研究論文

431. Pu 装荷重水格子の燃焼特性, (Ⅲ)

Pu の Recycle 使用

新藤 隆一*, 安川 茂*

*On Burnup Characteristics of D₂O-Moderated, Pu-Fueled Lattice, (Ⅲ)
Plutonium Recycle*

By Riyuiti SHINDO and Shigeru YASUKAWA

The study reported is on the burnup analysis of a D₂O-moderated lattice, fueled with Pu. There are several different ways in which Pu is used as fuel, and on these depend the Pu efficiency.

In this report is described a study made on Pu recycling. In this instance, the first cycle has U as fuel, and Pu derived from this cycle is used in the second cycle, mixed with U. If the fuel of the first cycle is 0.9% enriched and the second cycle results in a further enrichment of 0.9% by mixing natural U with the Pu out of the first cycle, phoenix Pu can be won from the consumed fuel of the second cycle.

I. 序 論

EL-4 大型改良格子⁽¹⁾へのプルトニウム利用の一方として, plutonium recycle について考察する。この場合, つぎの2通りの利用が考えられる。

A. 微濃縮燃料を用いる場合

- (1) 初期装荷燃料として 0.9% ²³⁵U 微濃縮燃料を用いる。
- (2) 初期装荷燃料として 1.1% ²³⁵U 微濃縮燃料を用いる。

以上(1), (2)のいずれの場合も, 第2サイクルは第1サイクルよりの取出し燃料中のプルトニウムと同組成のプルトニウム**を天然ウランおよび劣化ウラン**に加えて第1サイクルと同一濃縮度にして装荷する。

B. 低濃縮燃料を用いる場合

これは ²³⁹Pu 含有の高いプルトニウムを天然ウランおよび劣化ウランに加えて 6~10%の濃縮燃料として装荷し, 燃焼とともに ²⁴⁰Pu 含有が高くなると Phoenix 性を示すようになる可能性のあることを利用して燃焼度を大きく伸ばそうという意図である。この場合の装荷プルトニウムは原電東海炉の燃料サイクル平衡時の取出し燃料中のプルトニウムと同一組成のプルトニウ

ムとした。その組成は,

²³⁹ Pu	75.96%	²⁴⁰ Pu	18.47%
²⁴¹ Pu	5.21%	²⁴² Pu	0.36%

である。つぎに, 各場合についてその燃焼特性を述べる。

II. 燃 焼 特 性

1. 微濃縮燃料の場合

(1) 0.9%微濃縮の場合

第1サイクルで 0.9%微濃縮ウランを装荷する。その 16,042 MWD/Tでの取出し燃料中のプルトニウムと同組成のプルトニウムを天然ウランおよび劣化ウランに加え 0.9%にして装荷し, それを第2サイクルとする。これらの場合の燃焼曲線を Fig. 1 に示す。これを見ると初期実効増倍率は ²³⁵U 濃縮, (天然ウラン+プルトニ

* 日本原子力研究所 (Japan Atomic Energy Res. Inst.)

** このプルトニウムの量は十分にあるとする。

*** CANDU 格子で天然ウランを燃料としたときの取出し燃料中のウランであり, その取出し時の燃焼度は 9,750 MWD/T である。その時の ²³⁵U 濃度は 0.2% である。

Fig. 1 Burnup Curve of Pu Recycle, (I)

ウム)濃縮, (劣化ウラン+プルトニウム)濃縮の順で小さくなるが, これはその順で ^{240}Pu の原子数密度が増すため共鳴吸収が大きくなるからである。しかし反面, ^{240}Pu は親核種であるために $^{240}\text{Pu} \rightarrow ^{241}\text{Pu}$ の転換が効いて燃焼に伴う反応度の低下率はその順に小さくなる傾向を示す。しかし 0.9%濃縮の場合では, その $^{240}\text{Pu} \rightarrow ^{241}\text{Pu}$ の転換が小さく, ^{240}Pu の原子数密度の大きいほど燃焼度は悪くなっている。0.9%濃縮燃料の場合の燃焼度は第1サイクルは 16,000 MWd/T であり, 第2サイクルはつぎのとおりである。

