

**Rechnungen zum  
Nuklidinventar für die  
Durchführung der reprä-  
sentativen vorläufigen  
Sicherheitsuntersuchun-  
gen (rvSU) im Rahmen  
des Standortauswahl-  
verfahrens**

Rechnungen zum Nuklidinventar für die Durchführung der repräsentativen vorläufigen Sicherheitsuntersuchungen (rvSU) im Rahmen des Standortauswahlverfahrens



Februar 2023  
TEKVG3T-20-01-AGS

Rechnungen zum Nuklidinventar für die Durchführung der repräsentativen vorläufigen Sicherheitsuntersuchungen (rvSU) im Rahmen des Standortauswahlverfahrens

**Impressum:**

Auftraggeber: Bundesgesellschaft für Endlagerung mbH (BGE)  
Eschenstraße 55  
31224 Peine  
Telefon: 05171 43-0  
Telefax: 05171 43-1218  
Internet: [www.bge.de](http://www.bge.de)

Ersteller:

  
Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit gGmbH  
Boltzmannstraße 14  
85748 Garching  
Internet: [www.grs.de](http://www.grs.de)

04.07.2023

Datum und Unterschrift (Ersteller)

04.07.2023

Datum Unterschrift (Prüfer)

Dieser Bericht ist im Rahmen einer Beauftragung durch die BGE entstanden. Die BGE behält sich vor, sich die Inhalte dieses Berichts ganz oder in Teilen zu eigen zu machen.

## **Deskriptoren**

Abbrandberechnung, Nuklidinventar, Standortauswahl, Zerfallsleistung, Neutronenfluss

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung .....</b>	<b>2</b>
<b>2</b>	<b>Nuklidinventarberechnungen .....</b>	<b>4</b>
2.1	Verwendete Simulationssoftware .....	4
2.2	Berechnete Nuklidinventardaten .....	5
2.2.1	Beschreibung der DWR-Rechnungen .....	7
2.2.2	Beschreibung der SWR-Rechnungen .....	12
2.3	Validierung.....	16
2.3.1	Nachbestrahlungsanalyseproben.....	18
2.3.2	Kalorimetrische Messungen der Zerfallsleistung .....	24
2.3.3	Vergleich der Rechenergebnisse mit SCALE 6.2.4 .....	29
<b>3</b>	<b>Einfluss induzierter Spaltungen während der Lagerzeit.....</b>	<b>35</b>
3.1	Quelltermberechnung .....	36
3.2	Neutronenfluss- und Wirkungsquerschnittsberechnung .....	38
3.3	Abbrandrechnung und Vergleich der Nuklidinventare .....	41
<b>4</b>	<b>Zusammenfassung .....</b>	<b>45</b>
	<b>Literaturverzeichnis.....</b>	<b>47</b>
	<b>Abbildungsverzeichnis.....</b>	<b>53</b>
	<b>Tabellenverzeichnis.....</b>	<b>55</b>
	<b>Abkürzungsverzeichnis.....</b>	<b>56</b>

# 1 Einleitung

Im Zusammenhang mit der Standortauswahl eines Endlagers für hochradioaktive Abfälle gemäß Standortauswahlgesetz (StandAG) sind vorläufige Sicherheitsuntersuchungen (vSU) durchzuführen, in denen die Sicherheit und Robustheit möglicher Standorte nachgewiesen werden müssen. Dies umfasst insbesondere auch eine Prüfung des sicheren Nuklideinschlusses für den Bewertungszeitraum von einer Million Jahre. Eine der Voraussetzungen für eine solche Prüfung ist die Kenntnis wesentlicher Eigenschaften der einzulagernden Abfälle. Dies betrifft unter anderem das Nuklidinventar, das heißt die nuklidweise Zusammensetzung hinsichtlich Masse und Aktivität, und daraus abgeleitete Größen wie die Zerfallswärmeleistung der Abfälle. Neben der direkten Anwendung für die Sicherheitsanalyse des potentiellen Endlagers sind diese Daten auch wesentlich für die Entwicklung von Endlagerbehältern. Daher werden die entsprechenden Daten einerseits für den Zeitpunkt der geplanten Einlagerung und andererseits deren zeitliche Entwicklung über den gesamten Betrachtungszeitraum benötigt.

Aktuell stehen die konkreten Inventardaten der einzulagernden Abfälle noch nicht zur Verfügung. Daher werden zunächst repräsentative Inventardaten anhand von Abbrandrechnungen ermittelt, um diese in den Berechnungsmodellen für den Nuklidtransport im Endlager und für die Behälterentwicklung bereits jetzt zur Verfügung zu haben. Dabei decken diese generischen Inventardaten das Spektrum der Einsatzbedingungen der in den Zwischenlagern vorhandenen bestrahlten Brennelemente weitmöglichst ab.

Entsprechende Daten wurden bereits früher im Rahmen der Vorläufigen Sicherheitsanalyse Gorleben (VSG) anhand des damaligen Kenntnisstandes ermittelt und veröffentlicht (Peiffer et al. 2011). Im Vergleich zum damaligen Zeitpunkt der Datenerfassung der VSG haben sich in der Zwischenzeit mehrere Änderungen in der Charakteristik der angefallenen Abfälle ergeben. Beispielsweise wurden in den letzten Jahren in den Kraftwerken zunehmend höhere Abbrände gefahren, d. h. die Brennelemente wurden über einen längeren Zeitraum im Reaktorkern verwendet, und es wurde eine größere Energiemenge pro Brennelement gewonnen. Um dieser Tatsache Rechnung zu tragen und auch um aktuelle Entwicklungen hinsichtlich der verwendeten Simulationswerkzeuge und der zugrundeliegenden Datenbasis zu berücksichtigen, hat die BGE die GRS beauftragt, einen neuen Satz von Nuklidinventardaten zu berechnen und diesen der BGE zur Verfügung zu stellen.

Im vorliegenden Bericht sind die dazu durchgeführten Berechnungen dokumentiert. Dies umfasst eine Beschreibung der verwendeten Modellannahmen sowie der verwendeten Berechnungsmethoden und deren Validierung. Weiterhin wird der mit der BGE im Rahmen des Vorhabens abgestimmte Satz an Eingangsparametern beschrieben und ein Überblick über die Ergebnisse gegeben.

Für die Berechnung der zeitlichen Entwicklung des Nuklidinventars während der Lagerung im Zwischenlager und nachfolgend im geplanten Endlager wird üblicherweise davon ausgegangen, dass hierfür ausschließlich eine Verfolgung der radioaktiven Zerfälle der instabilen Nuklide erforderlich ist. Dabei werden meist keine induzierten Spaltungen mehr betrachtet, die das Spaltproduktinventar im Langzeitverlauf noch beeinflussen könnten. Dies ist insofern eine Näherung, als dass durch Zerfallsprozesse über Spontanspaltungen einiger höherer Aktinoide sowie durch  $(\alpha, n)$ -Reaktionen in der Brennstoffmatrix weitere Neutronen entstehen, die potentiell auch wieder weitere Kernreaktionen wie z. B. Spaltungen oder Neutroneneinfang induzieren können. Aufgrund der Unterkritikalität bei der Lagerung treten diese Prozesse mit einer deutlich geringeren Häufigkeit auf als während des Reaktorbetriebs, so dass sich die Frage nach der Signifikanz dieser Prozesse stellt. Ein weiterer Schwerpunkt dieses Vorhabens befasst sich deshalb mit der quantitativen Abschätzung und Beurteilung dieses Beitrags im Gesamtzusammenhang.

## 2 Nuklidinventarberechnungen

Die zeitliche Entwicklung der nuklidweisen Zusammensetzung von Kernbrennstoffen unter Neutronenbestrahlung im Kernkraftwerk wird numerisch durch die sogenannten Bateman-Gleichungen beschrieben. Hierbei handelt es sich um ein System von Raten-gleichungen, die die Umwandlung zwischen den im Material enthaltenen Nukliden aufgrund von Neutronenreaktionen einerseits – Spaltung, Neutroneneinfang und weiteren Reaktionen – und Zerfallsprozessen andererseits beschreibt. Während es sich bei den Zerfallsraten um Naturkonstanten handelt, ist es für die Bestimmung der Raten für die Neutronenreaktionen erforderlich, den Neutronenfluss im betrachteten Material orts- und zeitaufgelöst zu kennen. Hierfür wird eine Lösung der Boltzmannschen Transportgleichung mithilfe eines sogenannten Neutronentransportprogramms genutzt. Da eine Änderung im Nuklidinventar wiederum eine Änderung des Neutronenflusses zu Folge hat, wird die gesamte Berechnung iterativ durchgeführt: Zunächst wird der Neutronenfluss berechnet, mit diesem wird die Änderung des Nuklidinventars über einen Zeitschritt bestimmt, und dieses geht dann wieder in eine erneute Flussberechnung ein. Der Prozess wird so lange wiederholt, bis der Zielabbrand erreicht ist. Dieses Berechnungsverfahren wird auch als Abbrandberechnung bezeichnet, und dient der rechnerischen Ermittlung von Massen und Aktivitäten der einzelnen Konstituenten, sowie daraus abgeleiteter Größen wie der Nachzerfallsleistung oder von Strahlungsquelltermen.

### 2.1 Verwendete Simulationssoftware

Für die im Vorhaben durchgeführten Abbrandrechnungen wurde das in der GRS entwickelte Programm MOTIVE (Hannstein et al. 2017) verwendet. Dieses Programm wurde im Rahmen mehrerer BMWi-geförderter Forschungsvorhaben entwickelt, und ersetzt das vorher in der GRS eingesetzte Programmsystem OREST/KENOREST (Hesse et al. November 1986) mit dem die im Rahmen der VSG zusammengestellten Inventardaten berechnet wurden. MOTIVE stellt eine modulare Kopplung externer Programme zur Neutronenflussberechnung und zur Nuklidinventarberechnung bereit. Für die Neutronenflussberechnung können zum derzeitigen Zeitpunkt einerseits das Programm KENO-VI aus dem SCALE-Paket (Rearden & Jessee März 2018) oder das Programm OpenMC (Romano et al. 2015) verwendet werden. Bei letzterem handelt es sich um einen Open Source Code, der aus einer Entwicklung am MIT hervorgegangen ist und aktuell von Entwicklern verschiedener amerikanischer National Laboratories weiterentwickelt wird.

Bei beiden Programmen handelt es sich um Monte Carlo-Verfahren mit Wirkungsquerschnittsdaten in kontinuierlicher Energiedarstellung (*Continuous Energy Monte Carlo Codes*). Diese Klasse von Programmen zeichnen sich durch eine weitgehend näherungsweise geometrische Modellierung und Energieauflösung aus.

Für die Nuklidinventarberechnung wird im Programmsystem MOTIVE der Code VENTINA verwendet, den die GRS in Zusammenarbeit mit dem schweizerischen Paul-Scherer-Institut (PSI) entwickelt (Behler et al. 2018; Mala 2018). Dieses Programm bietet verschiedene Lösungsverfahren zur Lösung der Bateman-Gleichungen, insbesondere auch die CRAM-Methode (Pusa & Leppänen 2010; Pusa 2011). Diese hat sich aufgrund ihrer Effizienz und Genauigkeit in den letzten Jahren als Standardverfahren etabliert, und bietet flexible Möglichkeiten zur Auswahl der eingesetzten Datenbibliotheken und des verwendeten Nuklidumfangs.

MOTIVE ermöglicht eine exakte zwei- oder dreidimensionale geometrische Modellierung der zu simulierenden Brennelemente und bietet die Möglichkeit zwischen verschiedenen aktuellen nuklearen Datenevaluationen auszuwählen. Es wird jeweils der volle Satz, der in der jeweiligen Zerfallsdatenbank der verwendeten Datenevaluation berücksichtigten Nuklide verwendet. Für die vorliegenden Berechnungen wurde OpenMC für die Neutronenflussberechnung gewählt. Die Rechnungen wurden mit der Programmversion v1.0.8 durchgeführt.

## **2.2 Berechnete Nuklidinventardaten**

Die für die Nuklidinventar-Berechnungen verwendeten Brennelementmodelle orientieren sich an den in (Hesse & Hummelsheim 2001) definierten Modellen. Für die DWR-Rechnungen wurde dementsprechend ein Brennelement der Geometrie  $16 \times 16 \times 20$  ausgewählt, für die SWR-Rechnungen kommt das Modell eines Atrium-10-Brennelements zum Einsatz. Die genauen Randbedingungen für die Brennelemente sind in den Unterkapiteln 2.2.1 und 2.2.2 näher beschrieben.

Ein Ziel der Definition der Rechenfälle war eine möglichst umfassende Abdeckung des in Deutschland existierenden und noch zu erwartenden Inventars an zwischengelagerten bestrahlten Brennelementen in Hinblick auf Anfangsanreicherungen und Entladeabbrände. Dabei waren sowohl Brennelemente mit Uranoxid-Brennstoff als auch mit MOX-Brennstoff zu berücksichtigen. Die genauen Parameter wurden mit der BGE abgestimmt und sind in Tabelle 2.11 zusammengefasst.

Für die Definition der MOX-Vektoren, also der nuklidweisen Zusammensetzung des Uran-Plutoniumgemischs, wurde auf die Maximalwerte der Aufbewahrungsgenehmigungen verschiedener Zwischenlager zurückgegriffen (Bundesamt für Strahlenschutz 2003; Bundesamt für Strahlenschutz 2015). Die verwendeten MOX-Vektoren sind in Tabelle 2.2 dargestellt.

Weiterhin waren die Abklingschritte für die Zerfallsrechnungen nach dem Entladen aus dem Reaktor zu definieren. Diese sind einheitlich für alle Rechnungen definiert und in Tabelle 2.3 zu finden. Die Abklingschritte sind so gewählt, dass der Zeitraum von 0 bis 1 Millionen Jahre in der jeweils benötigten zeitlichen Auflösung berücksichtigt ist.

Neben dem Aufbau von Spaltprodukten und Aktinoiden durch Spaltung bzw. Neutroneneinfang und weiteren Neutronenreaktionen in den Uran- und Sauerstoff-Isotopen des Brennstoffs (bei MOX-Brennstoff zusätzlich der Plutonium-Isotope) können radiologisch relevante Nuklide auch durch die Aktivierung von Verunreinigungen im Brennstoff auftreten. Aufgrund fehlender realistischer Daten zu typischen Konzentrationen von Verunreinigungen wurde in Abstimmung mit der BGE bei den vorliegenden Rechnungen auf eine Berücksichtigung dieses Effekts verzichtet.

**Tabelle 2.1** Zusammenstellung der Parametersätze der berechneten Inventardaten

<b>DWR – Brennelement (16x16-20)</b>		
Anfangsanreicherung [Gew. %]	Zielabbrand [GWd/tSM]	
3,1	10, 20, 30, 45	
4,6	50, 60, 70	
MOX 4,75 (Pu-fiss)	50, 60, 70	
<b>SWR – Brennelement (Atrium-10)</b>		
Anfangsanreicherung [Gew. %]	Zielabbrand [GWd/tSM]	Dampfblasengehalt [%]
3,1	10, 20, 30, 45	0, 40, 70
4,6	45, 55, 65	0, 40, 70
MOX 5,06 (Pu-fiss)	45, 55, 65	0, 40, 70

**Tabelle 2.2** In den Inventarberechnungen verwendeter MOX-Vektor (berechnet nach (Gauld 2003))

[Gew.-%]	U-238	U-235	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242
DWR	93,23	0,67	4,16	1,06	0,59	0,29
SWR	92,83	0,67	4,43	1,13	0,63	0,31

**Tabelle 2.3** Auflistung der in den Rechnungen verwendeten Abklingschritte

Zeitschritte [Jahre]
5, 10, 15, 20, 25, 30, 35, 40, 45, 50, 55, 60, 65, 70, 75, 80, 85, 90, 95, 100,
105, 110, 115, 120, 15, 130, 140, 150, 160, 180, 200,
220, 240, 260, 280, 300, 350, 400, 450, 500, 600, 700, 800, 1000
2000, 5000, $10^4$ , $2 \cdot 10^4$ , $5 \cdot 10^4$ , $10^5$ , $2 \cdot 10^5$ , $5 \cdot 10^5$ , $10^6$

### 2.2.1 Beschreibung der DWR-Rechnungen

In Tabelle 2.4 sind die wesentlichen Eigenschaften des für die Berechnungen verwendeten Brennelements wiedergegeben. Die Modellierung orientiert sich an dem in (Hesse & Hummelsheim 2001) verwendeten Brennelementmodell. Anhand der in Tabelle 2.4 definierten spezifischen Leistung wurden für die verschiedenen zu berechnenden Zielabbrände einfache Leistungsgeschichten definiert, bei denen sich jeweils ein Zyklus über 250 Tage mit konstanter Leistung und eine Revisionszeit von 30 Tagen abwechseln. Für den Fall mit 45 GWd/tSM Zielabbrand ist der letzte Zyklus entsprechend verkürzt, um den Zielabbrand zu treffen. Zur Übersicht sind die Leistungsgeschichtedaten in Tabelle 2.5 dargestellt. Die Längen der Zyklen wurden aus Praktikabilitätsgründen gewählt und entsprechen nicht den typischen Zykluslängen in deutschen Anlagen. Dies kann indirekt über die sich dadurch ergebende spezifische Leistung einen gewissen Einfluss auf das Inventar haben, da die Konzentration kurzlebiger Nuklide proportional zum Neutronenfluss ist. Die Zykluslänge selbst spielt in diesem Hinblick eine untergeordnete Rolle. Im vorliegenden Fall ist die verwendete spezifische Leistung von 40 W/gSM etwa 10 % höher als der in (Hesse & Hummelsheim 2001) angesetzte Wert, liegt aber noch im Rahmen üblicher Leistungen. Im Hinblick auf die Inventare ist dies nur für kurze Abklingzeiten relevant, und spielt für die hier betrachteten Zeiträume ab ca. 40 Jahre Abklingzeit keine wesentliche Rolle.

