

プルトニウム燃焼についての炉物理と核データ

日本原子力研究所

高野 秀機

takano@mike.tokai.jaeri.go.jp

1. はじめに

94番目の元素プルトニウムは1941年に発見され、9番目の惑星プルート（冥王星）の名をとって命名された。ギリシャ神話の神プルートは、黄泉国の恐しい神であるが地下の富をもたらす神でもある。この名はプルトニウムの未来を奇しくも予言したものとなっている。核兵器として人類を破滅させるのか、原子力エネルギーとして人類に無限の富をもたらすのか、神は人類の知恵を、生存価値を試している。

プルトニウムは、天然ウランの99.3%を占めるU-238が中性子を吸収してPu-239として生成される。Pu-239はさらに中性子を吸収してPu-240, Pu-241, Pu-242に、また、 $(n, 2n)$ 反応でPu-238に核変換する。したがって、ウランを燃料とする原子炉では、常にPuが生成され燃焼（核分裂）している。軽水炉では、濃縮U-235が主な燃料であるが燃焼末期にはPu燃焼エネルギーが炉出力の50%以上を占め、平均で約30%も寄与している。燃料にU-238が含まれている限り、Puが生成され自然と原子炉内で燃焼してエネルギーとして利用される。日本では、総電力の30%が原子力発電であるからPuは約10%発電に寄与していることになる。我々は既にPuを電力として利用しているのである。しかし、現行の濃縮ウラン燃料軽水炉では、ウラン利用率はわずか0.5%にしか成らない。この利用率を向上させるためには、使用済み燃料を再処理してPuを取り出し、高速増殖炉でPuをリサイクルすることである。これにより、ウラン利用率は約80%にもでき、人類は無限に近いエネルギーを確保できる可能性がある。このようにPuは極めて利用価値の高い物質である。一方、Puは核兵器物質としても利用価値が高く、核拡散防止の点からは最も魅力度の高い物質と成っている。

1-1. 世界の余剰プルトニウム

余剰Puとは、解体核から生じるPu及び使用済み燃料を再処理・分離したPuで使用計画の見通しが不透明なものと言えよう。日本の核燃料サイクル計画では、プルトニウム

は計画生産され、軽水炉及び高速炉の燃料として使用計画が確定しており、利用の透明度が高くなっている。

1-1-1. 原子炉で生産されるプルトニウム

100万kWe当たりの軽水炉(PWR)一基当たり年間生成されるPuは約0.24トンで核分裂性Pu(Pu-239,Pu-241)は0.16トンである。IAEAの発表¹⁾によれば、現在世界における、使用済み燃料中のPuの年間発生量は約50トンであり、累積量は2000年には1000トン、2010年には1500トンになると推定されている。使用済み燃料中のPuは核拡散の点からは直接使用出来ないため魅力度は小さい。一方、使用済み燃料を再処理して分離されたPuの在庫量は2000年に167トンになるとされている²⁾。最近のIAEAのRinejski³⁾によるロシアも含めた新しい予測によると2000年に182トン、2010年では120トンと推定されている。2000年以降の減少は日本、フランス、ロシアにおける高速炉の導入シナリオに強く依存している。このように分離されたPuが蓄積している理由は次のように考えられる。

1973年の石油ショックによりウラン価格が高騰し、各国は再処理施設の建設と再処理の確約を行った。ところが1980年代になると、ウラン資源の探査により心ウラン資源が次々と発見されるとともに、エネルギー需要の停滞によりウラン需要が減少し、ウラン価格が下落した。また、Pu利用の旗頭である高速増殖炉の建設が経済性等の理由でスローダウンした。そのため1990年代に分離Puを消費するために、軽水炉によるMOX利用が急浮上した。しかし、Pu利用も反原子力の政治的な問題に呑み込まれて、MOX燃料加工施設がスローダウンし原子炉での使用が困難となっている。これにより、Puの再処理・分離と利用の間のアンバランスが生じ、多量の分離Puの蓄積が推定されている。このことによる差し迫った問題は、分離Puの貯蔵長期化による貯蔵コストとPu-241崩壊によるAm-241生成による燃料の質の低下とそれに伴うAm-241の除去コストである。当然、魅力度の高い分離Puの長期貯蔵は、核拡散上からも極めて重大な問題である。

