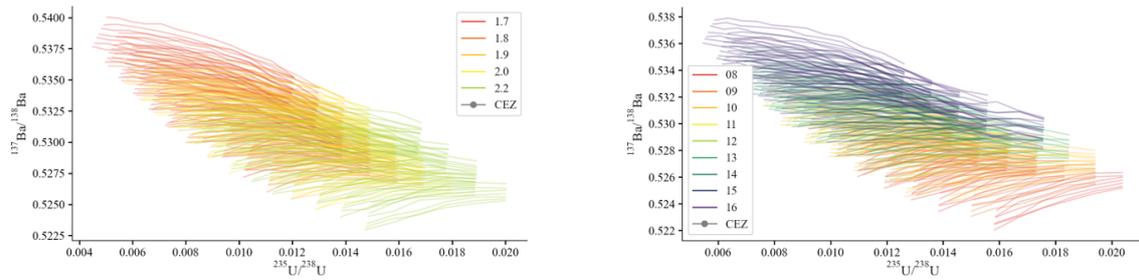


Abbildung 59: Isotopenverhältnisse von $^{137}\text{Ba}/^{138}\text{Ba}$ gegen $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$. (links) Farbige Markierung der verschiedenen Anreicherungen, (rechts) farbige Markierung verschiedener Leistungen.

Die Effekte der verschiedenen Betriebsparameter auf das Isotopenverhältnis sind allerdings recht klein und es bedarf einer weiteren Analyse, ob diese in einer experimentellen Untersuchung nachweisbar sind. Dennoch konnte hier gezeigt werden, dass die modellierten Isotopenverhältnisse mit dem vorhergesagten Intervall von van Eerten et al. übereinstimmen [2].

8. FAZIT

In dieser Arbeit ist es gelungen, die Modellierung von dem Druckwasserreaktor Obrigheim-1 und des RBMK Leningrad-1 erfolgreich durchzuführen und im Vergleich mit den Messdaten passende Genauigkeit zu erzielen. Ebenfalls wurden die Grundlagen für die Modellierung von drei verschiedene Brennelementdesigns für den WWER-440 Kola-3 vorgestellt. Im Vergleich mit den Messdaten konnten die entsprechenden Messwerte zwar nicht mit einer passenden Genauigkeit wiedergegeben werden, allerdings wurden passende, mögliche Verbesserungen vorgestellt und diskutiert. Die Entwicklung des Modells für den Siedewasserreaktor wurde aufgrund der Heterogenitäten des Reaktors sowie der höheren Priorisierung des RBMK nicht vollständig durchgeführt. In den in der Literatur vorgestellten Modellen wurden zudem meist keine Vergleiche mit den gemessenen Werten für die Americiumisotope vorgenommen. Hier wurden die theoretischen Vorhersagen für die Verläufe der Isotopenverhältnisse ausführlich behandelt und konnten anhand der Simulationsdaten bestätigt werden. Dabei wurden die simulierten Werte ebenfalls in den Kontext der gemessenen Werte gesetzt und die Abweichungen diskutiert. Im Hinblick auf das Isotop ^{242m}Am konnten aufgrund der hohen Messungenauigkeit des Mutternuklids ^{241}Am keine aussagekräftigen Erkenntnisse in Kombination mit den Messdaten bestätigt werden. Dennoch konnten auch hier in den Simulationsdaten die in den theoretischen Überlegungen vorgestellten Voraussagen angedeutet werden. Es bedarf dennoch weiterer Untersuchungen, um auszuschließen, dass diese nur in Modellen vorliegen.

Aus den hier vorgestellten Modellen lassen sich über das Benchmarking hinaus ebenfalls Annahmen für weitere Reaktoren ableiten, die eines der Reaktordesigns verwenden. Dabei müssen zumeist lediglich die operativen und geometrischen Parameter angepasst werden. Für die Abschätzung dieser wurden innerhalb dieser Arbeit ebenfalls passende Methoden vorgestellt, die anhand des Benchmarkings der Modelle erprobt wurden. Des Weiteren wurde für den RBMK eine Datenbank angelegt, welche die Konzentrationsverläufe von Isotopen unter verschiedenen operativen Parametern aufzeigt. Dabei konnten ebenfalls Erkenntnisse gewonnen werden, welche die Annahmen aus radioökologischen Überlegungen bestärken [2]. Dennoch gibt es noch einige weitere Untersuchungen und Verbesserungen, die aufbauend auf dieser Arbeit durchgeführt werden können, welche hier in einem kurzen Ausblick diskutiert werden sollen.

8.1 AUSBLICK

Aufgrund der radioökologischen Relevanz von Isotopenentwicklungen im Reaktor sind besonders die Verbesserung des SWR- und WWER-Modells sinnvoll, da diese Reaktortypen zu den häufigen Reaktoren zählen. Dies ermöglicht ebenfalls die Erweiterung der Datenbank und so einen Vergleich der Trendlinien von den Reaktoren untereinander.

Des Weiteren wurden in dieser Arbeit hauptsächlich einzelne Brennelemente betrachtet, bei denen die Auswirkungen der umgebenden Brennelemente weitgehend vernachlässigt wurden. In Reaktoren, in denen die Bestrahlung in Zyklen unterteilt ist, ist dies eine passende Näherung, da die Positionen im Reaktorkern ebenfalls geändert werden, um radiale Effekte zu minimieren. In einem RBMK hingegen wird

das Brennelement dauerhaft in einer Position bestrahlt, allerdings können umgebende Brennelemente ausgetauscht werden und so den Neutronenfluss aus dieser Richtung beeinflussen. Ebenfalls liegen die Neutronenabsorber zumeist außerhalb des Brennelementes vor. Hier wurden bereits erste Untersuchungen von diesem Effekt durch eine Erweiterung des Brennelementes auf ein 4x4-Gitter durchgeführt. Allerdings sind die Möglichkeiten innerhalb von TRITON für diese Art von Untersuchung begrenzt. Es muss von einem einheitlichen Betrieb der einzelnen Brennelemente mit konstanten Parametern ausgegangen werden, was in einem Reaktorkern selten der Fall ist. Innerhalb von TRITON ist es möglich, sogenannte Knotendaten (engl.: nodal data) für einzelne Brennelemente zu erzeugen und auch Störfaktoren, wie z. B. das plötzliche Verringern der Kühlmitteldichte aufgrund von Leistungsspitzen in Nebenzweigen, ebenfalls zu berechnen. Diese Informationen können dann in einen entsprechenden Code zur Modellierung von Reaktorkernen, wie NESTLE oder VERA, eingearbeitet werden, um realistischere Umgebungsbedingungen zu erzeugen. Dies ermöglicht eine passendere Betrachtung von dreidimensionalen Effekten in einem Reaktorkern. Ebenfalls kann die Implementierung von KENO weiter untersucht werden, um eine direkte dreidimensionale Betrachtung der Brennelemente zu ermöglichen. Außerdem vereinfacht die Monte-Carlo-Methode aufgrund des iterativen Konvergenzverfahrens, Fehler in den Annahmen schneller zu erkennen, da die Varianz der Generationen Rückschlüsse auf unpassende Parameter zulässt. Auch erlaubt KENO die Betrachtung von Neutronenspektren in kontinuierlichen Energien, wodurch Ungenauigkeiten in der Berechnung von Wirkungsquerschnitten verringert werden.

LITERATUR

- [1] Hauke Bosco u. a. „New horizons in microparticle forensics: Actinide imaging and detection of ^{238}Pu and ^{242}mAm in hot particles“. In: *Science Advances* 7.44 (2021), eabj1175.
- [2] Darcy van Eerten u. a. „Multi-element isotopic analysis of hot particles from Chernobyl“. In: *Journal of Hazardous Materials* 452 (2023), S. 131338. ISSN: 0304-3894. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2023.131338>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0304389423006210>.
- [3] Albert Ziegler und Hans-Josef Allelein. *Reaktortechnik: Physikalisch-technische Grundlagen*. Jan. 2013. ISBN: 978-3-642-33845-8. DOI: 10.1007/978-3-642-33846-5.
- [4] Anil K Prinja und Edward W Larsen. „General principles of neutron transport“. In: *Handbook of nuclear engineering*. 2010.
- [5] MikeRun. *Illustration of a typical nuclear fission reaction*. File: https://upload.wikimedia.org/wikipedia/commons/a/a8/Nuclear_fission_reaction.svg. 25 June 2017. URL: https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Nuclear_fission_reaction.svg.
- [6] JAEA. *JENDL Fission Yields*. <https://www.ndc.jaea.go.jp/cgi-bin/FPYfig?mode=m>. URL: <https://www.ndc.jaea.go.jp/cgi-bin/FPYfig?mode=m>.
- [7] M.B. Chadwick u. a. „ENDF/B-VII.1 Nuclear Data for Science and Technology: Cross Sections, Covariances, Fission Product Yields and Decay Data“. In: *Nuclear Data Sheets* 112.12 (2011). Special Issue on ENDF/B-VII.1 Library, S. 2887–2996. ISSN: 0090-3752. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nds.2011.11.002>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S009037521100113X>.
- [8] Artur Sperling. „Simulation des Strahlentransports und Strahlenfeldes in abgeschalteten kerntechnischen Anlagen“. Diss. Dissertation, Rheinisch-Westfälische Technische Hochschule Aachen, 2019, 2019.
- [9] William Wieselquist und Robert Alexander Lefebvre. „SCALE 6.3.1 User Manual“. In: (Feb. 2023). DOI: 10.2172/1959594. URL: <https://www.osti.gov/biblio/1959594>.
- [10] Ian C. Gauld u. a. „Integral nuclear data validation using experimental spent nuclear fuel compositions“. In: *Nuclear Engineering and Technology* 49.6 (2017). Special Issue on International Conference on Mathematics and Computational Methods Applied to Nuclear Science and Engineering 2017, S. 1226–1233. ISSN: 1738-5733. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.net.2017.07.002>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1738573317303054>.
- [11] F. Michel-Sendis u. a. „SFCOMPO-2.0: An OECD NEA database of spent nuclear fuel isotopic assays, reactor design specifications, and operating data“. In: *Annals of Nuclear Energy* 110 (2017), S. 779–788. ISSN: 0306-4549. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2017.07.022>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0306454917302104>.

- [12] J C Wagner und M D DeHart. „Review of Axial Burnup Distribution Considerations for Burnup Credit Calculations“. In: (März 2000). DOI: 10.2172/763169. URL: <https://www.osti.gov/biblio/763169>.
- [13] Harry W Davison. *Axial power tailoring to obtain constant fuel-centerline temperature in a nuclear reactor*. Techn. Ber. 1968.
- [14] Andreas Aste. „Die kontrollierte Kettenreaktion“. In: *arXiv preprint arXiv:1202.5461* (2012).
- [15] Svjo. *To swedish from Phase diagram of water.svg*. File:<https://upload.wikimedia.org/wikipedia> 20 July 2015. URL: https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Phase_diagram_of_water_sv.svg.
- [16] Ian H. Bell Eric W. Lemmon, Marcia L. Huber und Mark O. McLinden. *Thermophysical Properties of Fluid Systems*. accessed 15.07.23. URL: [https://doi.org/10.18434/T4D303,%20\(retrieved%20July%2015,%202023\)](https://doi.org/10.18434/T4D303,%20(retrieved%20July%2015,%202023)).
- [17] Chang Cai u. a. „Assessment of void fraction models and correlations for sub-cooled boiling in vertical upflow in a circular tube“. In: *International Journal of Heat and Mass Transfer* 171 (2021), S. 121060. ISSN: 0017-9310. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2021.121060>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0017931021001630>.
- [18] Ugur Merturek, Matthew W Francis und Ian C Gauld. „SCALE 5 Analysis of BWR Spent Nuclear Fuel Isotopic Compositions Safety Studies“. In: (Apr. 2011). DOI: 10.2172/1081684. URL: <https://www.osti.gov/biblio/1081684>.
- [19] J.-M. Le Corre. „Experimental investigation and modeling of void drift in modern BWR fuel designs“. In: *Nuclear Engineering and Design* 341 (2019), S. 259–268. ISSN: 0029-5493. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2018.11.011>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0029549318308070>.
- [20] Tentner Adrian u. a. „MODELING OF TWO-PHASE FLOW IN A BWR FUEL ASSEMBLY WITH A HIGH-FIDELITY CFD CODE“. In: Aug. 2015.
- [21] Tram Tran und Hyun-Sik Park. „Evaluation slip ratio correlations in two-phase flow“. In: *Nuclear Science and Technology* 51 (März 2020), S. 22–30. DOI: 10.53747/jnst.v10i1.28.
- [22] Georgeta Radulescu, Ian C Gauld und Germina Ilas. „SCALE 5.1 Predictions of PWR Spent Nuclear Fuel Isotopic Compositions“. In: (März 2010). DOI: 10.2172/983556. URL: <https://www.osti.gov/biblio/983556>.
- [23] Nuclear Power. Web. *Self-shielding*. accessed 05.07.23. URL: <https://www.nuclear-power.com/nuclear-power/reactor-physics/nuclear-engineering-fundamentals/neutron-nuclear-reactions/self-shielding/>.
- [24] Weston M Stacey. *Nuclear reactor physics*. John Wiley & Sons, 2018.
- [25] A Trkov, M Herman, DA Brown u. a. „ENDF-6 formats manual“. In: *Brookhaven National Laboratory* 80 (2012).
- [26] M Milosevic. „A procedure for effective Dancoff factor calculation“. In: (2001).
- [27] C Mesado u. a. „Comparison of depletion results for a boiling water reactor fuel element with CASMO and SCALE 6.1 (TRITON/NEWT)“. In: (2013).