Das Geometriemodell des DWR-Brennelements vom Gittertyp 16x16-20 ist in Abbildung 2.1 dargestellt. Für die Rechnung wurde ein effektiv zweidimensionales Modell verwendet, d. h. es wurde ein axial 10 cm hoher Brennelementabschnitt mit periodischen

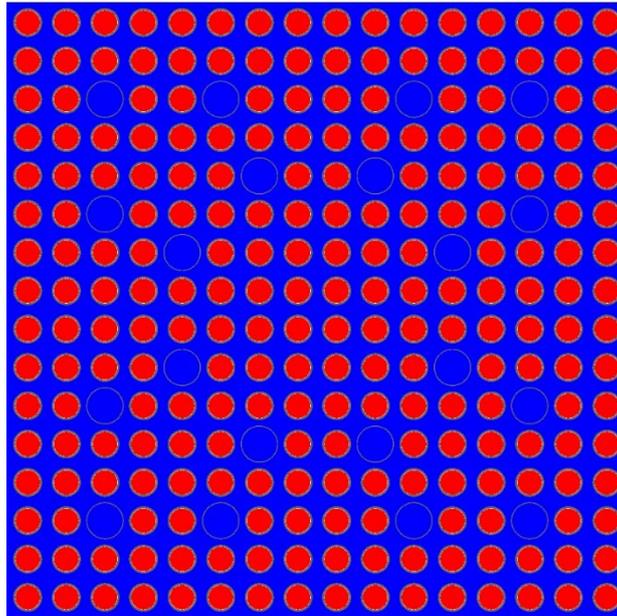
Randbedingungen modelliert. Die reale axiale Leistungsverteilung wurde somit vernachlässigt. Wie zum Beispiel in (Kromar & Godfrey 2022) gezeigt, kann dies für Abklingzeiten bis etwa 80 Jahre zu einer geringfügigen Unterschätzung der Nachzerfallsleistung im Bereich  $< 1\%$  führen, für längere Abklingzeiten auch zu einer Überschätzung. Das genaue zeitliche Verhalten der Differenz zwischen axial aufgelöster und gemittelter Modellierung hängt vom Brennstoff, der Brennelementgeometrie und den Bestrahlungsbedingungen ab, so dass allgemeingültige Aussagen hierzu schwierig zu treffen sind. Im Modell wurden alle Stäbe mit der gleichen Anfangsanreicherung modelliert. Allerdings wurden für die Abbrandrechnung die Stäbe in drei Gruppen zusammengefasst, die jeweils separat abgebrannt wurden. Die erste Gruppe umfasst die vier Eckstäbe, die zweite die übrigen randständigen Stäbe und die dritte alle übrigen Stäbe. Für die Ergebnisse wurden die drei Einzelresultate entsprechend ihrer Häufigkeit gewichtet gemittelt, so dass sich ein Datensatz für das Brennelement ergab. Es wurde jeweils ein Brennelement mit reflektierenden Randbedingungen simuliert.

**Tabelle 2.4** Wesentliche Eigenschaften des Modells für das DWR-Brennelement gemäß (Hesse & Hummelsheim 2001)

<b>Eigenschaften DWR-Brennelement</b>	
Brennelement-Typ	16x16-20
Kühlmitteldruck [bar]	158
Kühlmitteltemperatur [K]	573
Brennelement-Außendurchmesser [cm]	23,0
Brennstofftemperatur [K]	900
Brennstoffdichte [g/cm <sup>3</sup> ]	10,4
Stabgitterweite [cm]	1,43
Pelletradius [cm]	0,454
Cladding-Innenradius [cm]	0,465
Cladding-Außenradius [cm]	0,5375
Innendurchmesser Steuerstabführungsrohr	0,6515
Außendurchmesser Steuerstabführungsrohr	0,6945
Cladding-Material	Zr-4
Dichte Cladding [g/cm <sup>3</sup> ]	6,56
Borkonzentration [ppm]	500
Spezifische Leistung [W/gSM]	40

**Tabelle 2.5** Modellierte Leistungsgeschichte für die DWR Rechenfälle

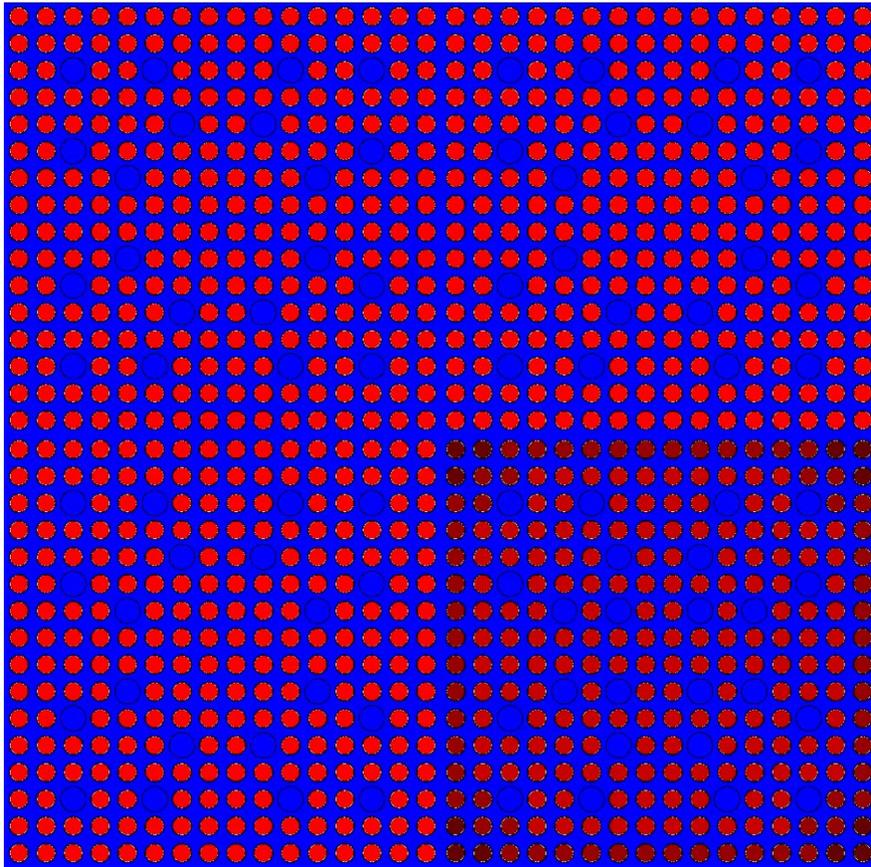
<b>Leistung (%)</b>	<b>100</b>	<b>0</b>	<b>100</b>	<b>0</b>	<b>100</b>	<b>0</b>	<b>100</b>	<b>0</b>	<b>100</b>	<b>0</b>	<b>100</b>	<b>0</b>	<b>100</b>
Zielabbrand	Zeit [Tage]												
10 GWd/tSM	250	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
20 GWd/tSM	250	30	250	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
30 GWd/tSM	250	30	250	30	250	-	-	-	-	-	-	-	-
45 GWd/tSM	250	30	250	30	250	30	125	-	-	-	-	-	-
50 GWd/tSM	250	30	250	30	250	30	250	30	250	-	-	-	-
60 GWd/tSM	250	30	250	30	250	30	250	30	250	30	250	-	-
70 GWd/tSM	250	30	250	30	250	30	250	30	250	30	250	30	250



**Abbildung 2.1** Geometriemodell des DWR-UO<sub>2</sub>-Brennelements

Für die geometrische Modellierung des MOX-Brennelements wurde dem typischen Einsatzszenario Rechnung getragen, bei dem ein MOX-Brennelement von UO<sub>2</sub>-Brennelementen umgeben ist. Eine solche Situation wurde im Modell dadurch erreicht, dass eine 2 × 2 Anordnung von Brennelementen mit periodischen Randbedingungen modelliert wurde. Dabei repräsentiert ein Brennelement das abzubrennende MOX-Brennelement, und die anderen drei sind UO<sub>2</sub>-Brennelemente mit einer konstanten Brennstoffzusammensetzung entsprechend einem mittleren Abbrand von 30 GWd/tSM bei einer Anfangsanreicherung von 4,6 Gew.% <sup>235</sup>U. Die UO<sub>2</sub>-Brennelemente wurden während dieser Rechnung unverändert gelassen, also nicht abgebrannt. Aufgrund der periodischen Randbedingungen entspricht diese Anordnung einem unendlichen Brennelementgitter, bei dem jedes MOX-Brennelement nach allen Seiten hin von einer Reihe von UO<sub>2</sub>-Brennelementen umgeben ist.

Das MOX-Brennelement selbst wurde mit drei Stabsorten unterschiedlicher Plutoniumgehalte modelliert, wie sie typischerweise bei MOX-Brennelementen verwendet werden, siehe auch (Mertyurek & Gauld 2016). Diese sind in Abbildung 2.2 mit unterschiedlichen Farben dargestellt. Die äußeren Stäbe haben dabei einen geringeren Plutoniumgehalt als die Stäbe in der Mitte des Brennelements und die Anteile wurden so skaliert, dass sich im Mittel der in Tabelle 2.2 genannte Plutonium-Vektor ergibt. Die einzelnen Plutoniumgehalte sind in Tabelle 2.6 angegeben.



**Abbildung 2.2** Geometriemodell für die Abbrandrechnungen zum MOX-Brennelement. Anordnung mit drei  $\text{UO}_2$ - und einem MOX-Brennelement (rechts unten) mit periodischen Randbedingungen. Die im Text beschriebenen drei Stabsorten mit unterschiedlichem Pu-Gehalt sind in verschiedenen Rot-tönen dargestellt.

**Tabelle 2.6** Plutoniumgehalte für die verschiedenen Stabsorten des DWR MOX-Brennelements. Die in (Mertyurek & Gauld 2016) angegebenen relativen Pu-Gehalte wurden dafür so skaliert, dass sich im Mittel der in Tabelle 2.2 angegebene Wert ergibt

	Stab 1 (Ecke)	Stab 2 (Rand)	Stab 3 (innen)
Anzahl Stäbe	12	60	160
Plutoniumgehalt [Gew.%]	4,88	5,49	6,42025

## 2.2.2 Beschreibung der SWR-Rechnungen

In Tabelle 2.7 sind die wesentlichen Eigenschaften des für die Berechnungen verwendeten Brennelements wiedergegeben. Die Daten entsprechen einem typischen Atrium-10-Brennelement wie sie zum Beispiel in (OECD & Nuclear Energy Agency 2003) angegeben sind.

**Tabelle 2.7** Wesentliche Eigenschaften des SWR-Brennelement-Modells gemäß (OECD & Nuclear Energy Agency 2003)

<b>Eigenschaften SWR-Brennelement</b>	
Brennelement-Typ	Atrium-10
Kühlmitteldruck [bar]	70
Kühlmitteltemperatur [K]	553
Brennelement-Außendurchmesser [cm]	15,25
Brennstofftemperatur [K]	900
Brennstoffdichte [g/cm <sup>3</sup> ]	10,4
Stabgitterweite [cm]	1,295
Pelletradius [cm]	0,4335
Cladding-Innenradius [cm]	0,442
Cladding-Außenradius [cm]	0,5025
Cladding-Material	Zr-4
Wasserkasten-Außendurchmesser [cm]	13,82
Wandstärke Wasserkasten [cm]	0,0725
Material Wasserkasten	Zr-4
Dichte Zr-4 [g/cm <sup>3</sup> ]	6,56
Spezifische Leistung [W/g]	25

Wie für das DWR-Brennelement wurden anhand der in Tabelle 2.7 angegebenen spezifischen Leistung für das SWR-Brennelement einfache Leistungsgeschichten postuliert, um die jeweilige Zielabbrände zu erhalten. Die Einzelheiten der Leistungsgeschichtedaten sind in Tabelle 2.8 angegeben. Wie bereits oben erwähnt wurden zu jedem Zielabbrand drei Rechnungen mit den Dampfblasengehalten 0, 40 und 70 % durchgeführt, um die axiale Variation der Moderatorerdichte beim SWR abzubilden.

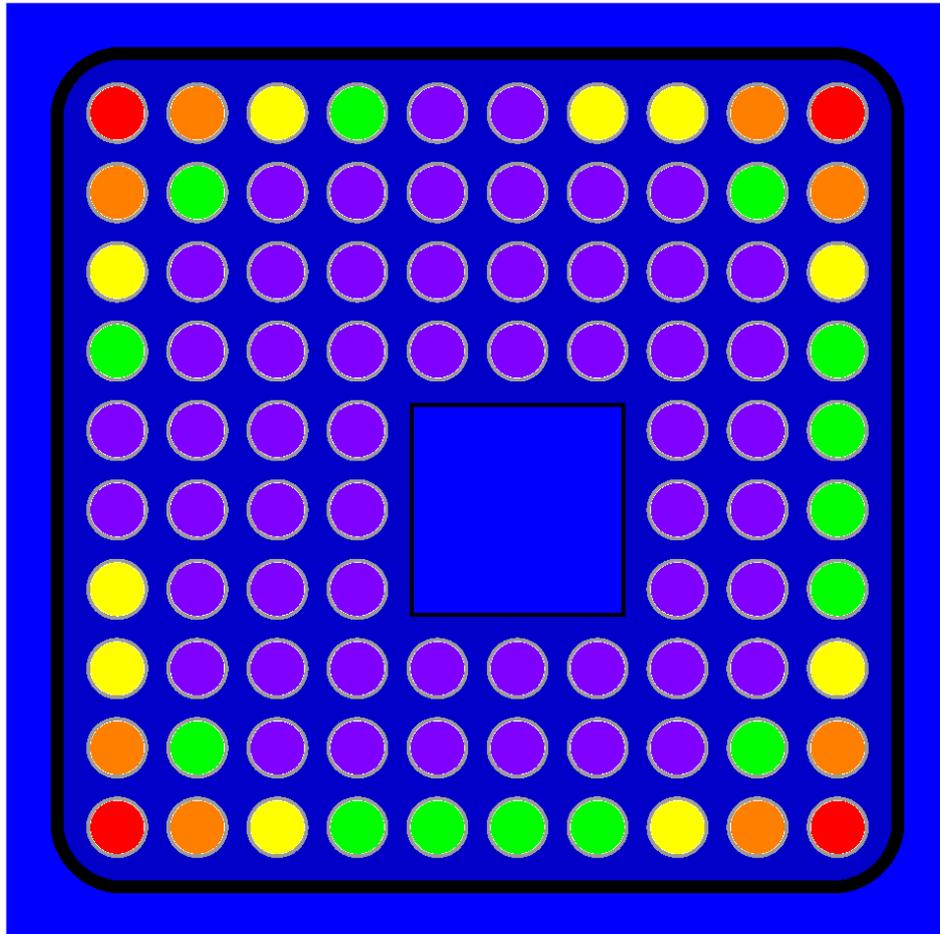
Um der heterogeneren Leistungsverteilung im SWR-Brennelement und den daran angepassten typischen Brennelementdesigns Rechnung zu tragen, wurden fünf verschiedene Stabgruppen mit unterschiedlichen Anfangsanreicherungen so definiert, dass im

Mittel die vorgesehene Anfangsanreicherung von 4,6 Gew.% bzw. 3,1 Gew.%  $^{235}\text{U}$  erreicht wurde. Dabei wurde auf das in (Marotte et al. 2006) dargestellte Atrium-10-Brennelementdesign zurückgegriffen, wobei die dort angegebenen Anreicherungen unter Verwendung eines globalen Skalierungsfaktors und unter Verzicht auf gadoliniumhaltige Brennstäbe auf den vorliegenden Fall angepasst wurden. Die verwendeten Anfangsanreicherungen sind in Tabelle 2.9 angegeben und dort jeweils einer Farbe zugeordnet, die den in der Darstellung der Brennelementgeometrie in Abbildung 2.3 verwendeten Farben für die Brennstäbe entsprechen. Die Stabgruppen wurden jeweils getrennt abgebrannt. Im Nachgang wurden diese wiederum zu einem Gesamtergebnis für das Brennelement gemittelt.

**Tabelle 2.8** Modellierter Leistungsgeschichte für die SWR-Rechenfälle

<b>Leistung (%)</b>	<b>100</b>	<b>0</b>	<b>100</b>	<b>0</b>	<b>100</b>	<b>0</b>	<b>100</b>	<b>0</b>	<b>100</b>	<b>0</b>	<b>100</b>
Zielabbrand	Zeit [Tage]										
10 GWd/tSM	400	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
20 GWd/tSM	400	20	400	-	-	-	-	-	-	-	-
30 GWd/tSM	400	20	400	20	400	-	-	-	-	-	-
45 GWd/tSM	400	20	400	20	400	20	200	-	-	-	-
55 GWd/tSM	400	20	400	20	400	20	400	20	200	-	-
65 GWd/tSM	400	20	400	20	400	20	400	20	400	20	200

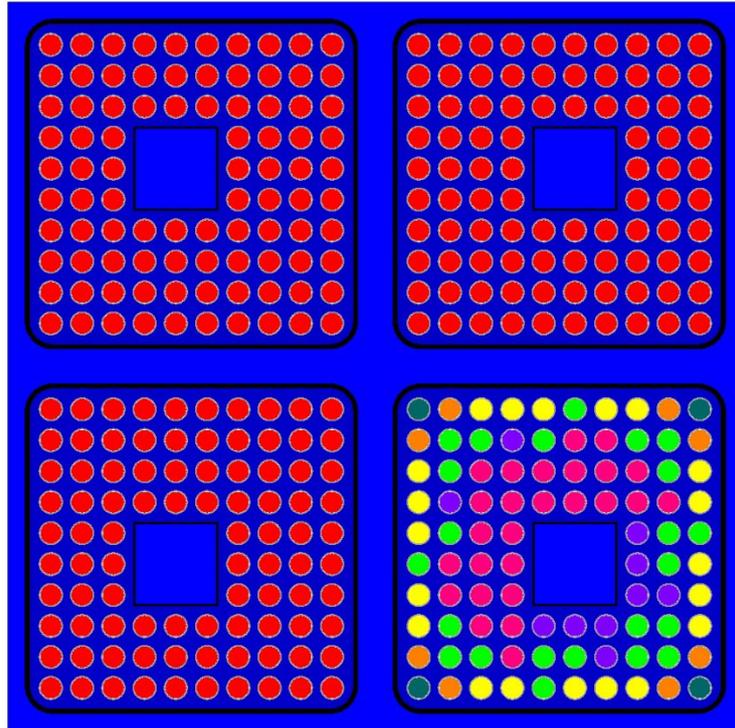
Wie schon beim DWR-Fall wurde für das SWR-MOX-Brennelement eine  $2 \times 2$  Anordnung mit einem MOX- und drei  $\text{UO}_2$ -Brennelement definiert, die mit periodischen Randbedingungen simuliert wurden. Die Anordnung ist in Abbildung 2.4 dargestellt. Auch beim SWR-Fall haben die  $\text{UO}_2$ -Brennelemente wieder einen mittleren Abbrand von 30 GWd/tSM und werden nicht mit abgebrannt. Die Brennstoffzusammensetzung und damit die Definition der Einzelstabpositionen und deren Anfangsanreicherungen entspricht denen für die  $\text{UO}_2$ -SWR-Abbrandrechnungen mit mittlerer Anfangsanreicherung von 4,6 Gew.%  $^{235}\text{U}$ . Das dort definierte Brennelement wurde für die SWR-MOX-Rechnung bis zu einem Brennelement-gemittelten Abbrand von 30 GWd/tHM abgebrannt und die jeweiligen Nuklidinventare in das Modell für die MOX-Rechnung übernommen. Das hier definierte SWR-MOX-Brennelement hat Stäbe mit sechs unterschiedlichen Plutoniumgehalten, deren Wert in Tabelle 2.10 angegeben sind.



**Abbildung 2.3** Geometriemodell für das Atrium-10 Brennelement in den SWR-Rechnungen. Die Farben der verschiedenen Stäbe entsprechen den in **Tabelle 2.9** angegebenen Anfangsanreicherungen.

