



## 3.5 ROX PWR

秋江拓志, 山下利之, 白数訓子, 高野秀機, 安濃田良成, 木村英雄  
日本原子力研究所

## 概要

原子炉使用済燃料や解体核からの余剰プルトニウムの効率の良い燃焼を目指して、Pu 岩石型(ROX)燃料の概念が検討されている。ROX燃料では、高いPu消滅特性、照射安定性、化学的及び地質学的安定性が期待される。一方、ジルコニアをベースとするROX(Zr-ROX)を装荷したPWR型炉心では、ドップラー反応度係数、出力ピーキングファクタ等を改善する必要がある。このため、 $UO_2$ 、 $ThO_2$ 、 $Er_2O_3$ 等の添加、あるいはROXと $UO_2$ 燃料集合体の非均質装荷炉心を検討した。その結果、 $UO_2+Er_2O_3$ の添加が反応度係数と事故時特性の改善及び出力分布平坦化に有効であることが確かめられた。一方、 $1/3Zr-ROX + 2/3UO_2$ 部分装荷炉心では、さらに出力ピーキングを低減する必要があることもわかった。

## ABSTRACT

For an efficient burnup of excess plutonium from nuclear reactors spent fuels and dismantled warheads, plutonium rock-like oxide(ROX) fuel has been investigated. The ROX fuel is expected to provide high Pu transmutation capability, irradiation stability and chemical and geological stability. While, a zirconia-based ROX(Zr-ROX)-fueled PWR core has some problems of Doppler reactivity coefficient and power peaking factor. For the improvement of these characteristics, two approaches were considered: the additives such as  $UO_2$ ,  $ThO_2$  and  $Er_2O_3$ , and a heterogeneous core with Zr-ROX and  $UO_2$  assemblies. As a result, the additives  $UO_2+Er_2O_3$  are found to sufficiently improve the reactivity coefficients and accident behavior, and to flatten power distribution. On the other hand, in the  $1/3Zr-ROX + 2/3UO_2$  heterogeneous core, further reduction of power peaking seems necessary.

## はじめに

岩石型酸化物(Rock-like Oxide : ROX)燃料は、軽水炉使用済燃料や解体核からの余剰Puの効率のよい燃焼を目指した、 $^{238}U$ を含まないイナータマトリクス燃料の一種である。 $PuO_2$ を固溶するホスト相が安定化ジルコニア( $(Zr,Y)O_2$ (SZR))であるタイプ( $(Zr,Pu,Y)O_2-MgAl_2O_4$ : Zr-ROX)とトリア( $ThO_2$ )であるタイプ( $(Th,Pu)O_2-MgAl_2O_4$ : Th-ROX)の2種類が現在提案されている。いずれのタイプも、高いPu消滅特性、照射安定性、化学的および地質学的安定性を目指して考案され、使用済燃料の直接処分を想定している。Th-ROXが現行 $UO_2$ 燃料と比較的似た特性を示す一方で、Zr-ROXは $UO_2$ と比べ、ドップラー係数が小さい、燃焼反応度変化が大きく炉心内に出力ピーキングも生じやすい等の問題点をもつ。一方Zr-ROXは、より高いPu消滅特性とSZR相の高い化学的安定性を持ち、 $^{233}U$ の生成がない。ここでは、Zr-ROX燃料軽水炉における問題点の改善を試み、その改善効果が、反応度事故(RIA)や冷却材喪失事故(LOCA)時の振る舞いや、燃料最高温度などへ及ぼす影響を検討する。<sup>1,2)</sup>

1. ROX燃料の特徴

1.1 Zr-ROX燃料の物性

UO<sub>2</sub>燃料との違いのうち、顕著なものとして、密度がUO<sub>2</sub>の1/2程度(約5.5)しかなく、融点(共晶温度)もUO<sub>2</sub>よりかなり低い(約2200K)。一方、熱伝導率はUO<sub>2</sub>と同程度ながらやや高く、Fig.1に見られるようにスピネルの割合を増やし熱伝導率を上げることができる