- [28] B.J. Ade. *SCALE/TRITON primer: a primer for light water reactor lattice physics calculations*. United States Nuclear Regulatory Commission, Office of Nuclear Regulatory Research, 2012. URL: <https://books.google.de/books?id=bL6uoAEACAAJ>.
- [29] NEA. „Spent Nuclear Fuel Assay Data for Isotopic Validation - State-of-the-art Report, OECD Publishing, Paris“. In: (2011).
- [30] P Barbero u. a. „Post irradiation analysis of the Obrigheim PWR spent fuel“. In: *EUR 6589en, Commission of the European Communities, Joint Research Center, Ispra Establishment, Italy. Also published in European Appl. Res. Rept.–Nucl. Sci. Technol 2.1* (1980), S. 129–177.
- [31] C Devida u. a. *Quantitative burnup determination: A comparison of different experimental methods*. Techn. Ber. 2005.
- [32] Yoshinori Nakahara u. a. „Nuclide Composition Benchmark Data Set for Verifying Burnup Codes on Spent Light Water Reactor Fuels“. In: *Nuclear Technology* 137 (2002), S. 111–126.
- [33] TP Makarova, BA Bibichev und VD Domkin. „Destructive analysis of the nuclide composition of spent fuel of WWER-440, WWER-1000, and RBMK-1000 reactors“. In: *Radiochemistry* 50 (2008), S. 414–426.
- [34] Design Basis. *Design Features of WWER-440 Model 213 Nuclear Power Plants*. Techn. Ber. IAEA-TECDOC-742, May, 1994.
- [35] Jianwei Hu u. a. „Validation of ORIGEN for VVER-440 Spent Fuel with Application to Fork Detector Safeguards Measurements“. In: *ESARDA Bulletin* 60.1 (2020).
- [36] S Pavlov. *Investigation of the VVER-440 Fuel Burnup and Nuclide Composition for the Use in Burnup Credit-Related Tasks (BUC-II) Final Scientific Technical Report on Task 5, Dimitrovgrad*. 2011.
- [37] L J Jardine. „Radiochemical Assays of Irradiated VVER-440 Fuel for Use in Spent Fuel Burnup Credit Activities“. In: (Apr. 2005). DOI: 10.2172/15016256. URL: <https://www.osti.gov/biblio/15016256>.
- [38] Nuclear und Yerevan (Armenia) Radiation Safety Center. *Description of WWER-440 fuel assembly 3D depletion model developed with TRITON6 code (SCALE 60)*. Techn. Ber. NUCLEAR FUEL CYCLE AND FUEL MATERIALS. Armenia, 2014, S. 15. URL: http://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:47127293.
- [39] Georgeta Radulescu u. a. *An Approach for Validating Actinide and Fission Product Burnup Credit Criticality Safety Analyses—isotopic Composition Predictions*. United States Nuclear Regulatory Commission, Office of Nuclear Regulatory . . . , 2012.
- [40] Yoshinori Nakahara, Kenya Suyama und Takenori Suzaki. „Technical development on burn-up credit for spent LWR fuels“. In: (2000).
- [41] Wargha Peiman, Igor Pioro und Kamiel Gabriel. „Thermal Aspects of Conventional and Alternative Fuels in SuperCritical Water-Cooled Reactor (SCWR) Applications“. In: Feb. 2012. ISBN: 978-953-51-0018-8. DOI: 10.5772/39005.

- [42] *Thermophysical Properties of Materials for Nuclear Engineering: A Tutorial and Collection of Data*. Non-serial Publications. Vienna: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, 2009. ISBN: 978-92-0-106508-7. URL: <https://www.iaea.org/publications/7965/thermophysical-properties-of-materials-for-nuclear-engineering-a-tutorial-and-collection-of-data>.
- [43] David Andrs u. a. „RELAP-7 Level 2 Milestone Report: Demonstration of a Steady State Single Phase PWR Simulation with RELAP-7“. In: (Mai 2012). DOI: 10.2172/1047196.
- [44] L. Fiorito u. a. „Inventory calculation and nuclear data uncertainty propagation on light water reactor fuel using ALEPH-2 and SCALE 6.2“. In: *Annals of Nuclear Energy* 83 (2015), S. 137–146. ISSN: 0306-4549. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2015.03.046>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0306454915002054>.
- [45] D Cruz, D. Rochman und Arjan Koning. *Propagation of nuclear data uncertainty for a control rod ejection accident using the total monte-carlo method*. Jan. 2014.
- [46] John C Wagner. „Impact of soluble boron modeling for PWR burnup credit criticality safety analyses“. In: *TRANSACTIONS-AMERICAN NUCLEAR SOCIETY* (2003), S. 120–122.
- [47] B. Murphy. „ORIGEN-ARP Cross-Section Libraries for the RBMK-1000 System“. In: (Jan. 2006).
- [48] Russian Atomic Energy Commission u. a. *Joint US/Russian study on the development of a decommissioning strategy plan for RBMK-1000 unit No. 1 at the Leningrad Nuclear Power Plant*. Techn. Ber. Pacific Northwest Lab., 1997.
- [49] AV Sukhikh, SS Sagalov und SV Pavlov. „Axial and Azimuthal Asymmetry of RBMK-1000 Fuel-Element Cladding Oxidation“. In: *Atomic Energy* 124.1 (2018), S. 36–42.
- [50] VN Babaytsev u. a. „Three-dimensional effects in RBMK fuel temperature calculations“. In: *Atomic Energy* 112.5 (2012), S. 348–353.
- [51] Ivar Devold. *A Study of the Temperature Distribution in UO₂ Reactor Fuel Elements*. Techn. Ber. AB Atomenergi, 1968.
- [52] Aurimas Tonkunas, Raimondas Pabarcius und Andrius Slavickas. „Evaluation of coolant density history effect in RBMK type fuel modelling“. In: *Nuclear Engineering and Technology* 52.11 (2020), S. 2415–2421. ISSN: 1738-5733. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.net.2020.04.015>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1738573319309775>.
- [53] Donald McEligot u. a. *Thermal properties of G-348 graphite*. Techn. Ber. Idaho National Lab.(INL), Idaho Falls, ID (United States), 2016.
- [54] V.B. Khabensky u. a. „Comparative analysis of RBMK core channel void fraction determined by RELAP5, KOBRA, and a new drift flux correlation“. In: *Nuclear Engineering and Design* 168.1 (1997), S. 119–127. ISSN: 0029-5493. DOI: [https://doi.org/10.1016/S0029-5493\(96\)01375-1](https://doi.org/10.1016/S0029-5493(96)01375-1). URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0029549396013751>.

- [55] R. Pořkas u. a. „Thermal analysis of CASTOR RBMK-1500 casks during long-term storage of spent nuclear fuel“. In: *Annals of Nuclear Energy* 99 (2017), S. 40–46. ISSN: 0306-4549. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2016.09.031>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0306454916308179>.
- [56] AA Gagarinskiy und VV Saprykin. „Russia contemporary and prospective fuel cycles for VVER-440 based on new assemblies with higher uranium capacity and higher average fuel enrichment“. In: *cit* (2013), S. 04–11.
- [57] Serhatkose’ Omer Gunduz und Uner Qolak Tahir Akbas. „Analysis of VVER-440 Fuel Performance Under Normal Operating Conditions“. In: *VVER Reactor* (1995), S. 137.
- [58] T Sathiyasheela und P Mohanakrishnan. „Annular fuel pin heat transfer and lumped model correction“. In: *Progress in Nuclear Energy* 52.5 (2010), S. 487–490.
- [59] Maxim Elkin, A. Kiselev und Mikhail Slobodyan. „Pulsed laser welding of Zr1%Nb alloy“. In: *Nuclear Engineering and Technology* 51 (Dez. 2018). DOI: 10.1016/j.net.2018.12.016.
- [60] Dandong Feng, Pavel Hejzlar und Mujid S Kazimi. „Thermal-hydraulic design of high-power-density annular fuel in PWRs“. In: *Nuclear Technology* 160.1 (2007), S. 16–44.
- [61] V Ghazanfari u. a. „Thermal–hydraulic modeling of water/Al₂O₃ nanofluid as the coolant in annular fuels for a typical VVER-1000 core“. In: *Progress in Nuclear Energy* 87 (2016), S. 67–73.
- [62] MQ Buckner u. a. „Comprehensive Am 242 m neutron-induced reaction cross sections and resonance parameters“. In: *Physical Review C* 95.6 (2017), S. 061602.
- [63] P Benetti u. a. „Americium 242m and its potential use in space applications“. In: *Journal of Physics: Conference Series*. Bd. 41. 1. IOP Publishing. 2006, S. 161.
- [64] Akihiro Sasahara u. a. „Neutron and gamma ray source evaluation of LWR high burn-up UO₂ and MOX spent fuels“. In: *Journal of nuclear science and technology* 41.4 (2004), S. 448–456.
- [65] Germina Ilas, Brian Murphy und Ian Gault. *Overview of ORIGEN-ARP and its Applications to VVER RBMK*. Techn. Ber. Oak Ridge National Lab.(ORNL), Oak Ridge, TN (United States), 2007.
- [66] Winfried Koelzer. *Lexikon zur Kernenergie. Ausgabe Januar 2019*. KIT Scientific Publishing, 2019.
- [67] Andrius Slavickas u. a. „Neutron Transport Simulations of RBMK Fuel Assembly Using Multigroup and Continuous Energy Data Libraries within the SCALE Code“. In: *Science and Technology of Nuclear Installations 2021* (2021), S. 1–11.
- [68] Bertrand Mercier u. a. „A simplified analysis of the Chernobyl accident“. In: *EPJ Nuclear Sciences Technologies* 7 (Jan. 2021), S. 1. DOI: 10.1051/epjn/2020021.
- [69] Paul Turinsky u. a. „Generation of Nodal Core Simulator Utilizing VERA“. In: *EPJ Web of Conferences*. Bd. 247. EDP Sciences. 2021, S. 02018.

- [70] S Bozzola. *Fundamentals of boiling water reactor (BWR)*. Techn. Ber. 1982.

ABBILDUNGSVERZEICHNIS

1	Diagramm der Kernspaltung von ^{235}U [5].	2
2	Spaltproduktausbeute von ^{235}U , ^{239}Pu und ^{238}U bei verschiedenen Absorptionsneutronenergien [6].	3
3	Modellhaftes Abbrandprofil in einem Druckwasserreaktor.	8
4	Phasendiagramm von Wasser [15].	12
5	Energieselbstabschirmung: (links) Selbstabschirmung von ^{238}U bei verschiedenen Temperaturen, (rechts) Auswirkung der Brennstoffdichte auf den Neutroneneinfang [23]	14
6	Leistungs-/Neutronenfluss-Approximation mit konstanten Koeffizienten in diskreten Zeitintervallen [9].	18
7	Die verschiedenen Kernreaktionen und ihre Kategorisierung [9]. Die Kernreaktionsbezeichnungen entstammen dem ENDF-Format [25]. (n,xxx) sind hierbei alle Reaktionen verursacht durch ein Neutron und (z,xxx) bezeichnet alle Reaktionen verursacht durch Neutronen, geladene Teilchen und Photonen. Mit dem Index i bei einer (n,n_i) -Reaktion wird der Anregungszustand des Stoßpartners nach der Reaktion angegeben.	21
8	Ein- und ausfallende Flüsse für eine Gitterzelle in diskreten Ordinaten [4]	26
9	Eintretende, austretende und parallele Flüsse bei einem Polygon in NEWT [9]	28
10	TRITONs predictor-corrector approach, T_i : Transportrechnungen, D_i : Abbrandrechnung, Quelle: Scale 6.2 Manual	30
11	Quadratische und hexagonale Gitterzellen [9].	32
12	Messpunkte OBR-Brennelement BE124: (links) Brennstabposition im Brennelement, (rechts) Messhöhe. [29]	36
13	Position des Brennelements BE124 im Reaktorkern über die Bestrahlungszeiträume [30].	37
14	Brennelementdesign und Zusammensetzung für das Brennelement 2F2DN23 des Reaktors Fukushima Daini-2 [29].	39
15	(links) Beispielhafte Befüllung eines Brennstabes ohne Neutronenabsorber, (rechts) Befüllung eines Gadolinium-1-Brennstabes [29].	40
16	Brennelementdesign und -zusammensetzung.	42
17	Messpunkte für die Brennelemente (links) 4-20-3675-85 und (rechts) R1-20-7788.	42
18	Messpunkte in der WWER-Brennstoffkassette 144-46879.	44
19	Messhöhen bei den Brennstäben 61 (links), 62 (mitte) und 96 (rechts)	45
20	KENO-3D-Modell für den DWR Obrigheim-1 ohne Normierung. Die Noden 1-10 entsprechen den Material IDs 11-110	49
21	Axiale Wasserdichte im Brennelement 124.	55
22	(links) Geometrische Darstellung zu OBR 14x14 Brennelement Design, (rechts) NEWT-Grafik zu dem OBR BE124-Brennelement mit den simulierten Brennstäben: Grün (D1), Blau (E3), Gelb (G7), Cyan (M14).	57
23	^{234}U Konzentration in Abhängigkeit vom Abbrand für die Brennelemente 4-20-3675-85 und R1-20-7788 aus den Daten von Makarova et al. [33].	62

24	Modellierung des Dichteverlaufs des Wassers innerhalb der Brennelemente im Leningrad-1-Reaktor.	63
25	(links) Geometrische Darstellung des Leningrad-1-RBMK-Brennelementdesigns, (rechts) NEWT-Grafik zu den Brennelementdesigns mit den Berechnungszellen.	65
26	(links) Dancoff Faktoren für jeden Brennstab im Brennelement bei einer Wasserdichte von $0,35 \text{ g/cm}^3$, (rechts) RBMK-Brennelementdesign zum Vergleich.	65
27	Verteilung der Wassertemperaturen nach Zyklen im Kola-3-Reaktor. .	70
28	NEWT-Modell für den Brennstab 61 im SFCCompo-Modell des WWER-440 Kola-3. Brennstab 61 ist orange dargestellt. Die farbigen Brennstäbe um diesen herum wurden für bessere Simulationsergebnisse mit einer eigenen Material-ID versehen, unterscheiden sich in der Zusammensetzung aber nicht von den roten.	71
29	Alternative WWER-440/213-Brennstoffkassettendesigns mit einer durchschnittlichen Anreicherung von $4,38 \%$ bzw. $4,25 \%$ [56].	73
30	Resonanzbereiche der Plutoniumisotope und ^{238}U für die (n,γ) - und (n,f) -Reaktionen aus der ENDF/B-VII.1-Querschnittsbibliothek [7]. .	77
31	Wirkungsquerschnitte für (n,γ) -Reaktion von ^{241}Am und die (n,f) -Reaktion von ^{242m}Am aus der ENDF/B-VII-Datenbank.	78
32	Synthese von ^{242m}Am mit Anteilen der relevanten Kernreaktion. Wird keine Übergangswahrscheinlichkeit angegeben, ist sie ca. 100%	79
33	Verhältnis Messdaten/Simulation DWR Obrigheim-1-Brennstab G7. .	81
34	Verhältnis Messdaten/Simulation DWR Obrigheim-1-Brennstab E3 mit der ^{148}Nd -Methode.	82
35	Verhältnis Messdaten/Simulation DWR Obrigheim-1-Brennstab E3 mit nicht destruktiver ^{137}Cs -Methode.	82
36	Verhältnis Messdaten/Simulation DWR Obrigheim-1-Brennstab D1. .	83
37	Verhältnis Messdaten/Simulation DWR Obrigheim-1-Brennstab M14. .	83
38	Verhältnis Messdaten/Simulation für die Brennstäbe 13 (außen) und 14 (innen) im Brennelement 4-20-3675-85 im RBMK Leningrad-1. . .	85
39	Isotopenverhältnisse in den Simulationsdaten des RBMK Leningrad-1 für das Brennelement 4-20-3675-85	86
40	Verhältnis Messdaten/Simulation für die Brennstäbe 11 (außen) und 12 (innen) aus Brennelement R1-20-7788 im RBMK Leningrad-1. . .	87
41	Verhältnis Messdaten/Simulation WWER-440-Kola-3-Brennstab 61 für Modell 3.	88
42	Verhältnis Messdaten/Simulation WWER-440-Kola-3-Brennstab 62 für Modell 3.	89
43	Verhältnis Messdaten/Simulation WWER-440-Kola-3-Brennstab 96 für Modell 3.	89
44	Relativer Neutronenfluss nach Energiegruppe für verschiedene Wasserdichten im RBMK Leningrad.	91
45	Relativer Neutronenfluss nach Energiegruppe für die Messpunkte G7P3 (OBR) und Brennstab 62 P165 (KOL).	91
46	$^{241}\text{Am}/^{241}\text{Pu}$ in den Simulationsdaten vom Obrigheim-1- und Leningrad-1-Reaktor.	92
47	$^{241}\text{Am}/^{241}\text{Pu}$ in den Messdaten vom Obrigheim-1-, Kola-3- und Leningrad-1-Reaktor.	93