**Tabelle 2.9** Anfangsanreicherungen der Stabsorten für das SWR-Brennelementmodell für die mittleren Anreicherungen von 3,1 und 4,6 Gew.%

	Mittelwert	Stab 1	Stab 2	Stab 3	Stab 4	Stab 5
Anzahl		4	8	10	14	55
Anfangsanreicherung [Gew.% <sup>235</sup> U]	4,6	2,65	3,4	4,25	4,7	4,95
Anfangsanreicherung [Gew.% <sup>235</sup> U]	3,1	1,79	2,29	2,87	3,17	3,34
Farbe in Abbildung 2.3	-	rot	braun	gelb	grün	violett



**Abbildung 2.4** Geometriemodell für die MOX-Abbrandrechnungen (SWR-Brennelement). Anordnung mit drei UO<sub>2</sub>- und einem MOX-Brennelement (rechts unten) mit periodischen Randbedingungen. Die in **Tabelle 2.10** dargestellten Stabsorten mit unterschiedlichem Pu-Gehalt sind in den dort angegebenen Farben wiedergegeben.

**Tabelle 2.10** Plutoniumgehalte der verschiedenen Stabsorten des SWR-MOX-Brennelements

	Stab 1	Stab 2	Stab 3	Stab 4	Stab 5	Stab 6
Anzahl	4	8	20	23	10	26
Plutoniumgehalt [Gew.%]	3,25	4,225	5,2	6,5	7,15	8,45
Farbe in Abbildung 2.4	grün	braun	gelb	hellgrün	violett	pink

Die Verteilung der Stabsorten ist (OECD & Nuclear Energy Agency 2003) entnommen. Die dort angegebenen relativen Plutoniumgehalte sind dabei analog zum für das UO<sub>2</sub>-Brennelement beschriebenen Verfahren so angepasst, dass sich im Mittel der vereinbarte Plutoniumvektor ergibt. Die einzelnen Stabsorten wurden getrennt abgebrannt und nach der Rechnung zu einem Datensatz für das gesamte Brennelement gemittelt.

## 2.3 Validierung

Um die Eignung eines Rechenverfahrens für einen gegebenen Anwendungszweck darzulegen ist eine Nachrechnung geeigneter Testfälle erforderlich, anhand derer die Rechengenauigkeit quantifiziert werden kann. Idealerweise umfassen diese Testfälle insbesondere experimentelle Daten, die für den Anwendungsfall relevant sind. Weiterhin können auch Vergleiche mit anderen äquivalenten Rechenverfahren herangezogen werden. Dieser Prozess wird als Validierung bezeichnet.

Im vorliegenden Fall der Nuklidinventarberechnungen stehen im Wesentlichen zwei Typen von experimentellen Daten zur Verfügung. Zum einen sind dies sogenannte radiochemische Nachbestrahlungsanalyseproben (*post-irradiation examination*, PIE). Dabei werden kleine Segmente aus einzelnen Brennstäben bestrahlter Brennelemente ausgesägt. Der in diesen Proben enthaltene Brennstoff wird in Lösung gebracht und mit massenspektroskopischen Methoden analysiert und dadurch die nuklidweise Zusammensetzung der Probe für einen Satz ausgewählter Nuklide bestimmt. Die Auswahl der gemessenen Nuklide erfolgt dabei häufig aufgrund ihrer Bedeutung für den jeweils zugrundeliegenden Anwendungszweck und kann sich daher von Analyse zu Analyse unterscheiden. Fast immer im Datensatz enthalten sind die Isotope von Uran und Plutonium sowie sogenannte Abbrandindikatoren wie einige Neodym-Isotope oder  $^{137}\text{Cs}$ . Zum anderen gibt es kalorimetrische Messungen der Wärmeleistung ganzer bestrahlter Brennelemente. Diese erfolgen in speziell für diesen Zweck konstruierten Kalorimetern, die fest in Nasslagerbecken für die Zwischenlagerung dieser Brennelemente installiert sind. Im Gegensatz zu den sehr lokalen und nuklidspezifischen radiochemischen Analysen handelt es sich hier um die Messung einer globalen Größe, die sich einerseits aus der Mittelung über die axial und radial variierenden lokalen Werte und andererseits aus der Summe aller Beiträge der einzelnen für die Zerfallsleistung relevanten Nuklide ergibt.

Für beide Arten von Messdaten gilt, dass eine große Menge unterschiedlicher Parameter und Randbedingungen bekannt sein muss, damit ein solcher Datensatz für eine erfolgreiche Nachrechnung mit einem Abbrandprogramm geeignet ist. Da es sich bei den Messproben im Allgemeinen um kommerzielle Brennelemente handelt, sind diese Daten teilweise proprietär und oft nicht frei zugänglich.

Für MOTIVE wurde in den vergangenen Jahren ein umfangreicher Satz an Eingabedaten für die Validierung erstellt, der sowohl radiochemische Analyseproben als auch Messungen der Nachzerfallsleistung umfasst. Für die radiochemischen Analyseproben

wurde dabei auf die bei der OECD/NEA geführte Datenbank SFCOMPO 2.0 (Michel-Sendis et al. 2017) zurückgegriffen. Diese stellt eine weitgehend vollständige Sammlung von frei verfügbaren für Validierungszwecke geeigneten experimentellen Datensätzen dar. Anhand dieser Daten wurden mit MOTIVE Validierungsrechnungen für das Nuklidinventar unter Verwendung des Neutronentransportprogramms KENO-VI und der Datenevaluation ENDF/B-VII.1 (Hannstein et al. 2018) sowie mit OpenMC und der Evaluation ENDF/B-VIII.0 durchgeführt (Hannstein et al. 2019).

Im Hinblick auf die Validierung bezüglich der Nachzerfallsleistung stehen in der Literatur drei Datensätze verschiedener Institutionen zur Verfügung. Die umfangreichste und aktuellste Datensammlung stammt aus dem zentralen Zwischenlager CLAB des mit der Entsorgung der in schwedischen Kernkraftwerken bestrahlten Brennelementen beauftragten Unternehmens SKB (Svensk Kernbränslehantering AB). An dem im dortigen Nasslager installierten Kalorimeter wurden eine große Anzahl von DWR- und SWR-Brennelementen vermessen (Svensk Kärnbränslehantering AB December 2006). Bei diesem Kalorimeter handelt es sich nach unserem Kenntnisstand um die weltweit einzige aktuell noch in Benutzung befindliche derartige Messeinrichtung. Die Veröffentlichung weiterer Messungen ist für dieses Jahr (2023) angekündigt. Zusätzlich existieren zwei weitere Datensätze aus den amerikanischen Einrichtungen GE Morris (Strickler & Doman 1982) und Pacific Northwest Laboratory (Wiles et al. June 1986), die allerdings von der Qualität der Daten nicht das Niveau der SKB-Messungen erreichen. In einem laufenden Vorhaben wurden die SKB-Messungen und einige Messungen von SWR-Brennelementen von GE Morris, die einen anderen Bereich an Abbränden und Abklingzeiten aufweisen, modelliert und zu Validierungszwecken nachgerechnet (Hannstein et al. 2023).

Zum Zweck der Validierung der in diesem Bericht dokumentierten Nuklidinventarberechnungen wurden die beschriebenen existierenden Datensätze mit der hier verwendeten Konfiguration von MOTIVE, d. h. mit der gleichen Version, der gleichen Datenbibliothek (ENDF/B-VIII.0) und dem gleichen Flussberechnungsprogramm (OpenMC), erneut simuliert und die Ergebnisse ausgewertet. Im Folgenden werden die Ergebnisse dieser Nachrechnungen zusammengefasst und hinsichtlich für die Fragestellung relevanter Aspekte diskutiert. Für eine detaillierte Beschreibung der Modellierung aller Experimente wird auf die jeweiligen Projektberichte verwiesen (Behler et al. 2018).

### 2.3.1 Nachbestrahlungsanalyseproben

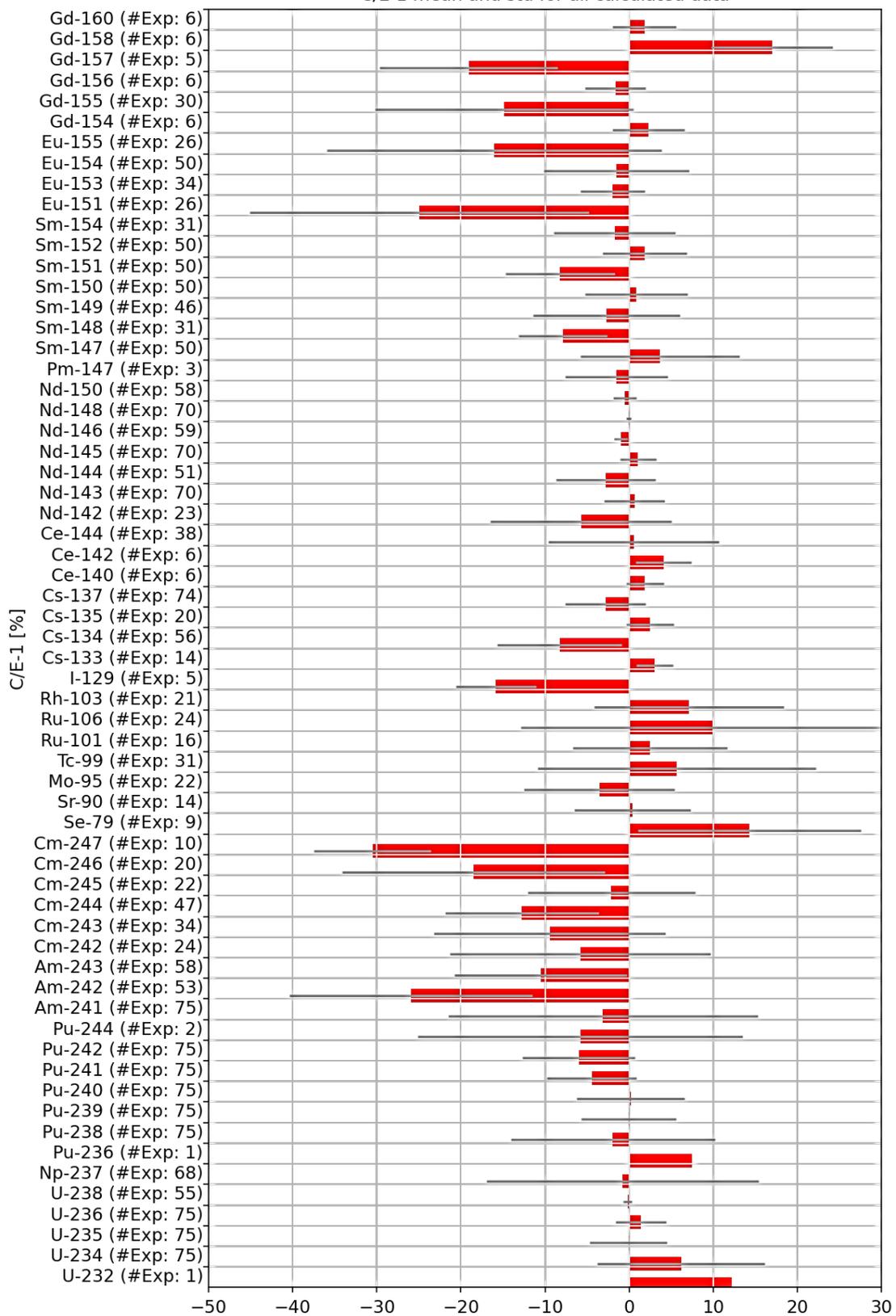
Die für die Validierungsrechnungen verwendeten Analyseproben sind zusammen mit wesentlichen Eigenschaften in Tabelle 2.11 dargestellt. Der Datensatz umfasst insgesamt 75 Proben, die aus 22 unterschiedlichen Brennstäben entnommen wurden. Diese stammen wiederum aus zehn verschiedenen Reaktoren. Die Proben decken einen Abbrandbereich zwischen 7,2 GWd/tSM und 60,7 GWd/tSM ab. Der Abbrand bezieht sich dabei jeweils auf den lokalen Probenabbrand. Die überwiegende Anzahl der Proben stammt von UO<sub>2</sub>-Brennstoff mit Anfangsanreicherungen zwischen 1,69 und 4,66 Gew.% <sup>235</sup>U. Lediglich zwei Proben stammen aus einem Brennelement mit Mischoxidbrennstoff. Der in diesem Fall in der Tabelle angegebene Wert der Anfangsanreicherung bezieht sich auf den Anteil des thermisch spaltbaren Plutoniums (Pu<sub>fiss</sub>) am Gesamtschwermetallgehalt in Gewichtsprozent.

Damit eine Probe für die Validierungsrechnung herangezogen werden kann, ist die Kenntnis sehr vieler Parameter und Randbedingungen notwendig. Hierzu zählen insbesondere Daten zur Leistungsgeschichte und zur Geometrie des Brennelements. Zur Leistungsgeschichte zählen dabei unter anderem die Anfangs- und Endzeitpunkte der Reaktorzyklen, während denen das Brennelement eingesetzt wurde und die Dauer der Revisionen zwischen den Zyklen. Weiterhin wird die Leistung des Brennelements an der axialen Position der Probe, idealerweise auch die Stableistung, zu jedem Zeitpunkt benötigt, sowie die Brennstoff- und Kühlmitteltemperatur und daraus abgeleitet die Kühlmitteldichte. Ebenso wird die Borkonzentration im Kühlmittel benötigt, im besten Fall auch deren zeitlicher Verlauf über jeden Zyklus. Es hat sich allerdings gezeigt, dass auch die Verwendung einer über den Zyklus gemittelten konstanten Borkonzentration zu guten Ergebnissen führt (Wagner 2003).

**Tabelle 2.11** Zusammenstellung der nachgerechneten radiochemischen Analyseproben  
(Michel-Sendis et al. 2017)

Reaktor	Typ	Brennstoffart	Anreicherung (Gew.% <sup>235</sup> U)	Anzahl Stäbe	Anzahl Proben	Abbrand [GWd/tHM]
Beznau-1	DWR	MOX	5.5 (Pu-fiss)	1	2	39,6 – 58,9
Calvert Cliffs-1	DWR	UO <sub>2</sub>	2,45; 2,72; 3,04	3	9	18,7 – 46,5
Forsmark-3	SWR	UO <sub>2</sub>	3,97	1	1	60,7
Fukushima Daini-2	SWR	UO <sub>2</sub>	3,4; 3,91	2	15	7,2 – 44,0
Gösgen	DWR	UO <sub>2</sub>	3,5; 4,1	2	3	21,8 – 38,9
Neckarwestheim-2	DWR	UO <sub>2</sub>	3,8	1	1	54,0
Ohi-1	DWR	UO <sub>2</sub>	3,2	1	1	52,4
Ohi-2	DWR	UO <sub>2</sub>	1,69; 3,2	3	5	21,5 – 38,5
Takahama-3	DWR	UO <sub>2</sub>	2,63; 4,11	3	14	14,3 – 47,3
TMI-1	DWR	UO <sub>2</sub>	4.01; 4,66	5	24	22,8 – 55,7
<b>Summe</b>				<b>22</b>	<b>75</b>	

Für die geometrische Modellierung werden vor allem die Abmessungen des Brennelements und der Brennstäbe benötigt. Bei SWR-Brennelementen betrifft dies auch die Dimensionen der Wasserkästen und -kanäle. Je nach Situation können auch zusätzliche Informationen hinsichtlich der Position des Brennelements im Reaktorkern von Interesse sein. Dies ist vor allem dann der Fall, wenn das Brennelement, während eines oder mehrerer Zyklen am äußersten Rand des Kerns positioniert war. Ebenso können Proben, die sehr dicht am oberen oder unteren Ende des Brennelements entnommen wurden, es erforderlich machen, dass die obere oder untere Peripherie des Brennelements detailliert modelliert werden muss. Entsprechende Informationen liegen jedoch oft nicht vor. Proben die ein solches komplexeres Modell erforderlich machen, wurden deshalb im bisherigen Probensatz nicht berücksichtigt. Weiterhin wurde bei zwei der Proben aus dem Schweizer Kraftwerk Gösgen der Probenstab aus dem ursprünglichen Brennelement entnommen und für die Bestrahlung im letzten Zyklus in ein anderes Brennelement eingesetzt. Dies wurde explizit in der Rechnung berücksichtigt. Weiterhin wird für die Probennachrechnung die Kenntnis der nuklidweisen Zusammensetzung aller Materialien des Brennelements benötigt. Für die Strukturmaterialien ist es dabei im Allgemeinen ausreichend auf Standardmaterialzusammensetzungen zurückzugreifen, sofern es nicht das Ziel ist entsprechende Aktivierungsrechnungen dieser Materialien durchzuführen.



**Abbildung 2.5** Ergebnisse der Probennachrechnungen gemittelt über alle Proben. Die Fehlerbalken stellen die Streuung der Einzelwerte in Form einer Standardabweichung dar.

**Tabelle 2.12** Mittelwerte der relativen Abweichungen zwischen Rechnung und Experiment über alle Proben gemittelt

Nuklid	Anzahl Proben	Mittelwert C/E -1 [%]	$\sigma$	Nuklid	Anzahl Proben	Mittelwert C/E -1 [%]	$\sigma$
U-232	1	12,2	0,0	Cs-134	56	-8,3	7,4
U-234	75	6,2	9,9	Cs-135	20	2,5	2,8
U-235	75	-0,1	4,6	Cs-137	74	-2,8	4,8
U-236	75	1,4	3,0	Ce-140	6	1,9	2,3
U-238	55	-0,2	0,5	Ce-142	6	4,1	3,3
Np-237	68	-0,8	16,1	Ce-144	38	0,6	10,1
Pu-236	1	7,4	0,0	Nd-142	23	-5,7	10,8
Pu-238	75	-1,9	12,1	Nd-143	70	0,6	3,6
Pu-239	75	0,0	5,6	Nd-144	51	-2,8	5,9
Pu-240	75	0,2	6,4	Nd-145	70	1,1	2,2
Pu-241	75	-4,5	5,3	Nd-146	59	-0,9	0,8
Pu-242	75	-6,0	6,7	Nd-148	70	-0,1	0,3
Pu-244	2	-5,8	19,3	Nd-150	58	-0,5	1,4
Am-241	75	-3,1	18,4	Pm-147	3	-1,5	6,1
Am-242m	53	-26,0	14,4	Sm-147	50	3,6	9,4
Am-243	58	-10,5	10,3	Sm-148	31	-7,9	5,3
Cm-242	24	-5,8	15,5	Sm-149	46	-2,7	8,7
Cm-243	34	-9,4	13,8	Sm-150	50	0,8	6,1
Cm-244	47	-12,7	9,1	Sm-151	50	-8,2	6,5
Cm-245	22	-2,1	10,0	Sm-152	50	1,8	5,0
Cm-246	20	-18,5	15,7	Sm-154	31	-1,7	7,2
Cm-247	10	-30,5	6,9	Eu-151	26	-24,9	20,2
Se-79	9	14,3	13,3	Eu-153	34	-2,0	3,8
Sr-90	14	0,4	6,9	Eu-154	50	-1,5	8,6
Mo-95	22	-3,5	8,9	Eu-155	26	-16,1	19,9
Tc-99	31	5,7	16,5	Gd-154	6	2,3	4,3
Ru-101	17	4,5	11,9	Gd-155	30	-14,9	15,4
Ru-106	25	11,0	23,0	Gd-156	6	-1,6	3,6
Rh-103	22	9,6	16,0	Gd-157	5	-19,1	10,6
I-129	5	-15,8	4,8	Gd-158	6	17,0	7,2
Cs-133	14	3,0	2,2	Gd-160	6	1,8	3,7

Für SWR-Brennelementproben ist hinsichtlich der Leistungsgeschichte die Kenntnis des Dampfblasengehalts im Kühlmittel auf Höhe der Probe von großer Wichtigkeit, da diese einen starken Einfluss auf das lokale Neutronenspektrum hat. Häufig ist dieser nicht direkt gegeben oder nur für einen zyklusgemittelten Wert und nicht in seinem zeitlichen Verlauf bekannt. Neben der komplexen Geometrie ist dies ein wesentlicher Grund dafür, dass sich Nachrechnungen von SWR-Proben als deutlich schwieriger als DWR-Proben darstellen, und viele SWR-Proben wegen unzulänglicher Datenlage von der Validierung ausgeschlossen werden müssen. Im nachgerechneten Probensatz finden sich daher nur 16 SWR-Proben. Eine größere Anzahl zusätzlicher Proben befindet sich aktuell in der Analyse, stand aber zum Zeitpunkt der Validierung noch nicht zur Verfügung.

