

JAERI-Research
95-084



TMI-2デブリに対するガンマ線分析

1995年11月

上塚 寛・永瀬文久・鈴木敏夫*

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問合せは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越しください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokaimura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1995

編集兼発行 日本原子力研究所

印 刷 (株)原子力資料サービス

TMI-2 デブリに対するガンマ線分析

日本原子力研究所東海研究所原子炉安全工学部

上塙 寛・永瀬 文久・鈴木 敏夫*

(1995年10月27日受理)

TMI-2 から採取した損傷燃料（デブリ）サンプルの放射化学的特性等を評価する基礎データを得るために、ペレット片を含む8個のデブリサンプルに対してガンマ線分析を行った。計算コードに依拠せず、得られたガンマ線データのみに基づく評価手法を用いて、デブリサンプル中の燃料成分の燃焼度（3030～3600 MWd/t），Cs の残留率（0.4～6 %），含まれる UO₂ の割合（64.5～83.3 wt%）を求めた。この評価法を用いて、米国・アイダホ国立研究所で得られたガンマ線データを再評価し、サンプルの採取位置ごとの FP 放出特性やデブリに含まれる燃料の燃焼度分布を調べた。その結果、溶融プール領域から採取したデブリと下部ヘッド上から採取したデブリの特性が類似していることがわかった。計算コード ORIGEN により求められた TMI-2 燃料中の FP の崩壊熱データとデブリのガンマ線分析で得られたデータから、下部ヘッド上に堆積した溶融物の発熱量を推測した。Kr, I, Xe 等の高揮発物質の放出を仮定し、燃料の燃焼度を 3300 MWd/t とすれば、事故開始後 224 分後及び 600 分後の発熱量は、デブリ 1 g 当たりそれぞれ 0.186 W 及び 0.142 W であることが示された。

Gamma Spectrometry of TMI-2 Debris

Hiroshi UETSUKA, Fumihisa NAGASE and Toshio SUZUKI*

Department of Reactor Safety Research
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received October 27, 1995)

To obtain the basic information evaluating the radiochemical property of TMI-2 debris sample, gamma spectrometry was performed on 8 debris samples including fuel pellet fragments at JAERI. The present analysis based on the measurement data (without code calculation) showed the burnup of UO_2 fuel in debris samples, Cs retention, and UO_2 fraction ranged from 3030 to 3600 MWd/t, from 0.4 to 6 % and from 64.5 to 83.3 wt%, respectively. The gamma spectrometry data base obtained at Idaho National Engineering Laboratory was analyzed by the present evaluation method, thereby the Cs retention and burnup distribution of debris samples collected from different origins were evaluated. The evaluation indicated that the characteristics of debris from the molten pool region was similar to that from the lower head region. Heat generation in debris was estimated by combining the decay heat in TMI-2 fuel calculated by ORIGEN code and the gamma spectrometry data. They were 0.186 W/(g-debris) at 224 min and 0.142 W/(g-debris) at 600 min after the initiation of the accident when the average burnup 3300 MWd/t and the complete release of high volatile elements were assumed.

Keywords: TMI-2, Debris, Fission Product, Gamma Spectrometry, Burnup, Cs Retention, UO_2 Fraction, ORIGEN Code, Heat Generation, Vessel Lower Head

* Radiation Application Development Association

目 次

1. はじめに	1
2. γ 線分析	2
2.1 測定サンプル	2
2.2 γ 線測定結果	2
2.3 解析方法	2
2.4 解析結果	4
3. INEL で得られた γ 線分析データベースの再評価	5
3.1 INEL による γ 線分析	5
3.2 燃焼度と Cs 残留率の分布	5
3.3 INEL の評価との比較	6
4. ORIGEN による計算	7
4.1 ORIGEN-JR の概要	7
4.2 TMI-2 燃料のデータ入力	7
4.3 生成放射能の計算結果	8
4.4 発熱量の計算結果	9
5. まとめ	10
謝 辞	11
参考文献	12

Contents

1. Introduction	1
2. γ -spectrometry	2
2.1 Samples	2
2.2 Result of γ -spectrometry	2
2.3 Evaluation Method	2
2.4 Results	4
3. Reevaluation of γ -spectrometry Data Base Obtained by INEL	5
3.1 γ -spectrometry at INEL	5
3.2 Evaluation of Burnup and Cs Retention	5
3.3 Comparison with Evaluation by INEL	6
4. Calculation with ORIGEN Code	7
4.1 Outline of ORIGEN Code	7
4.2 Input Data for TMI-2 Fuel	7
4.3 Calculation of Radioactivity	8
4.4 Calculation of Heat Generation	9
5. Conclusions	10
Acknowledgment	11
References	12

1. はじめに

スリーマイル島2号機（TMI-2）の事故は1979年3月28日に発生し、事故終息後、GENDグループ（主体はGPUニュークリア社、EPR、NRC及びDOE）はTMI-2研究開発計画（R&D計画）に従い、原子炉の復旧活動とともに事故調査を行った。その一環として、米国INEL（アイダホ国立工学研究所）において、炉心から採取された多くの損傷燃料（デブリ）サンプルに対する分析が行われ、事故の状況を解明するための情報が得られた。また、EC諸国やカナダなどのOECD/NEA/CSNI参加国の一端においても、米国から提供されたサンプルの分析が実施された。

原研も、TMI-2から採取した約60個のサンプルを1991年3月に入手した。入手サンプルは、炉心の様々な位置から採取されたものであり、それらの採取位置を事故終息時の炉心の状態とともにFig. 1に示す。サンプルは、燃料や他の炉心材料が溶融し再び固化した物質（デブリと呼称される）、ペレット破片、残存燃料棒や制御棒などである。原研における試験計画では、外観観察、密度測定、ミクロ組織観察、元素分析、ガンマ（ γ ）線分析だけではなく、熱特性の測定や模擬デブリを用いた試験などの特殊試験が進められている⁽¹⁾。

シビアアクシデント時の、FP（核分裂生成物）のふるまいを明らかにすることは事故解析上、非常に重要な課題である。本研究では、2個のペレット片と6個のデブリに対する γ 線分析を行い、デブリ中の燃料成分の燃焼度、Cs残留率、UO₂の割合を評価した。燃焼度の測定結果は燃焼度計算の検証や溶融物移動（リロケーション）を評価する上で有用である。Csは核分裂収率が大きく、揮発性が高いため、事故時すなわち高温での燃料からの放出挙動が特に注目される核種である。また、その放出率から燃料の到達した最高温度等の情報を得ることもできる。溶融デブリ中のUO₂割合を調べることは、UO₂と構造材との反応の程度を探る上で重要である。

一般に、FPの残留率は γ 線測定から得られたデータとORIGEN等コードによって計算した初期インベントリーとの比較で求められる。ORIGENは燃料の燃焼やFPの生成量評価に広く利用されるコードで、TMI-2燃料あるいはデブリに関する解析にも用いられている。しかし、本研究において用いた解析方法は、計算コードに依拠せず、 γ 線測定で得られた実測値のみに基づいて燃焼度やCsの残留率を評価する手法である。本報では、原研において実施した γ の結果と解析結果を述べる。本研究で考案した解析法によってINELで得られた γ 線分析データベース⁽²⁾⁽³⁾⁽⁴⁾を再評価した結果についても述べる。なお、著者等が用いた解析手法は、基本的には計算コードに依拠しないが、デブリ中の主な残留FP元素として検出されたCsとEuの初期インベントリーを計算するためにORIGEN-JR⁽⁵⁾を用いた。また、ORIGENにより求められた核種ごとの発熱量と γ 線分析で得られた燃料やFPのデータから、下部ヘッドに流れ落ちた溶融物の単位重量あたりの崩壊熱による発熱量を評価した。

2. γ 線分析

2.1 測定サンプル

γ 線分析を行った 8 個のサンプルの採取位置、性状及び重量を Table 1 に示す。 γ 線の自己吸収による測定誤差を極力避けるために、なるべく微小なサイズのものを選択し、測定サンプルの重量は 20 ~ 140 mg の範囲にある。個々の測定サンプルを採取した母集団となったグラブサンプルの外観写真を Fig. 2 に示す。これらは砂粒上のデブリがある程度の量でまとまって TMI-2 の損傷炉心から「つまみ出す」方式で採取されたためグラブサンプルと呼ばれている。2 個の O7-P1-A2 は溶融プール (molten pool, Fig. 1 中の No. 1 位置) の周辺領域から採取され、これまでに実施された密度測定やミクロ観察測定の結果によって UO₂ペレット片であることが確認されている。また、ミクロ組織観察では結晶粒の成長は認められないことから、事故時の到達温度もそれほど高くなかったと考えられる。E9-4 と H8-1 は、炉心上部のルースデブリ層 (Fig. 1 中の No. 2 位置) から採取された砂粒状デブリである。VIP-9H と VIP-10C は、下部ヘッド上に形成された溶融物の固化層 (Fig. 1 中の No. 7 位置) を破碎して取り除く際に生じたと思われる粉上のデブリである。なお、下部ヘッド上の溶融物の再固化層は、事故開始から約 224 分後に溶融プール領域から約 19 トンの溶融物が流れ落ち形成されたと推定されている。この領域から採取されたサンプルは下部ヘッドハードデブリあるいはコンパニオンサンプルと呼ばれ、これらに対する分析試験は原研以外では INEL で行われたのみである。