48	$^{242m}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ -Verhältnis in den Simulationsdaten vom Obrigheim-1-, Kola-3- und Leningrad-1-Reaktor.	94
49	$^{242m}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ Verhältnis gegen den Abbrand in verschiedenen Reaktoren.	95
50	$^{242m}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ Verhältnis gegen das $^{241}\text{Am}/^{241}\text{Pu}$ Verhältnis in verschiedenen Reaktoren.	95
51	(links) Modellierung eines 4x4-Ausschnitts eines RBMK-1000-Kerns, um den Einfluss von angrenzenden Brenn-/Kontrollstabkanälen zu untersuchen. (rechts) Design eines RBMK-1000-Kerns. (Blau) Neutronenquellen, (Grün) Kontrollstäbe, (Gelb) kurze Kontrollstäbe aus dem Boden, (Rot) automatische Kontrollstäbe, (Grau) Brennstäbe.	96
52	Isotopenkonzentration bei den Betrachtungen eines Gitters aus 4x4-RBMK-Brennelementen für eine Wasserdichte von $0,75 \text{ g/cm}^3$	98
53	Verhältnis der Isotopenkonzentrationen für das 4x4-Brennelementgitter für die Wasserdichten $0,75 \text{ g/cm}^3$ und $0,25 \text{ g/cm}^3$	99
54	Isotopenverhältnisse von $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ gegen $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ für verschiedene initiale Anreicherungen. Die Proben wurden dabei der Sperrzone von Tschernobyl (engl.: Chernobyl Exclusion Zone (CEZ)) entnommen [2].	101
55	Isotopenkonzentration in $100 \mu\text{g/gU}$ für die Isotope ^{243}Am , ^{241}Am und $^{241}\text{Am}+^{241}\text{Pu}$ in Abhängigkeit von der initialen Anreicherung eines inneren Brennstabs in einem RBMK Brennelement.	102
56	Isotopenkonzentration in $100 \mu\text{g/gU}$ für die Isotope ^{243}Am , ^{241}Am und $^{241}\text{Am}+^{241}\text{Pu}$ in Abhängigkeit von der initialen Anreicherung für einen äußeren Brennstab in einem RBMK Brennelement.	102
57	Isotopenverhältnisse von $^{241}\text{Am}/^{243}\text{Am}$ gegen $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$. (links) Farbige Markierung der verschiedenen Anreicherungen für einen inneren Brennstab, (rechts) farbige Markierung der verschiedenen Anreicherungen für einen äußeren Brennstab. Messpunkte aus der CEZ [2].	103
58	Isotopenverhältnisse von $^{241}\text{Am}/^{243}\text{Am}$ gegen $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$. (links) Farbige Markierung der verschiedenen Anreicherungen, (unten) farbige Markierung der verschiedenen Leistungen, (rechts) farbige Markierung der verschiedenen Wasserdichten. Messpunkte aus der CEZ [2].	103
59	Isotopenverhältnisse von $^{137}\text{Ba}/^{138}\text{Ba}$ gegen $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$. (links) Farbige Markierung der verschiedenen Anreicherungen, (rechts) farbige Markierung verschiedener Leistungen.	104
60	Berechnungen für die Wasserdichte im Fukushima Daini 2F2DN23 Brennelement mit einer Siedehöhe von 50 cm.	iv
61	Berechnungen für die Wasserdichte im Fukushima Daini 2F2DN23 Brennelement mit einer Siedehöhe von 0 cm.	iv
62	NEWT Modell des Brennelement 2F2DN23 aus dem SWR Fukushima Daini-2.	vii
63	Dancoff Faktoren für das Brennelement 2F2DN23 aus dem SWR Fukushima Daini-2 bei einer Wasserdichte von $0,65 \text{ g/cm}^3$	viii
64	Messdatenvergleich für den Brennstab SF-98 aus dem Brennelement 2F2Dn23 aus dem SWR Fukushima Daini-2.	viii
65	Messdatenvergleich für den Brennstab SF-99 aus dem Brennelement 2F2Dn23 aus dem SWR Fukushima Daini-2.	ix

66	Messdatenvergleich für den Brennstab 61 im ersten WWER-440 Design für den Kola-3 Reaktor	x
67	Messdatenvergleich für den Brennstab 62 im ersten WWER-440 Design für den Kola-3 Reaktor	xi
68	Messdatenvergleich für den Brennstab 96 im ersten WWER-440 Design für den Kola-3 Reaktor	xi
69	Messdatenvergleich für den Brennstab 61 im ersten WWER-440 Design für den Kola-3 Reaktor	xii
70	Messdatenvergleich für den Brennstab 62 im ersten WWER-440 Design für den Kola-3 Reaktor	xii
71	Messdatenvergleich für den Brennstab 96 im zweiten WWER-440 Design für den Kola-3 Reaktor	xiii
72	$^{241}\text{Am}/^{241}\text{Pu}$ für die simulierten Daten mit dem WWER-440 Kola-3. .	xiii
73	Direkt gemessenes $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ -Verhältnis für verschiedene Reaktoren.	xvii
74	Berechnetes $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ -Verhältnis aus den Messdaten für verschiedene Reaktoren.	xviii
75	Berechnetes $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ -Verhältnis aus den Messdaten für DWR Reaktoren.	xviii
76	Berechnetes $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ -Verhältnis aus den Messdaten für SWR Reaktoren.	xix
77	Berechnetes $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ -Verhältnis aus den Messdaten für RBMK Reaktoren.	xix
78	Berechnetes $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ -Verhältnis aus den Messdaten für WWER-440 Reaktoren.	xx
79	$^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ -Verhältnis aus den Messdaten für WWER-1000 Reaktoren.	xx
80	Berechnetes $^{242m}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ -Verhältnis gegen den Abbrand für verschiedene Reaktoren.	xxi
81	Berechnetes $^{242m}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ -Verhältnis gegen das Verhältnis $^{241}\text{Am}/^{241}\text{Pu}$.	xxi
82	Berechnetes $^{242m}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ -Verhältnis gegen das Verhältnis $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$.	xxii
83	Berechnetes $^{242m}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ -Verhältnis gegen das Verhältnis $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$.	xxii

TABELLENVERZEICHNIS

1	Gemessene Abbrände für die Messpunkte des Brennelementes BE124 des jeweiligen Messlabors in Abhängigkeit von der Höhe.	37
2	Bestrahlungs- und Abklingzeiträume der Brennzyklen 2-5.	38
3	Kumulativer Abbrand und effektive Tage unter Vollast für das Brennelement BE124 in den Brennzyklen 2-5 [30]	38
4	Brennstoffzusammensetzung der Messproben im Brennstab SF98. . .	40
5	Brennstoffzusammensetzung der Messproben im Brennstab SF99. . .	41
6	Bestrahlungs- und Abklingzeiträume der Brennzyklen 5-7 im Siedewasserreaktor Fukushima Daini-2.	41
7	Gemessene Abbrände der Brennstäbe 11-14 in Abhängigkeit von der Höhe.	43
8	Bestrahlungszeitraum der Brennelemente R1-20-7789 und 4-20-3675-85.	43
9	Gemessene Abbrände der Brennstäbe 61, 62 und 96 in Abhängigkeit von der Höhe.	45
10	Bestrahlungszeiträume der Brennzyklen 12-17 der Brennstoffkassette 144-46879.	46
11	Nodalisierung bei einem Druckwasserreaktor in KENO VI. Die erste Ziffer der ID gibt die Brennstabkategorie an und die darauffolgenden die Node der jeweiligen Kategorie.	48
12	Grundlegende Parameter für den Druckwasserreaktor Obrigheim-1 . .	52
13	Isotopenzusammensetzung des UO ₂ -Brennstoffs im Obrigheim-1-Reaktor.	53
14	Leistungsberechnungen und effektive Brennstofftemperatur für das Obrigheim-1-Brennelement BE124	56
15	Grundlegende Parameter für den RBMK Leningrad-1 [47, 48].	60
16	Isotopenzusammensetzung für die Brennelemente 4-20-3675-85 und R1-20-7788	61
17	Probenspezifische Leistung für die Brennelemente R1-20-7788 und 4-20-3675-85. Die Abfolge der Messproben-IDs von Brennelement R1-20-7788 stimmen allerdings nicht mit der Abfolge der Messhöhen überein (vgl. 7).	64
18	Grundlegende Parameter für den WWER-440 Kola-3-Reaktor.	67
19	Brennstoffzusammensetzung der Brennstoffkassette 144-46879 im Kola-3-Reaktor nach SFCompo.	68
20	Borsäurekonzentrationen für die Brennzyklen der Brennstoffkassette 144-46879 im Kola-3-Reaktor.	70
21	Probenspezifische Leistungs- und Temperaturverteilung für die Brennstoffkassette 144-46879 des WWER-440 Kola-3.	72
22	Brennstoffzusammensetzung für die Brennstäbe in den alternativen Brennstoffkassettendesigns.	74
23	Wirkungsquerschnitte und Halbwertszeiten der Isotope des ^{242m} Am-Transmutationsweges.	76
24	Durchlasswahrscheinlichkeit für den schnellen und den Resonanzenergiebereich für den Obrigheim-1, Leningrad-1 und Kola-3 Reaktor. . .	90
25	Reaktorparameter des Siedewasserreaktors Fukushima Daini-2	i
26	Brennstoffzusammensetzungen Fukushima Daini-2 in Brennelement 2F2DN23 ohne Neutronenabsorber	iii

27	Brennstoffzusammensetzungen Fukushima Daini-2 in Brennelement 2F2DN23 Neutronenabsorberstäbe	iii
28	Mittelwerte und Standardabweichungen der Abweichung des Modells des Obrigheim-1 Reaktors von den Messungen.	xiv
29	Mittelwerte und Standardabweichungen der Abweichung des dritten Modells des Kola-3 Reaktors von den Messungen.	xv
30	Mittelwerte und Standardabweichungen der Abweichung des Modells des Leningrad-1 Reaktors von den Messungen.	xv
31	Mittelwerte und Standardabweichungen der Abweichung der Modelle des Obrigheim-1, Kola-3 und Leningrad-1 Reaktors von den Messungen.	xvi

A. SIEDEWASSERREAKTOR: FUKUSHIMA DAINI-2

A.1 MODELL

Tabelle 25: Reaktorparameter des Siedewasserreaktors Fukushima Daini-2

Allgemeine Parameter	Daten
Brennelement ID	2F2DN23
Design	8x8-2
Geometrie	quadratisch
Brennelementabstand	15,2 cm
Anreicherung	(1.) 2,00 %
	(2.) 2,90 %
	(3.) 3,41 %
	(4.) 3,45 %
	(5.) 3,91 %
	(6.) 3,40 % + 3,00 % Gd ₂ O ₃
	(7.) 3,40 % + 3,40 % Gd ₂ O ₃
Brennzyklen	5-7
Kanalummantelungsmaterial	E125 Zirkalloy
Kanalummantelungsdicke	0,203cm
Brennstabdaten	
Abstand	1,63 cm
Aktive Höhe	3,71 m
Brennstoffpellet Durchmesser (kalt)	1,03 cm
Dichte	10,412
	9,943 g/cm ³
Ummantelungsdurchmesser innen	1,065 cm
Ummantelungsdurchmesser außen	1,23 cm
Ummantelungsmaterial	Zirkalloy-2
Wasserröhren	
Durchmesser innen	1,35 cm
Durchmesser außen	1,5 cm
Ummantelungsmaterial	Zirkalloy
Kontrollstabdaten	
Absorbermaterial	Gd ₃ O ₂
Moderatordaten	
Druck	69,3 bar
Einlasstemperatur	489 K
Auslasstemperatur	559 K

Zu dem Modell vom Siedewasserreaktor Fukushima Daini-2 gibt es bereits ein Paper vom ORNL mit sehr ausführlichen Modellannahmen und Voraussetzungen [18]. Ursprünglich wurde dieses Modell ausgesucht, um einen Benchmarkvergleich mit einem Siedewasserreaktor gegenüber dem RBMK zu haben. Da die Brennstoffzusammensetzung hier allerdings sehr inhomogen ist, bedarf die Ableitung eines allgemeinen Modells einer sehr detaillierten Untersuchung der Störfaktoren. Eine große Rolle spielt hier ebenfalls der Dampfblasenanteil, der aufgrund des Siedens des Wassers auftritt. Die Untersuchungen eines Siedewasserreaktors sollten bei der Entwicklung eines passenden Dampfblasenmodells für den RBMK unterstützen. Allerdings wurde im Verlauf der Modellierung klar, dass das entwickelte Dampfblasenmodell zwar zu dem RBMK passt (vgl. 24) nicht aber zu dem Siedewasserreaktor. Aufgrund der guten Datenlage zu den westlichen Siedewasserreaktoren im Vergleich zu dem russischen RBMK wurde sich daher entschieden, das Modell nicht weiterzuentwickeln, sondern den RBMK zu priorisieren. Dies führt dazu, dass die Modellierung des Siedewasserreaktors Fukushima Daini 2 kaum eigene Herleitungen besitzt. Daher wurde sich ebenfalls entschlossen, dieses Modell nicht in dem Hauptteil der Arbeit vorzustellen, da der Eigenanteil zu gering ist und die meisten Annahmen von U. Mertyurek et al. [22] bereits vorgestellt wurden. Ebenfalls konnte das Dampfblasenmodell nicht rekonstruiert werden. Der Vollständigkeit halber werden hier dennoch die Modellüberlegungen am Vorbild von Kapitel 5 präsentiert.

Die Reaktorparameter werden daher dem Paper [18] entnommen und in Tabelle 25 aufgetragen.