Der im Rahmen der Messungen angegebene Probenabbrand, üblicherweise angegeben in GWd/tSM, ist eine abgeleitete Größe die rechnerisch bestimmt werden muss. Sie hängt von einigen Annahmen ab, die sich wiederum von den entsprechenden Annahmen zur Bestimmung des Abbrands im Rahmen der Nachrechnung unterscheiden können. Deshalb wurden die Validierungsrechnungen aus Konsistenzgründe jeweils so normiert, dass die Nuklidkonzentration des Abbrandindikators  $^{148}\text{Nd}$  exakt getroffen wird. Das stabile Nuklid  $^{148}\text{Nd}$  hat eine nahezu identische Spaltproduktausbeute für  $^{235}\text{U}$  und  $^{239}\text{Pu}$ , besitzt kaum Neutronenabsorption, und zeigt deswegen über weite Abbrandbereiche einen nahezu linearen Anstieg der Nuklidkonzentration mit dem Abbrand. Es dient deswegen im Experiment häufig als alternatives Maß für den erreichten Abbrand. Bei der Interpretation der Ergebnisse ist dies zu berücksichtigen.

Für jede Probe wurden die relativen Abweichungen zwischen Rechnung und Experiment in der Form  $C/E-1$  in Prozent für alle gemessenen Nuklide bestimmt. Dabei bezeichnet C den berechneten Wert (*calculated*) und E den gemessenen Wert (*experimental*). Meist werden die Messdaten in Einheiten von g/tSM (Gramm pro Tonne initialem Schwermetallgehalt) angegeben. Die aus der Simulation gewonnenen Nuklidinventare werden daher auch in dieser Einheit dargestellt. In einigen Fällen liegen die Messdaten auch in anderen Einheiten vor (z. B. als  $\text{g/gU}_{\text{final}}$ ). In diesem Fall wurden die berechneten Größen entsprechend umgerechnet.

Die Ergebnisse der Validierungsrechnungen sind in Tabelle 2.12 zusammenfassend dargestellt und in Abbildung 2.5 graphisch aufbereitet. Dabei sind für jedes gemessene Nuklid der Mittelwert über Einzelwerte aller Proben zusammen mit der Standardabweichung als Maß für die Streuung der C/E-Werte dargestellt. Allgemein sind diese Ergebnisse

vergleichbar mit entsprechenden Ergebnissen, die für andere Simulationsprogramme veröffentlicht wurden (siehe zum Beispiel (Ilas et al. 2022) und (Rochman et al. 2023)).

Folgende Beobachtungen können aus den Ergebnissen abgeleitet werden:

- Die berechneten Konzentrationen der Uran- und Plutoniumnuklide stimmen gut mit den gemessenen Werten überein, wobei größere relative Abweichungen bei denjenigen Isotopen vorkommen, die in geringeren absoluten Konzentrationen auftreten. Die berechneten Konzentrationen der Nuklide  $^{235}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  und  $^{240}\text{Pu}$  weichen im Mittel um maximal 2 % von den gemessenen Werten ab. Für  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$  und  $^{244}\text{Pu}$  liegen die Abweichungen zwischen 4 % und 6 %. Bei  $^{234}\text{U}$  kann außerdem die fehlende Kenntnis seiner Konzentration im frischen Brennstoff eine Rolle spielen.  $^{232}\text{U}$  und  $^{236}\text{Pu}$  sind jeweils nur mit einem Datenpunkt im Probensatz vertreten, so dass hier belastbare Aussagen schwer zu treffen sind.
- Die berechneten Konzentrationen der Americium- und Curium-Isotope unterschätzen die gemessenen Werte teilweise deutlich, um bis zu etwa 30 % ( $^{247}\text{Cm}$ ), wobei auch die Streuung der C/E-Werte größer ist. Das in Hinblick auf Spontanspaltung und Nachzerfallsleistung wichtige Nuklid  $^{244}\text{Cm}$  wird um knapp 13 % unterschätzt. Neben den im Vergleich zu den Uran- und Plutonium-Isotopen geringeren absoluten Konzentrationen spielen hier die komplexen Aufbaupfade, die im Allgemeinen mehrere aufeinanderfolgende Neutroneneinfangreaktionen beinhalten, eine erhebliche Rolle.
- Bei den Spaltprodukten werden viele Nuklide mit einem vergleichsweise kleinen Fehler nachgerechnet. Bei den Nukliden mit größeren Abweichungen sind zwei unterschiedliche Gruppen zu unterscheiden:
  - Spaltprodukte mit einem sehr großen Neutroneneinfangquerschnitt werden in der Rechnung teilweise deutlich unterschätzt. Als mögliche Fehlerquellen kommen hier die zugehörigen Wirkungsquerschnitte und v. a. das in der Rechnung bestimmte Neutronenspektrum in Betracht, auf das diese Nuklide wegen ihrer hohen Neutronenabsorption sehr sensitiv reagieren.

- Bei einigen metallischen Spaltprodukten speziell der Übergangsmetalle ist bekannt, dass diese oft konglomerieren und nur unvollständig aufgelöst werden, so dass zu geringe Konzentrationen gemessen werden und dementsprechend große positive Abweichungen in den C/E-Werten auftreten können. Einige dieser Spaltprodukte wie z. B.  $^{126}\text{Sn}$  wurden aufgrund offensichtlich ungenauer Messungen aus der Auswertung genommen.

Eine tiefergehende Analyse der Ergebnisse übersteigt den Rahmen der hier vorgenommenen repräsentativen Nuklidinventarberechnungen. Für künftige weitergehende Analysen sei jedoch auf folgende Punkte hingewiesen: Da die zur Verfügung stehenden Messdaten in den meisten Fällen im Zuge von Untersuchungen zu verschiedenen Aspekten der Zwischenlagerung erhoben wurden, umfassen diese nicht alle Nuklide die eventuell für eine Sicherheitsanalyse für Endlager benötigt werden. Ebenso liegt es in der Natur der Sache, dass die Abklingzeiten nicht denen der Endlagerung entsprechen können. Weiterhin zeigen die vorliegenden Ergebnisse, dass einige Nuklidkonzentrationen tendenziell unterschätzt werden, so dass für eine konservative Berücksichtigung des Inventars Korrekturfaktoren abzuleiten wären. Für einige langlebige Spaltprodukte, so z. B.  $^{79}\text{Se}$  und  $^{126}\text{Sn}$ , zeigen außerdem neuere Messungen, dass es noch deutliche Unsicherheiten bezüglich der Halbwertszeit dieser Nuklide geben kann (Bienvenu et al. 2009; Jörg et al. 2010). In diesem Zusammenhang erscheint es insbesondere sinnvoll, Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalysen durchzuführen, um die Genauigkeit der Berechnungen besser abschätzen zu können.

### **2.3.2 Kalorimetrische Messungen der Zerfallsleistung**

Die für eine Validierung der Nachzerfallsleistung verwendeten Kalorimetermessungen sind in Tabelle 2.13 dargestellt. Wie bereits erwähnt, umfassen diese in erster Linie Messungen an DWR- und SWR-Brennelementen, die am zentralen Zwischenlager CLAB in Schweden durchgeführt wurden. Diese umfassen Abklingzeiten zwischen 11 und 26 Jahren und wurden an Brennelementen mit Abbränden zwischen etwa 7 und 59 GWd/tSM durchgeführt. Ergänzt wurden diese um Messungen an SWR-Brennelementen aus dem US-amerikanischen Kernkraftwerk Cooper, die bei GE Morris durchgeführt wurden. Diese weisen deutlich geringere Standzeiten und deutlich geringere Abbrände auf und erweitern daher den abgedeckten Parameterbereich. Insgesamt wurden 154 Proben nachgerechnet.

Grundsätzlich werden für die Nachrechnung der Messungen der Zerfallsleistung die gleichen Daten für die Modellierung benötigt, die schon für die Berechnung der radiochemischen Analyseproben dargelegt wurden. Allerdings sind die Ansprüche an die Genauigkeit nicht ganz so hoch wie bei Letzteren, weil die Ergebnisgröße ein Messwert ist, bei dem über das ganze Brennelement gemittelt wird. Während die geometrischen Abmessungen weiterhin möglichst genau zu modellieren sind, kann hinsichtlich der Leistungsgeschichte eine gewisse Vereinfachung hingenommen werden. In einigen Fällen ist jeweils nur eine konstante Leistung pro Reaktorzyklus bekannt. Die genaue Modellierung insbesondere des letzten Zyklus ist vor allem für das Kurzzeitverhalten der Zerfallsleistung bis zu etwa einem Jahr von Bedeutung. Für längere Abklingzeiten, wie sie hier betrachtet werden, ist in erster Linie der Entladeabbrand die entscheidende Größe. Bei SWR-Brennelementen ist außerdem in guter Näherung die Verwendung eines mittleren Dampfblasengehalts ausreichend.

**Tabelle 2.13** Zusammenstellung der nachgerechneten Proben zur Nachzerfallsleistung

Labor	Reaktor	Brennelement-Typ	# Proben	Lagerzeit [a]	Abbrand [GWd/tHM]
CLAB, DWR	Ringhals-2	15x15	16	16,0 – 23,2	39,6 – 58,9
	Ringhals-3	17x71	15	15,9 – 20,0	18,7 – 46,5
CLAB, SWR	Ringhals-1	8x8	15	12,6 – 18,3	7,2 – 44,0
	Oskarshamn-2	8x8, SVEA-64	9	12,4 – 26,7	21,8 – 38,9
	Oskarshamn-3	8x8	3	12,5 -15,4	54,0
	Barsebäck-1/2	8x8, SVEA-100	5	11,4 – 15,2	52,4
	Forsmark-1	8x8, 9x9	6	11,4 – 13,4	21,5 – 38,5
	Forsmark-2	8x8, SVEA-64	4	12,4 - 15,4	14,3 – 47,3
	Forsmark-3	SVEA-100	2	13,3 – 13,4	22,8 – 55,7
GE Morris, SWR	Cooper	7x7	79	2,3 -6,7	11,7 – 28,0
Summe			<b>154</b>		

Da die Zerfallsleistung ein nichtlineares Verhalten als Funktion des Abbrands aufweist, ist für eine sehr genaue Berechnung der Zerfallsleistung prinzipiell eine Berücksichtigung des axialen Abbrandprofils von Bedeutung. Da nicht für alle der hier verwendeten Proben hierzu Daten vorliegen, wurde auf eine axial aufgelöste Modellierung aus Konsistenzgründen verzichtet. In den für die Messungen relevanten Zeitskalen führt dies im

allgemeinen zu einer leichten Unterschätzung der Werte um bis zu 1 % (Kromar & Godfrey 2022).

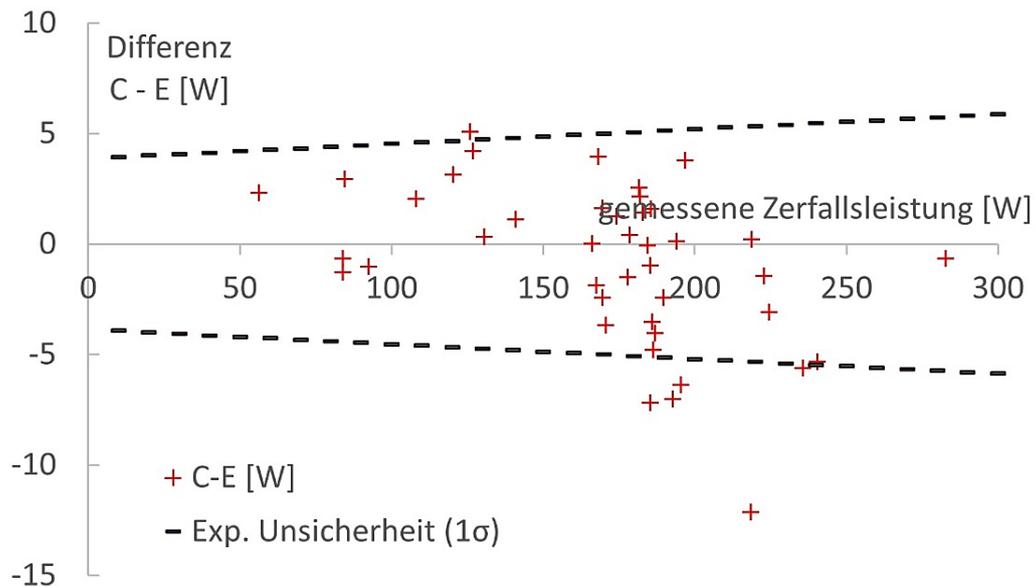
**Tabelle 2.14** Zusammenfassung der Ergebnisse der Nachrechnung der Messungen der Zerfallsleistung

Labor	Reaktortyp	Anzahl	Mittelwert C/E-1 [%]	$\sigma$ [%]
CLAB	DWR	31	0,4	1,0
CLAB	SWR	44	-0,2	2,2
GE Morris	SWR	79	-0,7	6,0

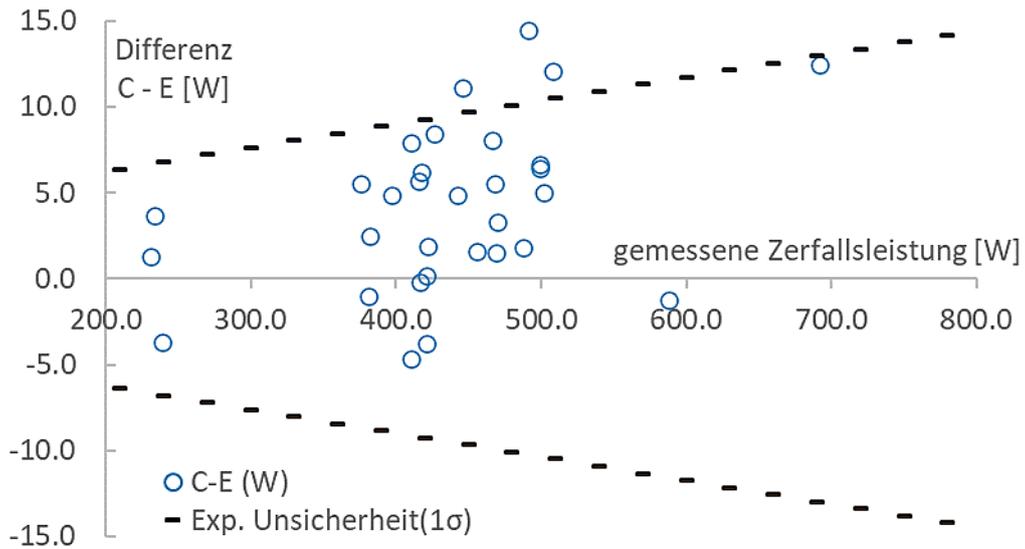
In Tabelle 2.13 sind die Ergebnisse der Nachrechnungen zusammengefasst. Angegeben sind hier die Mittelwerte der relativen Abweichungen für die Einzelmessungen zusammen mit den zugehörigen Standardabweichungen. Die Ergebnisse für die am CLAB durchgeführten DWR- und SWR-Messungen sowie für die Messungen bei GE Morris sind jeweils getrennt aufgeführt. Im Mittel stimmen Rechnung und Experiment innerhalb von 1% Abweichung überein, wobei die Streuung der Ergebnisse für die CLAB-Messungen deutlich kleiner ist als für die Messungen bei GE Morris. Wie bei den radiochemischen Analysen entsprechen die Beobachtungen denen von veröffentlichten Validierungsrechnungen für andere Programme (Ilas & Burns 2021; Shama et al. 2022; Haeck et al. 2014).

In Abbildung 2.6, Abbildung 2.7 und Abbildung 2.8 sind die absoluten Abweichungen in Watt zwischen Rechnungen und Experiment für die einzelnen Messungen dargestellt. Die Abbildungen wurden in einer englischsprachigen Fassung bereits in (Hannstein et al. 2023) veröffentlicht. Wie zu erkennen ist, liegen für die CLAB-Messungen die meisten Werte innerhalb von  $1\sigma$  der experimentellen Unsicherheit. Bei den GE Morris-Daten sind die Abweichungen größer, allerdings liegen die meisten Werte hier immer noch innerhalb von  $2\sigma$ . Im Zusammenhang mit der Validierung in Bezug auf die Nachzerfallsleistung sei außerdem noch erwähnt, dass die GRS mit MOTIVE an einem von SKB ausgerichteten *Blind Benchmark* teilgenommen hat, bei dem aktuelle Messungen der Nachzerfallsleistung an fünf Brennelementen ohne Kenntnis des Messwerts nachgerechnet werden sollten. Die Ergebnisse mit MOTIVE lagen dabei im Bereich der von den anderen Teilnehmern eingereichten Ergebnisse (Jansson et al. 2022). Auch wenn Rechnung und Experiment für die Zerfallsleistung mit hoher Genauigkeit übereinstimmen, gibt es aktuell internationale Bestrebungen eine weitere Verbesserung sowohl hinsichtlich der Messungen als auch hinsichtlich der Modellierung zu erzielen. Dies liegt unter anderem darin

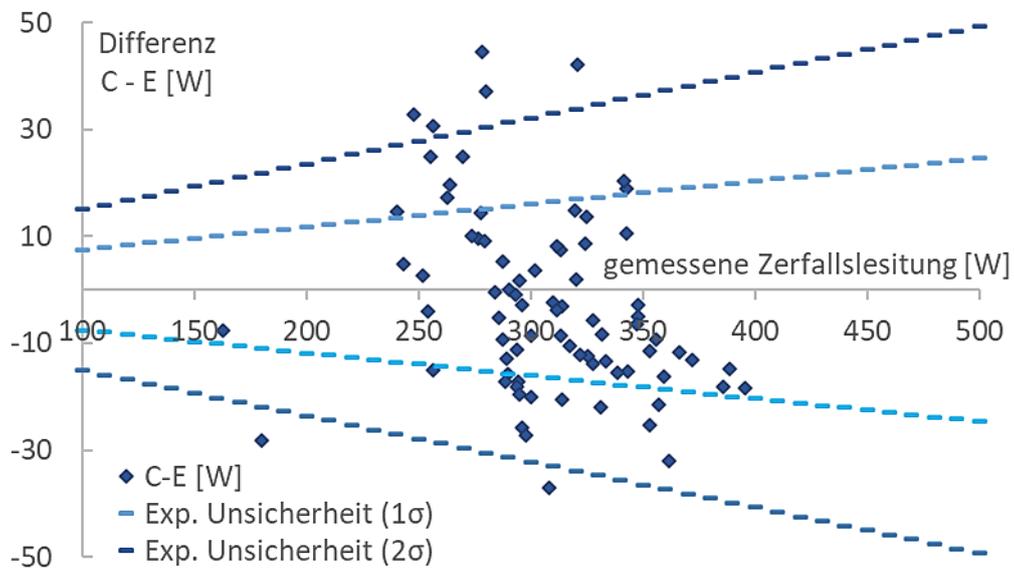
begründet, dass die angenommene Wärmeentwicklung je nach Wirtsgestein einen wesentlichen Einfluss auf die notwendigen Abstände zwischen den einzelnen Lagerbehälterpositionen und damit auf die Endlagergröße hat. Wie auch bezüglich der Nuklidinventarbestimmung kann hier eine Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalyse helfen, die Genauigkeit der Berechnung zu quantifizieren und festzustellen, an welchen Punkten mögliche Verbesserungen erzielt werden können.