2.2 γ 線測定結果

測定された γ 線スペクトルの例を Fig. 3 に示す。検出器は Ge スペクトロメータである。検出された核種は、Cs-137 (半減期 $T_{1/2} = 30.17$ y)、Cs-134 ($T_{1/2} = 2.066$ y)、Eu-154 ($T_{1/2} = 8.561$ y)、Co-60 ($T_{1/2} = 5.272$ y) であった。以前に行われた INEL⁽²⁾ や CEC・超ウラン元素研究所の測定⁽⁶⁾ では、Ce-144 等の核種も検出されたが、著者等が測定した時点では事故発生後 15 年以上が経過しており、大部分の核種の放射能はバックグラウンド以下になったと考えられる。測定された γ 線スペクトルから、核種ごとの放射能 (Bq/g) を求め、Table 2 にまとめた。これらの放射能は、事故発生日 (1979年3月29日) における値に換算されている。

2.3 解析方法

Table 2 に示した測定結果から、デブリに含まれる燃料成分の燃焼度、Cs 残留率とデ

ブリに含まれる UO_2 割合の評価を行った。これらの解析作業の流れ図を、Fig. 4 に示す。まず、燃料ペレット片 O 7 - P 1 - A 2 中の Cs-137 の比放射能 [Bq/g] から、F I M A (% : fission per initial metal atom) 、さらにその燃焼度を推定した。今回測定したサンプルの重量はいずれも 100 mg 程度であるので、 γ 線の自己吸収は小さく、測定誤差と合わせても求められた燃焼度に含まれる誤差は $\pm 10\%$ 程度であると考えられる。

ペレット片 O 7 - P 1 - A 2 の燃焼度推定に際しては、そこからの Cs の放出はなかったと仮定した。Cs は揮発性の高い元素であるため、事故時にサンプルが非常に高い温度を経験していれば Cs の揮発が起こる。しかし、O 7 - P 1 - A 2 で結晶粒の成長が観察されなかったことから、事故時にもそれほど温度は上昇せず、Cs の放出率は極めて限定されたものであったと考えられる。なお、この仮定が妥当であることは燃焼度と Cs 生成量の関係を ORIGEN で計算し、実測値と比較した計算によっても確認している（後述付録 Fig. 1 0）。

次に、ペレット片 O 7 - P 1 - A 2 の γ 線データから、Fig. 5 と Fig. 6 に示されるような、Cs-134/Cs-137 放射能比と燃焼度、Eu-154/Cs-137 放射能比と燃焼度の関係を求めた。これらの関係は原研と I T U⁽⁶⁾ でのペレットサンプルに対する測定から求められたデータを基にしている。また、これらは以下に示すようなデブリサンプルに対する評価に用いることができる。

デブリサンプルは燃料が炉心構成材料との高温反応等により一旦溶融した物質である。したがって、多くの Cs は既に蒸発したと考えられるので、Cs-137 の放射能から燃料成分の燃焼度を直接推定することはできない。しかし、放射性同位体である Cs-134 と Cs-137 の蒸発挙動は同一であり、温度の上昇に伴って Cs の揮発が起こった場合でも同位体元素比とその燃焼度依存性は変わらないはずである。したがって、デブリサンプルの燃焼度は、測定されたデブリ中の Cs 同位体元素比を Fig. 5 に示される Cs-134/Cs-137 放射能比と燃焼度の関係から求められる。

Eu とその酸化物の揮発性は低いことが知られている。Osborne らは照射した燃料棒を用いて高温での FP 放出実験⁽⁷⁾ を行い主な FP 元素の蒸発率を測定した。Table 3 中の実験結果 (VI-1~3) に示されるように、Eu の蒸発率は 2700 K (酸化雰囲気中) という高温でも非常に低いことがわかる。そこで、本評価手法においては、デブリ中の Eu の蒸発はなかったと仮定し、デブリサンプルで測定された Eu-154/Cs-137 放射能比と Cs 蒸発のなかったペレット片に対して得られた Eu / Cs 比 (Fig. 5) を比較し、Cs の残留率を求めた。

更に、 UO_2 組成を 100 % と想定したときの単位重量当たりの Cs-137 の放射能濃度と、デブリサンプル中の Cs-137 濃度 (放出量 + 残留量) を比較すれば、デブリ中に含まれる UO_2 組成を推定することができる。一般には、EPMA 分析や化学分析を用いて、デブリサンプル中の UO_2 割合が調べられる。しかし、この種の分析は非常に狭い領域や小さなサンプルに対する測定であり、必ずしもサンプルを代表する値ではない。一方、 γ 線分析データに基づく本評価法は、サンプル全体から得られた情報に基づいており、サンプル

全体の平均値を求めることができる。

2.4 解析結果

2.4.1 燃焼度の評価

γ 線分析結果に基づいて燃焼度、Cs残留率、デブリに含まれるUO₂の割合を評価した結果をTable 4にまとめて示す。2個のペレット片の燃焼度は、3300及び3200 MWd/tであり、溶融デブリサンプル中に含まれる燃料成分の燃焼度は3030～3600 MWd/tであった。BrowerらはTMI-2燃料について、77のグリッド位置、軸方向7レベル、計1239位置での燃焼度⁽⁸⁾を計算している。彼らの計算によれば、全燃料の燃焼度範囲は910～6213 MWd/tであり、平均燃焼度は3402 MWd/tである。また、燃料の損傷が少なかったと考えられる炉心周辺部の濃縮度2.98%の燃料を除けば、燃焼度の範囲は1436～6213 MWd/tであり、平均燃焼度は3526 MWd/tである。全燃料の燃焼度が非常に広い燃焼度範囲に分布するのに対して、本研究で測定されたデブリの燃焼度は狭い燃焼度範囲にあり、しかもBrowerらが示した燃焼度の平均値近傍に集中している。TMI-2事故では燃料の約半分が溶けたと評価されているので測定対象としたサンプルの溶融物質全量に対する割合は極めて小さい。デブリの燃焼度評価値が類似しているのは、偶然平均的な燃焼度を有するサンプルのみを選択したためかもしれないが、溶融プール中や圧力容器下部ヘッド上への移動過程で燃料成分の混合が生じた可能性が高いと考えられる。

Coxらも溶融再固化したデブリの燃焼度分析を行っている⁽⁹⁾。彼等もCs同位体の比から燃焼度を求めている。データのいくつかはサンプルの採取位置が我々の測定したサンプルのものとは一致しないために直接比較できないが、上部クラストデブリ(2175 MWd/t)、下部クラストデブリ(1990, 2110, 3650 MWd/t)、溶融プールデブリ(4000 MWd/t)の燃焼度分析結果が示されている。上部及び下部クラストとは、溶融プール領域を囲む層である。採取位置によっては原研で測定されたサンプルに比べて広い範囲の燃焼度を持つことが示されている。

2.4.2 Cs残留率とUO₂割合の評価

デブリ中のCsの残留率は非常に低く、0.4～6%であった。Osborneらの照射燃料棒からの高温FP放出実験⁽⁷⁾では、水蒸気中、2300K、60分間の加熱によりCsの残留率は37%であったことから、デブリサンプルはこれよりも高い温度を経験したことが予想される。デブリ中のUO₂燃料の割合は、64.5～83.3 wt%であり、炉心構成材料の初期インベントリ(UO₂:約75%、Zry:約18%、その他の構造材:約7%)から考えれば、この結果も妥当な範囲である。デブリサンプルのうち、上部炉心デブリE9-4がもっとも低いCs残留率とUO₂割合を示しており、このサンプルが事故時に非常に高い温度と炉心構成材との強い相互作用を経験したこととも推測できる。

本研究で得られた評価結果には測定誤差の他に、ペレット片におけるCsとデブリサン

プルにおけるE_uの放出に関するふたつの仮定に起因する誤差が含まれる可能性があるが、いずれの結果も妥当な範囲にあると言える。

3. INELで得られたγ線分析データベースの再評価

3.1 INELによるγ線分析

INELにおいて、多くのTMI-2デブリサンプルのγ線測定が行われ、その結果が報告されている。採取位置ごとに、上部炉心デブリ（53サンプル）⁽²⁾、上部クラストデブリ（12サンプル）、下部クラストデブリ（9サンプル）、周辺部クラストデブリ（10サンプル）、溶融プールデブリ（57サンプル）⁽³⁾と圧力容器下部ヘッドデブリ（17サンプル）⁽⁴⁾に対するγ線測定が行われ、Csをはじめとした放射性FPの残留率が求められている。これらの解析でのFPの残留率は、実測された放射能とORIGINの計算値を比較して求めた結果である。また、解析の基礎となる燃焼度として、ORIGINを用いて計算した炉心中央部の平均燃焼度を全サンプルに関して用いている。しかし、実際には炉心の様々な位置からリロケートしたデブリサンプル中の燃料成分の燃焼度には差があり、燃焼度に依存してFPの生成量も変わるはずである。したがって、INELのFP残留率解析結果には燃焼度評価に起因する比較的大きな誤差が含まれると考えるべきである。

そこで、本章では第2章で示した実測値のみに基づく解析法を用いて、採取位置に依存するデブリの燃焼度分布やFP放出特性、さらには溶融物質の炉内移動に関する知見を得ることを目的に、上部炉心デブリ、溶融プールデブリ、圧力容器下部ヘッドデブリに対するINELのγ線データを再評価する。