A.1.1 MATERIAL

Es liegen insgesamt acht verschiedene Brennstoffzusammensetzungen vor, jedoch ist hier relevant, auf welcher axialen Höhe, da diese nicht homogen befüllt wurden. Jeder Brennstab hat eine 15,4 cm dicke Schicht Natururan, dessen Zusammensetzung gegeben ist mit:

Isotop	Konzentration [wt%]
^{234}U	0,003
^{235}U	0,71
^{236}U	0,00
^{238}U	99,287

Die Bereiche mit angereichertem UO_2 -Brennstoff wurden dabei mit den folgenden Zusammensetzungen befüllt:

Tabelle 26: Brennstoffzusammensetzungen Fukushima Daini-2 in Brennelement 2F2DN23 ohne Neutronenabsorber

Isotop	Konzentration				
	[wt%]				
Brennstoff	2 %	2,9 %	3,41 %	3,45 %	3,69 %
^{234}U	0,018	0,026	0,03	0,031	0,04
^{235}U	2,00	2,90	3,405	3,448	3,91
^{236}U	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
^{238}U	97,985	97,071	96,565	96,521	96,05

Für die Brennstäbe mit dem Neutronenabsorber Gd_2O_3 sind die Brennstoffzusammensetzungen:

Tabelle 27: Brennstoffzusammensetzungen Fukushima Daini-2 in Brennelement 2F2DN23 Neutronenabsorberstäbe

Isotop	Konzentration	
	[wt%]	
$^{234}\text{U}^a$	0,03	0,00
$^{235}\text{U}^a$	3,4	3,4
$^{236}\text{U}^a$	0,00	0,00
$^{238}\text{U}^a$	96,57	96,6
Gd_2O_3^b	2,603	4,5

^a von UO_2

^b von gesamter Zusammensetzung

A.1.2 MODERATOR

Es handelt sich hierbei um ein leichtwassermoderierten Reaktor, in dem das Wasser zum Sieden gebracht wird. Als Einlasstemperatur wird 489 K und als Auslasstemperatur 559 K bei einem Druck von 69,3 bar angegeben. Die entsprechenden Dampftabellen für die beiden Phasen entsprechend dieses Temperaturspektrums werden den Daten von NIST entnommen [16]. Mit dem für den RBMK hergeleiteten Formel für den Dampfblasenanteil wird hier der Dichteverlauf des Moderators modelliert. Dabei werden zwei verschiedene Annahmen getroffen. Bei einem Siedewasserreaktor wird dabei eine Dampfqualität von 12-15 % erreicht [70], hier wird aber von einer konstanten Dampfqualität von 14,5 % am Ausgang ausgegangen. Des Weiteren ist die Siedehöhe nicht bekannt, weswegen die Rechnungen für eine Höhe von 0 und eine Siedehöhe von 50cm modelliert werden. Dabei wurde der folgende Verlauf berechnet

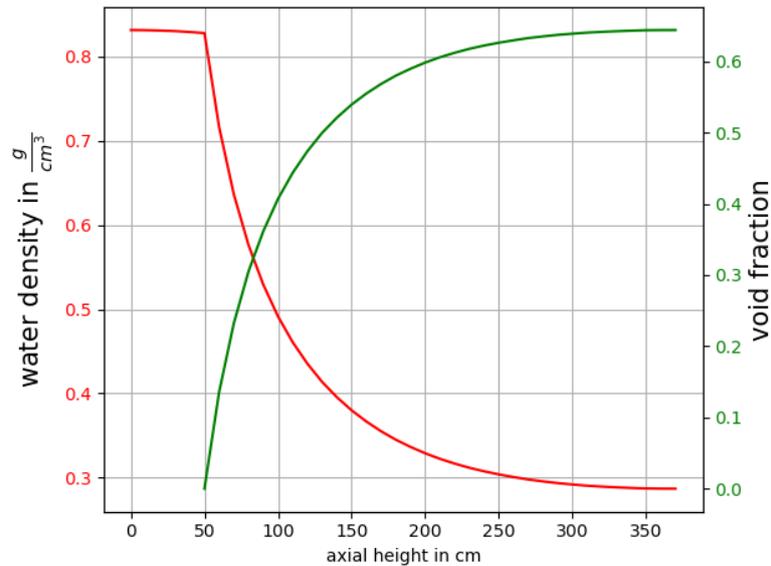


Abbildung 60: Berechnungen für die Wasserdichte im Fukushima Daini 2F2DN23 Brennelement mit einer Siedehöhe von 50 cm.

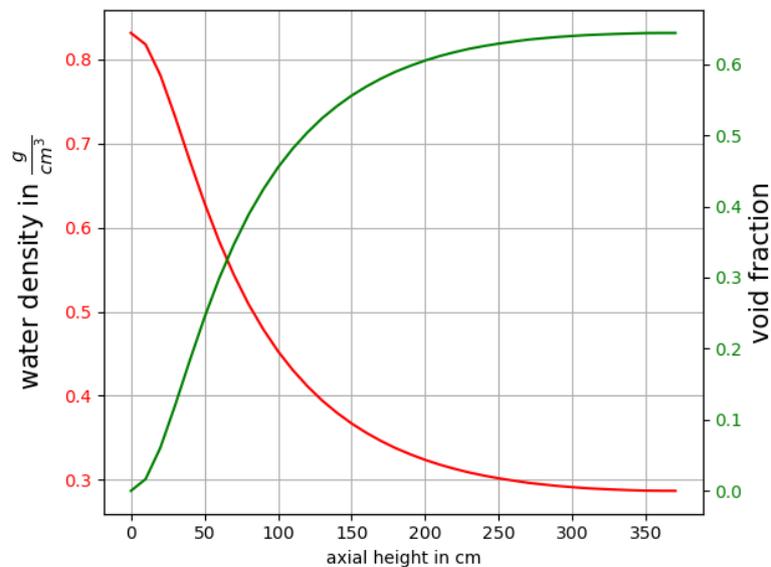


Abbildung 61: Berechnungen für die Wasserdichte im Fukushima Daini 2F2DN23 Brennelement mit einer Siedehöhe von 0 cm.

Dieser stimmt mit den mitgeteilten Messwerten nicht überein. Das hier verwendete Modell überschätzt den Dichteverlust drastisch, erreicht allerdings ebenfalls nicht den Dampfblasenanteil von 73 % bzw. 74,3 %. Es wurden verschiedene Korrelationsfaktoren nach Tran [21] ausprobiert. Es konnte allerdings der Verlauf nicht rekonstruiert werden.

A.1.3 LEISTUNG UND BRENNZEIT

Die Leistungen der Brennzeiträume wurden sowohl in SFCompo als auch in dem Paper [18] sehr detailliert aufgetragen und können daher hier direkt übernommen werden und es bedarf keiner externen Modellierung.

Zyklus	Dauer [Tage]	Leistung [MW/tU]							
		SF98-1	SF98-2	SF98-3	SF98-4	SF98-5	SF98-6	SF98-7	SF98-8
5	6	1,27	8,1	11,29	12,95	13,45	12,21	12,05	8,31
	3	3,2	20,46	28,5	32,68	33,95	30,81	30,41	20,98
	132	3,95	25,22	35,14	40,29	41,84	37,98	37,49	25,86
	21	0	0	0	0	0	0	0	0
	5	1,43	9,13	12,73	14,59	15,16	13,76	13,58	9,37
	244	3,44	22	30,65	35,15	36,51	33,13	32,7	22,56
	8	3,99	25,47	35,49	40,7	42,27	38,36	37,87	26,12
	117	0	0	0	0	0	0	0	0
6	5	1,43	9,13	12,73	14,59	15,16	13,76	13,58	9,37
	317	3,44	22	30,65	35,15	36,51	33,13	32,7	22,56
	9	0	0	0	0	0	0	0	0
	4	1,49	9,52	13,27	15,21	15,8	14,34	14,15	9,76
	72	3,5	22,38	31,19	35,76	37,15	33,71	33,28	22,95
	10	3,95	25,22	35,14	40,29	41,84	37,98	37,49	25,86
	81	0	0	0	0	0	0	0	0
	7	3	1,63	10,42	14,52	16,65	17,29	15,69	15,49
365	3,65	23,29	32,45	37,2	38,64	35,07	34,62	23,88	

Zyklus	Tage	Leistung [MW/tU]									
		SF99-1	SF99-2	SF99-3	SF99-4	SF99-5	SF99-6	SF99-7	SF99-8	SF99-9	SF99-10
5	6	2,3	6,92	9,92	10,83	11,44	9,89	9,82	6,67	5,09	2,2
	3	5,81	17,46	25,03	27,33	28,87	24,97	24,79	16,84	12,85	5,55
	132	7,16	21,53	30,86	33,69	35,58	30,78	30,56	20,76	15,84	6,84
	21	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	5	2,59	7,8	11,18	12,21	12,89	11,15	11,07	7,52	5,74	2,48
	244	6,25	18,78	26,92	29,4	31,05	26,85	26,66	18,12	13,82	5,97
	8	7,23	21,75	31,17	34,04	35,95	31,09	30,87	20,98	16	6,91
	117	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
6	5	2,59	7,8	11,18	12,21	12,89	11,15	11,07	7,52	5,74	2,48
	317	6,25	18,78	26,92	29,4	31,05	26,85	26,66	18,12	13,82	5,97
	9	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	4	2,7	8,13	11,65	12,72	13,44	11,62	11,54	7,84	5,98	2,58
	72	6,35	19,11	27,39	29,91	31,59	27,33	27,13	18,43	14,06	6,08
	10	21,53	30,86	33,69	35,58	30,78	30,56	20,76	15,84	10	21,53
	81	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	3	2,96	8,9	12,75	13,92	14,71	12,72	12,63	8,58	6,54	2,83
365	6,61	19,88	28,5	31,11	32,86	28,42	28,22	19,17	14,62	6,32	

A.1.4 GEOMETRIE

Die Brennelementummantlung des Siedewasserreaktors hat an ihren Ecken einen runden Verlauf. Dieser spielt für die hier untersuchten Brennstäbe keine Rolle, da der Reflexionseffekt nur eine Auswirkung auf die Eckbrennstäbe hat. Da allerdings aus diesem Modell eine allgemeine Blaupause erstellt werden soll, werden sie hier dennoch einbezogen. Aufgrund der geometrischen Besonderheit der abgerundeten Ecken und der heterogenen Brennstoffanreicherungen, wurde das Modell ebenfalls in KENO erstellt, um die Dancoff-Faktoren extern berechnen zu lassen. Diese Werte sind beispielhaft für die Wasserdichte $0,65g/cm^3$ in der Abbildung 63 dargestellt. Zur besseren Lesbarkeit wurden die Werte auf die vierte Dezimalstelle gerundet. Um den runden Verlauf der Ecken allerdings in NEWT zu erreichen, konnte keine Gitterstruktur verwendet werden. Daher wurden die Zellen für die Brennstäbe manuell in die globale Zelle platziert. Um dennoch eine hohe Auflösung für die einzelnen Brennstäbe zu erhalten, wurde eine feine Gitterstruktur für die globale Zelle verwendet.

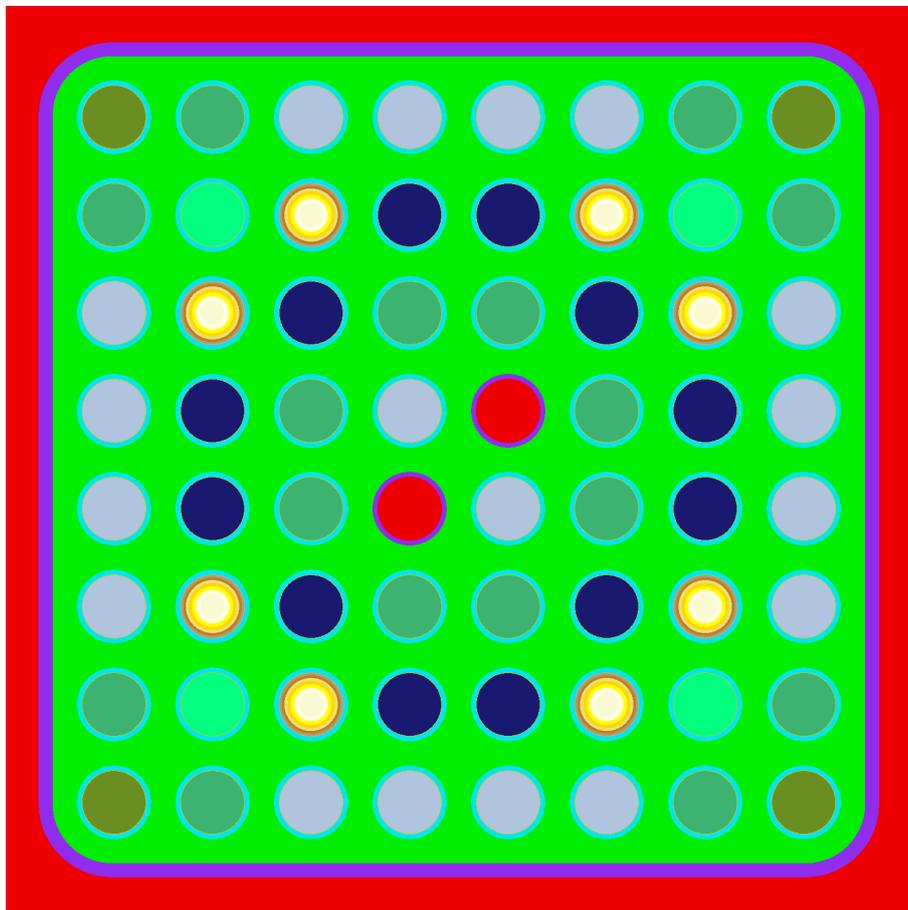


Abbildung 62: NEWT Modell des Brennelement 2F2DN23 aus dem SWR Fukushima Daini-2.

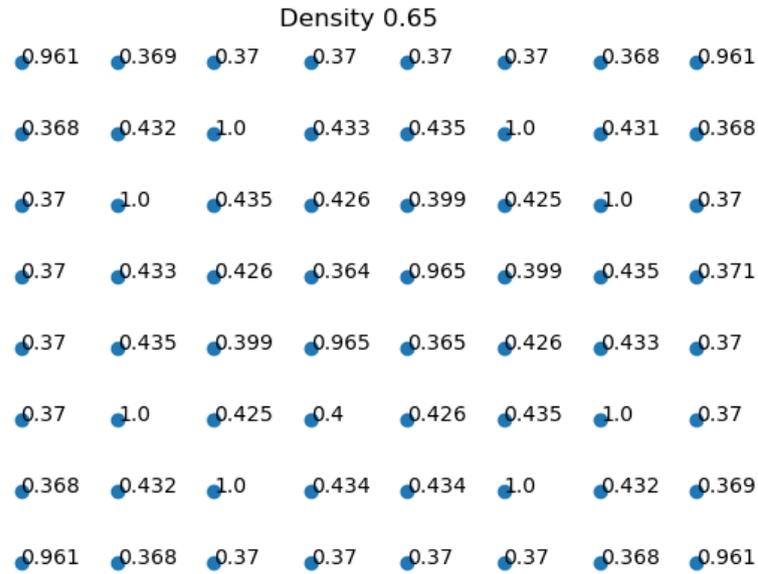


Abbildung 63: Dancoff Faktoren für das Brennelement 2F2DN23 aus dem SWR Fukushima Daini-2 bei einer Wasserdichte von 0,65 g/cm³.