**Abbildung 2.6** Differenz zwischen berechneter (C) und gemessener (E) Zerfallsleistung für die DWR-Proben von CLAB. Die gestrichelten Linien stellen die angegebene experimentelle Unsicherheit ( $1\sigma$ ) dar.



**Abbildung 2.7** Differenz zwischen berechneter (C) und gemessener (E) Zerfallsleistung für die SWR-Proben von CLAB. Die gestrichelten Linien stellen die angegebene experimentelle Unsicherheit ( $1\sigma$ ) dar.



**Abbildung 2.8** Differenz zwischen berechneter (C) und gemessener (E) Zerfallsleistung für die SWR-Proben von GE-Morris. Die gestrichelten Linien stellen die angegebene experimentelle Unsicherheit ( $1\sigma$  und  $2\sigma$ ) dar.

### **2.3.3 Vergleich der Rechenergebnisse mit SCALE 6.2.4**

Zur weiteren Verifizierung der Rechnungen wurde ein Vergleich mit der Triton-Sequenz aus dem SCALE-Paket Version 6.2.4 (Rearden & Jessee März 2018) durchgeführt. Dafür wurden zwei der für die Ermittlung der Nuklidinventare durchgeführten Rechenfälle mit SCALE wiederholt, und zwar zum einen eine Rechnung zum DWR-Brennelement mit 4,6 % Anfangsanreicherung und 60 GWd/tSM Abbrand und zum anderen die Rechnung zum SWR-Brennelement mit 4,6 % Anfangsanreicherung und 55 GWd/tSM Abbrand sowie einem Dampfblasengehalt von 40 %. Da in SCALE die ENDF/B-VIII Bibliothek nicht zur Verfügung steht, wurde die ENDF/B-VII.1 Bibliothek verwendet, und zur besseren Vergleichbarkeit wurden zusätzlich MOTIVE-Rechnungen mit dieser Bibliothek durchgeführt.

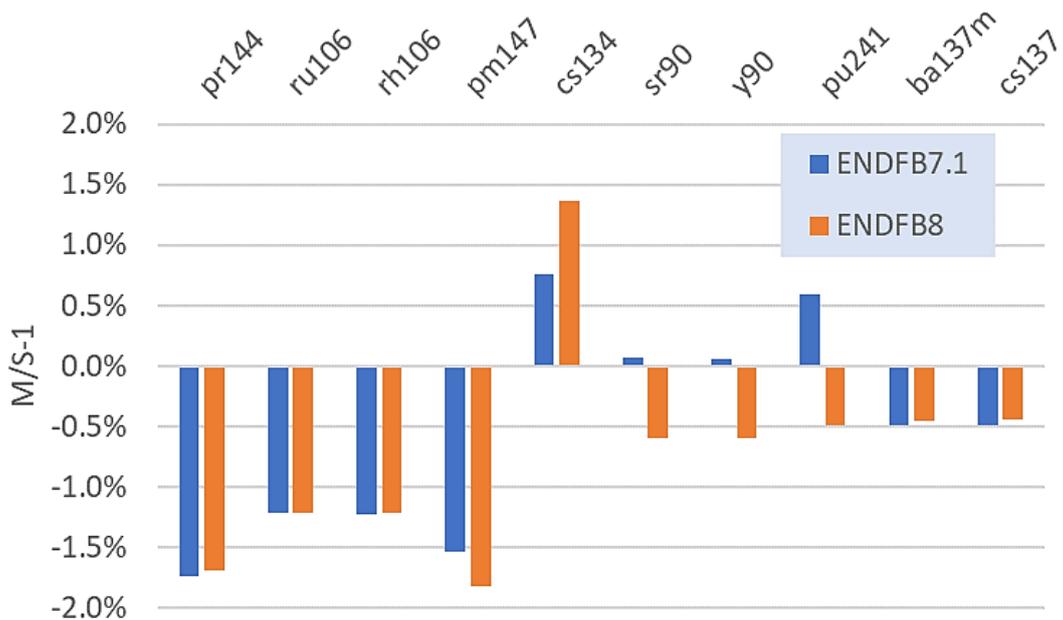
Für die Abbrandrechnungen mit SCALE wurde die T-NEWT-Sequenz verwendet. Diese nutzt den deterministischen Transportcode NEWT für die Flussberechnung und das Programm ORIGEN für die Inventarberechnung. Zu beachten ist dabei, dass in NEWT eine Multigruppenbibliothek für die Wirkungsquerschnittsdaten verwendet wird, für die innerhalb der Sequenz die Resonanzselbstabschirmung berechnet wird. Für das SWR-Brennelement wurden für die Resonanzselbstabschirmung geeignete Dancoff-Faktoren mit dem Hilfsprogramm MCDancoff bestimmt. Bei den Rechnungen kam die 252-Gruppen-Bibliothek zum Einsatz.



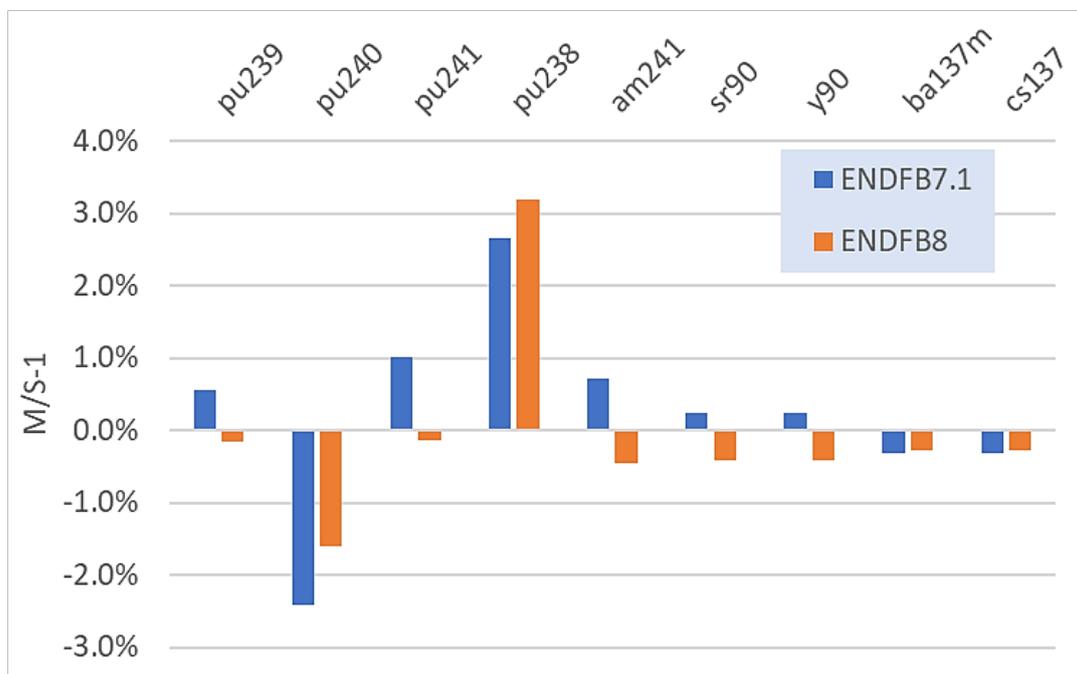
**Abbildung 2.9** DWR-Brennelement: relative Abweichung in den Konzentrationen zwischen den Rechnungen mit MOTIVE (M) und SCALE (S) für die wichtigsten Nuklide im Hinblick auf die Zerfallsleistung nach 5 Jahren Abklingzeit



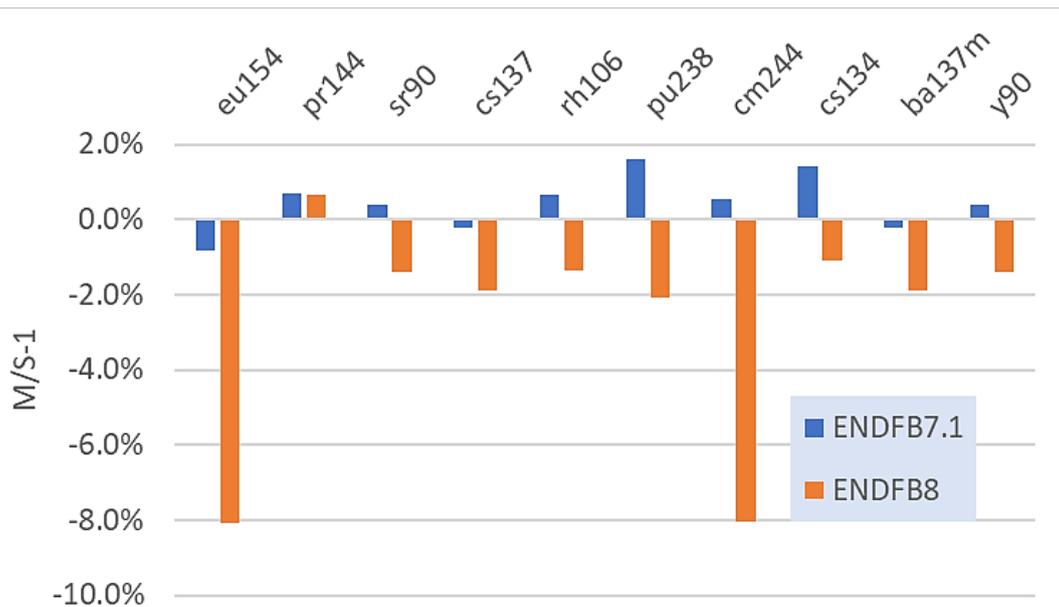
**Abbildung 2.10** DWR-Brennelement: relative Abweichung in den Konzentrationen zwischen den Rechnungen mit MOTIVE (M) und SCALE (S) für die wichtigsten Nuklide im Hinblick auf die Zerfallsleistung nach 100 Jahren Abklingzeit



**Abbildung 2.11** DWR-Brennelement: relative Abweichung in den Konzentrationen zwischen den Rechnungen mit MOTIVE (M) und SCALE (S) für die wichtigsten Nuklide im Hinblick auf die Aktivität nach 5 Jahren Abklingzeit



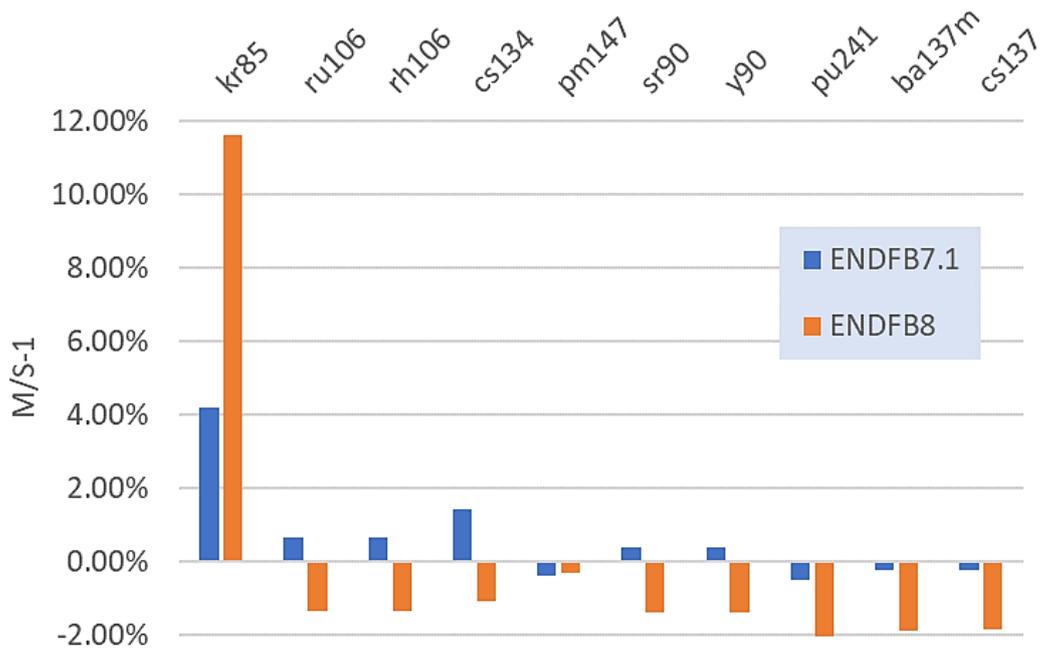
**Abbildung 2.12** DWR-Brennelement: relative Abweichung in den Konzentrationen zwischen den Rechnungen mit MOTIVE (M) und SCALE (S) für die wichtigsten Nuklide im Hinblick auf die Aktivität nach 100 Jahren Abklingzeit



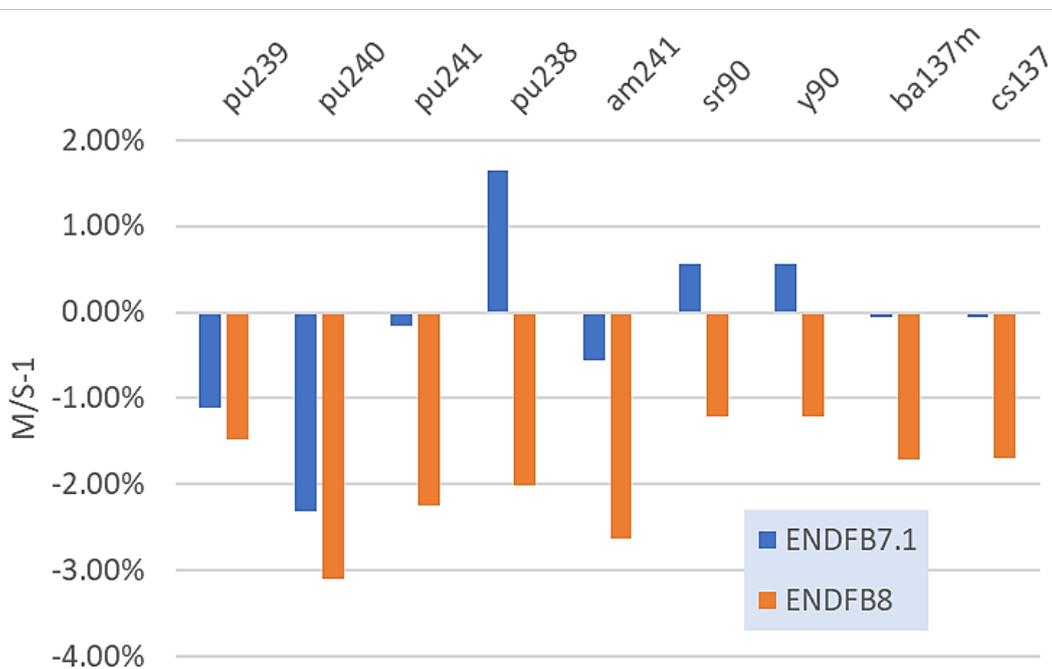
**Abbildung 2.13** SWR-Brennelement: relative Abweichung in den Konzentrationen zwischen den Rechnungen mit MOTIVE (M) und SCALE (S) für die wichtigsten Nuklide im Hinblick auf die Zerfallsleistung nach 5 Jahren Abklingzeit



**Abbildung 2.14** SWR-Brennelement: relative Abweichung in den Konzentrationen zwischen den Rechnungen mit MOTIVE (M) und SCALE (S) für die wichtigsten Nuklide im Hinblick auf die Zerfallsleistung nach 100 Jahren Abklingzeit



**Abbildung 2.15** SWR-Brennelement: relative Abweichung in den Konzentrationen zwischen den Rechnungen mit MOTIVE (M) und SCALE (S) für die wichtigsten Nuklide im Hinblick auf die Aktivität nach 5 Jahren Abklingzeit



**Abbildung 2.16** SWR-Brennelement: relative Abweichung in den Konzentrationen zwischen den Rechnungen mit MOTIVE (M) und SCALE (S) für die wichtigsten Nuklide im Hinblick auf die Aktivität nach 100 Jahren Abklingzeit

Zum Vergleich der Ergebnisse zwischen SCALE und MOTIVE sind in den Abbildung 2.9 bis Abbildung 2.12 und Abbildung 2.13 bis Abbildung 2.16 die relativen Abweichungen in der Form  $M/S-1$  in Prozent dargestellt (M: MOTIVE Rechnung, S: SCALE Rechnung). Es werden jeweils die Nuklidkonzentrationen für diejenigen zehn Nuklide dargestellt, die den größten Beitrag zur Zerfallsleistung und zur Aktivität liefern. Betrachtet werden dabei die Abklingschritte 5 Jahre und 100 Jahre.

Wie zu erkennen ist, liegen bei dem Vergleich der Rechnungen mit gleicher Wirkungsquerschnittsbibliothek (ENDF/B-VII.1 bei MOTIVE wie auch SCALE) die relativen Abweichungen bis auf wenige Ausnahmen deutlich unter zwei Prozent. Dies ist im Rahmen der üblichen bei internationalen Rechenbenchmarks beobachteten Abweichungen zwischen verschiedenen Rechenverfahren. Auffällig sind die vor allem beim SWR-Fall zu sehenden größeren Unterschiede zwischen der SCALE-Rechnung und der MOTIVE-Rechnung mit ENDF/B-VIII Daten. Da diese Unterschiede, außer bei Americium und Curium, auch bei den Spaltprodukten zu beobachten sind, kann man vermuten, dass hier Unterschiede im resultierenden Neutronenspektrum vorliegen, das sich zunächst auf das Verhältnis von  $^{235}\text{U}$ - zu  $^{239}\text{Pu}$ -Spaltungen und damit auf die Spaltproduktausbeute vieler Nuklide auswirkt.