(N.U.+Pu)の場合 約17,000 MWd/T

(D.U.**+Pu)の場合 約14,000 MWd/T

つぎに, Fig. 2, 3 および 4 に, おのおの第1サイクル(0.9%E.U.), 第2サイクルの(D.U.+Pu)および(N.U.+Pu)の燃焼に伴う核種濃度変化を示した。Fig. 2 をみると, ^{239}Pu は 10,000 MWd/T 付近までは漸次増し, その後はやや減る傾向にあるが, ^{241}Pu が増すので $^{239}\text{Pu} + ^{241}\text{Pu}$ は 10,000 MWd/T 以後はほぼ平衡にある。そして取出し時 16,042 MWd/T では 0.35% の蓄積となる。このときのプルトニウム組成は

^{239}Pu 51.91%	^{240}Pu 31.57%
^{241}Pu 9.07%	^{242}Pu 7.45%

である。さらに ^{235}U をみると, 取出し時では 0.07% にまで燃焼していることがわかる。一方, Fig. 3 をみると, ^{235}U は取出し時(14,000 MWd/T)で 0.03% まで燃えており, 劣化ウラン中の ^{235}U が有効に利用され

Fig. 2 Effect of Burnup on Nuclide Concentration (0.9% E.U. fuel)

Fig. 3 Effect of Burnup on Nuclide Concentration (0.9% D.U.+Pu fuel)

Fig. 4 Effect of Burnup of Nuclide Concentration (0.9% N.U.+Pu fuel)

ていることがわかる。この図で ^{239}Pu , ^{241}Pu が燃焼とともに減っているのは, 初期にプルトニウムを劣化ウランに加えた燃料を用いたので, 燃焼はプルトニウムに依存する形となっているからである。この場合の取出しプルトニウムの組成は

^{239}Pu 34.2%	^{240}Pu 34.6%
^{241}Pu 10.8%	^{242}Pu 20.4%

であり, 分裂性核種の組成率が低いので, この組成のプルトニウムはもはや Phoenix 性を発揮させるのは無理であろう。つぎに Fig. 4 をみると, 取出し時(18,000 MWd/T)では(D.U.+Pu)の場合よりプルトニウム中の ^{239}Pu の比率が高くなっている点が異な

* Natural Uranium の略を示す。

** Depleted Uranium の略を示す。

る。その組成は

^{239}Pu 43.58%	^{240}Pu 32.37%
^{241}Pu 9.49%	^{242}Pu 14.56%

であり、前報における(Pu 装荷重水格子)の燃焼特性、(II) A type のプルトニウムに近い組成である。したがって、このプルトニウムのPhoenix性を利用すれば、A typeと同程度の燃焼度が得られよう。

(2) 1.1%微濃縮の場合

第1サイクルで1.1% ^{235}U 微濃縮燃料を装荷する。その20,500 MWD/Tでの取出し燃料中のプルトニウムと同組成のプルトニウムを天然ウランおよび劣化ウランに加えて1.1%にして装荷し、これを第2サイクルとする。これらの燃焼曲線をFig. 1に示す。これによると、おのおの場合の初期反応度の差は0.9%の場合より大きい、この相異は濃縮度が高くなったことにより ^{240}Pu の原子数密度が増すことに起因する。一方、 $^{240}\text{Pu} \rightarrow ^{241}\text{Pu}$ の転換による効果も出やすくなるわけで、事実(D.U.+Pu)のように ^{240}Pu が多いほどその効果により燃焼に伴う反応度の低下率は小さくなっていることがわかる。しかし、 ^{240}Pu 共鳴吸収のため初期余剰反応度が小さくなるので、燃焼度はあまり伸びずウラン装荷の場合より小さい。このような性質は0.9%と1.1%微濃縮のおのおので、それぞれ対応するサイクル間でも弱いながらみられる。つぎに燃焼度をみると、第1サイクルは20,500 MWD/Tであり、第2サイクルの場合は、