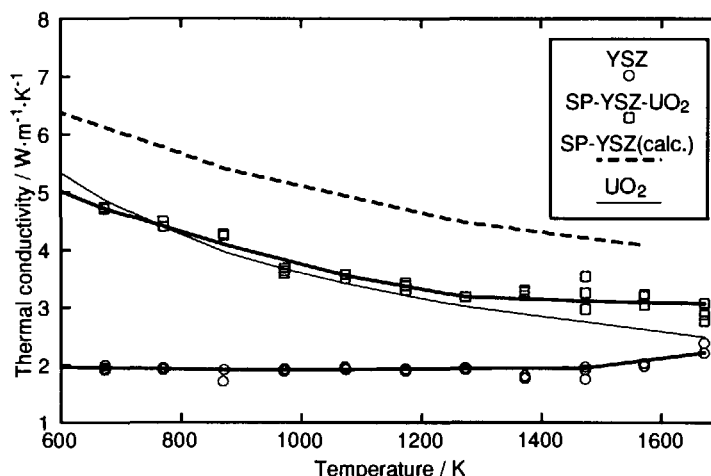


Fig.1 Thermal conductivity of yttria stabilized ZrO<sub>2</sub>(YSZ), Zr-ROX (SP-YSZ-UO<sub>2</sub>:37mol%spinel, SP-YSZ(calc.):56mol%spinel) and UO<sub>2</sub>

1.2 Pu消滅特性

Table I に、岩石型およびMOX燃料PWRにおける炉心出力1GWeあたり、燃焼期間300EFPDあたりのPu装荷量、消滅量(装荷量-取出し量)と消滅率(消滅量/装荷量)の計算結果を比較する。原子炉の仕様は現行型1100MWe級17×17型PWRと同一とし、取り出し燃焼期間は1170EFPD(MOX PWRで45GWd/t相当)を想定した。3バッチ燃料交換の条件で1170EFPDの燃焼期間が達成できるように、全ケースのPu富化度を調整した。なお、以下本報告での検討は全て17x17型PWRに基づくモデルを用いている。

Table I

Input and transmuted amount (tonne/GWe/300EFPD) of plutonium calculated with 2-D core calculations (ROX) and cell calculations (MOX) (1170EFPD burnup = 45GWd/t for MOX PWR)

		W-Pu		R-Pu	
		Input	Transmuted	Input	Transmuted
1/3Zr-ROX+2/3UO <sub>2</sub>	Pu-239	0.34	0.25(75%)	0.27	0.18(67%)
	total Pu	0.36	0.16(43%)	0.46	0.19(41%)
(in 1/3ROX only)	Pu-239		0.33(99%)		0.26(98%)
	total Pu		0.31(86%)		0.34(74%)
Zr-ROX-ThO <sub>2</sub>	Pu-239	0.97	0.94(97%)	0.80	0.75(93%)
	total Pu	1.03	0.82(79%)	1.37	0.90(66%)
Zr-ROX(Er)-UO <sub>2</sub>	Pu-239	0.93	0.85(92%)	0.80	0.70(88%)
	total Pu	0.99	0.69(69%)	1.36	0.81(60%)
MOX (once-through)	Pu-239	0.88	0.56(63%)	0.99	0.44(45%)
	total Pu	0.94	0.30(32%)	1.69	0.41(25%)
(recycle once)	Pu-239	0.76	0.54(71%)	0.76	0.44(58%)
	total Pu	0.81	0.35(43%)	1.30	0.48(37%)

UO<sub>2</sub>炉心の集合体の約1/3をZr-ROX燃料集合体と置き換えた炉心では、Zr-ROX燃料集合体において極めて高いPu消滅率(%)が得られる(兵器級Pu(W-Pu)の86%、原子炉級Pu(R-Pu)の74%)。ワンスルーでの直接処分を考える時に重要な要素となる。Zr-ROXを全炉心に装荷した場合、反応度係数などの改善のためZr-ROXにUO<sub>2</sub>、あるいはThO<sub>2</sub>を添加(後述)すると、Pu消滅特性は劣化する。しかしPu消滅率もMOX炉心に比べるとかなり大きく、Pu消滅量(トン)を大きくできて(W-Puで約1t、R-Puでは0.8-0.9t)、Zr-ROX部分装荷炉心やMOX炉心と比較して優位にある。

1.3 ROX燃料の安定性

ROX燃料のイナートマトリクス候補材として、次のような相を検討した。  
- 蛍石型相(SZRまたはThO<sub>2</sub>-スピネル相(MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>))

- 蛍石型相-コランダム相(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)  
- 蛍石型相-スピネル相-コランダム相