3.2 燃焼度とCs残留率の分布

まず、原研がペレット片に対するγ線測定から得たCs-134/Cs-137放射能比と燃焼度の関係（Fig. 5）を用いて、INELで測定されたサンプルに含まれる燃料成分の燃焼度推定を行った。上部炉心デブリ、溶融プールデブリ、下部ヘッドデブリ（ハード及びルース）について得られた燃焼度のヒストグラムをFig. 7に示す。溶融プールから溶融物の一部が圧力容器下部ヘッドまで流れ落ちて形成された固い層から採取されたデブリは下部ヘッドハードデブリと呼ばれるが、この層の上に堆積した砂粒あるいは小石状のデブリは下部ヘッドルースデブリと呼ばれ区別されている（Fig. 1中のNo. 6位置参照）。

上部炉心デブリの燃焼度ヒストグラムを見ると、燃焼度の平均値3038MWd/tと最小値1112MWd/tは、溶融プールデブリや下部ヘッドデブリに比べて小さく、分布の幅も広いことがわかる。このことは上部炉心デブリには、炉心最上部の比較的燃焼度の小さい燃料成分から炉心上部の平均的な燃焼度を有する燃料までが含まれていることを示してい

プルにおけるE_uの放出に関するふたつの仮定に起因する誤差が含まれる可能性があるが、いずれの結果も妥当な範囲にあると言える。

3. INELで得られた γ 線分析データベースの再評価

3.1 INELによる γ 線分析

INELにおいて、多くのTMI-2デブリサンプルの γ 線測定が行われ、その結果が報告されている。採取位置ごとに、上部炉心デブリ（53サンプル）⁽²⁾、上部クラストデブリ（12サンプル）、下部クラストデブリ（9サンプル）、周辺部クラストデブリ（10サンプル）、溶融プールデブリ（57サンプル）⁽³⁾と圧力容器下部ヘッドデブリ（17サンプル）⁽⁴⁾に対する γ 線測定が行われ、Csをはじめとした放射性FPの残留率が求められている。これらの解析でのFPの残留率は、実測された放射能とORIGENの計算値を比較して求めた結果である。また、解析の基礎となる燃焼度として、ORIGENを用いて計算した炉心中央部の平均燃焼度を全サンプルに関して用いている。しかし、実際には炉心の様々な位置からリロケートしたデブリサンプル中の燃料成分の燃焼度には差があり、燃焼度に依存してFPの生成量も変わるはずである。したがって、INELのFP残留率解析結果には燃焼度評価に起因する比較的大きな誤差が含まれると考えるべきである。

そこで、本章では第2章で示した実測値のみに基づく解析法を用いて、採取位置に依存するデブリの燃焼度分布やFP放出特性、さらには溶融物質の炉内移動に関する知見を得ることを目的に、上部炉心デブリ、溶融プールデブリ、圧力容器下部ヘッドデブリに対するINELの γ 線データを再評価する。

3.2 燃焼度とCs残留率の分布

まず、原研がペレット片に対する γ 線測定から得たCs-134/Cs-137放射能比と燃焼度の関係（Fig. 5）を用いて、INELで測定されたサンプルに含まれる燃料成分の燃焼度推定を行った。上部炉心デブリ、溶融プールデブリ、下部ヘッドデブリ（ハード及びルース）について得られた燃焼度のヒストグラムをFig. 7に示す。溶融プールから溶融物の一部が圧力容器下部ヘッドまで流れ落ちて形成された固い層から採取されたデブリは下部ヘッドハードデブリと呼ばれるが、この層の上に堆積した砂粒あるいは小石状のデブリは下部ヘッドルースデブリと呼ばれ区別されている（Fig. 1中のNo. 6位置参照）。

上部炉心デブリの燃焼度ヒストグラムを見ると、燃焼度の平均値3038MWd/tと最小値1112MWd/tは、溶融プールデブリや下部ヘッドデブリに比べて小さく、分布の幅も広いことがわかる。このことは上部炉心デブリには、炉心最上部の比較的燃焼度の小さい燃料成分から炉心上部の平均的な燃焼度を有する燃料までが含まれていることを示してい

る。溶融プールデブリと下部ヘッドデブリの燃焼度は、3000～3500MWd/tにその多くが分布しており、上部炉心デブリに見られたような低い燃焼度のサンプルはない。また、溶融プールデブリと下部ヘッドデブリの燃焼度ヒストグラム形状は類似しており、平均値も非常に近い値である。この事実は、溶融プール領域の物質が下部ヘッド上にリロケートしたというTMI-2の事故シナリオを間接的に指示している。

Fig. 8にデブリ中のCs残留率のヒストグラムを示す。デブリ中のCs残留率は多くのサンプルで10%以下であるので、0～10%までの分布は拡大して右上にそれぞれ示す。上部炉心デブリ、溶融プールデブリ、下部ヘッドデブリにおける平均Cs残留率は、それぞれ、17.0、5.8、10.7%である。上部炉心デブリ中の平均Cs残留率は比較的大きいのに対して、溶融プールデブリ中の残留率は非常に小さい。このことは、上部炉心領域のデブリには、一旦溶融し固化したデブリだけでなく、炉心上部で破碎し落下した燃料ペレット破片なども含まれている事実を反映していると思われる。また、下部ヘッドデブリにおけるCs残留率は、ハードデブリとルースデブリで異なり、平均値はそれぞれ7.0と14.0%である。このことは、ハードデブリは溶融プールに、ルースデブリの一部はその他の領域、例えば炉心周辺領域などにその起源を持つことを示唆している。

3.3 INELの評価との比較

INELにおけるデブリ中のCs残留率等の評価は、 γ 線分析結果とORIGENによる計算値を比較することで行われた。3.2で引用した同じINELの γ 線データベースを本研究の手法で評価した結果とINELの評価結果を溶融プールデブリと下部ヘッドデブリのCs残留率に関して以下で比較する。

3.3.1 溶融プールデブリに関する比較

溶融プールデブリにおけるCs残留率の比較をTable 5に示す。表において原研による評価結果中の空欄は、 γ 線データが妥当な範囲を明らかに外れていると判断されたため、解析対象としなかった場合である。INELでの評価ではCs残留率の平均は約10%であるが、原研での評価ではその平均値は約6%であった。INELでの評価では、非常に大きな残留率を示すデータがいくつか見られるが、溶融プール領域に存在したデブリ中のCsの残留率は非常に小さいはずであり、多くのサンプルの残留率を1%以下と評価した原研の解析結果の方が妥当であろう。

3.3.2 下部ヘッドデブリに関する比較

下部ヘッドルースデブリ中のCs残留率に関する結果をTable 6に示す。すべての試料について両者の評価結果は非常に良く一致しており、その差は最大でも約20%である。

Table 7は、下部ヘッドハードデブリに関する比較の結果である。ここに示すCs残留率はいずれもいくつかのサンプルに対して得られた解析結果の平均値である。ケース1は γ 線データとORIGEN計算値から求めたINELの結果であり、ケース2は同じ γ 線データを本研究で用いた解析法で評価した結果である。また、ケース3は原研が入手したサ

ンプルに対して γ 線分析と評価を行った結果である。

ケース1と2の違いは評価手法である。両者の間では、南東領域から採取したサンプルで大きな差が見られるものの、南西領域でCs残留率が低く、北東領域で高いという傾向と評価値は良く一致している。ケース1と3はサンプルが異なり南東領域から採取したサンプルについてのみ比較できるが、Cs放出率は同等である。

3.3.3 比較結果

以上のように、溶融プールデブリと下部ヘッドデブリでのCs残留率に関する比較では、ふたつの評価法間で有意な差は見られず、下部ヘッドデブリに関する比較では、むしろ良い一致が得られた。ORIGEN計算値を用いたINELで行った評価法の不確定性は、平均的な燃焼度を用いたことにあると既に述べたが、ここで燃焼度評価の結果(2.4.1)を振り返ってみる。

原研で測定したデブリ(上部炉心デブリ、下部ヘッドハードデブリ)に含まれる燃料の燃焼度の範囲は、3300~3600MWd/tであった。また、INELで得られた γ 線データから求められたデブリ燃焼度(Fig. 7)も、比較的狭い範囲に分布した。したがって、デブリ中の燃料成分の均一化が考えられる。溶融プール及び下部ヘッドハードデブリはその形成過程から燃料成分の均一化は十分に考えられる。そのため結果的に、炉内のオリジナル位置が不明なサンプルに対して炉中心部の平均燃焼度を適用したINELでの解析によっても、比較的正確な評価結果が得られたと考えられる。

4. ORIGENによる計算

4.1 ORIGEN-JRの概要

ORIGENは米国・オークリッジ国立研究所(ORNL)で開発された原子炉内の核種の生成と消滅を計算するコードである⁽¹⁰⁾。本研究で用いたORIGEN-JRは、遮蔽計算のために線源の放射線強度を出力する機能等をORIGENに付加して開発されたコードである⁽¹¹⁾。実際には、単位重量の燃料物質が、ある中性子束場に置かれた場合を想定し、単位重量当たりに生成する放射性同位元素の生成量、放射能、発熱量が計算される。

Table 8に入力データの例を示す。入力項目は、運転日数、初期濃縮度、燃焼度、1kg燃料当たりのU-235及びU-238などの原子数等である。

4.2 TMI-2燃料のデータ入力

TMI-2炉の運転条件が不明であるため、中性子スペクトルは一般的なPWRの値を

ンプルに対して γ 線分析と評価を行った結果である。

ケース 1 と 2 の違いは評価手法である。両者の間では、南東領域から採取したサンプルで大きな差が見られるものの、南西領域で Cs 残留率が低く、北東領域で高いという傾向と評価値は良く一致している。ケース 1 と 3 はサンプルが異なり南東領域から採取したサンプルについてのみ比較できるが、Cs 放出率は同等である。