N.U.+Pu の場合	23,000 MWD/T
D.U.+Pu の場合	20,500 MWD/T

となる。これらはいずれの場合も0.9%の場合よりかなりの程度大きくなっている。さらに、燃焼による核種濃度変化をみよう。Fig. 5に1.1% ^{235}U 微濃縮の場合の燃焼に伴う核種濃度の変化を示した。これによると、 ^{239}Pu は14,000~15,000 MWD/T付近でピークとなり、それ以後では比較的急速に減ってゆく。また、 ^{241}Pu の増加もさほど大きくないので、

Fig. 5 Effect of Burnup on Nuclide Concentration (1.1% E.U. fuel)

Fig. 6 Effect of Burnup on Nuclide Concentration (1.1% D.U.+Pu fuel)

Fig. 7 Effect of Burnup on Nuclide Concentration (1.1% N.U.+Pu fuel)

$^{239}\text{Pu} + ^{241}\text{Pu}$ は15,000 MWD/T以上の燃焼では平衡からやや減る傾向がみえる。この場合の取出しプルトニウム組成は、

^{239}Pu 47.70%	^{240}Pu 32.84%
^{241}Pu 9.55%	^{242}Pu 9.91%

である。この組成のプルトニウムはだいたい本格子に対する Negative resistance 効果の現われる場合と現われない場合の境となる組成と推定*され、このまま劣化ウランに加え6~7%に濃縮した燃料として用いてもかなりの燃焼度が得られよう。Fig. 6に第2サイクルとして前記プルトニウムを劣化ウランに加えた1.1%微濃縮燃料を用いた場合の、またFig. 7に前記プルトニウムを天然ウランに加えた場合のものの燃焼による核種濃度の変化を示した。これより、取出し燃料中の ^{235}U 濃度は、(D.U.+Pu)および(N.U.+Pu)の各場合でそれぞれ0.02%、0.03%となっていて、初期燃料濃縮度0.9%の場合に比しはるかに小さく、 ^{235}U が有効に利用されていることがわかる。この第2サイクルからの取出し燃料中のプルトニウム組成は

(1) D.U.+Pu の場合

^{239}Pu 29.48%	^{240}Pu 33.84%
^{241}Pu 10.81%	^{242}Pu 25.87%

* これは前報(Pu 装荷重水格子の燃焼特性、(II))より推定されるものである。

Fig. 8 Burnup Curve of Pu Recycle, (I)

(2) N.U.+Pu の場合

^{239}Pu	36.77%	^{240}Pu	31.99%
^{241}Pu	9.63%	^{242}Pu	21.61%

である。(1),(2)のいずれも $^{239}\text{Pu}+^{241}\text{Pu}$ の含有が低いので、それをさらにPhoenix 燃料として用いるのは無理であろう。

2. 低濃縮燃料を用いる場合

Fig. 8 に種々の低濃縮度の場合の燃焼曲線を示した。濃縮度が一定の場合、(D.U.+Pu) の場合の方が (N.U.+Pu) の場合より ^{240}Pu の共鳴吸収がきくため初期余剰反応度は小さくなる。しかし $^{240}\text{Pu} \rightarrow ^{241}\text{Pu}$ の転換が効くため、燃焼とともに曲線は互いに入れ変わり、燃焼度は(D.U.+Pu) の場合のほうが大きい。また濃縮度が高い場合ほど曲線のカーブがゆるやかになるのは、 ^{240}Pu の原子数密度が大きくなるためである。つぎに、燃焼を追って含有プルトニウムの組成率を調べてみる。初期濃縮度が6, 8, 10% の場合には、プルトニウムはNegative resistance 効果を示す組成になったときには、分裂性核種濃度は4%以下になってしまう。例として、(D.U.+Pu) の場合の初期濃縮度10% のものを Table 1 に示す。さらに、初期濃縮度15% の場合は、Negative resistance 効果の現われるプルトニウム組成となるとときには分裂性核種濃度が4%ほどになってしまう。Table 2 にこの場合の例を示す。しかし、本格子においてPhoenix 性を利用するには、

Table 1 The Composition of Pu Accompanied with Burnup
(Initial enrichment 10.0% D.U.+Pu)