### 3 Einfluss induzierter Spaltungen während der Lagerzeit

Bei den hier beschriebenen Nuklidinventardaten und der Berechnung von deren Zeitverhalten während der Lagerzeit wurde davon ausgegangen, dass Neutronenreaktionen nach der Entnahme aus dem Reaktor keine Rolle spielen und ausschließlich der radioaktive Zerfall der instabilen Nuklide den Prozess bestimmt. Das ist insofern eine Näherung, als das durch verschiedene Prozesse im eingelagerten Kernbrennstoff weiterhin Neutronen produziert werden, die wiederum neutroneninduzierte Reaktionen auslösen können und somit grundsätzlich zur Zeitentwicklung des Nuklidinventars einen gewissen Beitrag leisten. Da der entstehende Neutronenfluss, im Folgenden auch als residualer Fluss bezeichnet, um viele Größenordnungen kleiner ist als derjenige, der während des Reaktorbetriebs auftritt, kann dieser Beitrag als klein im Vergleich zum Beitrag der Zerfallsprozesse angesehen werden. Andererseits werden im Rahmen der Endlagerung sehr große Zeitskalen betrachtet. Aus diesem Grund ist ein gewisser Beitrag durch neutroneninduzierte Prozesse nicht von vorneherein vollständig auszuschließen. Daher wurde hier eine quantitative Abschätzung des Einflusses dieser Prozesse auf das Nuklidinventar vorgenommen. Diese Abschätzung hatte das Ziel, die Notwendigkeit der Berücksichtigung von Neutronenreaktionen während des für die Sicherheitsanalyse betrachteten Zeitraums auszuschließen, oder ggf. einen ersten Schritt für eine geeignete Berücksichtigung der Neutronenreaktionen bieten.

Dabei wurde ein Vorgehen in drei Schritten entwickelt:

1. Zunächst wird aus den berechneten Nuklidinventaren ein Neutronenquellterm bestimmt.
2. Unter Verwendung der berechneten Nuklidinventare wird ein generisches Modell für einen Endlagerbehälter für das Monte-Carlo Neutronentransportprogramm MCNP aufgesetzt, mit dem einerseits der effektive Multiplikationsfaktor  $k_{\text{eff}}$  dieser Anordnung berechnet und andererseits mit den unter 1. berechneten Quellstärken und -spektren eine Berechnung des Neutronenflusses im Endlagerbehälter durchgeführt und problemspezifische Wirkungsquerschnitte für die relevanten Neutronenreaktionen generiert werden.
3. Mit dem unter 2. bestimmten Neutronenflusses und den Wirkungsquerschnitten wird eine Abbrandrechnung für den vorher betrachteten Abklingzeitraum durchgeführt. Die resultierenden Nuklidinventare werden dann mit der reinen Abklingrechnung verglichen und anhand der Unterschiede die Relevanz des Beitrags der Neutronen des residualen Flusses quantifiziert.

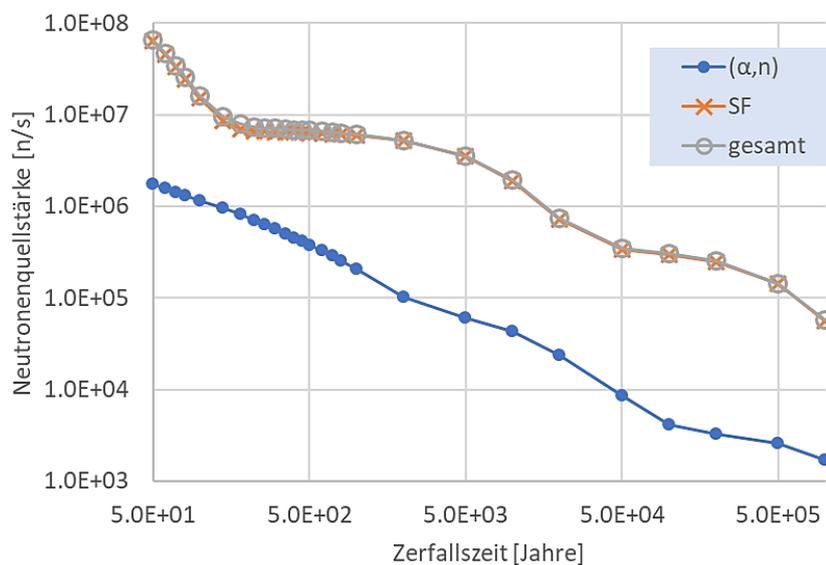
### 3.1 Quelltermberechnung

Neutronenstrahlung tritt bei bestrahlten Kernbrennstoffen im Wesentlichen aufgrund von zwei Prozessen auf: Spontanspaltung und ( $\alpha$ ,n)-Reaktion. Bei der Spontanspaltung z. B. von  $^{242}\text{Cm}$  oder  $^{244}\text{Cm}$  werden pro Spaltprozess neben den Spaltprodukten zwei bis drei Neutronen emittiert. Auch durch die sogenannte ( $\alpha$ ,n)-Reaktion werden Neutronen erzeugt. Hierbei treffen durch Zerfälle erzeugte  $\alpha$ -Teilchen auf leichte Atomkerne und wechselwirken mit diesen unter Aussendung eines Neutrons. Bei oxidischen Brennstoffen wie  $\text{UO}_2$ - und MOX-Brennstoff erfolgt die ( $\alpha$ ,n)-Reaktion in erster Linie an den in der Brennstoffmatrix enthaltenen Sauerstoffisotopen  $^{17}\text{O}$  und  $^{18}\text{O}$ . Weitere als Reaktionspartner infrage kommende Nuklide sind in deutlich geringerer Konzentration enthalten. Daher überwiegt in diesen Brennstoffen im Allgemeinen der Beitrag der Spontanspaltung, wobei die relativen Anteile im zeitlichen Verlauf aufgrund des jeweiligen Zeitverhaltens der beteiligten instabilen Nuklide variieren. Bei verglasten hochradioaktiven Abfällen aus der Wiederaufarbeitung fällt der Anteil der ( $\alpha$ ,n)-Neutronen aufgrund der in der Glasmatrix vorhandenen leichten Atome höher aus. Diese sind jedoch nicht Teil der vorliegenden Betrachtungen. Neben den beschriebenen Prozessen können grundsätzlich auch verzögerte Neutronen aus der Spaltung eine Rolle spielen. Dieser Beitrag spielt allerdings nur direkt nach Anschalten des Reaktors eine Rolle.

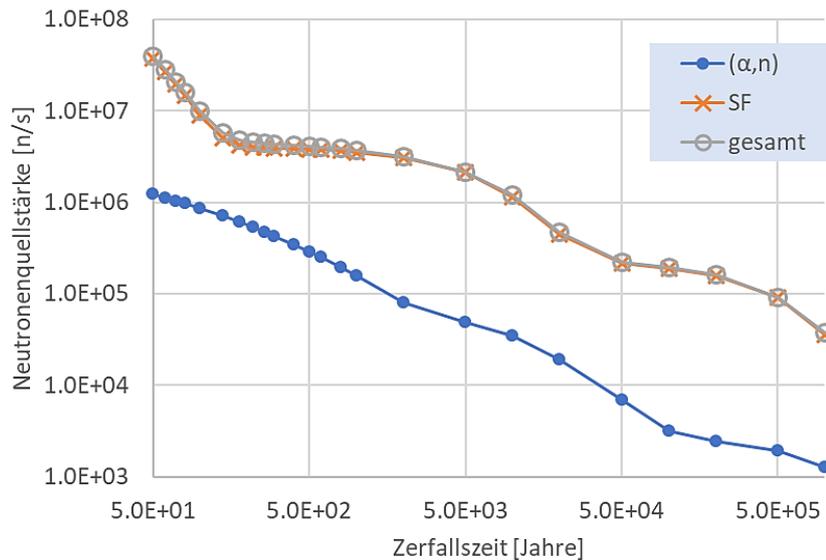
Im Programmsystem MOTIVE ist aktuell noch kein Modell zur Berechnung des ( $\alpha$ ,n)-Neutronenspektrums aus dem Inventar vorhanden. Daher wurde für die Quellterm-Berechnung das Programm ORIGEN aus dem SCALE-Paket (Rearden & Jessee März 2018) verwendet. Es wurden zwei Analysen durchgeführt, jeweils eine für das DWR- und für das SWR-Brennelement. Um einen konservativ hohen Neutronenfluss zu erhalten, wurde jeweils der Rechenfall mit dem höchsten Abbrand ausgewählt, also 70 GWd/tSM für das DWR- und 65 GWd/tSM für das SWR-Brennelement. Für letzteres wurde der Fall mit 70 % Dampfblasengehalt gewählt, da eine geringere Moderation zu einem härteren Neutronenspektrum und damit einem stärkeren Aktinoidenaufbau führt. Zur Wahrung einer größtmöglichen Konsistenz wurde jeweils das mit MOTIVE berechnete Inventar zum Entladezeitpunkt als Eingangsgröße für die ORIGEN-Eingabedaten verwendet. In ORIGEN wurde dann eine Abklingrechnung bis zum Ende des Betrachtungszeitraums von 1 Million Jahre durchgeführt und der Rechenlauf so konfiguriert, dass für jeden Abklingschritt das Neutronenspektrum ausgegeben wird.

Für die Berechnung der ( $\alpha,n$ )-Neutronen sind in ORIGEN grundsätzlich drei Optionen wählbar: Die Annahme eines typischen  $UO_2$ -Brennstoffs, einer Glasmatrix oder die Verwendung der tatsächlichen Nuklidzusammensetzung gemäß der Eingabedatei. Für die Rechnung wurde die letzte Option verwendet. Dabei kann zusätzlich der Zeitpunkt gewählt werden, für den das Nuklidinventar für die ( $\alpha,n$ )-Berechnung ausgewählt wird. Unter der Annahme, dass ein Brennelement frühestens nach 40 Jahren Lagerzeit in ein Endlager gelangt, wurde dieser Zeitpunkt hierfür gewählt. Es ist festzuhalten, dass die Verwendung von ORIGEN zu einer gewissen Inkonsistenz hinsichtlich der verwendeten nuklearen Daten führt, da in der aktuellen SCALE-Version noch keine ENDF/B-VIII-Daten enthalten sind. Hinzu kommt, dass die Zerfallsdatenbibliothek in SCALE, sowie die für die Quelltermberechnung zusätzlich benötigten Daten aus verschiedenen Quellen stammen und keiner eindeutigen Datenevaluation zugeordnet werden kann. Die jeweiligen Datenquellen können dem SCALE-Handbuch entnommen werden (Rearden & Jesse März 2018).

In Abbildung 3.1 ist der zeitliche Verlauf der Neutronenquellstärke für das DWR-Brennelement gezeigt. Die Quellstärke ist dabei auf das Volumen von vier Brennelementen normiert, wie sie in dem im folgenden Abschnitt definierten generischen Endlagerbehälter verwendet werden.



**Abbildung 3.1** Mit ORIGEN berechnetes Quellneutronenspektrum für das DWR-Brennelement



**Abbildung 3.2** Mit ORIGEN berechnetes Quellneutronenspektrum für das SWR-Brennelement

Es ist zu sehen, dass die Gesamtquellstärke zu allen betrachteten Zeiten vom Spontanspaltungsanteil dominiert wird. Der relative Beitrag der ( $\alpha,n$ )-Neutronen wird maximal bei etwa 150 Jahren Abklingzeit und erreicht dort etwa 10 % der Gesamtquellstärke. Wie in Abbildung 3.2 zu sehen, ist das Verhalten der Quellstärke für das SWR-Brennelement qualitativ sehr ähnlich, wobei die Quellstärke pro Volumeneinheit etwa 20 % geringer ausfällt. Da das Quellspektrum von der Spontanspaltung dominiert wird und sich die Form des Spontanspaltungsspektrums über die Zeit nur unwesentlich ändert, ist es in guter Näherung gerechtfertigt, für alle Zeitpunkte hinsichtlich der Energieabhängigkeit ein identisches Spektrum zu verwenden und lediglich die Quellstärke gemäß dem Verlauf in Abbildung 3.1 zu variieren.

### 3.2 Neutronenfluss- und Wirkungsquerschnittsberechnung

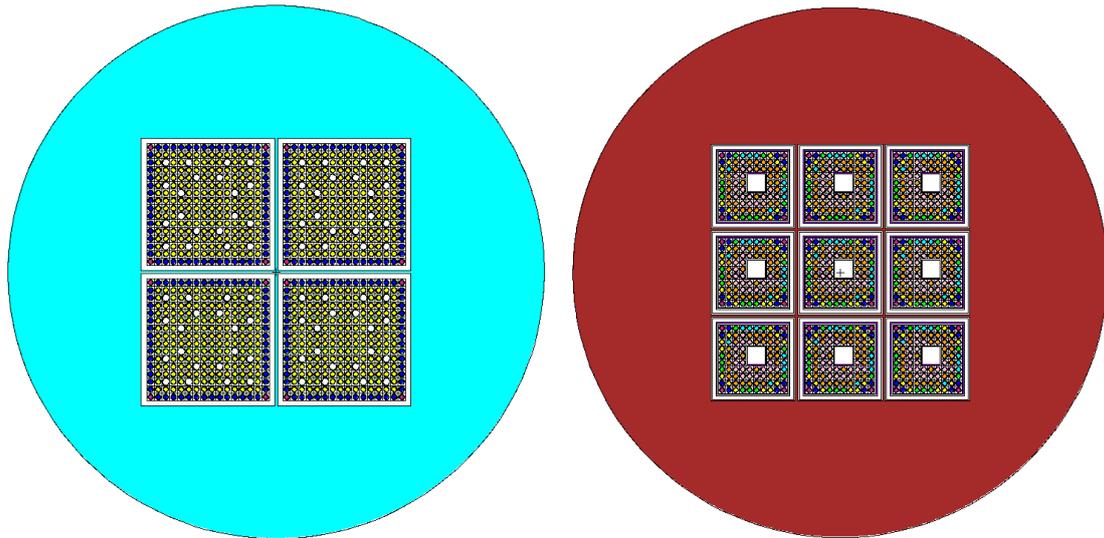
Die aus Spontanspaltungen und ( $\alpha,n$ )-Reaktionen entstehenden Neutronen führen im abgebrannten Brennstoff zu weiteren Reaktionen und damit zu einer Veränderung des Nuklidinventars zusätzlich zum radioaktiven Zerfall. Die Zahl der neutroneninduzierten Reaktionen und damit ihr Einfluss auf das Nuklidinventar hängt von dem Neutronenfluss und -spektrum im Brennstoff ab, welche sich aus den Spontanspaltungen und ( $\alpha,n$ )-Reaktionen ergeben. Der Neutronenfluss wird in erster Linie durch die Quellstärke und sekundäre Neutronenreaktionen, die ihrerseits weitere Neutronen entstehen lassen, bestimmt. Dagegen ist das Neutronenspektrum hauptsächlich durch die Spektren der

beiden Entstehungsprozesse (Spaltspektrum bzw. Neutronenspektrum der  $(\alpha,n)$ -Reaktion) gegeben. Zusätzlich kann die geometrische Anordnung des Brennstoffs und dessen Materialzusammensetzung sowie das umgebende Material Neutronenfluss und -spektrum durch Absorption oder Streuung (Moderation) beeinflussen.

Für die Berechnung des Nuklidinventars unter Einbeziehung der neutroneninduzierten Reaktionen werden der absolute Neutronenfluss und die problemspezifischen Wirkungsquerschnitte, also die mit dem Neutronenspektrum gewichteten Wirkungsquerschnitte, benötigt. Beides, sowohl Neutronenfluss als auch problemspezifische Wirkungsquerschnitte, werden hier mit dem Monte-Carlo-Neutronentransportprogramm MCNP in der Version 6.2 (Werner 2017) und den Wirkungsquerschnittsdaten der Evaluation ENDF/B-VIII.0 ermittelt.

Für eine exemplarische Berechnung des entstehenden Neutronenflusses und die problemspezifischen Wirkungsquerschnitte wird hier ein generischer Endlagerbehälter betrachtet. Das Behältermodell dient dabei ausschließlich dazu, die Neutronenmoderation bzw. -reflektion eines typischen Behälters zu simulieren, und hat nicht den Zweck notwendige Sicherheitsanforderungen eines Endlagerbehälters zu erfüllen. Der Behälter wird stark vereinfacht als unendlich langer Stahlzylinder mit vier Positionen mit DWR-Brennelementen oder neun Positionen mit SWR-Brennelementen angenommen. Eine schematische Darstellung der beiden Behältervarianten mit den enthaltenen Brennelementen zeigt Abbildung 3.3. Die wesentlichen Abmessungen der Behälter sind in Tabelle 3.1 zusammengestellt.

Als Brennelemente werden wieder die gleichen Typen mit den gleichen Abmessungen wie zuvor für die Berechnungen der Nuklidinventardaten verwendet (vergl. Kapitel 2.2): ein 16x16-20-DWR-Brennelement (Tabelle 2.4) und ein Atrium-10-SWR-Brennelement (Tabelle 2.7). In Längsrichtung ist das Modell zur Verkürzung der Rechenzeiten nicht begrenzt, d. h. das Modell ist effektiv zweidimensional, was für eine Bestimmung des Neutronenflusses und der problemspezifischen Wirkungsquerschnitte eine ausreichend gute Näherung ist. Für das Behältermaterial wird einheitlich Stahl (ca. 70 % Fe, 19 % Cr, 9 % Ni, 1 % Mn, (McConn et al. 2011), für das Claddingmaterial Zr-4 und für den abgebrannte Brennstoff das zuvor berechnete und zerfallskorrigierte Nuklidinventar (Kapitel 3.1) im Modell verwendet.



**Abbildung 3.3** Generischer Endlagerbehälter mit vier DWR-Brennelementen (links) oder neun SWR-Brennelementen (rechts)

**Tabelle 3.1** Abmessungen des generischen Endlagerbehälters

	<b>DWR-Behältervariante</b>	<b>SWR-Behältervariante</b>
Behälterdurchmesser [cm]	100	100
Brennelementpositionen [cm]	24,9 × 24,9	15,8 × 15,8
Wandstärke zwischen Brennelementpositionen [cm]	0,5	0,5

Für die Bestimmung von Neutronenfluss und problemspezifischen Wirkungsquerschnitten enthalten die beiden Rechenmodelle für den generischen Endlagerbehälter mit DWR- bzw. SWR-Brennelementen zusätzlich entsprechende Detektoren, sog. Tallies, die jeweils über die Brennstoffsäulen aller Brennstäbe definiert wurden. Damit liefert jedes Tally brennelementgemittelte Werte. Mit einem dedizierten Tally wird der Neutronenfluss und mit je einem Tally werden die problemspezifischen Wirkungsquerschnitte für die hier relevanten Kernreaktionen ( $n,2n$ ), ( $n,3n$ ), Spaltung, Spaltung + ( $n,\gamma$ ), ( $n,\alpha$ ) und ( $n,p$ ) für jedes in der nachfolgenden Abbrandrechnung relevante Nuklid erfasst.