3.3.3 比較結果

以上のように、溶融プールデブリと下部ヘッドデブリでの Cs 残留率に関する比較では、ふたつの評価法間で有意な差は見られず、下部ヘッドデブリに関する比較では、むしろ良い一致が得られた。ORIGEN 計算値を用いた INEL で行った評価法の不確定性は、平均的な燃焼度を用いたことにあると既に述べたが、ここで燃焼度評価の結果（2.4.1）を振り返ってみる。

原研で測定したデブリ（上部炉心デブリ、下部ヘッドハードデブリ）に含まれる燃料の燃焼度の範囲は、3300～3600 MWd/t であった。また、INEL で得られた γ 線データから求められたデブリ燃焼度（Fig. 7）も、比較的狭い範囲に分布した。したがって、デブリ中の燃料成分の均一化が考えられる。溶融プール及び下部ヘッドハードデブリはその形成過程から燃料成分の均一化は十分に考えられる。そのため結果的に、炉内のオリジナル位置が不明なサンプルに対して炉中心部の平均燃焼度を適用した INEL での解析によっても、比較的正確な評価結果が得られたと考えられる。

4. ORIGENによる計算

4.1 ORIGEN-JRの概要

ORIGEN は米国・オークリッジ国立研究所（ORNL）で開発された原子炉内の核種の生成と消滅を計算するコードである⁽¹⁰⁾。本研究で用いた ORIGEN-JR は、遮蔽計算のために線源の放射線強度を出力する機能等を ORIGEN に付加して開発されたコードである⁽¹¹⁾。実際には、単位重量の燃料物質が、ある中性子束場に置かれた場合を想定し、単位重量当たりに生成する放射性同位元素の生成量、放射能、発熱量が計算される。

Table 8 に入力データの例を示す。入力項目は、運転日数、初期濃縮度、燃焼度、1 kg 燃料当たりの U-235 及び U-238 などの原子数等である。

4.2 TMI-2 燃料のデータ入力

TMI-2 炉の運転条件が不明であるため、中性子スペクトルは一般的な PWR の値を

用いた。運転日数は90日である。燃料に関しては、その初期及び環境条件がデータベースとして示されている⁽¹²⁾。Fig. 9にTMI-2炉心のグリッド位置毎の燃料の濃縮度を示す。濃縮度2.96%の燃料棒の大部分は炉心周辺部にあり、その損傷は炉心中央部に比べて少なく、この濃縮度を持つ燃料成分のデブリ中の割合は小さいと考えられるので本計算からは除外する。従って、デブリ形成に寄与したと考えられる燃料は、Table 9に示すような8つのグループに分けられる⁽¹²⁾。各グループの濃縮度と平均の燃焼度を燃料の初期値とし、それぞれのペレット中に生成する放射性同位元素の生成量、放射能、発熱量を求めた。

ORIGENを用いた場合、比較的正確な条件を与えた場合でも核種によって実測値と計算値で差があることが知られている。例えば、Suzukiらは、Ru-106、Cs-134、Cs-137では計算値と実測値が良く一致するが、Sb-125とEu-154では両者に差がみられたと報告している⁽¹³⁾。従って、計算結果と実測値を比較する場合には注意が必要である。

4.3 生成放射能の計算結果

2種の濃縮度(1.98と2.64%)、4種の燃焼度(それぞれの濃縮度に対して、1863~4391、2239~5465MWd/t)を持つ8種の燃料ペレットに関して、ORIGEN-JRで求められたCs-134、Cs-137、Eu-154の生成量をTable 9とFig. 10~12に示す。Fig. 10~12はそれぞれの核種の生成量を燃焼度に対してプロットしたものであるが、図中のデータ点はTMI-2炉心で燃焼した代表的な8種のペレット中に予想される量を示すものである。すなわち、それぞれのペレットは炉心位置が異なり、照射条件が異なるため、いわゆる燃焼度依存性を示すものではない。しかし、データ点を囲むこのような領域が燃焼度TMI-2デブリ中に予想されるデータの範囲を示すものであると考えることができる。

ちなみに、Cs-137は核分裂反応から直接生成されるために、生成量は燃焼度に比例する。Cs-134やEu-154は、それぞれCs-133とEu-153の(n、γ)反応により生成し、燃焼度のほぼ2乗に近似的に比例する。

参考として、サンプルO7-P1-A2(ペレット片)の実測値を図中に▲印で示す。実測値と計算値を比べると、Cs-134とCs-137の生成量に関しては計算値は実測値よりも大きい。ただし、ORIGENは比較的低燃焼度側でCs-137の生成量を過大評価することが知られており⁽¹³⁾、測定値は実際の生成量にほぼ等しいと考えられる。このことは、本研究における評価でペレット片(O7-P1)からのCs放出はないと仮定した根拠でもある。炉心位置O7グリッドにあった燃料の濃縮度は1.98%であるから、このサンプルが事故時に移動していないとすれば、計算値はCs-134で50~65%程度、Cs-137では15~20%程度、実測値よりも多く発生量を見積もっている。また、Eu-154の生成量に関しては計算値は実測値よりも8~15%小さい。核種によっては実測値と計算値の間に差があるが、これは計算自体の誤差の他に、用いた初期条件や境界条件の実際との差にもよる

と考えられる。計算結果をもとに、例えばTMI-2燃料で予想される燃焼度の範囲 $2000\text{MWd/t} \sim 4000\text{MWd/t}$ を考えると、燃料中に生じるCs-137の量の差は約2倍である。したがって、燃料成分の混合が進み燃焼度が均一化した場合には、FP放出の評価において平均的な燃焼度を与えても影響はないが、燃料成分の混合が起こらない場合にオリジナル位置の不明なサンプルに炉心の平均燃焼度を適用すると、FP残留率評価に大きな誤差を生むことになる。

4.4 発熱量の計算結果

4.4.1 背景

TMI-2事故シナリオでは、事故開始から224分後に、炉心下部中央に形成された溶融プールから高温の溶融物質が圧力容器下部ヘッド上に流れ落ちたとされている。流れ落ちた高温の物質は、下部ヘッドに熱影響を与えたことも明らかにされている⁽¹⁴⁾。この熱影響を評価するためには、落下した溶融物質の発熱量に関するデータが必要である。Table 10にOttewitteが求めた事故開始後224分及び600分後の単位ウラン重量当たりの発熱量を計算した結果⁽¹⁵⁾を示す。FP核種が全て含まれていると仮定した場合の全発熱量は224分で $0.23\text{W/g}\cdot\text{U}$ 、600分で $0.16\text{W/g}\cdot\text{U}$ であるのに対し、希ガスであるKr, Xeと揮発性の高いI, Csを除いた場合は、それぞれ、0.18及び0.14 $\text{W/g}\cdot\text{U}$ と評価されている。TMI-VIP計画においては、この値が、下部ヘッドへの熱影響の解析に用いられている。デブリの発熱量に関しては、この他に、LANDでも計算コードCINDERを用いて解析が行われ、100分における全発熱量として $0.21\text{W/g}\cdot\text{U}$ が報告されている⁽¹⁶⁾。

4.4.2 ORIGENにおける計算結果

第3章で述べたように、本研究において下部ヘッドデブリに対する γ 線分析から燃料成分やCsの放出に関する知見が得られた。これらの知見とORIGENで計算されるFP等の発熱量から、事故時における下部ヘッドデブリ中の発熱量を推測することができる。

燃料の燃焼度を 3300MWd/t とした場合のORIGENで求めた元素毎の発熱量をTable 11(a)～(c)にまとめて示す。ORIGENでは元素群を軽元素(a)、重元素(b)、FP(c)の3つのグループに分け、単位重量(ここでは、g·UO₂)当たりの発熱量が出力される。また表中には、運転前、炉停止時(事故開始時)、224分後、600分後の結果を示した。全発熱量のうち、FPによる発熱が大部分を占め、重元素のうちではNpが大きな発熱をすることがわかる。そこでデブリ中の発熱量評価に際し、①H, Kr, Xe, Iの全量とCsの96%が放出される、②下部ヘッドデブリ中に含まれるUO₂の重量割合は78.3%である、を仮定する。96%のCsの放出とデブリ中のUO₂割合は本研究の γ 線分析で得られた結果である。この仮定の下で概算された下部ヘッドデブリ中に発生する熱量をTable 12(a)に示す。この表には、炉停止時と224分及び600分におけるNpとFPによる発熱量を、揮発を考えない場合(上の仮定①)を省

いた場合、Totalで示される)と揮発を考えた場合(Non-Volatile totalと示される)について示した。燃焼度3300MWd/tで高揮発元素の揮発を考えた場合は、224分、600分の発熱量はそれぞれ、0.186、0.142W/g・デブリであった。Ottewitteの結果は、1g U当たりそれぞれ、0.18、0.14Wであったが、デブリ中のUO₂の割合を78.3%だとすれば、彼の結果は今回の結果と比べて25%程度小さい。