Burnup (MWD /T)	Enrichment (%)	^{239}Pu (%)	^{240}Pu (%)	^{241}Pu (%)	^{242}Pu (%)
9,673	9.3	72.3	20.4	6.5	0.8
19,309	8.5	68.6	22.2	7.7	1.4
28,906	7.8	65.0	24.1	8.9	2.0
38,459	7.1	61.2	26.0	10.0	2.7
47,964	6.4	57.4	28.0	11.1	3.6
57,417	5.7	53.3	30.0	12.2	4.5
66,809	5.0	49.1	31.9	13.2	5.7
76,131	4.3	44.8	33.9	14.2	7.1
85,371	3.6	40.3	35.8	15.1	8.9

Table 2 The Composition of Pu Accompanied with Burnup
(Initial enrichment 15.0% D.U.+Pu)

Burnup (MWD /T)	Enrichment (%)	^{239}Pu (%)	^{240}Pu (%)	^{241}Pu (%)	^{242}Pu (%)
19,480	13.59	71.47	20.64	6.81	1.08
38,944	12.13	66.96	22.92	8.25	1.87
77,567	9.13	57.04	28.05	11.05	3.87
106,180	6.8	48.19	32.44	13.26	6.09
134,330	4.63	37.74	36.97	15.49	9.79
143,570	3.94	33.94	38.31	16.12	11.62

燃料は濃縮度が5%以上で、その含有プルトニウムは Fissile プルトニウムを50~55%含む必要がある。したがって、あくまで Phoenix 性を利用しようとするれば、燃焼燃料内のプルトニウムは、少なくとも分裂性核種濃度6%程度で Negative resistance を示す組成となることが必要である。ところが初期濃縮度15%の場合でも、6%分裂性核種濃度の点ではプルトニウムはまだ Negative resistance 効果を示す組成とはなっていない。したがって、もし初期濃縮度を上げて Phoenix 性を利用しようとするれば、その濃縮度は20%以上にすることがあろう。しかし、このように初期濃縮度を上げると、初期余剰反応度を増すだけで反応度制御ならびにプルトニウム装荷量の点からみて好ましくない。

Ⅱ. 結 論

以上のことから、EL-4 大型改良格子でプルトニウムの recycle を考える場合には、微濃縮燃料の使用を考えると現実的であり、とくにその場合、燃焼の方式によって第2サイクルの取出しプルトニウムは Phoenix 性を示す組成をもつようなプルトニウムにできる。この点、とくに妙味がある。また、2.で述べた低濃縮燃料を用いる方法は、炉制御およびプルトニウム Inventory の観点から好ましくないという。

(1965年 12月22日 受理)

—参 考 文 献—

- (1) B.BAILLY DU BOIS, Jean-Lois BERNARD, R. NAUDET, R. ROCHE: 3rd Geneva Conf., P/39, (1963).

投 稿 歓 迎! 本「会 誌」各欄の要綱

本誌各欄の内容は、大要つぎのとおりです。

- ① 研究論文(6頁まで無料) 独創性のある結論の明確な未発表の論文、および実用的価値のある技術論文(従来の「技術報告」を含む)。
欧文は「欧文誌」に掲載される。
- ② ショート・ノート(2頁程度) 研究・技術上の新知見の速報、掲載論文に対する意見および質疑応答(従来の寄書・討論を含む)。欧文は「欧文誌」に掲載。
- ③ 資料(8頁まで無料) 研究・技術に関する参考資料および解説・調査集計報告など。
- ④ 談話室(1~2頁) 本会および本誌に対する希望・提言、および国際会議などの見聞記・感想など。
- ⑤ 総説・巻頭言・私のノートから・講演・討論会要旨等の各欄は、編集委員会が企画・依頼し、文献抄録・新刊紹介は文献抄録委員が執筆する。

研究論文・資料のほか、ショートノート、談話室が会員投稿欄ですから、奮ってご投稿願います。ご投稿には所定原稿用紙(30枚綴り 1部100円干別。欧文は適宜のタイプ用紙)により、「投稿規程」に従って事務局宛ご送付下さい。その他、ご意見・ご希望およびご提案はもちろん大歓迎です。