Für die eigentliche Berechnung des absoluten Neutronenflusses werden zwei Rechenschritte benötigt. Zunächst ist der Neutronenfluss mit den zuvor bestimmten, über die Brennelemente gemittelten Anzahlen an Spontanspaltungen und ( $\alpha,n$ )-Reaktionen als Neutronenquelle zu berechnen. Im Rechenmodell wird dazu die Neutronenquelle isotrop über die Brennstoffsäulen aller Brennstäbe verteilt und mit den zuvor bestimmten Quellstärken (Abbildung 3.1) definiert. Eine Unterscheidung der Brennstäbe entsprechend der Anfangsanreicherung ist aufgrund der Verwendung der brennelementgemittelten Werte

nicht nötig. Im Rechenmodell werden zusätzlich zu den primären Neutronen aus Spontanspaltungen und ( $\alpha,n$ )-Reaktionen auch die sekundären Neutronen, die aus Kernreaktionen der primären Quellneutronen entstehen, verfolgt. So wird der Neutronenfluss wie auch die problemspezifischen Wirkungsquerschnitten unter Berücksichtigung dieser primären und sekundären Neutronen bestimmt.

Um Neutronen aus weiteren durch sekundäre Neutronen induzierte Kernreaktionen im Neutronenfluss zu erfassen, wird in einem zweiten Rechenschritt der Neutronenmultiplikationsfaktor für beiden Behältermodelle errechnet. Mit ihm lassen sich dann die Anzahl der weiteren Neutronengenerationen (tertiäre Neutronen, etc.) und damit eine Korrektur auf den Neutronenmultiplikationsfaktor abschätzen (vgl. Kapitel 3.3).

Die problemspezifischen Wirkungsquerschnitte werden zusammen mit dem Neutronenfluss im ersten Rechenschritt mit den implementierten Tallies miterfasst. Sie benötigen keine separate Berechnung.

Auf diese Weise ergeben sich mit den hier betrachteten Behältermodellen und dem mit 70 GWd/tSM abgebrannten DWR-Brennelement bzw. dem mit 65 GWd/tSM bei 70 % Dampfblasengehalt abgebrannten SWR-Brennelement nach 40 Jahren Abklingzeit die in Tabelle 3.2 zusammengestellten Ergebnisse.

**Tabelle 3.2** Resultate der Neutronenflussberechnung und des Neutronenmultiplikationsfaktors nach 40 Jahren Abklingzeit

	DWR-Behältervariante	SWR-Behältervariante
Neutronenfluss [ $1/\text{cm}^2\text{s}$ ] (Primär- und Sekundärneutronen)	2,13E+05	1,36E+05
Neutronenmultiplikationsfaktor	0,163	0,147

### 3.3 Abbrandrechnung und Vergleich der Nuklidinventare

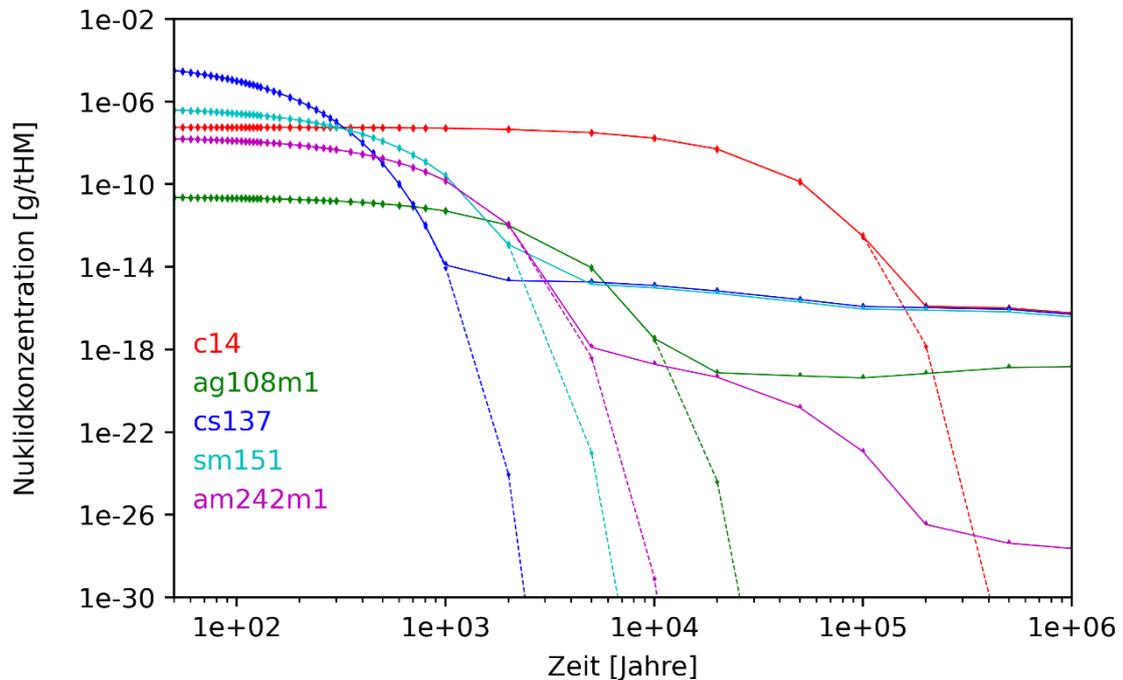
Unter Verwendung der mit MCNP berechneten Wirkungsquerschnitte und des dort bestimmten Neutronenflusses wurde im Anschluss eine Abbrandrechnung mit dem Inventarberechnungsprogramm VENTINA durchgeführt, das ein Bestandteil des MOTIVE-Systems ist. Hierbei wurden die identischen Zeitschritte wie bei der vorherigen Abklingrechnung verwendet und mit dem gleichen Anfangsinventar begonnen. Während bei einer herkömmlichen Abbrandrechnung mit MOTIVE der Neutronenfluss anhand der vorgegebenen Leistung normiert wird, wurde hier umgekehrt der Neutronenfluss

beibehalten und daraus die entstehende Leistung und der erzielte Abbrand bestimmt. Für die Rechnungen wurden am Neutronenfluss zwei Korrekturen vorgenommen: Zum einen wurde die Tatsache berücksichtigt, dass bei der Berechnung des Flusses in MCNP nur die direkten Quellneutronen und die erste Generation der durch nachfolgende Reaktionen erzeugten Neutronen (Sekundärneutronen) berücksichtigt werden. Anhand der berechneten  $k_{\text{eff}}$ -Werte von 0,163 (DWR) und 0,147 (SWR) ergeben sich Korrekturfaktoren von 1,027 und 1,022. Die Flusswerte wurden zu jedem Zeitschritt mit diesen Faktoren multipliziert. Zum anderen wurde der im Zeitverlauf abnehmenden Quellstärke Rechnung getragen, in dem der Flusswert für jeden Zeitschritt mit dem Quotienten aus der Quellstärke zu diesem Zeitschritt und derjenigen 40 Jahre nach Entladung multipliziert wurde.

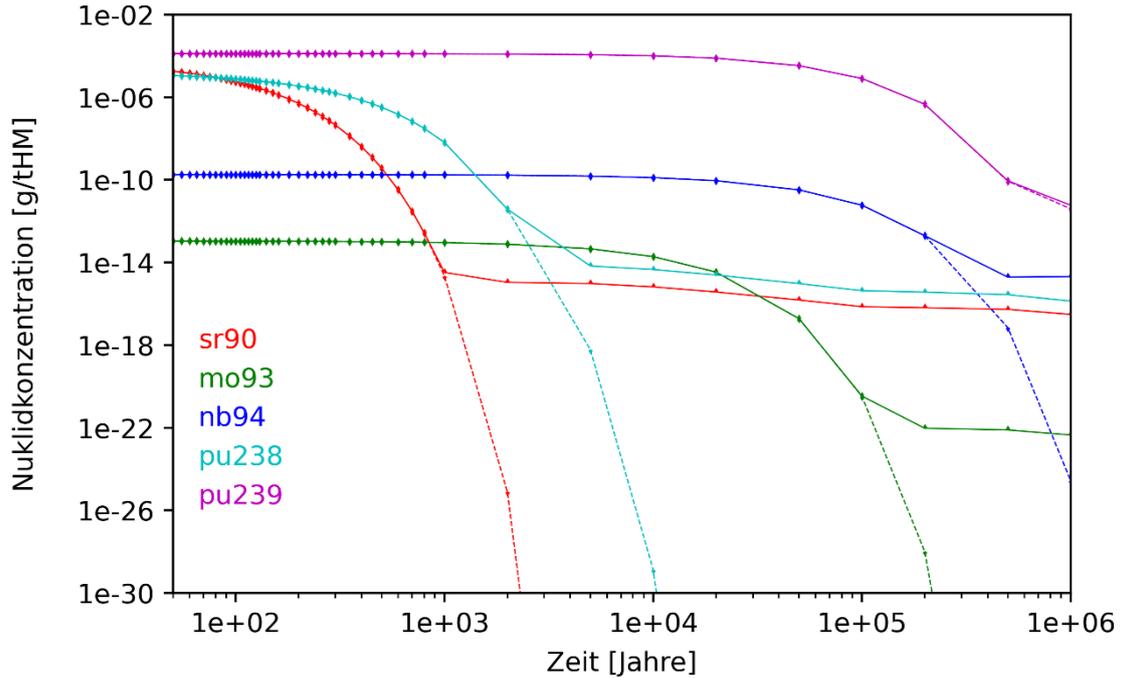
Für die Auswertung der Rechnungen wurden einerseits die Nuklidkonzentrationen direkt betrachtet und andererseits die Nuklidinventare für die Rechnung mit residualem Fluss mit denen der reinen Zerfallsrechnung verglichen. Allgemein ist dabei festzuhalten, dass bei keinem Nuklid im zeitlichen Verlauf eine signifikante Erhöhung der Konzentration auftritt. Dies ist auch nicht zu erwarten, da die Gesamtzahl der Spaltungen während der Lagerzeit um sechs Größenordnungen unterhalb der während des Reaktoreinsatzes aufgetretenen Spaltungen liegen. Vielmehr führt die sich aus dem residualen Neutronenfluss ergebende Erzeugungsrate dazu, dass Nuklidkonzentration, die sonst exponentiell abnehmen würden, gegen einen Gleichgewichtswert streben, der meist um einige Größenordnungen unter der Anfangskonzentration liegt. Für eine nähere Analyse wurden die Nuklide herangezogen, die bei der VSG für den Nuklidtransport im Endlager betrachtet wurden (Larue et al. 2013). Diese werden im Folgenden auch als VSG-Nuklide bezeichnet. In Abbildung 3.4 und Abbildung 3.5 ist für das DWR-Brennelement der zeitliche Verlauf der Nuklidkonzentrationen mit und ohne Berücksichtigung des residualen Neutronenflusses für die diejenigen der VSG-Nuklide gezeigt, für die sich relevante Änderungen ergeben. Für das SWR-Brennelement ergibt sich ein entsprechendes Verhalten. Das oben bereits beschriebene Verhalten zeigt sich auch für diese Nuklide: Während ohne Berücksichtigung des residualen Neutronenflusses die Konzentrationen der fraglichen Nuklide gegen Null streben, stellt sich mit Berücksichtigung des residualen Neutronenflusses eine Gleichgewichtskonzentration ein, die jedoch um Größenordnungen niedriger liegt als die Anfangskonzentration.

Die finale Beurteilung der Relevanz der beschriebenen Effekte für den Endlagersicherheitsnachweis übersteigt den Rahmen der vorliegenden Untersuchung, da hier zusätzliche Aspekte wie der Radionuklidtransport im Endlager sowie die radiologische Relevanz

eine Rolle spielen. Zur Einordnung der Ergebnisse sind auch die Randbedingungen und Annahmen der hier durchgeführten Betrachtungen wichtig. So wurde für die Rechnung angenommen, dass der Behälter über den gesamten Betrachtungszeitraum intakt bleibt. Diese Annahme ist nicht für jedes Wirtsgestein gültig.



**Abbildung 3.4** Nuklidkonzentrationen mit und ohne Berücksichtigung des residualen Neutronenflusses für ausgewählte Nuklide (DWR-Brennelement). Die gestrichelte Linie entspricht dem Zeitverlauf ohne Neutronenfluss, die durchgezogene Linie dem Zeitverlauf mit Neutronenfluss.



**Abbildung 3.5** Nuklidkonzentrationen mit und ohne residualem Neutronenfluss für ausgewählte Nuklide (DWR-Brennelement, Fortsetzung)

Dies ist vor allem relevant für die Gültigkeit der Neutronenflussberechnung. Weiterhin wurde bei der Berechnung der Nuklidkonzentrationen jeglicher Stofftransport vernachlässigt. Dieser kann einerseits einen direkten Einfluss auf die Konzentrationen haben, andererseits ist auch zu beachten, dass etwaige Einfangreaktionen nur stattfinden, wenn sich das zugehörige Nuklid am Ort des Neutronenflusses, d.h. in der Nähe der Spontanspalter und des spaltbaren Materials befindet.

## 4 Zusammenfassung

Für die Bereitstellung von repräsentativen Nuklidinventaren für die vorläufigen Sicherheitsuntersuchungen im Rahmen der Standortauswahl und für die Auslegung von zu entwickelnden Endlagerbehältern wurden Abbrandrechnungen mit dem Programm MOTIVE der GRS durchgeführt. Hierfür wurde je ein Modell für ein DWR- und ein SWR-Brennelement erstellt. Dabei wurde eine  $16 \times 16$ -20-Geometrie für DWR bzw. ein Atrium-10-Brennelement für SWR zugrunde gelegt. Es wurden  $\text{UO}_2$ -Brennstoffe mit einer Anfangsanreicherung von 4,6 Gew.-% und 3,1 Gew.-%  $^{235}\text{U}$  und ein MOX-Brennstoff mit einem Plutoniumanteil von 5,06 % betrachtet. Die zugrundegelegten Abbrände decken einen weiten Bereich zwischen 10 und 70 GWd/tSM ab.

Zur Verifikation und Validierung der Rechnungen wurden die Ergebnisse von Experimentnachrechnungen zu Nuklidkonzentrationen und Zerfallsleistungen von Brennelementen untersucht und ausgewertet. Insgesamt entsprechen die dabei erzielten Ergebnisse denen, die für andere etablierte Rechenverfahren publiziert wurden. Bei den Nuklidkonzentrationen stimmen für die wichtigsten Uran- und Plutoniumnuklide die Rechnungen innerhalb von wenigen Prozent mit den experimentellen Daten überein. Für die höheren Aktinoide ergeben sich aufgrund der komplexen Aufbaupfade größere Abweichungen im Bereich von 5 bis maximal 30 %. Die gemessenen Konzentrationen werden dabei von der Rechnung im Allgemeinen unterschätzt. Für die Spaltprodukte ergibt sich ein gemischtes Bild. Bei vielen ergibt sich eine geringe Abweichung im Bereich von  $\pm 4$  %. Bei Spaltprodukten mit großem Neutroneneinfangquerschnitt und solchen, bei denen es bekannte Schwierigkeiten in der Messung gibt, treten größere Abweichungen von bis zu 25 % auf. Bei der Berechnung der Nachzerfallsleistung von Brennelementen treten im Mittel Abweichungen von  $\pm 1$  % mit einer Standardabweichung von 1-2 % auf, wobei für die qualitativ etwas weniger hochwertig einzuschätzenden Daten von GE Morris eine größere Standardabweichung (6 %) beobachtet wird.

Zusätzlich wurde ein Vergleich mit der Abbrandsequenz T-NEWT aus dem SCALE-Paket durchgeführt. Hierbei wurde eine sehr gute Übereinstimmung zwischen den Rechenverfahren beobachtet mit Abweichungen in den Nuklidkonzentrationen im Bereich von  $\pm 2$  %. Dies trifft allerdings nur dann zu, wenn die gleiche nukleare Datenbasis verwendet wird. Beim Vergleich der MOTIVE-Rechnung mit ENDF/B-VIII.0-Daten mit einer T-NEWT Rechnung mit ENDF/B-VII.1-Daten, wurde für einzelne Nuklide eine deutlich größere Abweichung im Bereich 8-12 % beobachtet.

Für die hier dargestellte Bereitstellung von repräsentativen Nuklidinventardaten dienen die Validierungsrechnungen in erster Linie dazu, eine Einschätzung der Genauigkeit der Ergebnisse zu erhalten. Für tiefergehende Analysen kann die Anwendung von Verfahren zur Unsicherheitsanalysen und die Entwicklung von Korrekturmethode zur Sicherstellung von konservativ abdeckenden Ergebnissen notwendig werden. Zu beachten ist außerdem, dass nicht für alle eventuell relevanten Nuklide Konzentrationsmessungen vorliegen.

Zur Abschätzung des Einflusses des residualen Neutronenflusses aufgrund von Spontanspaltungs- und ( $\alpha$ ,n)-Neutronen während der Lagerzeit im Endlager wurde eine Flussberechnung mit dem Monte Carlo-Programm MCNP durchgeführt. Mit dem so berechneten Fluss wurde wiederum eine Inventarberechnung durchgeführt, die mit der äquivalenten Rechnung ohne Neutronenfluss verglichen wurde. Es konnte gezeigt werden, dass sich unter den angenommenen Randbedingungen (u. a. Aufrechterhaltung der Integrität des Lagerbehälters über den gesamten Betrachtungszeitraum) signifikante relative Änderungen in den Konzentrationen relevanter Nuklide ergeben. Diese treten allerdings erst auf, nachdem die absolute Konzentration der Nuklide jeweils um einige Größenordnungen zurückgegangen ist. Ob diese Resultate einen relevanten Einfluss auf den Sicherheitsnachweis für ein potentielles Endlager haben, kann abschließend nur in Zusammenarbeit mit den Experten der relevanten Fachbereiche geklärt werden.