1-1-2. 核兵器解体により生ずるプルトニウム

この40年に及ぶ冷戦において米国と旧ソ連は核兵器の開発に没頭してきた。そのため、膨大な原爆用のプルトニウムを生産してきたのである。東西冷戦の集結に伴い、米ロ両国からそれぞれ50トン計100トンのプルトニウムと数百トンの高濃縮ウランがここ10年を目安に処分されることとなっている。高濃縮ウランは天然ウランや劣化ウランで希釈して現行軽水炉の燃料としてそのまま利用できるため問題は無く、米国は手早くロシアの高濃縮ウランを買い付けてしまった。問題は希釈プロセスが存在しない核兵器級プルトニウム(WPu)の処分である。このWPuは、Pu-239の組成比が94%以上の高品質のPu

であり、核不拡散の点から安全な中間貯蔵、さらには核兵器として再利用が不可能な処分・処理法が求められている。その処分期間は、20～30年と考えられているが、核不拡散性、環境安全性及び経済性の観点から総合的に検討が必要であるため、いくつかの提案はあるが未だ決め手がないのが現状である。

2. 余剰プルトニウム処理についての世界の研究開発の動向

WPuについては、ガラス固化法による地中処分と原子炉(軽水炉、高速炉、高温ガス炉、等)による利用が提案されている。RPuについては、軽水炉及び高速炉による利用が考えられている。主な燃料の形態としては、MOX燃料とイナートマトリックス燃料が提案されている。MOX燃料利用は、現在既に技術的に確立しており開発要素は少ない。しかし、U-238を多量に含むためにPuの燃焼に伴い新たなPuを生成するためPuの消費量が少なくなる。また、軽水炉でリサイクルするとPu-240やPu-242が増加しPuの質が劣化するため、最終的には高速炉でリサイクルすることになる。これに対して、Puの燃焼速度を高めて消費量を多くするためには、U-238を含まない燃料が理想的である。そのため、Puを効率よく消滅させる方法としてイナートマトリックス燃料が考えられている。

2-1 MOX燃料利用

軽水炉におけるMOX燃料利用は、1960年代から米国、ドイツ、ベルギー等で1000体以上のMOX燃料加工と燃焼が行われてきている。フランス、日本、ロシアは、高速炉路線を取ってきたため、軽水炉利用には積極的では無かったが、フランスはここ8年間で12トンのPuをPWRで燃焼させている。現在5基のPWRに装荷しているが、新たに11基へのMOX燃料使用を進めている。日本もPWR(美浜1号)及びBWR(敦賀1号)で実証試験が完了し、PWR、BWRそれぞれ3基にMOX燃料集合体を部分装荷することになっている。2000年から10年間で約30トンのPu燃焼計画が進められている。ロシアは未だ高速炉路線を主張しているが、VVER-1000(PWR)への使用も検討されている。このように、軽水炉におけるMOX燃料部分装荷使用は実用化されており、MOX燃料全装荷炉心が検討されている。

高速炉においては、現在、フランス、日本、ロシアの3ヶ国がMOX燃料使用及びその計画を進めている。しかし、フランスはスーパーフェニックス、日本はもんじゅの事故により利用計画の見通しは楽観出来ない。ロシアもBN-600、800の計画はあるが経済性等の事情により見通しは暗い。そのため、最近、フランスはCAPRA Project⁴⁾と称してPu及びマイナーアクチナイド(MA)を高速炉で消滅させる計画を積極的に進めている。これは、高Pu富化度45%のMOX燃料を装荷し、ブランケットを取り外して増殖比を0.5に抑え