Table II のようにSZR、スピネル、コランダム、およびアルミナとともにスピネル相を形成するマグネシア(MgO)の各相の、化学的あるいは照射安定性、熱伝導率、アクチニドとFPの保持性を比較した。

アルカリ金属FPの保持やSZRの熱伝導率を補う目的でコランダムの使用も考えたが、JRR-3照射試験における照射挙動からコランダムは採用せず、蛍石型相-スピネル相が選定された。

Table II  
Possible inert matrices

	chemical stability	irradiation stability	thermal conductivity	actinide,FP retainability
SZR	XX	XX	-	XX
Spinel	X	X	X	X
Corundum	X	-	XX	X
Magnesia	-	XX	XX	X

XX : excellent, X : good

(1) 高温硝酸中での安定性

模擬ROX、および模擬FPを含む模擬使用済ROXを3mol% HNO<sub>3</sub>中において420Kで3日間の溶解した。その結果、溶解量はZrが2%、AlとMgは30-50%、Baは60-89%であった。SZR相は高温の硝酸に対して極めて安定であり、Puのホスト相として好適であることが確かめられた。

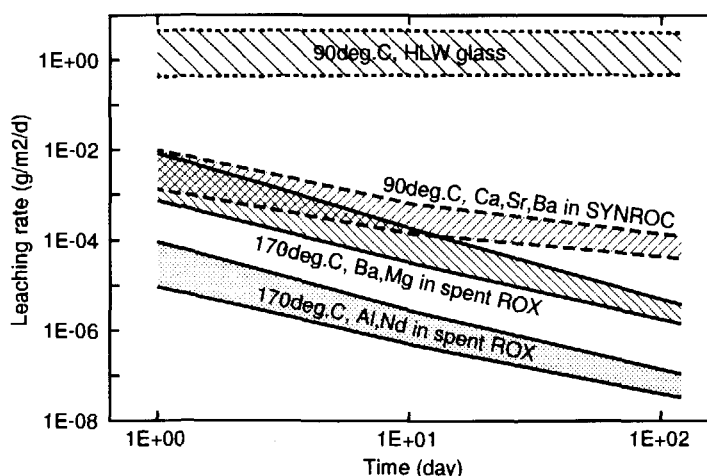


Fig.2 Leaching rates of elements in simulated spent ROX in hot water

(2) 高温水中での安定性

模擬使用済ROXの高温水中での浸出試験を行った。Fig.2

にその結果を示す。模擬使用済ROXの浸出率は、ガラス固化体と比べはるかに小さい。

### 1.4 環境安全性

使用済ROXにおけるFP核種の振る舞いにまだ不明な点が多いため、まず $\alpha$ 放射核種のみについてROX処分廃棄物からの個人被曝線量評価を実施しMOXの場合と比較した。その結果、ROX、MOXとも4n+3崩壊系列からの被曝線量が最も大きくなったが、Fig.3に示すとおり、ROXはMOXより2けた以上小さくなるという結果が得られた。

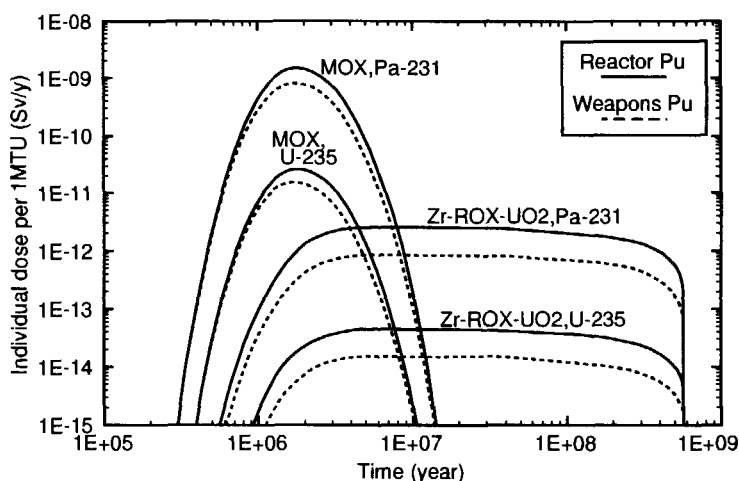


Fig.3 Individual dose from 4n+3 decay chain of disposed Zr-ROX and MOX spent fuels