A.2 AUSWERTUNG

Wie bereits zuvor erwähnt, sind die Abweichungen außerhalb des akzeptablen Bereiches, weshalb dieses Modell nur hier im Anhang vorgestellt wird.

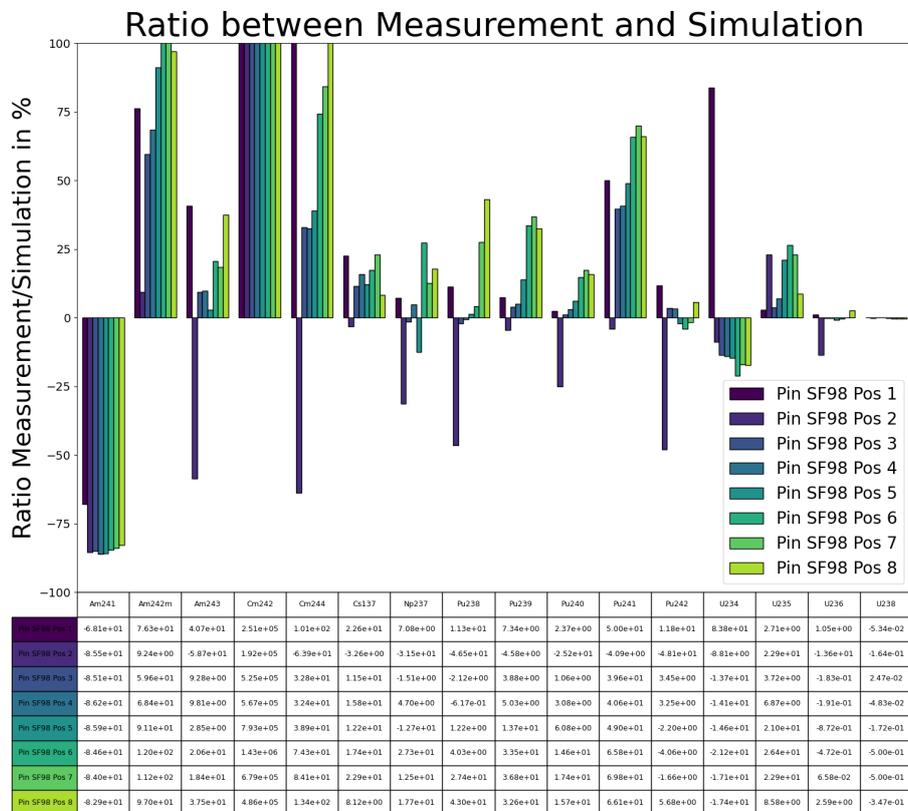


Abbildung 64: Messdatenvergleich für den Brennstab SF-98 aus dem Brennelement 2F2Dn23 aus dem SWR Fukushima Daini-2.

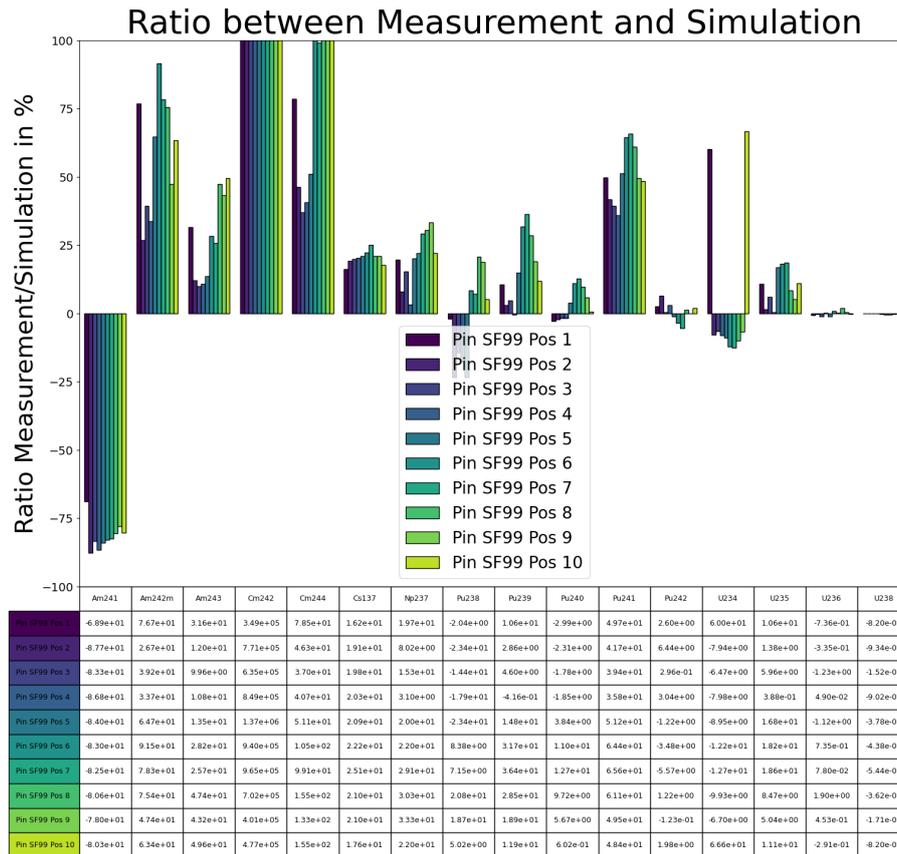


Abbildung 65: Messdatenvergleich für den Brennstab SF-99 aus dem Brennelement 2F2Dn23 aus dem SWR Fukushima Daini-2.

Bereits die simulierten Werte für das Isotop ^{235}U sind außerhalb des $\pm 10\%$ -Bereiches, weshalb diese Daten nicht genau genug sind, um eine weitere aussagekräftige Analyse in dem Hauptteil der Arbeit mit ihnen durchzuführen. Ebenfalls wurde hier die Generation von ^{241}Am überschätzt und die Synthese von ^{242m}Am unterschätzt

B. DATEN DES ERSTEN UND ZWEITEN WWER-440 MODELLS

Die hauptsächliche Auswertung des WWER-440 Modells ist im Kapitel 7 zu finden. Hier werden daher nur noch die Messverhältnisse des ersten (einheitliche Brennstoffanreicherung) und zweiten (durchschnittliche Anreicherung von 4,25 % entsprechend der Literatur) Brennstoffkassettendesigns vorgestellt.

B.1 MODELL 1

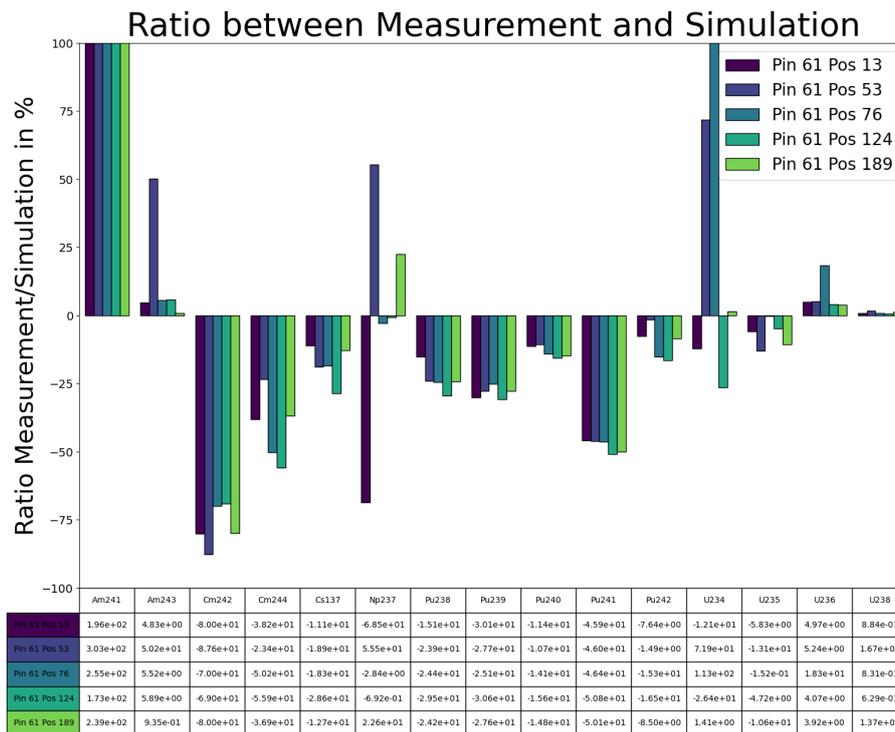


Abbildung 66: Messdatenvergleich für den Brennstab 61 im ersten WWER-440 Design für den Kola-3 Reaktor

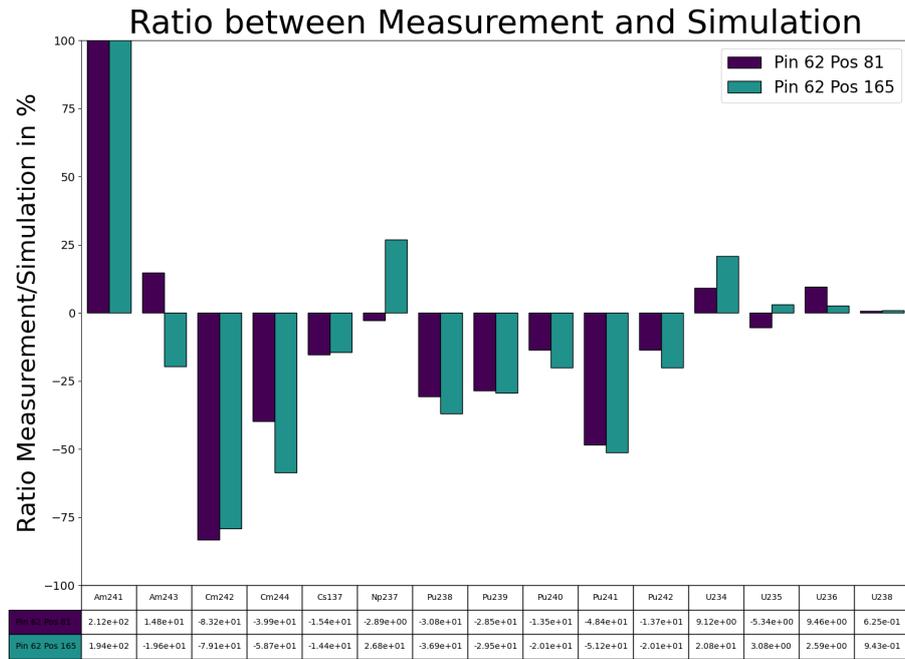


Abbildung 67: Messdatenvergleich für den Brennstab 62 im ersten WWER-440 Design für den Kola-3 Reaktor

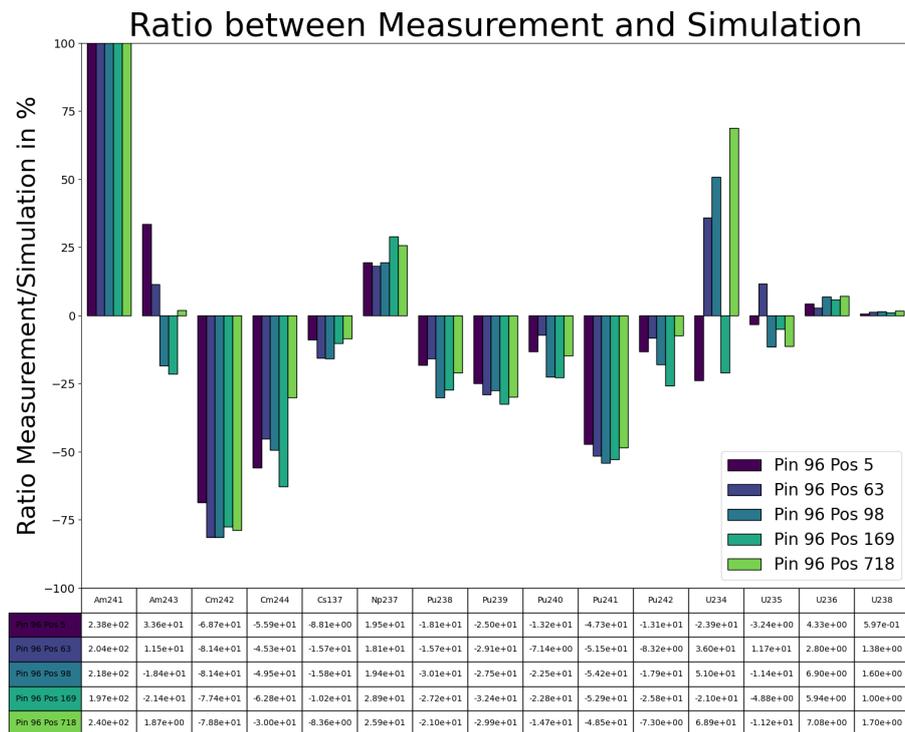


Abbildung 68: Messdatenvergleich für den Brennstab 96 im ersten WWER-440 Design für den Kola-3 Reaktor

B.2 MODELL 2

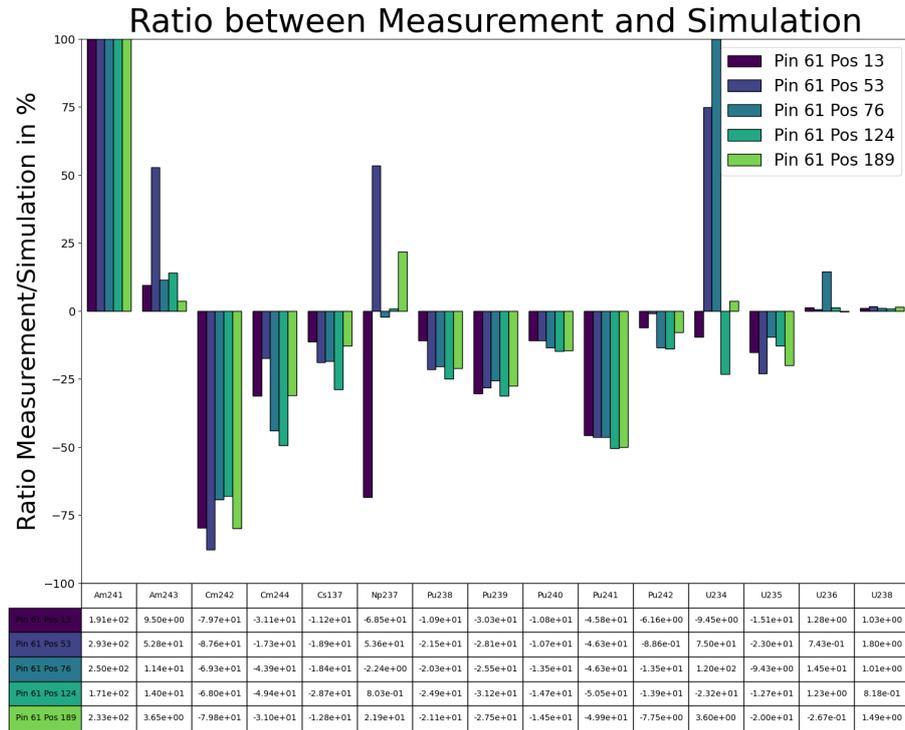


Abbildung 69: Messdatenvergleich für den Brennstab 61 im ersten WWER-440 Design für den Kola-3 Reaktor