る設計となっている。ロシアでもこれと似たような設計が検討されている。

Wpuについては、次のようなアメリカの米国科学アカデミーの報告⁵⁾がある。

ここ数年、米国はWpuの処理について検討を行っており、昨年米科学アカデミーが報告書を出している。それには、二つのオプションが提案されている。一つは、使用済み燃料基準といい、WpuをMOX燃料に加工して軽水炉で燃やし、Pu-239の組成比を現行の軽水原子炉級(RPu)にまで劣化させようとするものである。この方法によれば50トンのWpuは20年から30年で処分可能としている。また、ロシアにもPWR型軽水炉のVVER-1000(95万kWe)があり、この方法が適用できるとしている。もう一つのオプションは、Wpuに軍事用の高レベル廃棄物を混合してガラス固化し、地中処分する方法である。いずれについても経済性、技術性及びパブリックアクセプタンス等の点から問題が多いとしている。

また、カナダが CANDU 炉、アメリカのGA及びドイツからは、高温ガス炉による燃焼処理の提案がなされている。

2-2 イナーマトリックス燃料利用

MOX燃料に比べて燃料としての成立性は未だ未検討のものが多く、次のような国で取り組まれている。

(1)フランス⁶⁾：プルサーマルによるリサイクルは1-2回が限界であるとの解析から、コランダム(Al_2O_3)、スピネル($MgAl_2O_4$)、イットリアガーネット($3Y_2O_3 \cdot 5Al_2O_3$)等のイナーマトリックスの照射研究を開始している。軽水炉及び高速炉での使用を対象としている。再処理をしてPuをリサイクルすることを前提にしている。

(2)イタリア⁷⁾、スイス⁸⁾：トリア(ThO_2)系及びジルコニア(ZrO_2)系岩石型燃料の炉心設計と燃料の研究を進めている。軽水炉を対象にしている。

(3)カナダ⁹⁾：CANDUを利用したイナーマトリックス燃料を検討すると共に、炉心設計研究を進めている。

(4)ロシア¹⁰⁾：軽水炉による岩石型燃料及びサーメット燃料を検討し、燃料の調製研究と炉心設計研究を進めている。

(5)日本：ジルコニア及びトリア系岩石型燃料の照射研究を含めた燃料成立性の検討及び軽水炉による燃焼技術研究を行っている^{11,12)}。

3. 原子炉によるプルトニウム燃焼

3-1 高速炉によるPu燃焼

高速炉は、Puの燃焼・生成に適している。これは、Pu-239の中性子再生率が高エネルギー領域でU-235やU-233に比べて大きいことである。しかし、反応度を維持するためには、高エネルギー領域では核分裂断面積が熱エネルギー領域に比べて小さいこと、また、高エネルギー中性子は体系から漏れやすい等のためにPuの富化度を大きくしてやる必要がある。

高速炉は、本来Puを増殖・生産できる貴重な原子炉として考えられた。これは、高エネルギーではPu-239の再生率がよいこと、核分裂生成物による中性子の吸収が小さいことにより反応度を保持する以上に余剰の中性子が多いためである。炉心の周囲にウランからなるブランケットを設けてこの余剰中性子の漏れを防ぎU-238に吸収させてPu-239を生成することができる。しかし、Puを燃焼させるためには、Puが新たに生成しないことが望ましい。このため、Pu燃焼高速炉では、ウランのブランケットを付けないこと、余剰中性子を漏れやすくするために炉心を扁平にする、あるいは炉心の中心に吸収材領域を設けることが考えられている。

フランスは、PuとMAを効率よく燃焼・消滅させるために、CAPRAプロジェクトなる計画を立ててPu燃焼高速炉の設計を熱心に進めている。基準炉心は、高富化度45%PuのMOX燃料を用いた1500MWe炉心である。富化度の限界は、MOX燃料製造における加工性からきている。この炉のPu装荷量は約9.2トンで、燃焼後の排出量は7.0トンである。年間300日・1GWe当たり500kgのPuを消滅できるとされている。当然、残存量が多いため再処理してリサイクル燃焼する。さらに、Puの消滅量を高めるためには、燃料にウランを含まない、 Al_2O_3 、 BeO_2 、 CeO_2 等のイナートマトリックス燃料を考えており、約1トン/300日・1GWeのPu消滅が可能とのことである¹³⁾。