## 2. 炉心特性の改善

Zr-ROX燃料PWR炉心のドップラー係数と出力ピーキングの改善のために、以下のような炉心構成、燃料組成の変更を試みた。

ドップラー係数の改善のために、(a)UO<sub>2</sub>炉心の集合体の一部をZr-ROX燃料集合体と置換した非均質炉心、及び(b)Zr-ROXにUO<sub>2</sub>あるいはThO<sub>2</sub>を添加。

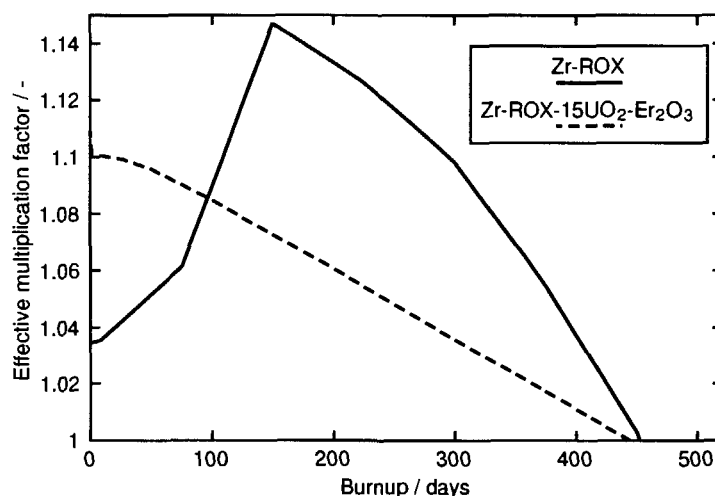


Fig.4 Burnup reactivity swing of Zr-ROX PWR (weapons Pu)

出力ピーキング低減のためには燃焼反応度変化を小さくならねることが重要で、(b)が、この場合も有効である。また、(c)Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>添加量の低減とEr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>添加も考えた。Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>は、親物質のないZr-ROX燃料の大きな初期余剰反応度を抑えることを目的として添加していたが、Fig.4に示すような大きな燃焼反応度変化の原因となっていた。

### 2.1 ドップラー反応度と出力ピーキングファクタ

Table III に1/3Zr-ROX炉心とThO<sub>2</sub>およびUO<sub>2</sub>添加Zr-ROX炉心のドップラー反応度と出力ピーキング係数を、UO<sub>2</sub>炉心と比較する。ドップラー反応度はいずれの炉心においても改善効果があるが、部分装荷炉心での出力分布平坦化は困難であった。

2.2 RIA時およびLOCA時特性改善

RIA時燃料エンタルピおよび燃料中心温度最大値の、EUREKA-2コード<sup>3)</sup>による計算結果を、Zr-ROXおよびUO<sub>2</sub>燃料炉心についてTable IVに示す。改善前のZr-ROX炉心の場合、現行UO<sub>2</sub>PWRでのRIA時エンタルピの制限値230kcal/kg、および燃料の融点2200Kをはるかに上回る結果となったが、ThO<sub>2</sub>あるいはUO<sub>2</sub>を添加したケースではこれらの制限を下回った。特にUO<sub>2</sub>とEr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を同時に添加した場合、Zr-ROXとUO<sub>2</sub>の密度の違いを考慮してエンタルピを単位体積あたりのエネルギー(kcal/cm<sup>3</sup>)に置き換えて見ると、ほぼUO<sub>2</sub>燃料炉心並みの特性が得られる。1/3Zr-ROX装荷炉心では、エンタルピ、燃料温度とも改善効果は不十分であり、出力分布平坦化等さらに炉心特性を見直す必要がある。Table Vには同様に、RETRAN02コード<sup>4)</sup>により評価されたLOCA時の燃料被覆管最高温度をまとめる。制限値の1470K(1200°C)をいずれの炉心も下回っており、RIA同様UO<sub>2</sub>+Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub>添加Zr-ROXを用いるとUO<sub>2</sub>と同等の被覆管温度が得られる。

Table III  
Doppler reactivity and power peaking factor of Zr-ROX fueled cores in comparison with UO<sub>2</sub> core