Ottewitteは評価の過程で発熱を求める計算の詳細を示していない。また、本研究での評価においても実際の燃料の燃焼計算やFPのうち中揮発性物質や酸化物の放出等を完全に再現しているとは言えない。したがって、ここでそれぞれの精度について論ずることは難しいが、本来デブリのできる過程や材料・燃料の構成は複雑であり、FP全体のふるまいも不明な部分もある。また、下部ヘッドへの熱影響に関しては、冷却や圧力などの多くの他の因子が作用するために、この程度の発熱量の差が下部ヘッド温度解析の結果を大きく左右するとは言えない。

次に、デブリ中の発熱量の燃焼度依存性を検討した。燃焼度は下部ヘッドデブリで見られた平均の燃焼度は3300MWd/tであるが、その5倍あるいは10倍の燃焼度(それぞれ、16500、33000MWd/t)を与えたときの結果を参考として表に示した(Fig. 12(b))。燃焼度が増加した場合、炉停止時の発熱量は燃焼度とともに減少する。詳細を見ると、核分裂収率曲線のピーク近傍にある元素の発熱量が変化していることから、燃焼が進むにつれて、燃焼に係わるPu量が増加し核分裂収率曲線に変化が起こるためであると考えられる。224分での発熱量は燃焼度が増加してもそれほど変化はなく、一部元素の放出を想定したケースでは、その増加率は燃焼度が10倍になっても8%程度であった。600分後の発熱量の燃焼度に伴う変化は、224分の結果よりは若干大きく、燃焼度が10倍の燃焼度を持つ燃料を含むデブリからの、発熱量は約13%増加する。

5. まとめ

原研が入手したTMI-2デブリサンプルのうち、ペレット片を含む8個のサンプルについてγ線分析を行った。得られたγ線の強度から、デブリサンプル中の燃料成分の燃焼度(3030~3600MWd/t)、Csの放出率(0.4~6%)、含まれるUO₂の割合(64.5~83.3wt%)が求められた。これらの結果は、デブリサンプルが事故時に高温と炉心構成材料との強い相互作用を経験したことを見ている。

計算コードを用いずに実測されたγ線データのみを用いる解析法を、INELのガンマ線データベースに適用し、サンプル位置ごとのデブリ中の燃料成分の燃焼度分布やFP放出特性を調べた。その結果、評価法の有用性が確かめられるとともに、溶融プールデブリと下部ヘッドハードデブリがほぼ同じ平均燃焼度とCs残留率を持つことが示され、溶融物移動シナリオと一致した。

いた場合、Totalで示される)と揮発を考えた場合(Non-Volatile totalと示される)について示した。燃焼度3300MWd/tで高揮発元素の揮発を考えた場合は、224分、600分の発熱量はそれぞれ、0.186、0.142W/g・デブリであった。Ottewitteの結果は、1g U当たりそれぞれ、0.18、0.14Wであったが、デブリ中のUO₂の割合を78.3%だとすれば、彼の結果は今回の結果と比べて25%程度小さい。

Ottewitteは評価の過程で発熱を求める計算の詳細を示していない。また、本研究での評価においても実際の燃料の燃焼計算やFPのうち中揮発性物質や酸化物の放出等を完全に再現しているとは言えない。したがって、ここでそれぞれの精度について論ずることは難しいが、本来デブリのできる過程や材料・燃料の構成は複雑であり、FP全体のふるまいも不明な部分もある。また、下部ヘッドへの熱影響に関しては、冷却や圧力などの多くの他の因子が作用するために、この程度の発熱量の差が下部ヘッド温度解析の結果を大きく左右するとは言えない。

次に、デブリ中の発熱量の燃焼度依存性を検討した。燃焼度は下部ヘッドデブリで見られた平均の燃焼度は3300MWd/tであるが、その5倍あるいは10倍の燃焼度(それぞれ、16500、33000MWd/t)を与えたときの結果を参考として表に示した(Fig. 12(b))。燃焼度が増加した場合、炉停止時の発熱量は燃焼度とともに減少する。詳細を見ると、核分裂収率曲線のピーク近傍にある元素の発熱量が変化していることから、燃焼が進むにつれて、燃焼に係わるPu量が増加し核分裂収率曲線に変化が起こるためであると考えられる。224分での発熱量は燃焼度が増加してもそれほど変化はなく、一部元素の放出を想定したケースでは、その増加率は燃焼度が10倍になっても8%程度であった。600分後の発熱量の燃焼度に伴う変化は、224分の結果よりは若干大きく、燃焼度が10倍の燃焼度を持つ燃料を含むデブリからの、発熱量は約13%増加する。

5. まとめ

原研が入手したTMI-2デブリサンプルのうち、ペレット片を含む8個のサンプルについてγ線分析を行った。得られたγ線の強度から、デブリサンプル中の燃料成分の燃焼度(3030~3600MWd/t)、Csの放出率(0.4~6%)、含まれるUO₂の割合(64.5~83.3wt%)が求められた。これらの結果は、デブリサンプルが事故時に高温と炉心構成材料との強い相互作用を経験したことを見ている。

計算コードを用いずに実測されたγ線データのみを用いる解析法を、INELのガンマ線データベースに適用し、サンプル位置ごとのデブリ中の燃料成分の燃焼度分布やFP放出特性を調べた。その結果、評価法の有用性が確かめられるとともに、溶融プールデブリと下部ヘッドハードデブリがほぼ同じ平均燃焼度とCs残留率を持つことが示され、溶融物移動シナリオと一致した。

また、計算コードORIGINにより求められたTMI-2燃料中のFPの崩壊熱データとデブリのガンマ線分析で得られたデータから、下部ヘッド上に堆積した溶融物の発熱量を推測した。Kr, I, Xe等の高揮発物質の全量放出を仮定し、燃料の燃焼度を3300MWd/tとすれば、事故開始後224分後及び600分後の発熱量は、デブリ1g当たりそれぞれ0.186W及び0.142Wである。得られたデブリ中の燃料成分、FP放出、残留FPによる発熱量に関する知見は、事故解析において重要な基礎データとなる。

謝　　辞

本研究は多くの方々のご助力により実施することができた。試料準備にはホット試験室の方々のご協力を頂いた。 γ 線測定及び解析においては燃料研究部分析センターの方々のご協力を頂いた。ここにあわせてお礼を申し上げます。

また、計算コードORIGINにより求められたTMI-2燃料中のFPの崩壊熱データとデブリのガンマ線分析で得られたデータから、下部ヘッド上に堆積した溶融物の発熱量を推測した。Kr, I, Xe等の高揮発物質の全量放出を仮定し、燃料の燃焼度を3300MWd/tとすれば、事故開始後224分後及び600分後の発熱量は、デブリ1g当たりそれぞれ0.186W及び0.142Wである。得られたデブリ中の燃料成分、FP放出、残留FPによる発熱量に関する知見は、事故解析において重要な基礎データとなる。

謝　　辞

本研究は多くの方々のご助力により実施することができた。試料準備にはホット試験室の方々のご協力を頂いた。 γ 線測定及び解析においては燃料研究部分析センターの方々のご協力を頂いた。ここにあわせてお礼を申し上げます。

参考文献

1. Uetsuka,H., Otomo,T. and Nagase,F., "List of TMI-2 Debris Samples Transported to JAERI — Examination Program and Sample List —," unpublished report
2. Akers,D.W., Cook,B.A. and Ploger,S.C., "TMI-2 Core Debris Grab Samples of First Group of Samples," GEND-INF-060, Vol.2, Jul.1985
3. Akers,D.W., Olsen,C.S. and Pregger,B.F., "TMI-2 Core Bore Examinations," GEND-INF-092, Vol.2, Jan.1992
4. Olsen,C.S., Akers,D.W. and McCardel,R.K., "Examination of Debris from the Lower Head of the TMI-2 Reactor," GEND-INF-084, Jan.1988
5. Koyama,K., Yamano,N. and Miyasaka,S., "ORIGEN-JR: A Computer code for calculating Radiation Sources and Analyzing Nucleide Transmutations, JAERI-M 8229 (1979)
6. Bottomley,P. and Coquerelle,M., "Final report of the Metallurgical Examination of Samples Extracted from the Damaged TMI-2 Reactor Core," EGG-OECD-9168, Vol.2, Appendix G, Aug.1991
7. Osborne,M.O. and Lorenz,R.A., "ORNL Studies of Fission Product Release under LWR Severe Accident Conditions," Nuclear Safety, Vol.33, No.3 (1992)
8. Cox,D.S., "Examination of TMI-2 Core Samples in Canada," EGG-OECD-9168, Vol.2, Appendix C, Aug.1991
9. Brower,R.W., Frackwell,L.J., Golden,D.W., Harris,M.L. and Olaveson,C.L., "TMI-2 Initial and Boundary Conditions Data Base," GEND-INF-078, Jan.1988
10. M.J.Bell,"ORIGEN-The ORNL Isotope Generation and Depletion Code," ORNL-4628 (1973)
11. Koyama,K., Yamano,N. and Miyasaka,S., "ORIGEN-JR: A Computer code for calculating Radiation Sources and Analyzing Nucleide Transmutations, JAERI-M 8229 (1979)
12. Brower,R.W., Frackwell,L.J., Golden,D.W., Harris,M.L. and Olaveson,C.L., "TMI-2 Initial and Boundary Conditions Data Base," GEND-INF-078, Jan.1988
13. Suzuki,T., Nakahara,Y., Kohno,N., Gunji,K., Sonobe,T., Ohnuki,M., Adachi,T. and Takano,H., "Accumulation of Fission Product in PWR Spent Fuel," Proceeding of A Specialist's Meeting on Fission Product Nuclear Data, Tokai, Japan, May, 1992
14. Three mile island reactor pressure vessel investigation project, Achievements and significant results, 1994, OECD Document, Proceeding of TMI-VIP Open Forum, Boston, USA, Oct.1993
15. Ottewitte,E.H., "TMI-2 Decay Heat at Short Times after Accident (Appendix C)," in TMI V(92) E10 (Akers,D.W., Jensen,S.M. and Schuetz,B.K.)
16. England,T.R. and Wilson,W.B., "TMI-2 Decay Power: LASL Fission Product and Actinide Decay Power Calculations for the President's Commission at Three Mile Island," LA-8041-MS, Oct.1979