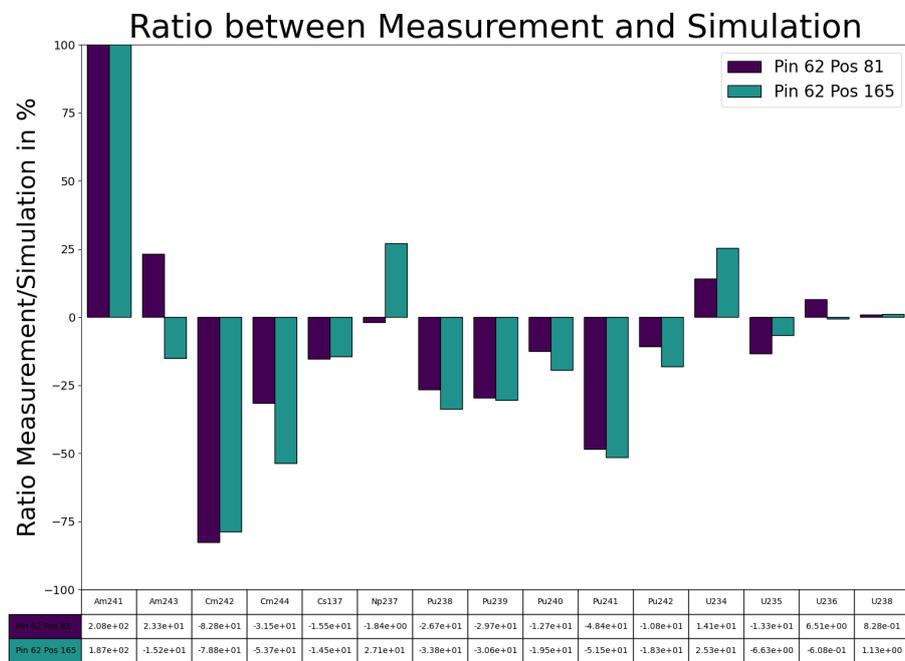


Abbildung 70: Messdatenvergleich für den Brennstab 62 im ersten WWER-440 Design für den Kola-3 Reaktor

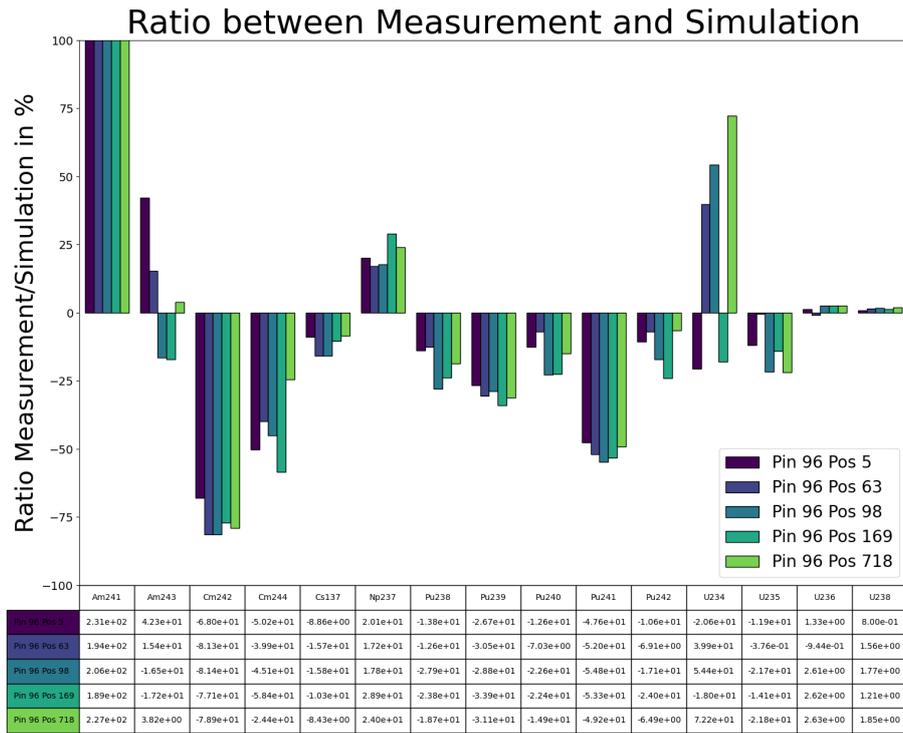


Abbildung 71: Messdatenvergleich für den Brennstab 96 im zweiten WWER-440 Design für den Kola-3 Reaktor

B.3 $^{241}\text{Am}/^{241}\text{Pu}$ -VERHÄLTNIS MIT WWER-440

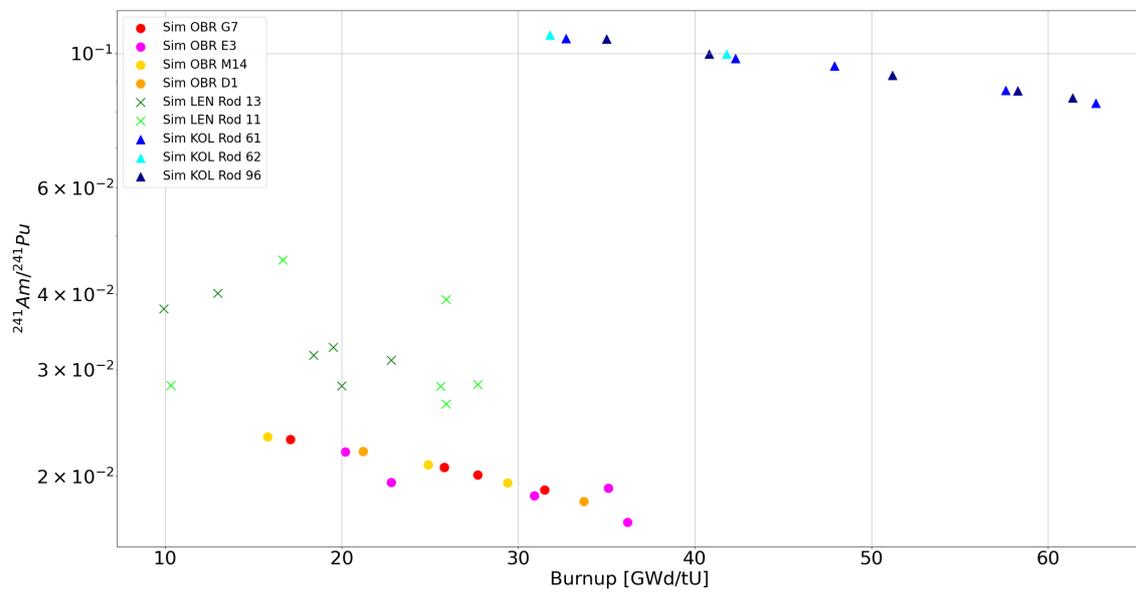


Abbildung 72: $^{241}\text{Am}/^{241}\text{Pu}$ für die simulierte Daten mit dem WWER-440 Kola-3.

C. MITTELWERTE UND STANDARDABWEICHUNGEN FÜR DIE MODELLE

Es wurden ebenfalls die Mittelwerte und Standardabweichungen für die einzelnen Brennstäbe bestimmt. Dabei wurde die Brennstäbe 12 und 13 des RBMK ausgelassen, da diese nur einen einzigen Messpunkt haben.

Tabelle 28: Mittelwerte und Standardabweichungen der Abweichung des Modells des Obrigheim-1 Reaktors von den Messungen.

Nuklide	Druckwasserreaktor Obrigheim-1							
	G7		E3		D1		M14	
	M	SD	M	SD	M	SD	M	SD
²⁴¹ Am	223,00	300,91	164,63	123,40	89,92	65,03	136,83	180,20
^{242m} Am	57,24	1,59	-	-	-	-	-	-
²⁴³ Am	-7,90	1,10	-	-	-	-	-	-
²⁴² Cm	38,69	52,34	2,98	29,30	28,69	14,42	47,79	40,85
²⁴⁴ Cm	1,46	16,52	19,28	86,47	-22,81	21,88	7,43	10,27
¹³⁷ Cs	52,00	2,36	5,84	13,78	1,49	-	50,73	-
²³⁷ Np	-	-	-	-	-	-	-	-
²³⁸ Pu	4,44	6,29	14,26	46,50	-10,55	18,42	2,54	1,54
²³⁹ Pu	-3,67	2,83	-0,46	2,27	-6,62	3,13	-3,21	3,29
²⁴⁰ Pu	-3,02	2,77	-2,88	15,85	-9,97	6,10	-3,20	2,39
²⁴¹ Pu	-2,66	4,32	-3,87	16,73	-12,38	9,89	-3,11	5,25
²⁴² Pu	-1,37	5,09	0,44	43,40	-15,28	16,07	-2,74	7,03
²³⁴ U	-	-	-	-	-	-	-	-
²³⁵ U	2,55	4,13	8,92	32,09	5,05	4,52	0,03	2,39
²³⁶ U	7,27	3,62	1,25	8,53	-0,38	4,14	4,56	1,26
²³⁸ U	0,04	0,05	-0,06	0,69	0,04	0,07	0,04	0,04

Tabelle 29: Mittelwerte und Standardabweichungen der Abweichung des dritten Modells des Kola-3 Reaktors von den Messungen.

Nuklide	WWER-440 Kola-3					
	Rod 61		Rod 62		Rod 96	
	M	SD	M	SD	M	SD
²⁴¹ Am	-	-	194,87	8,80	213,56	17,38
^{242m} Am	-	-	-	-	-	-
²⁴³ Am	11,50	17,46	-3,41	17,33	5,91	22,39
²⁴² Cm	-77,58	6,87	-81,50	2,03	-77,20	4,99
²⁴⁴ Cm	-39,73	11,03	-48,01	9,73	-43,34	11,26
¹³⁷ Cs	-17,96	6,16	-14,95	0,50	-11,85	3,29
²³⁷ Np	2,47	40,92	13,52	14,82	22,11	4,42
²³⁸ Pu	-20,98	4,76	-31,88	3,24	-18,80	5,92
²³⁹ Pu	-27,88	2,11	-29,65	0,37	-29,38	2,45
²⁴⁰ Pu	-14,01	2,01	-17,71	3,13	-15,51	6,01
²⁴¹ Pu	-48,26	2,16	-50,79	1,30	-50,93	2,68
²⁴¹ Pu	-12,54	5,30	-19,25	3,14	-13,02	6,67
²³⁴ U	41,27	58,46	26,58	6,07	25,55	38,07
²³⁵ U	-8,01	4,62	-2,44	4,07	-13,18	7,84
²³⁶ U	7,52	5,56	6,32	3,43	1,70	1,40
²³⁸ U	1,09	0,38	0,82	0,16	1,41	0,38

Tabelle 30: Mittelwerte und Standardabweichungen der Abweichung des Modells des Leningrad-1 Reaktors von den Messungen.

Nuklide	RBMK-1000 Leningrad-1			
	Rod11		Rod13	
	M	SD	M	SD
²⁴¹ Am	-99,84	0,03	-99,86	0,03
^{242m} Am	-	-	-	-
²⁴³ Am	-30,95	25,44	-44,43	21,37
²⁴² Cm	-22,38	10,62	-3,06	12,25
²⁴⁴ Cm	-15,23	55,20	1,93	35,07
¹³⁷ Cs	-3,37	1,41	-2,86	1,19
²³⁷ Np	37,00	20,17	24,88	13,56
²³⁸ Pu	4,00	5,14	8,94	11,16
²³⁹ Pu	9,78	3,31	12,02	2,99
²⁴⁰ Pu	-2,19	2,76	-2,45	4,67
²⁴¹ Pu	-3,37	3,46	-2,10	6,03
²⁴² Pu	-13,75	5,51	-11,08	10,54
²³⁴ U	-35,65	2,68	4,68	3,41
²³⁵ U	12,29	12,66	5,50	5,69
²³⁶ U	-1,72	1,16	-4,28	3,55
²³⁸ U	0,20	0,11	0,05	0,05

Tabelle 31: Mittelwerte und Standardabweichungen der Abweichung der Modelle des Obrigheim-1, Kola-3 und Leningrad-1 Reaktors von den Messungen.

Nuklide	Druckwasserreaktor Obrigheim-1												WWER-440 Kola-3						RBMK-1000 Leningrad-1					
	G7			E3			D1			M14			Rod 61		Rod 62		Rod 96		Rod11		Rod13			
	M	SD	M	M	SD	M	M	SD	M	M	SD	M	M	SD	M	SD	M	SD	M	SD	M	SD		
²⁴¹ Am	223,00	300,91	164,63	123,40	89,92	65,03	136,83	180,20	-	-	-	-	-	194,87	8,80	213,56	17,38	-99,84	0,03	-99,86	0,03			
^{242m} Am	57,24	1,59	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-		
²⁴³ Am	-7,90	1,10	-	-	-	-	-	-	11,50	17,46	-3,41	17,33	5,91	-30,95	25,44	-44,43	21,37	-30,95	25,44	-44,43	21,37			
²⁴² Cm	38,69	52,34	2,98	29,30	28,69	14,42	47,79	40,85	-77,58	6,87	-81,50	2,03	-77,20	4,99	-22,38	10,62	-3,06	-22,38	10,62	-3,06	12,25			
²⁴⁴ Cm	1,46	16,52	19,28	86,47	-22,81	21,88	7,43	10,27	-39,73	11,03	-48,01	9,73	-43,34	11,26	-15,23	55,20	1,93	-15,23	55,20	1,93	35,07			
¹³⁷ Cs	52,00	2,36	5,84	13,78	1,49	-	50,73	-	-17,96	6,16	-14,95	0,50	-11,85	3,29	-3,37	1,41	-2,86	-3,37	1,41	-2,86	1,19			
²³⁷ Np	-	-	-	-	-	-	-	-	2,47	40,92	13,52	14,82	22,11	4,42	37,00	20,17	24,88	37,00	20,17	24,88	13,56			
²³⁸ Pu	4,44	6,29	14,26	46,50	-10,55	18,42	2,54	1,54	-20,98	4,76	-31,88	3,24	-18,80	5,92	4,00	5,14	8,94	4,00	5,14	8,94	11,16			
²³⁹ Pu	-3,67	2,83	-0,46	2,27	-6,62	3,13	-3,21	3,29	-27,88	2,11	-29,65	0,37	-29,38	2,45	9,78	3,31	12,02	9,78	3,31	12,02	2,99			
²⁴⁰ Pu	-3,02	2,77	-2,88	15,85	-9,97	6,10	-3,20	2,39	-14,01	2,01	-17,71	3,13	-15,51	6,01	-2,19	2,76	-2,45	-2,19	2,76	-2,45	4,67			
²⁴¹ Pu	-2,66	4,32	-3,87	16,73	-12,38	9,89	-3,11	5,25	-48,26	2,16	-50,79	1,30	-50,93	2,68	-3,37	3,46	-2,10	-3,37	3,46	-2,10	6,03			
²⁴² Pu	-1,37	5,09	0,44	43,40	-15,28	16,07	-2,74	7,03	-12,54	5,30	-19,25	3,14	-13,02	6,67	-13,75	5,51	-11,08	-13,75	5,51	-11,08	10,54			
²³⁴ U	-	-	-	-	-	-	-	-	41,27	58,46	26,58	6,07	25,55	38,07	-35,65	2,68	4,68	-35,65	2,68	4,68	3,41			
²³⁵ U	2,55	4,13	8,92	32,09	5,05	4,52	0,03	2,39	-8,01	4,62	-2,44	4,07	-13,18	7,84	12,29	12,66	5,50	12,29	12,66	5,50	5,69			
²³⁶ U	7,27	3,62	1,25	8,53	-0,38	4,14	4,56	1,26	7,52	5,56	6,32	3,43	1,70	1,40	-1,72	1,16	-4,28	-1,72	1,16	-4,28	3,55			
²³⁸ U	0,04	0,05	-0,06	0,69	0,04	0,07	0,04	0,04	1,09	0,38	0,82	0,16	1,41	0,38	0,20	0,11	0,05	0,20	0,11	0,05	0,05			