	Doppler reac. (900→1200K)	Peaking factor
<b>Weapons-Pu</b>		
Zr-ROX	-0.098	2.7
1/3Zr-ROX+2/3UO <sub>2</sub>	-0.48	2.8
Zr-ROX-24ThO <sub>2</sub>	-0.56	2.4
Zr-ROX(Er)-15UO <sub>2</sub>	-0.61	2.1
<b>Reactor-Pu</b>		
Zr-ROX(Er)-18ThO <sub>2</sub>	-0.64	-
Zr-ROX(Er)-8UO <sub>2</sub>	-0.59	2.2
UO <sub>2</sub>	-0.75	2.0

Table IV  
Maximum fuel enthalpy (E) and fuel temperature (FCT)

	E (kcal/kg)	E (kcal/cm <sup>3</sup> )	FCT (K)
<b>Weapons-Pu</b>			
Zr-ROX	>>230	-	>>2200
1/3Zr-ROX+2/3UO <sub>2</sub>	244	1.36	2100
Zr-ROX-24ThO <sub>2</sub>	224	1.25	1950
Zr-ROX(Er)-15UO <sub>2</sub>	193	1.08	1700
<b>Reactor-Pu</b>			
Zr-ROX(Er)-8UO <sub>2</sub>	192	1.08	1700
UO <sub>2</sub>	93	1.02	2080

Table V  
Peak cladding temperature(PCT)

	PCT (K)
<b>Weapons-Pu</b>	
Zr-ROX	>1470
1/3Zr-ROX+2/3UO <sub>2</sub>	1240
Zr-ROX-24ThO <sub>2</sub>	1240
Zr-ROX(Er)-15UO <sub>2</sub>	1090
<b>Reactor-Pu</b>	
Zr-ROX(Er)-8UO <sub>2</sub>	1090
UO <sub>2</sub>	1080

2.3 燃料温度

BOCにおける炉心内ピーク出力位置での燃料ピン内温度分布の出力ピーキング係数依存性(Fig.5)および燃料熱伝導率依存性(Fig.6)を、GAPCON-THERMAL2-HCコード<sup>5)</sup>を用いて

計算した。Fig.5における燃料熱伝導率は、Fig.1の37%スピネルの値に、Fig.6におけるピーキング係数は2.1に固定した。

Fig.5において、ピーキング係数2.1でも燃料温度は融点より低い、余裕はあまり大きくない。もし、ピーキング係数を1.7とすることができれば、融点に対して500K程度の余裕を持たせることができるが、このような出力ピーキング係数は炉心設計上達成は極めて困難である。一方Fig.6において燃料熱伝導率を、Fig.1の56%スピネルの値に設定すると、同様に融点に対し500K程度低く燃料温度を抑えられる。逆にジルコニア単相型の燃料を考えた場合、融点が約3000Kと非常に高いので、燃料中心温度が多少高くても問題が少ない可能性もある。

燃料温度は、ガス状FP保持性の観点から融点に比べてなるべく低く抑えることが望ましいため、さらに検討を進めることは重要である。特にZr-ROX部分装荷炉心では、出力ピーキングが大きくなりやすいので、出力分布平坦化の必要性が高い。

#### 2.4 集合体内出力分布

1/3ROX-2/3UO<sub>2</sub>非均質炉心においては、Zr-ROX燃料とUO<sub>2</sub>燃料のスペクトルの相違(Fig.7)により、集合体境界に出力ピークが生じる。ROX燃料のスペクトルはBOLとEOLで大きく変化するので、その結果BOLはUO<sub>2</sub>燃料集合体に接するROXピン(Fig.8の例ではa-a'列)に、EOLにROX集合体に接するUO<sub>2</sub>ピン(Fig.8ではb-b'列)に大きな出力ピーキングが現れる。Fig.9には、Fig.8のような4集合体体系の"A"および"B"の位置のピンのピーキングファクタを、兵器級Pu(W-Pu)あるいは原子炉級Pu(R-Pu)をROX燃料集合体に装荷した場合について示す。W-Puの場合、BOLに"A"位置で1.3、EOLには"B"位置で1.4に近い大きなピーキングファクタが生じている。現在、Zr-ROX燃料集合体内のPu富化度、Er添加量あるいはU添加量分布を考慮