Table 1 List of samples for γ spectrometry

<i>Sample</i>	<i>Sampling Location</i>	<i>Appearance</i>	<i>Weight [mg]</i>
O7-P1-A2 a	Molten Pool *	F	140.15
O7-P1-A2 b	Molten Pool *	F	124.76
E9-4	Upper Core	C	27.04
H8-1	Upper Core	C	35.24
VIP-9H a	Lower Plenum	C	61.31
VIP-9H b	Lower Plenum	C	20.81
VIP-10C a	Lower Plenum	C	40.36
VIP-10C b	Lower Plenum	C	30.37

* : Obtained by Core Boring from Periphery of Molten Pool Region

F : Fuel Pellet Fragment

C : Resolidified Ceramic Particle

Table 2 Radionuclide concentrations in TMI-2 debris samples

Bq/g on Mar. 29, 1979

Sample	Radionuclide Concentrations (\pm ERR%)			
	Cs-137	Cs-134	Eu-154	Co-60
07-P1-A2①	3.36E+08 (3.9)	8.45E+07 (3.9)	2.90E+06 (3.9)	9.65E+04 (5.8)
07-P1-A2②	3.17E+08 (3.9)	7.94E+07 (3.9)	2.50E+06 (4.2)	7.78E+04 (20)
E9-4	9.40E+05 (0.6)	2.50E+05 (23)	1.87E+06 (0.5)	2.75E+06 (0.1)
H8-1	1.17E+07 (0.6)	3.48E+06 (2.6)	2.75E+06 (0.5)	5.67E+05 (0.7)
VIP-9H①	1.52E+07 (0.6)	4.28E+06 (1.6)	2.76E+06 (1.0)	5.23E+05 (0.1)
VIP-9H②	1.01E+07 (0.6)	2.85E+06 (3.5)	2.84E+06 (0.6)	6.37E+05 (0.2)
VIP-10C①	8.69E+06 (0.6)	2.53E+06 (1.2)	2.72E+06 (0.5)	5.64E+05 (0.2)
VIP-10C②	1.66E+07 (0.5)	4.91E+06 (4.2)	2.76E+06 (0.4)	5.88E+05 (0.3)

Table 3 Condition and results for FP release tests performed at ORNL⁽⁷⁾

Parameter	Test No.				
	VI-1	VI-2	VI-3	VI-4	VI-5
Fuel specimen	Oconee	BR3	BR3	BR3	BR3
Burnup, MWd/kg	40	44	44	47	42
In-pile Kr release, %	0.7	-2	-2	-5	-2
Test conditions					
Test temperature, K	2020, 2300 ^a	2300	2000, 2700 ^a	2440	2000, 2720 ^a
Time at temperature, min	20, 20	60	20, 20	20	20
Atmosphere	Steam	Steam	Hydrogen	Hydrogen	Hydrogen, steam ^b
Fractional release, %					
¹³⁷ Cs	63	67	100	96	100
⁸⁵ Kr	57	>31	100	85	100
¹²⁹ I	37	>33	c	71	c
¹²⁵ Sb	33	68	99	6.4	18
¹⁵⁴ Eu	0	0	~0.01	19	57
¹⁰⁶ Ru	0	0	5.0	0	14
				0	0

^aSome tests (VI-1, VI-3, and VI-5) were conducted in two phases at two different temperatures.^bTest VI-6 was heated to 2300 K in hydrogen and then switched to a steam atmosphere.^cAnalyses incomplete.

Table 4 Estimated burnup, Cs retention and UO₂ fraction
in TMI-2 debris

<i>Sample</i>	<i>Burnup</i> <i>[MWd/t]</i>	<i>Cs Retention</i> <i>[%]</i>	<i>UO₂ Fraction</i> <i>[%]</i>
O7-P1-A2-a	3200	100 *	100
O7-P1-A2-b	3030	100 *	100
E9-4	3300	0.4	64.5
H8-1	3700	4.2	72.5
VIP-9H-a	3500	5.3	79.4
VIP-9H-b	3500	3.3	83.3
VIP-10C-a	3600	3.0	76.7
VIP-10C-b	3600	5.9	73.9

* : Assumption

Table 5 Comparison of Cs retention data for molten pool debris

Sample No.	Cs Rtention[%]		Sample No.	Cs Rtention[%]	
	JAERI	INEL		JAERI	INEL
K9-P3-A	0.5	0.65	O9-P1-A		
K9-P3-D			No. 2	0.6	0.14
No. 1	0	0.64	O9-P1-B	0.4	0.17
No. 2	0.7	1.0	G12-P2-B		
K9-P3-F	0.4	0.56	No. 1	0.1	118
K9-P4-D			No. 2	1.4	0.12
No. 1	-	0.14	G12-P4-A	0.2	0.32
No. 2	0.4	0.6	G12-P9-A	4.0	3.3
G08-P5-B			N5-P1-H		
No. 1	0.9	0.38	No. 1	0.1	23
No. 2	0.6	12	No. 2	6.2	36
G08-P6-B			N5-P1-D		
No. 1	0.1	0.56	No. 1	8.7	53
No. 2	0.1	0.34	No. 2	22.4	101
G8-P7-A	0.1	2.3E-4			
G8-P7-C					
No. 1	-	6.1			
No. 2	0.1	0.44			
G8-P8-A	0.4	0.61			
G8-P9-A	0.2	83			
G8-P10-A					
No. 1	0.1	10			
No. 2	0.6	2.6			
D8-P4-A	-	0.10			
D8-P4-C					
No. 1	-	0.63			
No. 2	-	0.40			

Table 6 Comparison of Cs retention data for lower head loose debris

	7-1-B	11-1-A	11-1-C	11-2-C	11-4-B	11-4-D	11-5-C	11-6-B	11-7-C
INEL	22.5	12.4	7.2	10.9	21.3	18.0	7.6	15.0	16.3
JAERI	19	13.8	6.5	11.1	21.2	17.3	8.5	13.4	15.5

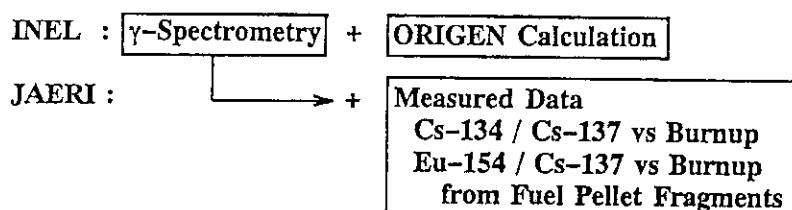
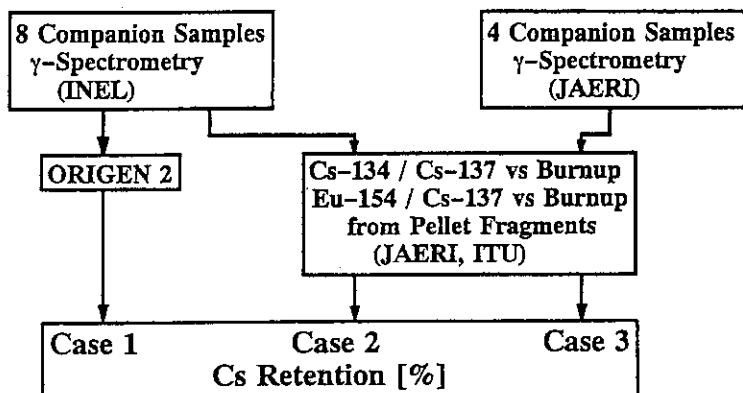


Table 7 Comparison of Cs retention data for lower head hard debris

Case	Southeast(1-9)	Northwest(1-10)	Southwest(1-11)	Northeast(1-12)
Case 1	3.6		1.3	18
Case 2	1.13		1.01	16.9
Case 3	4.3	4.45		

* Same samples were analysed in Case 1 & 2.