D. AMERICIUM IN DEN MESSDATEN AUS SFCOMPO

D.1 ^{241}Am ZU ^{243}Am VERHÄLTNIS IN DEN MESSDATEN

Bei der Untersuchung der Isotopenverhältnisse von ^{241}Am und ^{243}Am wurde ebenfalls die Messdatenbank SFCompo untersucht. Für einige Druckwasser- und Siedewasserreaktoren wurden diese Verhältnisse direkt bestimmt. Diese liegen zwischen 0,01 und 0,35, wobei ein steigendes Verhältnis mit wachsendem Abbrand zu erkennen ist. Dieses Verhalten ist zu erwarten, da mit steigendem gemessenem Abbrand in einem Reaktor tendenziell der Neutronenfluss höher gewesen ist.

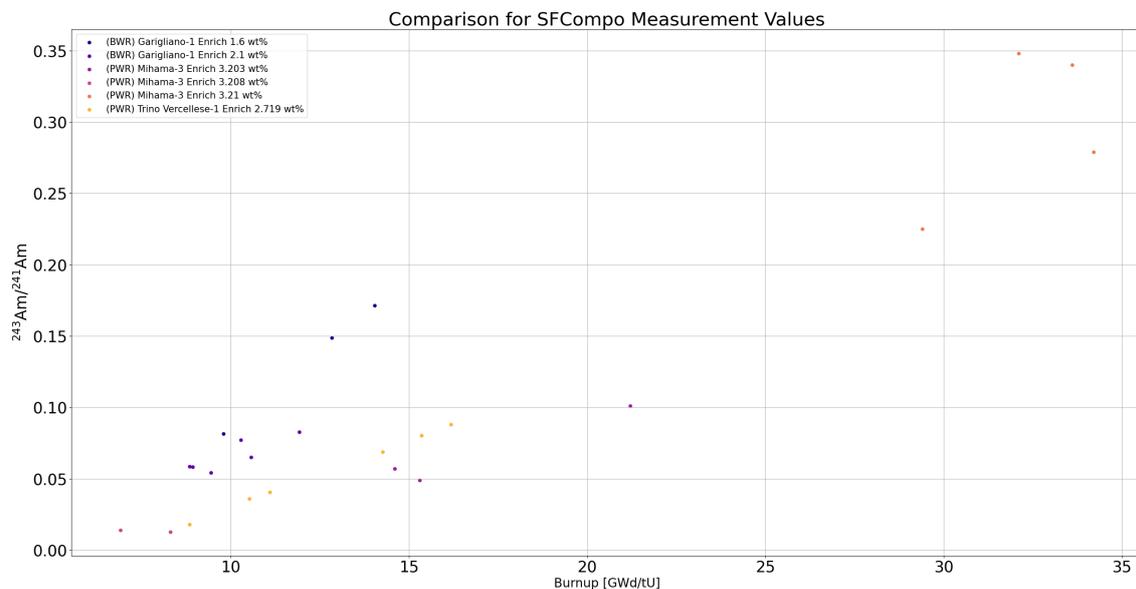


Abbildung 73: Direkt gemessenes $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ -Verhältnis für verschiedene Reaktoren.

Es wurden ebenfalls weitere Reaktoren untersucht, für die dieses Verhältnis nicht direkt gemessen wurde, allerdings die Messdaten für sowohl ^{241}Am als auch ^{243}Am vorliegen. Aus diesen Daten wurden die Messproben ausgewählt, für die beide Konzentrationen vorliegen, ihr Verhältnis bestimmt und dieses gegen den Abbrand aufgetragen. In der Vergleichsabbildung für alle Reaktoren ist eine deutliche Streuung um bis zu fünf Größenordnungen zu erkennen. Der RBMK Reaktor verzeichnet dabei das größte Verhältnis von bis zu 2000. Die meisten Verhältnisse liegen allerdings unterhalb von 1. Dennoch liegen ein nicht zu vernachlässigender Teil an Werten oberhalb dieser Grenze, wodurch sich ebenfalls kein charakteristischer Verlauf für die Verhältnisse erkennen lässt, aus dem ein entsprechendes Verhalten abzuleiten ist. Dies kann an der hohen Streuung der Americiummesswerte und der damit verbundenen hohen Ungenauigkeit liegen.

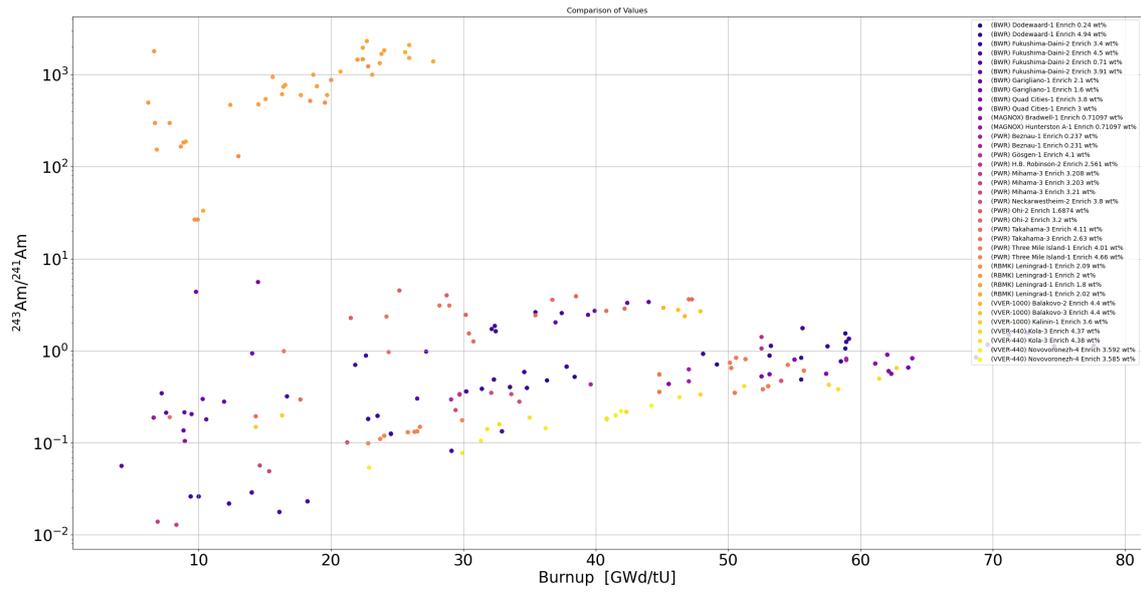


Abbildung 74: Berechnetes $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ -Verhältnis aus den Messdaten für verschiedene Reaktoren.

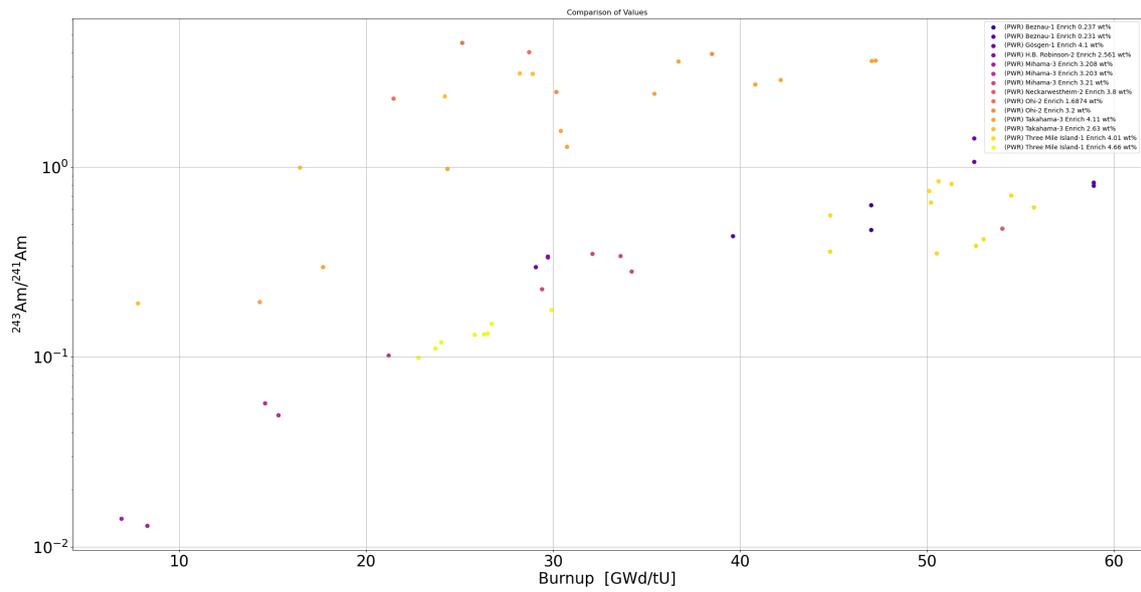


Abbildung 75: Berechnetes $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ -Verhältnis aus den Messdaten für DWR Reaktoren.

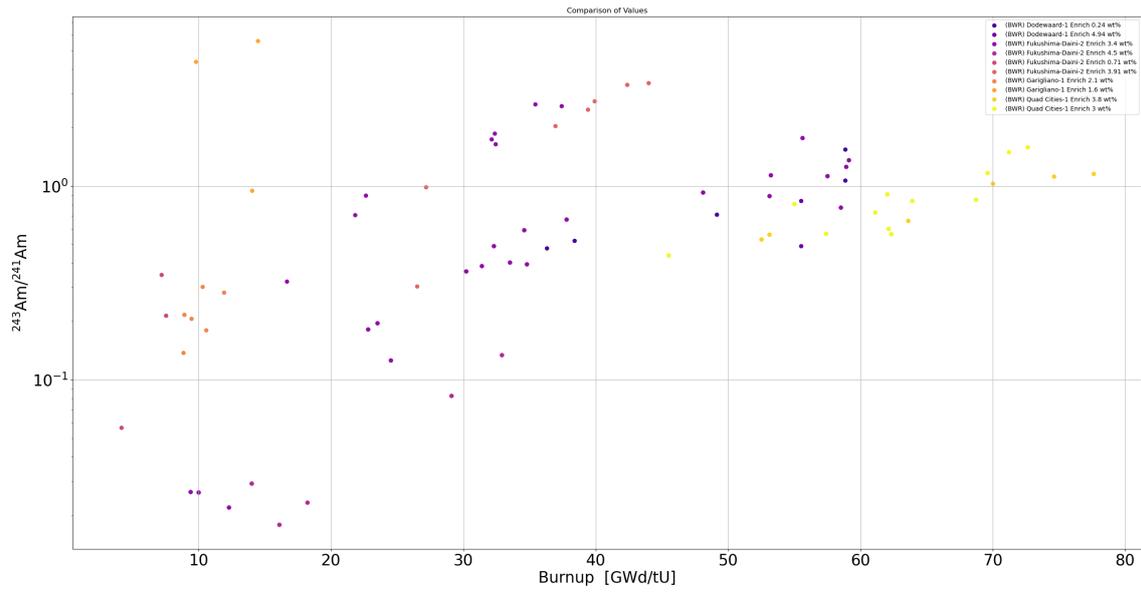


Abbildung 76: Berechnetes $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ -Verhältnis aus den Messdaten für SWR Reaktoren.

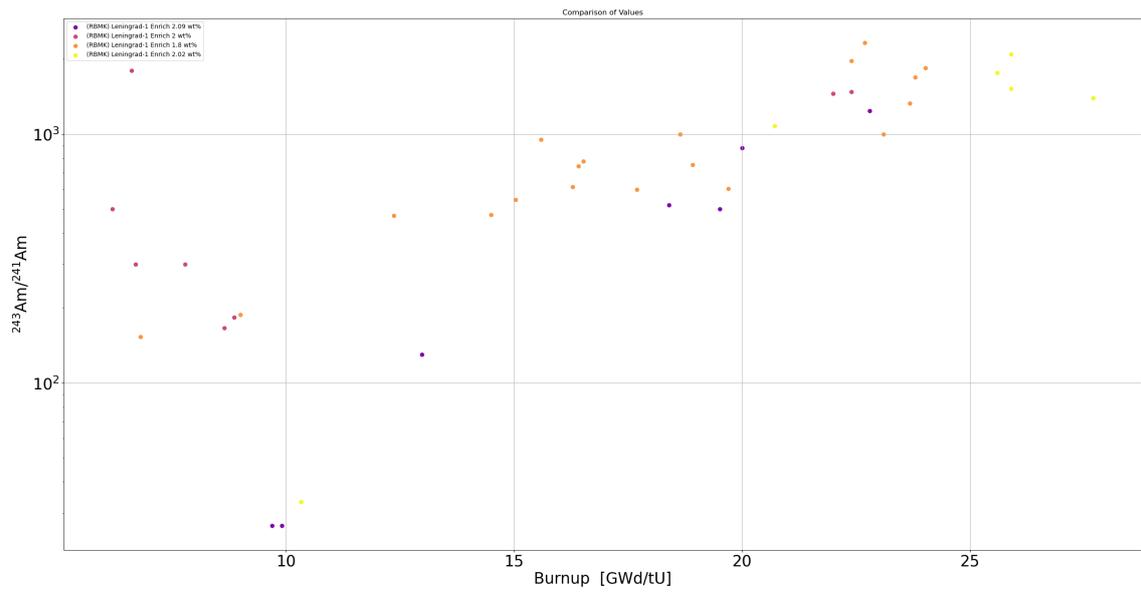


Abbildung 77: Berechnetes $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ -Verhältnis aus den Messdaten für RBMK Reaktoren.