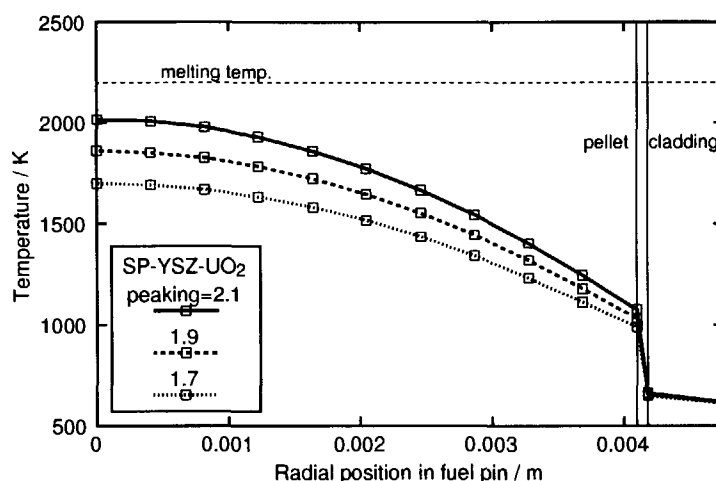


Fig.5 Effect of power peaking factor on the temperature in fuel pin at the peak power position at BOL

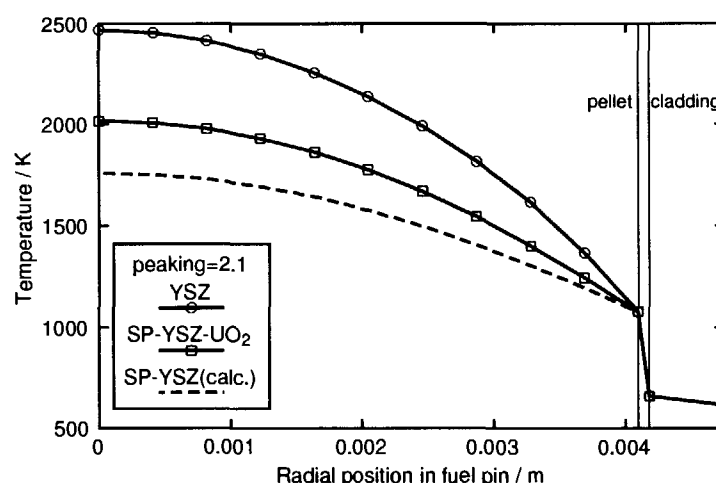


Fig.6 Effect of fuel thermal conductivity on the temperature in fuel pin at the peak power position at BOL

して、これらの局所的な出力ピークの低減を検討中である。このような局所的な出力ピーキングの他、部分装荷炉心は $UO_2$ とZr-ROX燃料集合体の出力レベルにも差がつきやすく、出力分布平坦化を難しくしている。出力ピーキング低減は、集合体内の燃料ピン配列と同時に炉心内の集合体配置と燃料交換パターンにも配慮して進める必要がある。

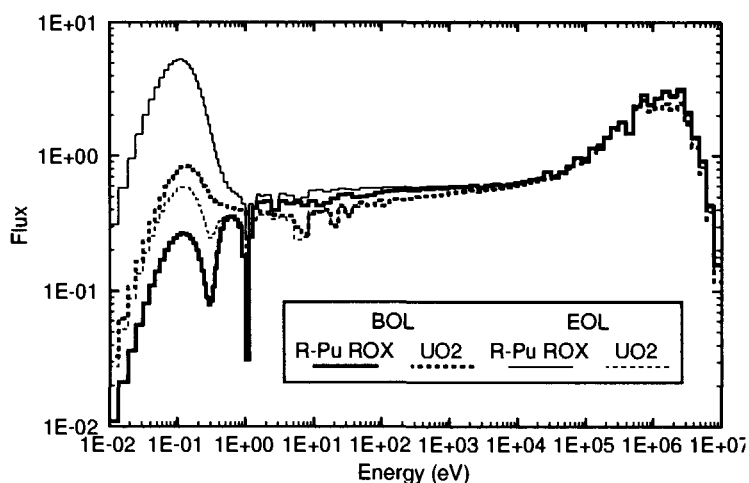


Fig.7 Neutron spectrum in Zr-ROX (reactor-grade Pu) and  $UO_2$  fuels (pin cell calculation)