Comparison of evaluation methods for Cs retention

Table 8 Example of input data

Table 9 TMI-2 fuel group calculated radionuclide concentration
in TMI-2 fuel

on Mar. 28, 1979

Fuel Group	Enrichment [%]	Average Burnup [MWd/t]	Radionuclide Concentration [Bq/g]		
			Cs-134	Cs-137	Eu-154
1	1.98	1863	4.962E+7	2.270E+8	8.181E+5
2		2746	1.061E+8	3.363E+8	1.824E+6
3		3637	1.855E+8	4.496E+8	3.341E+6
4		4391	2.721E+8	5.487E+8	5.017E+6
5	2.64	2239	5.646E+7	2.725E+8	8.943E+5
6		3552	1.406E+8	4.336E+8	2.327E+6
7		4315	2.063E+8	5.273E+8	3.496E+6
8		5465	3.316E+8	6.723E+8	5.824E+6

Table 10 Heat generation after shutdown⁽¹⁶⁾

Decay Mode	Post Shutdown Heating Rate (W/g U)	
	after 224 minutes	after 10 hours
non-local gamma release	0.12	0.083
local release	0.11	0.079
total	0.23	0.16
non-volatile total	0.18	0.14

Table 11(a) Elemental thermal power in kgUO₂ (Group 1)

Burnup=33300MWD/t
Unit : Watt

Element	Initial	Discharge	224 Min.	600Min.
H	0.0	2.954E-18	2.954E-18	2.954E-18
C	0.0	3.434E-09	3.434E-09	3.434E-09
K	0.0	6.885E-18	6.051E-21	1.337E-22
Ca	0.0	7.079E-14	6.913E-14	6.642E-14
Sc	0.0	1.080E-09	9.485E-10	8.616E-10
Ti	0.0	8.605E-07	2.023E-18	
V	0.0	1.403E-03	1.347E-23	
Cr	0.0	1.074E-01	1.045E-01	1.039E-01
Mn	0.0	3.039E-04	1.665E-04	1.021E-04
Fe	0.0	2.461E-04	2.457E-04	2.450E-04
Co	0.0	9.085E-08	4.301E-08	4.292E-08
Ni	0.0	6.902E-22	6.902E-22	6.902E-22
Cu	0.0	7.606E-24	7.606E-24	7.606E-24
Sr	0.0	2.295E-04	2.086E-04	1.838E-04
Y	0.0	1.254E-02	1.205E-02	1.128E-02
Zr	0.0	1.412E-01	1.409E-01	1.405E-01
Nb	0.0	7.570E-02	7.584E-02	7.608E-02
Mo	0.0	5.000E-16	4.810E-16	4.508E-16
Tc	0.0	1.859E-16	1.846E-16	1.785E-16
Cd	0.0	2.001E-08	9.429E-09	8.694E-09
In	0.0	9.207E-07	3.400E-12	1.754E-18
Sn	8.520E+00	5.209E+00	5.204E+00	5.196E+00
Sb	0.0	1.178E-01	1.162E-01	1.159E-01
Te	0.0	5.136E-05	5.164E-05	5.209E-05
Total	8.520E+00	5.676E+00	5.654E+00	5.644E+00

Table 11(b) Elemental thermal power in kgUO₂(Group 2)

Burnup=33300MWD/t
Unit : Watt

Element	Initial	Discharge	224 Min.	600 Min.
Tl	0.0	1.354E-12	1.360E-12	1.354E-12
Pb	0.0	2.325E-13	2.325E-13	2.325E-13
Bi	0.0	2.813E-12	2.814E-12	2.813E-12
Po	0.0	1.209E-11	1.209E-11	1.209E-11
At	0.0	1.590E-15	1.599E-15	1.613E-15
Rn	0.0	6.129E-12	6.130E-12	6.133E-12
Fr	0.0	1.437E-15	1.445E-15	1.457E-15
Ra	0.0	5.529E-12	5.530E-12	5.533E-12
Ac	0.0	1.698E-15	1.706E-15	1.719E-15
Th	0.0	1.355E-07	1.349E-07	1.350E-07
Pa	0.0	1.593E-06	1.590E-06	1.588E-06
U	9.444E-06	5.841E+01	2.376E-01	1.545E-01
Np	0.0	3.331E+01	3.196E+01	2.958E+01
Pu	0.0	6.923E-03	6.420E-03	5.998E-03
Am	0.0	4.972E-04	2.017E-04	1.547E-04
Cm	0.0	4.008E-04	4.037E-04	4.075E-04
Bk	0.0	6.876E-17	3.138E-17	8.048E-18
Cf	0.0	3.078E-19	3.123E-19	3.152E-19
Total	9.444E-06	9.173E+01	3.220E+01	2.974E+01

Table 11(c) Elemental thermal power in kgUO₂ (Group 3)

Burnup=3300MWD/t
Unit : Watt

Element	Initial	Discharge	224 Min.	600Min.
H	0.0	2.288E-06	2.288E-06	2.288E-06
Zn	0.0	1.710E-05	1.618E-05	1.473E-05
Ga	0.0	2.183E-02	4.195E-04	3.279E-04
Ge	0.0	4.555E-02	1.195E-02	5.929E-03
As	0.0	6.404E-01	4.848E-02	8.461E-03
Se	0.0	9.889E+00	4.063E-03	2.730E-05
Br	0.0	8.264E+01	1.561E-01	2.333E-02
Kr	0.0	9.305E+01	6.602E+00	1.215E+00
Rb	0.0	1.951E+02	6.808E+00	1.443E+00
Sr	0.0	8.500E+01	1.180E+01	8.337E+00
Y	0.0	1.524E+02	2.939E+01	1.776E+01
Zr	0.0	2.930E+01	2.086E+01	1.750E+01
Nb	0.0	1.325E+02	2.172E+01	1.766E+01
Mo	0.0	6.293E+01	7.686E+00	7.203E+00
Tc	0.0	6.771E+01	1.442E+00	1.388E+00
Ru	0.0	1.087E+01	5.345E+00	3.837E+00
Rh	0.0	1.172E+01	2.474E+00	1.786E+00
Pd	0.0	7.278E-01	2.549E-01	1.835E-01
Ag	0.0	8.227E-01	3.308E-01	2.600E-01
Cd	0.0	2.440E-01	3.712E-02	2.116E-02
In	0.0	9.312E-01	4.475E-02	1.830E-02
Sn	0.0	4.802E+01	6.250E-01	9.643E-02
Sb	0.0	1.282E+02	3.598E+00	1.538E+00
Te	0.0	1.168E+02	9.102E+00	5.560E+00
I	0.0	2.087E+02	6.447E+01	4.613E+01
Xe	0.0	9.478E+01	6.777E+00	6.544E+00
Cs	0.0	1.448E+02	8.398E-01	2.193E-01
Ba	0.0	8.264E+01	8.467E+00	6.481E+00
La	0.0	1.291E+02	4.841E+01	3.696E+01
Ce	0.0	4.273E+01	1.150E+01	1.051E+01
Pr	0.0	4.518E+01	9.706E+00	7.829E+00
Nd	0.0	6.244E+00	2.950E+00	2.408E+00

Table 11(c:continued) Elemental thermal power in kgUO₂ (Group 3)

Burnup=33300MWD/t

Unit : Watt

Element	Initial	Discharge	224 Min.	600Min.
Pm	0.0	4.937E+00	2.540E+00	2.324E+00
Sm	0.0	4.639E-01	2.872E-01	2.565E-01
Eu	0.0	4.338E-01	3.451E-01	3.332E-01
Gd	0.0	7.774E-03	4.528E-03	3.557E-03
Tb	0.0	3.482E-03	1.092E-03	9.906E-04
Dy	0.0	7.119E-05	7.048E-06	4.494E-06
Ho	0.0	2.705E-05	2.663E-05	2.586E-05
Total	0.0	1.990E+03	2.846E+02	2.058E+02

Table 12 Estimated heat generation in TMI-2 debris

(a) Estimated heat generation in TMI-2 debris (calculation by ORIGEN)

Burnup [MWd/t]	Decay Mode (Np+FP)	Heat Generation [W/g·debris]		
		Time after Shutdown		
		0 min	224min	600min
3300	Total	1.584	0.248	0.184
	Non-volatile total	1.165	0.186	0.142

(b) Assumed heat generation in debris containing higher burnup fuel
(calculation by ORIGEN)

Burnup [MWd/t]	Decay Mode (Np+FP)	Heat Generation [W/g·debris]		
		Time after Shutdown		
		0 min	224min	600min
16500	total	1.479	0.253	0.196
	Non-volatile total	1.104	0.194	0.153
33000	Total	1.456	0.262	0.206
	Non-volatile total	1.112	0.201	0.160

Assumption in calculation

- ① Volatile : the whole amount of H, Kr, I and Xe and 96% of Cs
- ② The fraction of UO₂ in debris : 78.3%