高速炉によるPu燃焼のための炉物理及び核データについての課題としては、以下のことが考えられる。

- ・高富化度Pu燃料及びイナートマトリックス燃料の製造及び再処理の研究が必要である。
- ・炉物理的課題: NEAベンチマーク¹⁴⁾の結果から通常富化度のブランケット付き炉心に比べて計算値間のばらつきが大きい。特に、ドップラー係数、ボイド係数、余剰反応度、Pu,MA生成・消滅量等の予測精度向上及び安全性の検討が必要である。このことから、Pu燃焼高速炉の模擬積分実験及びそのベンチマーク問題設定が提案されている。
- ・LWR→CAPRA→FBRへの橋渡しを考えた導入シナリオの研究が、マルチサイクルにおけるマスバランス、コスト、廃棄物、ハザード等の評価及び再処理法を含めて必要である。
- ・Pu, MA, RE等の核データの評価精度向上が要求される。

3-2 軽水炉によるPu燃焼

ここ10年以内に利用可能な原子炉としては、軽水炉、高速炉及び高温ガス炉が考えられる。軽水炉としては、水対燃料体積比(V_m/V_f)が0.25から3.0までのケースを、高速炉は標準的なNa冷却炉を、ガス炉はペベルベット型炉についてPuの燃焼特性を検討した。

軽水炉において、 V_m/V_f の相違によってすなわち低減速と高減速炉心でのPuの燃焼特性を比較すると、使用済み燃料中のPu残存量は V_m/V_f が大きい方が少なく $V_m/V_f=1.4$ から3.0では殆ど相違がないため、現行軽水炉を用いて十分Pu燃焼が行えることが確認された。また、高速炉、高温ガス炉については100GWd/t相当の燃焼度におけるPu燃焼量と組成の変化を検討した結果から、軽水炉では、Pu-239の核変換が速やかにすすみ、使用済み燃料中のPu組成は極めて劣化する、高速炉では、使用済み燃料中のPu-239の濃度が高く残存量が多い、高温ガス炉は軽水炉と同等あるいはそれ以上にPu燃焼に優れているが燃焼量が少ない、ことがわかった。したがって、Puの装荷量、燃焼量、炉の開発コスト等を総合的に判断して現行軽水炉がPu燃焼炉に最も適していると言えよう。

Table 1 Input and output amount of plutonium in Pu-PWRs (tonne/GWe/300EFPD)
(2-dimensional core calculation and cell calculation)

Fuel type		Weapons-grade Pu			Reactor-grade Pu		
		input	output	in-out	input	output	in-out
Zr-ROX	Pu-239	1.02	0.020	1.00(98)	0.80	0.08	0.72(90)
	total Pu	1.09	0.182	0.91(83)	1.36	0.44	0.92(68)
ZrROX+24%T hO ₂	Pu-239	0.89	0.03	0.86(97)	0.86	0.09	0.77(90)
	total Pu	0.96	0.22	0.74(77)	1.47	0.56	0.90(62)
Zr-ROX +10%UO ₂	Pu-239	0.84	0.07	0.77(92)	0.88	0.18	0.70(80)
	total Pu	0.90	0.21	0.69(77)	1.50	0.72	0.78(52)
1/3Zr-ROX &2/3UO ₂	Pu-239	0.35	0.03	0.32(91)	0.26	0.03	0.23(88)
	total Pu	0.37	0.06	0.31(84)	0.45	0.08	0.37(82)
MOX	Pu-239	0.81	0.30	0.51(63)	0.87	0.47	0.40(46)
	total Pu	0.86	0.60	0.26(30)	1.49	1.12	0.37(25)
1/3MOX & 2/3UO ₂	Pu-239	0.27	0.18	0.09(33)	0.29	0.24	0.05(17)
	total Pu	0.29	0.35	-0.06 (-20)	0.50	0.53	-0.03(-6)

() shows the transmutation rate (%) for Pu.