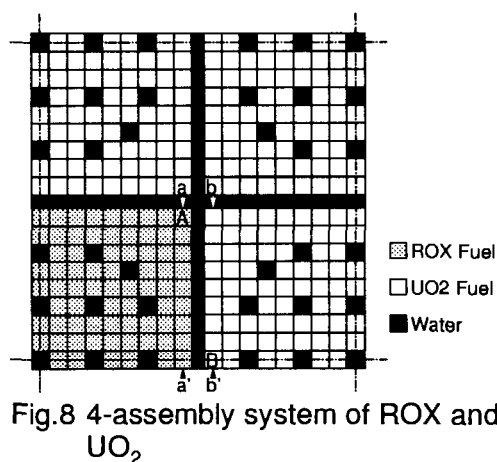


Fig.8 4-assembly system of ROX and  $UO_2$

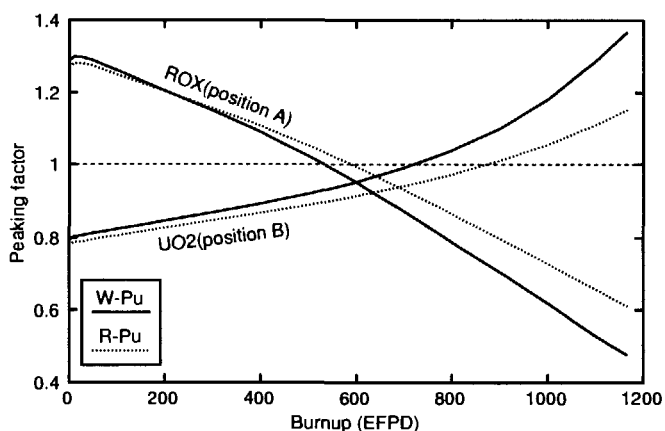


Fig.9 Peaking factors in the 1/4ROX-3/4 $UO_2$  assemblies system

まとめ

プルトニウムの効率的な消滅のため、 $^{238}U$ を含まないイナーマトリクス燃料の一種である岩石型(ROX)プルトニウム燃料の検討を進めている。ROX燃料はLWRに装荷して高いPu消滅特性を持ち、照射安定性や化学的および地質学的安定性に優れる。一方、安定化ジルコニアをベースとするROX燃料(Zr-ROX)は、炉心の反応度特性や出力分布、あるいは燃料融点等において現行の $UO_2$ 燃料と比べて課題が残る。

反応度係数や出力分布の改善を目的として、 $UO_2$ あるいは $ThO_2$ を添加したZr-ROXを装荷したPWRでは、RIAおよびLOCA時の特性をともに改善することができた。特に $UO_2$ と $Er_2O_3$ を同時に添加した場合は $UO_2$ 炉心並みのRIA、LOCA特性が得られた。一方、 $UO_2$ 炉心の集合体の1/3をZr-ROX集合体とした部分装荷炉心の場合は、出力分布平坦化等さらなる改善が必要である。燃料温度低減の観点からは、全ての炉心で出力分布や燃料組成(熱伝導率)等についてさらに検討する必要がある。

## 参考文献

- 1) H. Akie and H. Takano and Y. Anoda : "Core Design Study on Rock-like Oxide fuel LWR and improvements of core characteristics", Proc. 4th Inert Matrix Fuel Workshop, Oct. 19-20 1998, PSI, Switzerland, *J. Nucl. Matr.*, to be published (1999).
- 2) H. Akie, T. Yamashita, N. Nitani, H. Kimura, H. Takano, T. Muromura, A. Yasuda, and Y. Matsuno : "Disposition of Excess Plutonium by the ROX-LWR System", Proc. OECD/NEA Workshop on Advanced Reactors with Innovative Fuels, Oct. 21-23 1998, PSI, Switzerland, to be published.
- 3) N. Ohnishi, T. Harami, H. Hirose and M. Uemura, EUREKA-2 : A Computer Code for the Reactivity Accident Analysis in a Water Cooled Reactor, JAERI-M 84-074, Japan Atomic Energy Research Institute (1984) (in Japanese).
- 4) C.E. Peterson, J.H. McFadden, M.P. Paulsen and G.C. Gose : "RETRAN-02 - A Program for Transient Thermal-Hydraulic Analysis of Complex Fluid Flow Systems", EPRI NP-1850 CCM, 1, Electric Power Research Institute (1981).
- 5) T. Mori, M. Nakagawa and S. Fujii : "Parametric Study on Thermal-Hydraulic Characteristics of High Conversion Light Water Reactor", JAERI-M 88-224, Japan Atomic Energy Research Institute (1988) (in Japanese).