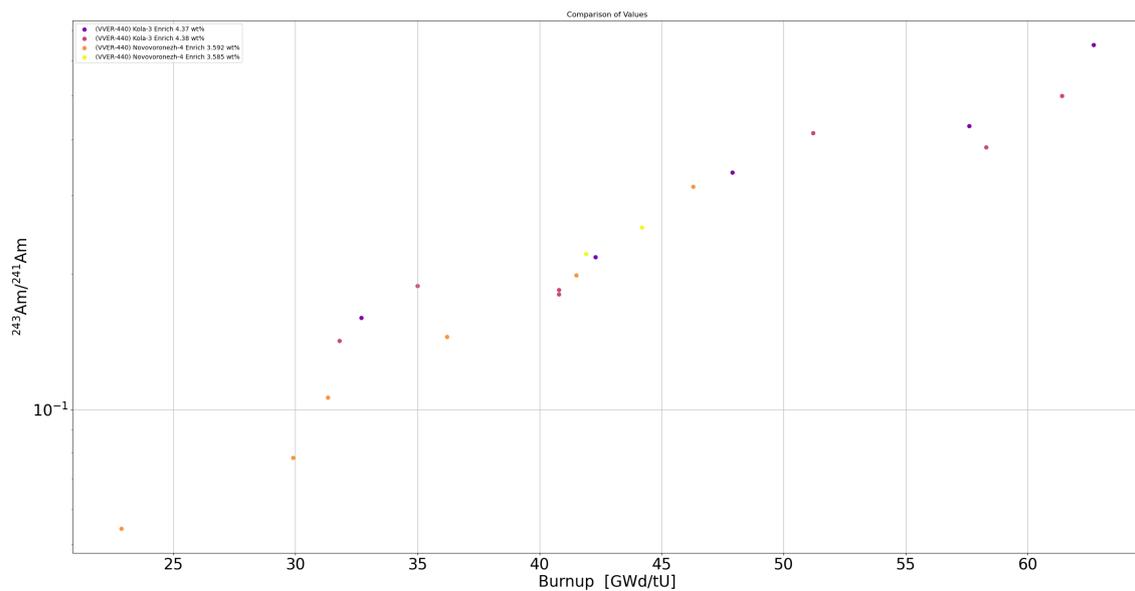


Abbildung 78: Berechnetes $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ -Verhältnis aus den Messdaten für WWER-440 Reaktoren.

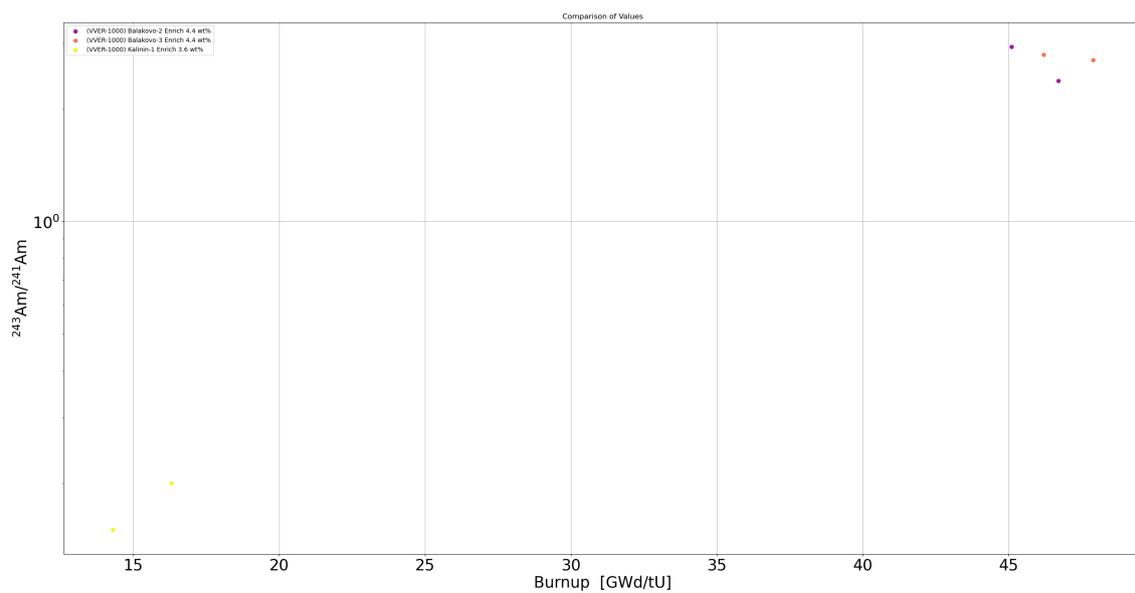


Abbildung 79: $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ -Verhältnis aus den Messdaten für WWER-1000 Reaktoren.

D.2 ^{242m}AM IN DEN MESSDATEN

Hier sind noch die Verhältnissplots von $^{242m}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ mit eigenen Farben für jeden Reaktor und weitere Verhältnisse.

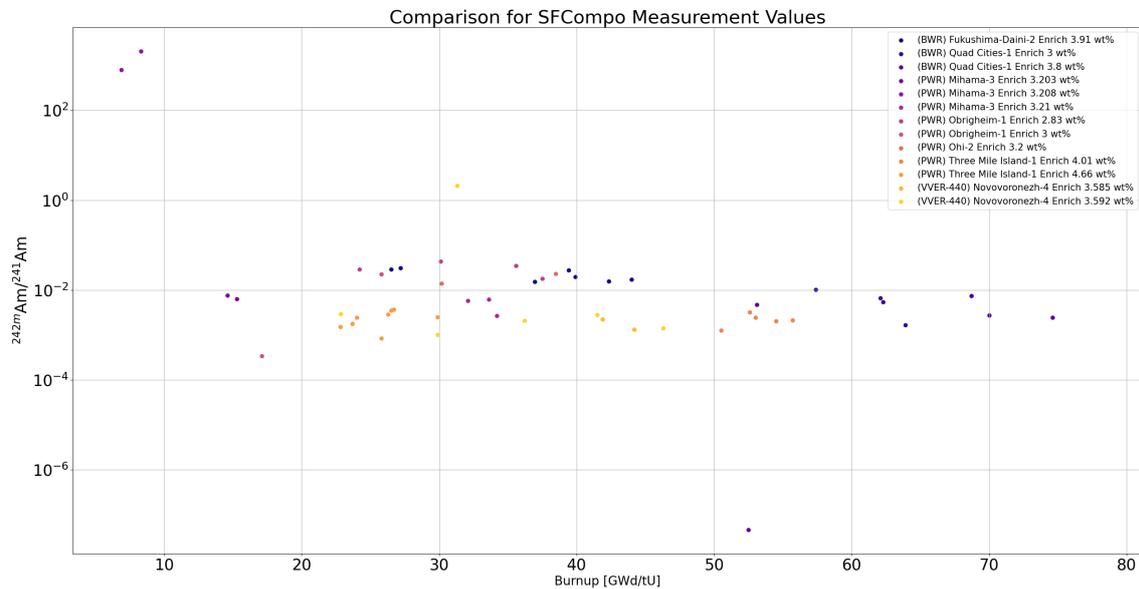


Abbildung 80: Berechnetes $^{242m}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ -Verhältnis gegen den Abbrand für verschiedene Reaktoren.

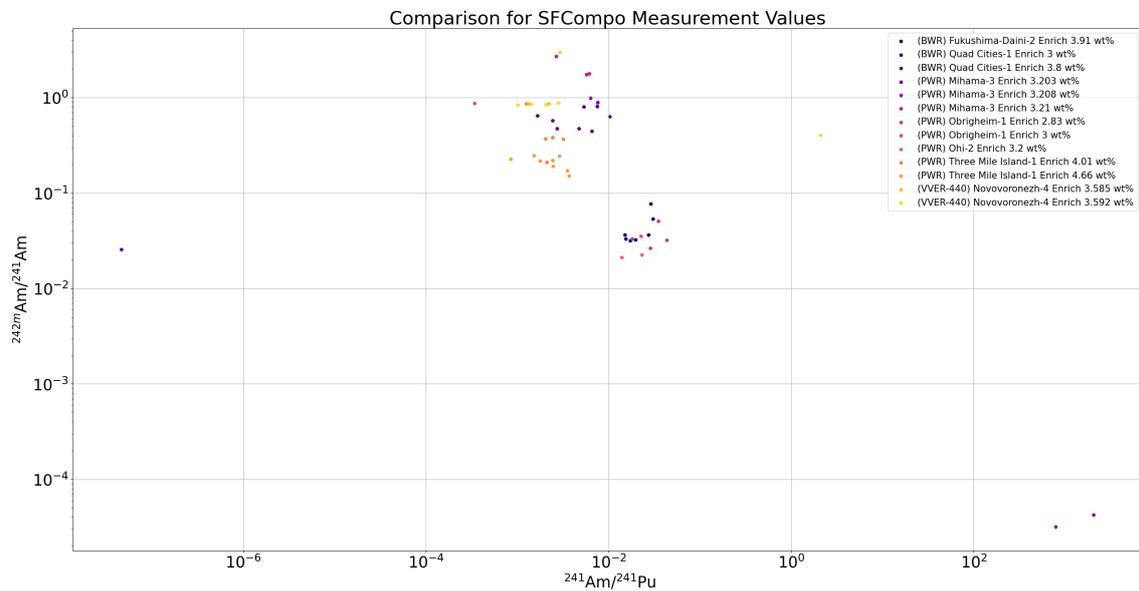


Abbildung 81: Berechnetes $^{242m}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ -Verhältnis gegen das Verhältnis $^{241}\text{Am}/^{241}\text{Pu}$.

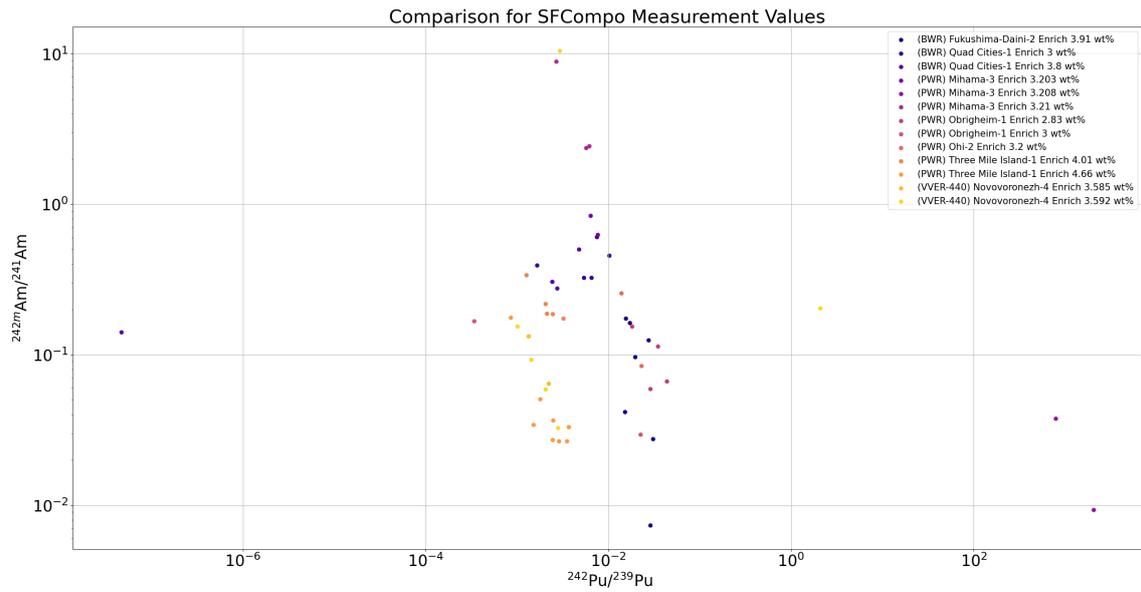


Abbildung 82: Berechnetes $^{242m}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ -Verhältnis gegen das Verhältnis $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$.

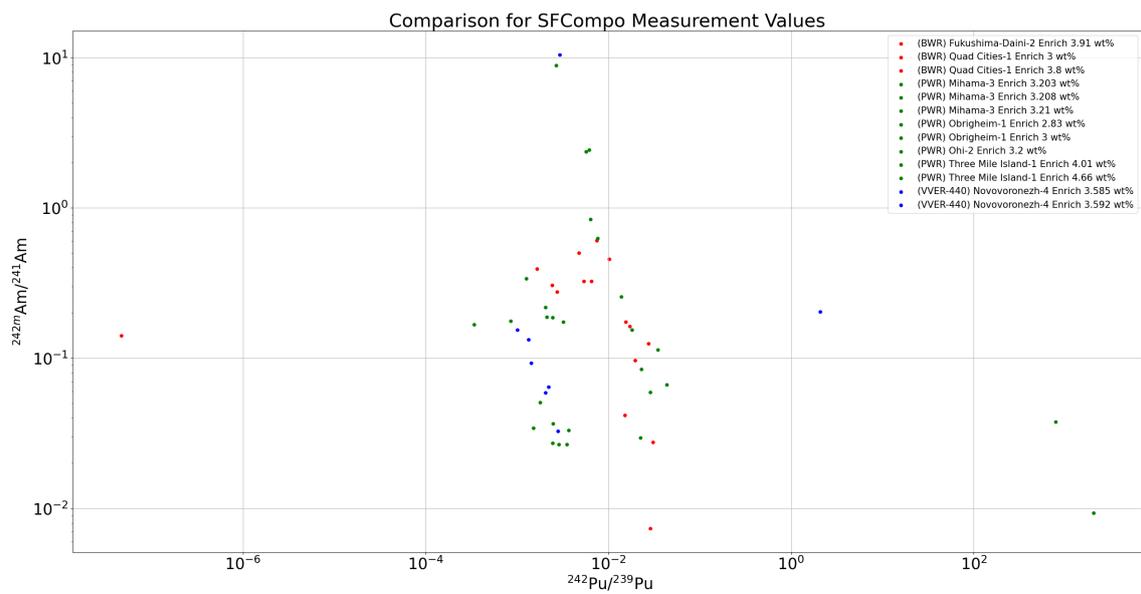


Abbildung 83: Berechnetes $^{242m}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ -Verhältnis gegen das Verhältnis $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$.

Selbstständigkeitserklärung

Hiermit versichere ich, dass ich diese Arbeit selbstständig verfasst und keine weiteren als die angegebenen Hilfsmittel verwendet habe. Insbesondere versichere ich, dass ich alle wörtlichen und sinngemäßen Übernahmen aus anderen Werken als solche kenntlich gemacht habe. Die Prüfungsleistung wurde bisher keiner anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Hannover, den

David Ohm