岩石型燃料及びMOX燃料を用いた場合のPWRにおけるPuの燃焼処理量の比較をTable 1に示す。WPuとRPuを用いた場合について示してある。ROX燃料は、ドップラー反応度係数等安全性の点から問題であり参考値として示す。Pu燃焼処理では、ROX-TすなわちThO₂添加燃料が最も優れており、WPuではPu-239の97%、全Puの77%を300日・1GWe PWR当たり処理できる。MOXでは、Pu-239の63%、全Puの30%が処理量である。また、RPuでもROX-TはPu-239の90%、全Puの62%が燃焼処理できる。処理量はfull coreより当然少ないが、Puの消滅割合はROXをUO₂炉心に1/3部分装荷する場合が最も優れている。今後の研究課題としては、燃料の照射挙動、FPガス放出、スエリング、炉心設計から安全性、制御性 (Gd→共鳴核種 Er)、出力分布平坦化、核特性の予測精度向上、ドップラー反応度及び Pu燃焼による核種組成変化等が上げられる。

4. 軽水炉によるPu燃焼のためのベンチマーク

4.1 OECD/NEAのMOX燃料PWRリサイクリングベンチマーク

参加は10ヶ国から16機関で日本からは、原研、東北大、名古屋大、大阪大が参加した。このベンチマークの目的は、PuをPWRでリサイクルする場合のPu消費量、マイナーアクチニドの生成量、使用済み燃料の毒性及び動特性パラメータへの影響等を評価することである。

計算モデルは、燃料、被覆管、減速材からなる円柱化セルモデルであり、減速材比の異なるすなわち水対燃料体積比が2.0 (標準)と3.5 (高減速)の100%MOX燃料PWRにおいて現行のウラン燃料PWRからのPuを混合してリサイクルを5回まで行い、各サイクルでの同位体組成、反応度パラメータ等を比較検討するものである。データと手法の比較のために、各サイクル毎にPu富化度及び組成を与え各反応断面積の比較等を行った。計算結果の主な概要は以下のようである。

- ・標準初期炉心の無限増倍係数で最大7%の差が見られたが、12機関の結果は1%の間に集中していた。
- ・反応度パラメータでは、ボロン価値、減速材温度係数は比較的よい一致を示したが、ポイド反応度、ドップラー反応度に大きな差が生じた。
- ・MAの生成量にかなりのばらつきがあったため、燃焼初期及び末期での巨視的断面積の詳細な比較が必要とされた。また、高減速炉心では、MAの生成量が少ないことが確認された。

4.2 イナートマトリックス燃料ベンチマーク

参加国は、日本(JAERI)、スイス(PSI)、イタリア(PoliMI)、フランス(CEA)、ドイツ(TUI)、ベルギー(ECN)、アメリカ(MIT)の7ヶ国である。燃料形態としては、(1) $5\text{PuO}_2\text{-}35\text{ZrO}_2\text{-}50\text{Al}_2\text{O}_3\text{-}10\text{MgO}$ 、(2) $5\text{PuO}_2\text{-}35\text{ThO}_2\text{-}50\text{Al}_2\text{O}_3\text{-}10\text{MgO}$ 、(3) $4.4\text{PuO}_2\text{-}94.9\text{ZrO}_2\text{-}0.7\text{Er}_2\text{O}_3$ 、(4) $4.3\text{PuO}_2\text{-}93.1\text{ZrO}_2\text{-}2.6\text{Bnat}$ であり、現行のPWRのセルモデルを用いてk-inf、反応率、原子数密度、ドップラー反応度、ボイド係数、ボロンワース等の積分値を比較検討した。Pu組成には、核兵器級Pu(WPu)及び原子炉級Pu(RPu)の両方が考えられた。一例として、Fig.1に燃料形態(1)におけるWPuとRPuを使用した場合について示す。使用コード及び核データライブラリーは、JAERI:SRAC/JENDL-3.2、MIT:MCNP-ORIGEN2/ENDF/B-V、PoliMI:WIMS-D/ENDF/B-IV、PSI:ELCOS/JEF-1/BROND2(Er)である。WPuのケースではPu組成はPu-239が94%であるが、燃焼初期においても差は約4%、末期では7%以上にもなる。RPuのケースでは、初期の差は小さいが末期には12%にも拡大している。