## Literaturverzeichnis

- Behler, M., Hannstein, V. & Sommer, F. (2018). Nachrechnung radiochemischer Analyseproben mit dem Abbrandprogramm MOTIVE. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH.
- Bienvendu, P., Ferreux, L., Andreatti, G., Arnal, N., Lépy, M.-C. & Bé, M.-M. (2009). Determination of  $^{126}\text{Sn}$  half-life from ICP-MS and gamma spectrometry measurements 97. <https://doi.org/10.1524/ract.2009.1673>.
- Bundesamt für Strahlenschutz. 4. Änderungsgenehmigung zur Aufbewahrung von Kernbrennstoffen im Standort-Zwischenlager in Gundremmingen der RWE Power AG, der E.ON Kernkraft GmbH und der Kernkraftwerk Gundremmingen GmbH. Bundesamt für Strahlenschutz. Genehmigung. SE 1.3 – 873403.
- Bundesamt für Strahlenschutz. Genehmigung zur Aufbewahrung von Kernbrennstoffen im Standort-Zwischenlager in Niederaichbach der E.ON Kernkraft GmbH und der E.ON Bayern AG. Bundesamt für Strahlenschutz. Genehmigung. GZ-V1 - 8551 510.
- Gauld, I. C. (2003). MOX Cross-Section Libraries for ORIGEN-ARP. Oak Ridge National Lab. (ORNL), Oak Ridge, TN. ORNL/TM-2003/2. <https://doi.org/10.2172/885544>.
- Haeck, W., Ichou, R. & Ecrabet, F. (2014). Experimental validation of decay heat calculations with VESTA 2.1. In: American Nuclear Society (Hrsg.). Proceedings of PHYSOR 2014, PHYSOR 2014: The Role of Reactor Physics toward a Sustainable Future, Kyoto, Japan, September 28 - October 3, 2014.
- Hannstein, V., Behler, M., Henry, R. & Sommer, F. (2023). Validation of the burnup code MOTIVE with respect to fuel assembly decay heat data. *Frontiers in Energy Research* 11. <https://doi.org/10.3389/fenrg.2023.1083249>.
- Hannstein, V., Behler, M. & Sommer, F. (2017). MOTIVE - A New Modular Burn-up Code. In: International Conference on Mathematics & Computational Methods Applied to Nuclear Science & Engineering, M&C 2017, Jeju, Korea, April 16-20. Red Hook, NY, USA, Curran Associates, Inc.

- Hannstein, V., Behler, M. & Sommer, F. (2018). Towards A Validation of the Burn-Up Code MOTIVE. In: Proceedings of PHYSOR 2018, Reactor Physics Paving The Way Towards More Efficient Systems, Cancun, Mexico, 22. - 26. April.
- Hannstein, V., Behler, M. & Sommer, F. (2019). Validation Of The Burn-Up Code MOTIVE Using ENDF/B-VIII Data. In: ICNC 2019, International Conference on Nuclear Criticality Safety, Paris, Frankreich, 15.-20. September 2019.
- Hesse, U., Denk, W. & Deitenbeck, H. (1986). OREST - eine direkte Kopplung von HAMMER und ORIGEN zur Abbrandsimulation von LWR-Brennstoffen. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH. GRS-63.
- Hesse, U. & Hummelsheim, K. (2001). Abbrand- und Aktivierungsrechnungen von UO<sub>2</sub>- und MOX Brennelementen für DWR unter Berücksichtigung der Verunreinigungen in Brennstoff und Strukturmaterial. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH. GRS-A- 2924.
- Ilas, G., Burns, J., Hiscox, B. & Mertzyurek, U. (2022). SCALE 6.2.4 Validation: Reactor Physics. <https://doi.org/10.2172/1902818>.
- Ilas, G. & Burns, J. R. (2021). SCALE 6.2.4 Validation for Light Water Reactor Decay Heat Analysis. Nuclear Technology, 1–11. <https://doi.org/10.1080/00295450.2021.1935165>.
- Jansson, P., Bengtsson, M., Bäckström, U., Álvarez-Velarde, F., Čalič, D., Caruso, S., Dagan, R., Fiorito, L., Giot, L., Govers, K., Hernandez Solis, A., Hannstein, V., Ilas, G., Kromar, M., Leppänen, J., Mosconi, M., Ortego, P., Plukiené, R., Plukis, A., Ranta-Aho, A., Rochman, D. A., Ros, L., Sato, S., Schillebeeckx, P., Shama, A., Simeonov, T., Stankovskiy, A., Trelue, H., Vaccaro, S., Vallet, V., Verwerft, M., Žerovnik, G. & Sjöland, A. (2022). Blind Benchmark Exercise for Spent Nuclear Fuel Decay Heat. Nuclear Science and Engineering, 1–21. <https://doi.org/10.1080/00295639.2022.2053489>.
- Jörg, G., Bühnemann, R., Hollas, S., Kivel, N., Kossert, K., van Winckel, S. & Gostomski, C. L. v. (2010). Preparation of radiochemically pure <sup>79</sup>Se and highly precise determination of its half-life. Applied Radiation and Isotopes 68 (12), 2339–2351. <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2010.05.006>.

- Kromar, M. & Godfrey, A. T. (2022). Determination of the spent fuel decay heat with the VERA core simulator. *Frontiers in Energy Research* 10. <https://doi.org/10.3389/fenrg.2022.1046506>.
- Larue, J., Baltes, B., Fischer, H., Frieling, G., Kock, I., Navarro, M. & Seher, H. (2013). Radiologische Konsequenzenanalyse. Bericht zum Arbeitspaket 10, Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben. Köln.
- Mala, P. (2018). Pin-by-Pin Treatment of LWR Cores with Cross Section Equivalence Procedures and Higher-Order Transport Methods. PhD Thesis. Lausanne, EPFL. <https://doi.org/10.5075/epfl-thesis-8913>.
- Marotte, V., Clément, F., Thureau, S., Misu, S. & Zmijarevic, I. (2006). Industrial Application of APOLLO2 to Boiling Water Reactors. In: American Nuclear Society (Hrsg.). *Proceedings of PHYSOR 2006, PHYSOR 2006: Advances in Nuclear Analysis and Simulation*, Vancouver, BC, Canada, 10. - 14. September 2006. La Grange Park, IL, USA.
- McConn, R. J., Gesh, C. J., Pagh, R. T., Rucker, R. A. & Williams III, R. (2011). Compendium of Material Composition Data for Radiation Transport Modeling. PNNL-15870 Rev. 1. Pacific Northwest National Laboratory. Richland WA (United States). <https://doi.org/10.2172/1023125>.
- Mertyurek, U. & Gauld, I. C. (2016). Development of ORIGEN libraries for mixed oxide (MOX) fuel assembly designs. *Nuclear Engineering and Design* 297, 220–230. <https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2015.11.027>.
- Michel-Sendis, F., Gauld, I. C., MARTINEZ, J. S., Alejano, C., Bossant, M., Boulanger, D., Cabellos, O., Chrapciak, V., Conde, J., Fast, I., Gren, M., Govers, K., Gysemans, M., Hannstein, V., Havlůj, F., Hennebach, M., Hordosy, G., Ilas, G., Kilger, R., Mills, R., Mountford, D., Ortego, P., Radulescu, G., Rahimi, M., Ranta-Aho, A., Rantamäki, K., Ruprecht, B., Soppera, N., Stuke, M., Suyama, K., Tittelbach, S., Tore, C., van Winckel, S., Vasiliev, A., Watanabe, T., Yamamoto, T. & Yamamoto, T. (2017). SFCOMPO-2.0. An OECD NEA database of spent nuclear fuel isotopic assays, reactor design specifications, and operating data. *Annals of Nuclear Energy* 110, 779–788. <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2017.07.022>.

- OECD & Nuclear Energy Agency (2003). Physics of Plutonium Recycling. Volume VII: BWR MOX Benchmark - Specification and Results.
- Peiffer, F., McStocker, B., Gründler, D., Ewig, F., Thomaske, B., Havenith, A. & Kettler, J. (2011). Abfallspezifikation und Mengengerüst. Basis Ausstieg aus der Kernenergienutzung (Juli 2011). Bericht zum Arbeitspaket 3, Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben. Köln.
- Pusa, M. (2011). Rational Approximations to the Matrix Exponential in Burnup Calculations. *Nuclear Science and Engineering* 169 (2), 155–167.  
<https://doi.org/10.13182/NSE10-81>.
- Pusa, M. & Leppänen, J. (2010). Computing the Matrix Exponential in Burnup Calculations. *Nuclear Science and Engineering* 164 (2), 140–150.  
<https://doi.org/10.13182/NSE09-14>.
- Rearden, B. T. & Jessee, M. A. (Hrsg.) (2018). SCALE Code System. ORNL/TM-2005/39, Version 6.2.3. Available from Radiation Safety Information Computational Center as CCC-834.
- Rochman, D. A., Álvarez-Velarde, F., Dagan, R., Fiorito, L., Häkkinen, S., Kromar, M., Muñoz, A., Panizo-Prieto, S., Romojaro, P., Schillebeeckx, P., Seidl, M., Shama, A. & Žerovnik, G. (2023). On the estimation of nuclide inventory and decay heat: a review from the EURAD European project. *EPJ Nuclear Sciences & Technologies* 9, 14. <https://doi.org/10.1051/epjn/2022055>.
- Romano, P. K., Horelik, N. E., Herman, B. R., Nelson, A. G., Forget, B. & Smith, K. (2015). OpenMC: A State-of-the-Art Monte Carlo Code for Research and Development. *Annals of Nuclear Energy* 82.
- Shama, A., Rochman, D., Caruso, S. & Pautz, A. (2022). Validation of spent nuclear fuel decay heat calculations using Polaris, ORIGEN and CASMO5. *Annals of Nuclear Energy* 165, 108758. <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2021.108758>.

- Strickler, H. R. & Doman, J. W. (1982). In-plant test measurements for spent-fuel storage at Morris Operation. Volume 3. Fuel bundle heat generation rates. General Electric Co., San Jose, CA (USA). Nuclear Fuel and Services Div NEDG-24922-3. <https://doi.org/10.2172/5365095>.
- Svensk Kärnbränslehantering AB (2006). Measurements of decay heat in spent nuclear fuel at the Swedish interim storage facility, Clab. SKB. Online verfügbar unter <https://www.skb.se/publikation/1472024/R-05-62.pdf> (abgerufen am 13.12.2019).
- Wagner, J. C. (2003). Impact of Soluble Boron Modeling for PWR Burnup Credit Criticality Safety Analyses. In: ANS (Hrsg.). Winter Meeting, Winter Meeting, New Orleans, LA, November 16-20.
- Werner, C. J. (Hrsg.) (2017). MCNP. User's Manual Code Version 6.2. Los Alamos National Laboratory. Los Alamos, NM, USA. La-UR-17-29981.
- Wiles, L. E., Lombardo, N. J., Heeb, C. M., Jenquin, U. P., Michener, T. E., Wheeler, C. L., Creer, J. M. & McCann, R. A. (1986). BWR Spent Fuel Storage Cask Performance Test. Volume II Pre- And Post-Test Decay Heat, Heat Transfer, And Shielding Analyses. Pacific Northwest Laboratory. Online verfügbar unter <https://www.osti.gov/servlets/purl/5714090> (abgerufen am 12.09.2022).



## Abbildungsverzeichnis

Abbildung 2.1	Geometriemodell des DWR-UO <sub>2</sub> -Brennelements .....	10
Abbildung 2.2	Geometriemodell für die Abbrandrechnungen zum MOX-Brennelement. Anordnung mit drei UO <sub>2</sub> - und einem MOX-Brennelement (rechts unten) mit periodischen Randbedingungen. Die im Text beschriebenen drei Stabsorten mit unterschiedlichem Pu-Gehalt sind in verschiedenen Rottönen dargestellt. ....	11
Abbildung 2.3	Geometriemodell für das Atrium-10 Brennelement in den SWR-Rechnungen. Die Farben der verschiedenen Stäbe entsprechen den in Tabelle 2.9 angegebenen Anfangsanreicherungen. ....	14
Abbildung 2.4	Geometriemodell für die MOX-Abbrandrechnungen (SWR-Brennelement). Anordnung mit drei UO <sub>2</sub> - und einem MOX-Brennelement (rechts unten) mit periodischen Randbedingungen. Die in Tabelle 2.10 dargestellten Stabsorten mit unterschiedlichem Pu-Gehalt sind in den dort angegebenen Farben wiedergegeben. ....	15
Abbildung 2.5	Ergebnisse der Probennachrechnungen gemittelt über alle Proben. Die Fehlerbalken stellen die Streuung der Einzelwerte in Form einer Standardabweichung dar. ....	20
Abbildung 2.6	Differenz zwischen berechneter (C) und gemessener (E) Zerfallsleistung für die DWR-Proben von CLAB. Die gestrichelten Linien stellen die angegebene experimentelle Unsicherheit (1σ) dar. ....	27
Abbildung 2.7	Differenz zwischen berechneter (C) und gemessener (E) Zerfallsleistung für die SWR-Proben von CLAB. Die gestrichelten Linien stellen die angegebene experimentelle Unsicherheit (1σ) dar. ....	28
Abbildung 2.8	Differenz zwischen berechneter (C) und gemessener (E) Zerfallsleistung für die SWR-Proben von GE-Morris. Die gestrichelten Linien stellen die angegebene experimentelle Unsicherheit (1σ und 2σ) dar. ....	28
Abbildung 2.9	DWR-Brennelement: relative Abweichung in den Konzentrationen zwischen den Rechnungen mit MOTIVE (M) und SCALE (S) für die wichtigsten Nuklide im Hinblick auf die Zerfallsleistung nach 5 Jahren Abklingzeit .....	30
Abbildung 2.10	DWR-Brennelement: relative Abweichung in den Konzentrationen zwischen den Rechnungen mit MOTIVE (M) und SCALE (S) für die wichtigsten Nuklide im Hinblick auf die Zerfallsleistung nach 100 Jahren Abklingzeit .....	30

Abbildung 2.11 DWR-Brennelement: relative Abweichung in den Konzentrationen zwischen den Rechnungen mit MOTIVE (M) und SCALE (S) für die wichtigsten Nuklide im Hinblick auf die Aktivität nach 5 Jahren Abklingzeit .....	31
Abbildung 2.12 DWR-Brennelement: relative Abweichung in den Konzentrationen zwischen den Rechnungen mit MOTIVE (M) und SCALE (S) für die wichtigsten Nuklide im Hinblick auf die Aktivität nach 100 Jahren Abklingzeit .....	31
Abbildung 2.13 SWR-Brennelement: relative Abweichung in den Konzentrationen zwischen den Rechnungen mit MOTIVE (M) und SCALE (S) für die wichtigsten Nuklide im Hinblick auf die Zerfallsleistung nach 5 Jahren Abklingzeit .....	32
Abbildung 2.14 SWR-Brennelement: relative Abweichung in den Konzentrationen zwischen den Rechnungen mit MOTIVE (M) und SCALE (S) für die wichtigsten Nuklide im Hinblick auf die Zerfallsleistung nach 100 Jahren Abklingzeit .....	32
Abbildung 2.15 SWR-Brennelement: relative Abweichung in den Konzentrationen zwischen den Rechnungen mit MOTIVE (M) und SCALE (S) für die wichtigsten Nuklide im Hinblick auf die Aktivität nach 5 Jahren Abklingzeit .....	33
Abbildung 2.16 SWR-Brennelement: relative Abweichung in den Konzentrationen zwischen den Rechnungen mit MOTIVE (M) und SCALE (S) für die wichtigsten Nuklide im Hinblick auf die Aktivität nach 100 Jahren Abklingzeit .....	33
Abbildung 3.1 Mit ORIGEN berechnetes Quellneutronenspektrum für das DWR-Brennelement .....	37
Abbildung 3.2 Mit ORIGEN berechnetes Quellneutronenspektrum für das SWR-Brennelement .....	38
Abbildung 3.3 Generischer Endlagerbehälter mit vier DWR-Brennelementen (links) oder neun SWR-Brennelementen (rechts).....	40
Abbildung 3.4 Nuklidkonzentrationen mit und ohne Berücksichtigung des residualen Neutronenflusses für ausgewählte Nuklide (DWR-Brennelement). Die gestrichelte Linie entspricht dem Zeitverlauf ohne Neutronenfluss, die durchgezogene Linie dem Zeitverlauf mit Neutronenfluss. ....	43
Abbildung 3.5 Nuklidkonzentrationen mit und ohne residualem Neutronenfluss für ausgewählte Nuklide (DWR-Brennelement, Fortsetzung) .....	44

## Tabellenverzeichnis

Tabelle 2.1 Zusammenstellung der Parametersätze der berechneten Inventardaten.....	6
Tabelle 2.2 In den Inventarberechnungen verwendeter MOX-Vektor (berechnet nach (Gauld 2003)).....	7
Tabelle 2.3 Auflistung der in den Rechnungen verwendeten Abklingschritte.....	7
Tabelle 2.4 Wesentliche Eigenschaften des Modells für das DWR-Brennelement gemäß (Hesse & Hummelsheim 2001) .....	9
Tabelle 2.5 Modellierter Leistungsgeschichte für die DWR Rechenfälle .....	9
Tabelle 2.6 Plutoniumgehalte für die verschiedenen Stabsorten des DWR MOX-Brennelements. Die in (Mertyurek & Gauld 2016) angegebenen relativen Pu-Gehalte wurden dafür so skaliert, dass sich im Mittel der in Tabelle 2.2 angegebene Wert ergibt .....	11
Tabelle 2.7 Wesentliche Eigenschaften des SWR-Brennelement-Modells gemäß (OECD & Nuclear Energy Agency 2003) .....	12
Tabelle 2.8 Modellierter Leistungsgeschichte für die SWR-Rechenfälle .....	13
Tabelle 2.9 Anfangsanreicherungen der Stabsorten für das SWR-Brennelementmodell für die mittleren Anreicherungen von 3,1 und 4,6 Gew.% .....	14
Tabelle 2.10 Plutoniumgehalte der verschiedenen Stabsorten des SWR-MOX-Brennelements .....	15
Tabelle 2.11 Zusammenstellung der nachgerechneten radiochemischen Analyseproben (Michel-Sendis et al. 2017).....	19
Tabelle 2.12 Mittelwerte der relativen Abweichungen zwischen Rechnung und Experiment über alle Proben gemittelt .....	21
Tabelle 2.13 Zusammenstellung der nachgerechneten Proben zur Nachzerfallsleistung.....	25
Tabelle 2.14 Zusammenfassung der Ergebnisse der Nachrechnung der Messungen der Zerfallsleistung .....	26
Tabelle 3.1 Abmessungen des generischen Endlagerbehälters.....	40
Tabelle 3.2 Resultate der Neutronenflussberechnung und des Neutronenmultiplikationsfaktors nach 40 Jahren Abklingzeit.....	41

## Abkürzungsverzeichnis

BGE	Bundesgesellschaft für Endlagerung
BMWi	Bundesministerium für Wirtschaft und Energie
DWR	Druckwasserreaktor
GRS	Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit gGmbH
MIT	Massachusetts Institut für Technologie
MOX	Mischoxid
NEA	Nuclear Energy Agency
OECD	Organisation für wirtschaftliche Zusammenarbeit und Entwicklung
PIE	Post-irradiation examination (Nachbestrahlungsanalyse)
PSI	Paul Scherrer Institut
SKB	Svensk Kernbränslehantering AB
StandAG	Standortauswahlgesetz
SWR	Siedewasserreaktor
vSU	vorläufige Sicherheitsuntersuchungen
VSG	Vorläufige Sicherheitsanalyse Gorleben

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

Schwertnergasse 1  
**50667 Köln**

Telefon +49 221 2068-0  
Telefax +49 221 2068-888

Forschungsinstitute  
**85748 Garching b. München**

Telefon +49 89 32004-0  
Telefax +49 89 32004-300

Kurfürstendamm 200  
**10719 Berlin**

Telefon +49 30 88589-0  
Telefax +49 30 88589-111

Theodor-Heuss-Straße 4  
**38122 Braunschweig**

Telefon +49 531 8012-0  
Telefax +49 531 8012-200

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