4.3炉物理的課題

- ・モンテカルロ計算: 連続エネルギーモデルによる燃焼計算、ドップラー、ボイド、ボロン反応度等の精度向上が必要である。
- ・決定論的手法: 燃焼計算における燃料ピン分割効果、異核種間の共鳴遮蔽効果の検討及び精度よい計算手法の開発が必要である。
- ・積分データ: MOX、イナートマトリックス燃料臨界集集体積分実験及び燃料サンプル燃焼実験解析が必要である。

4.4核データの課題

アクチノイド核種の断面積、FP断面積、Am-241等の分岐比、核分裂エネルギー及び生成量等の精度向上が必要である。一例として、Table2には、Er、Pu、Np、Am、Cm、Bk、Cfについての共鳴積分値及び熱中性子データの評価値についての相違を示す。Er-166の捕獲共鳴積分値では、ENDF/B-VIとJEF-2.2で40%もの差があるが、JENDL-3.2には評価データがない。JENDL-3.2のPu-240捕獲共鳴値は他と比べて小さい。また、Am-242gやBk-249についても大きな差が見られる。

まとめ

Puを軽水炉及び高速炉で燃焼させることが世界的な課題となっている。そのため、OECD/NEAを中心に国際ベンチマーク計算が行われ、現在使用されている核データと計算手法の問題点が明らかにされた。最近、連続エネルギーモンテカルロコードがコンビ

ュータの性能アップとともに計算手法の基本解を与えるものとして使用されているが、これらのコード間においても計算結果に無視できない差が存在し、ましてや、U-235やPu-239の基本核データに不確かさがある現状においては、連続エネルギーモンテカルロコードの核特性予測精度に限界があることが確認された。そのため、積分実験データの取得が必要であり、現在、日本(NUPEC)とフランス(CEA)で進められているミストラル計画：MOX燃料PWR/BWR模擬臨界実験等の結果がベンチマーク問題として提案されることが望まれている。今後、炉物理的及び核データのな検討課題として以下のような点が考えられる。

(1)高精度ベンチマークテスト及び感度解析を利用した核データへのフィードバック:積分データ実験の必要性和連続エネルギーモンテカルロの活用。

(2)核データの再評価:微分データ測定の必要性和限界。

(3)感度解析を利用した統合断面積ライブラリーの検討。

参考文献

- 1) IAEA BULLETIN, 35, 3, p.41 (1993).
- 2) IAEA'95 YEARS BOOKS, 1995.
- 3) Private communication, 1996.
- 4) A. Lagille, et al.: CAPRA Core Studies, The Oxide Reference Option, Vol.1, P.874, GLOBAL'95, Versailles, France, 1995.
- 5) Management and Disposition of Excess Weapon Plutonium, National Academy Press, 1995.
- 6) Garnier, J.C., "New Fuel Concepts within the French CAPRA Program", CEA Cadarache, IAEA-TCM, Nov. 7-11, 1994, Obninsk, Russia.
- 7) Lombardi, C. and Mazzola, A., "Plutonium Burning Via Thermal Fission in Unconventional Matrices", Dept. Nucl. Eng., Politecnico of Milan, *ibid.*, 1994.
- 8) Kasemeyer, U. et al.:"Reactor Physics Characteristics of Possible Fuel Materials for Plutonium-Incinerating LWRs", PSI, *ibid.*, 1994.
- 9) Dastur, A.D.et al.:"Annihilation of Plutonium in CANDU Reactors", AECL, *ibid.*, 1994.
- 10) Duksar et al.:"Physical and Technological Aspects of Cermet Fuel, Application of Pu Burning in VVER Reactors", Inst. Phys. Power Eng., Russia, *ibid.*, 1994.
- 11) Akie, H., Muromura, T., Takano, H. and Matsuura, S., "A New Fuel Material for Once-

Through Weapons Plutonium Burning", Nucl. Technol., 107,p182-192,(1994).

- 12) 高野秀機,室村忠純: 岩石型Pu燃料・燃焼処理技術、原子力工業、Vol.42, 3,p.60, 1996.
- 13) J.G. Garmier et al.:Parametric Studies on Pu Burning in Fast Reactors, Vol.1, P.882, GLOBAL'95, Versailles, France, 1995.
- 14) Physics of Plutonium Recycling, Vol.IV Fast Pu Burner Reactor, 1995, OECD/NEA Document.

Table 2 Comparison of primary nuclear data (barns)

nuclide	data	JENDL-3.2	ENDF/B-VI	JEF-2.2	BROND-2
Er-188	cap. RI	—	98	140	110
Er-167	cap. RI	—	2991	3026	3391
Np-238	cap. 2200	450	202	203	—
	cap. RI	201	101	101	—
Pu-236	cap. RI	400	—	313	—
	fis. RI	49	—	315	—
Pu-240	cap. RI	8105	8504	8448	8430
Am-242m	cap.2200	1256	1359	1809	1622
Am-242g	fis. RI	1248	624	1248	1156
	cap RI	390	72	390	1225
Cm-243	fis. 2200	618	—	431	—
	cap. RI	198	—	283	—
Cm-245	fis. 2200	2000	2231	2132	—
Bk-249	cap. RI	1123	1127	4079	—
Cf-251	fis. RI	2762	4954	4887	—

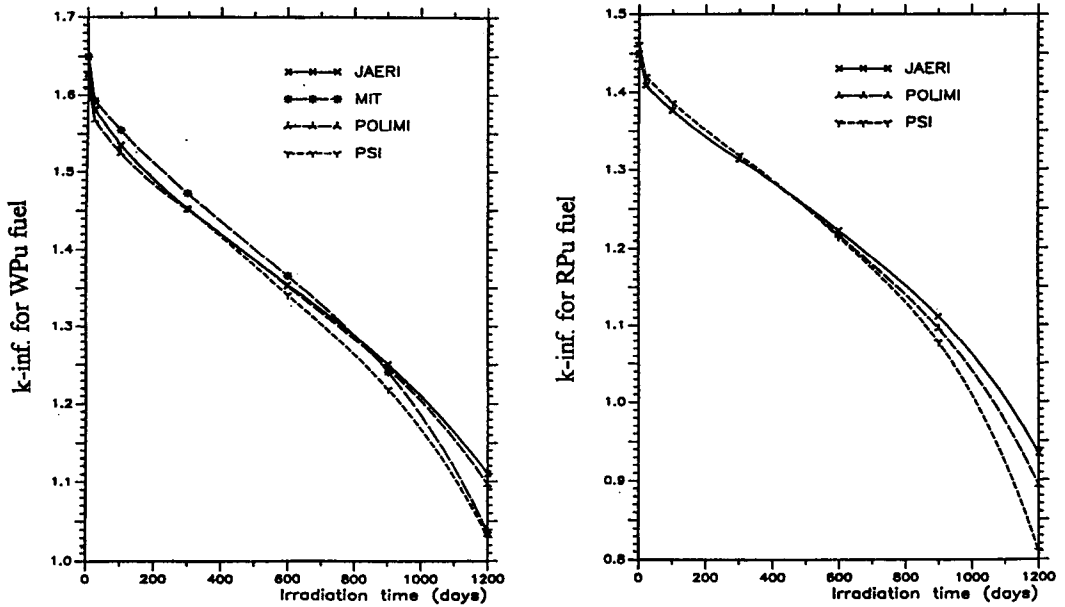


Fig.1 Comparison of k_{inf} for the inert-matrix WPU and RPU fueled PWR as a function of irradiation times