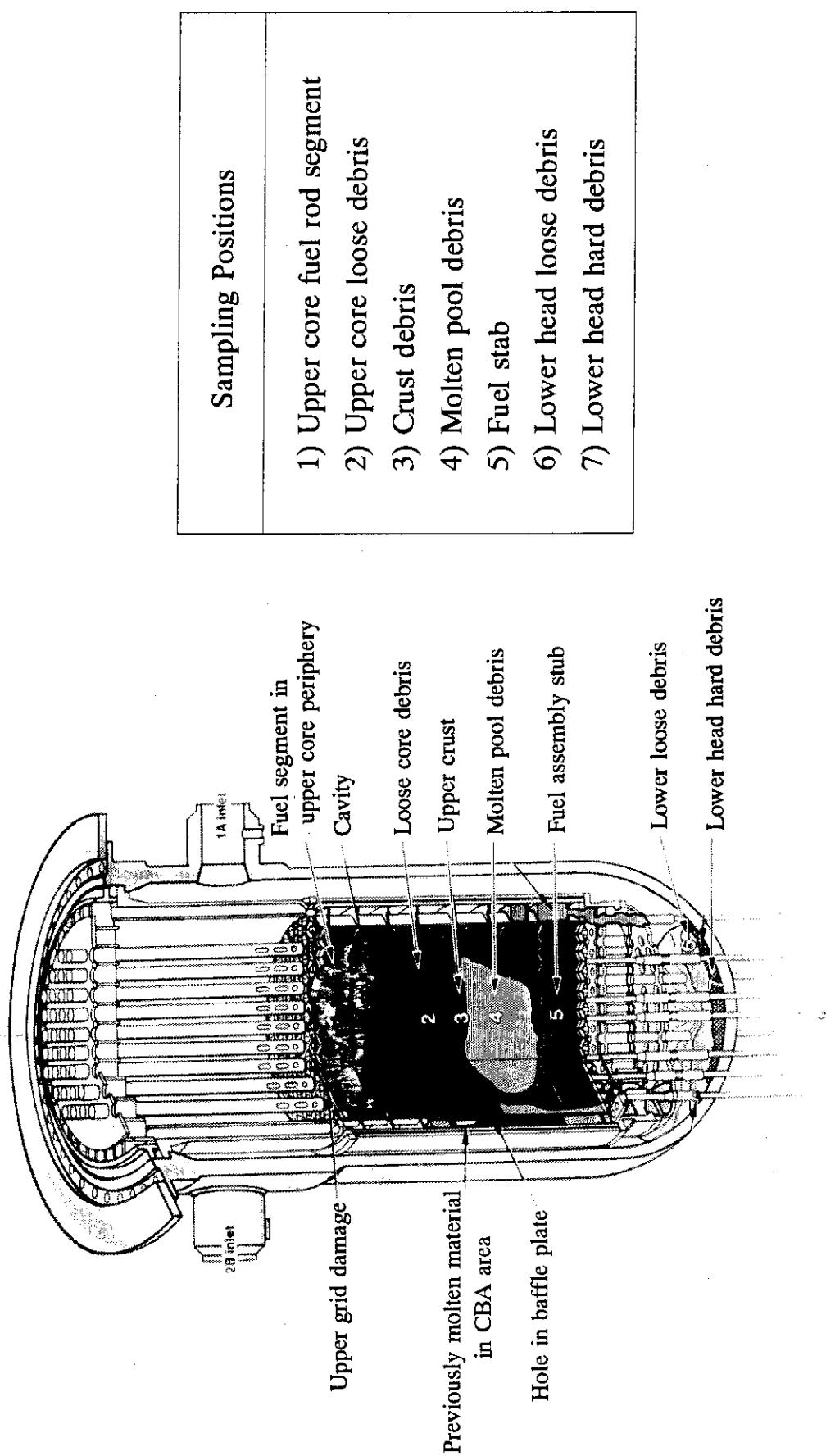
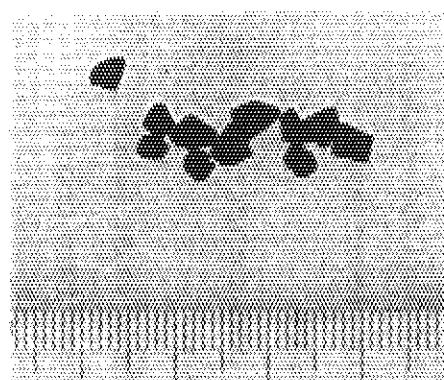
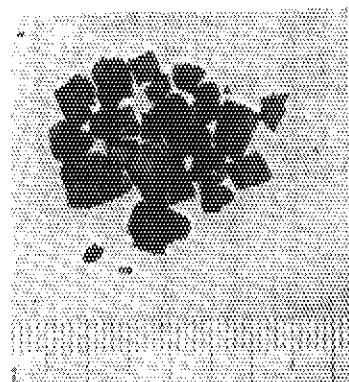


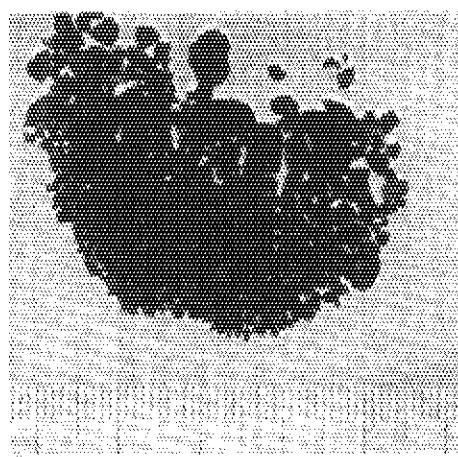
Fig. 1 End-configuration of TMI-2 reactor core and sampling positions



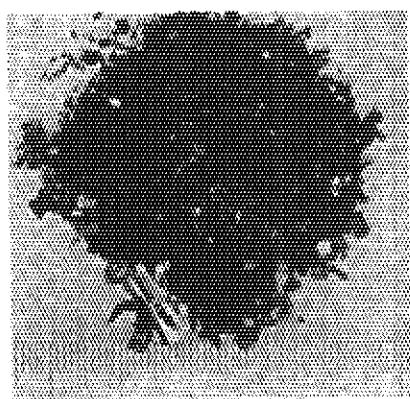
O 7 - P 1 - A 2



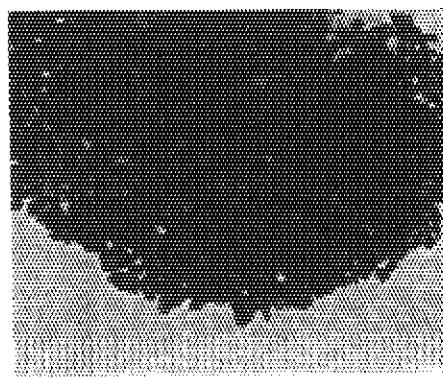
E 9 - 4



H 8 - 1



V I P - 1 O C



V I P - 9 H

Fig. 2 Out-side view of TMI-2 debris samples for γ spectrometry

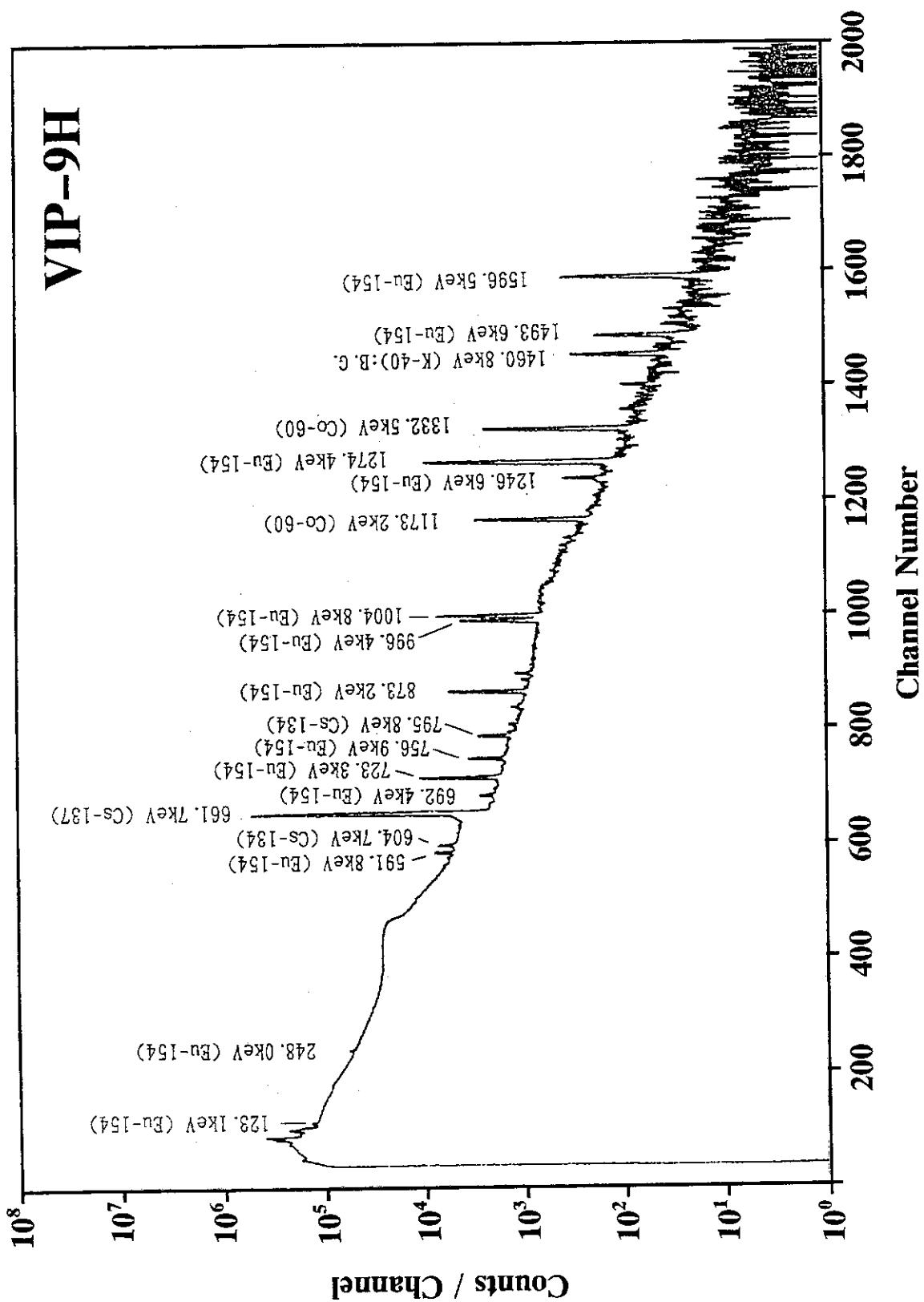


Fig. 3 An example of a spectrum measured in TM1-2 debris sample

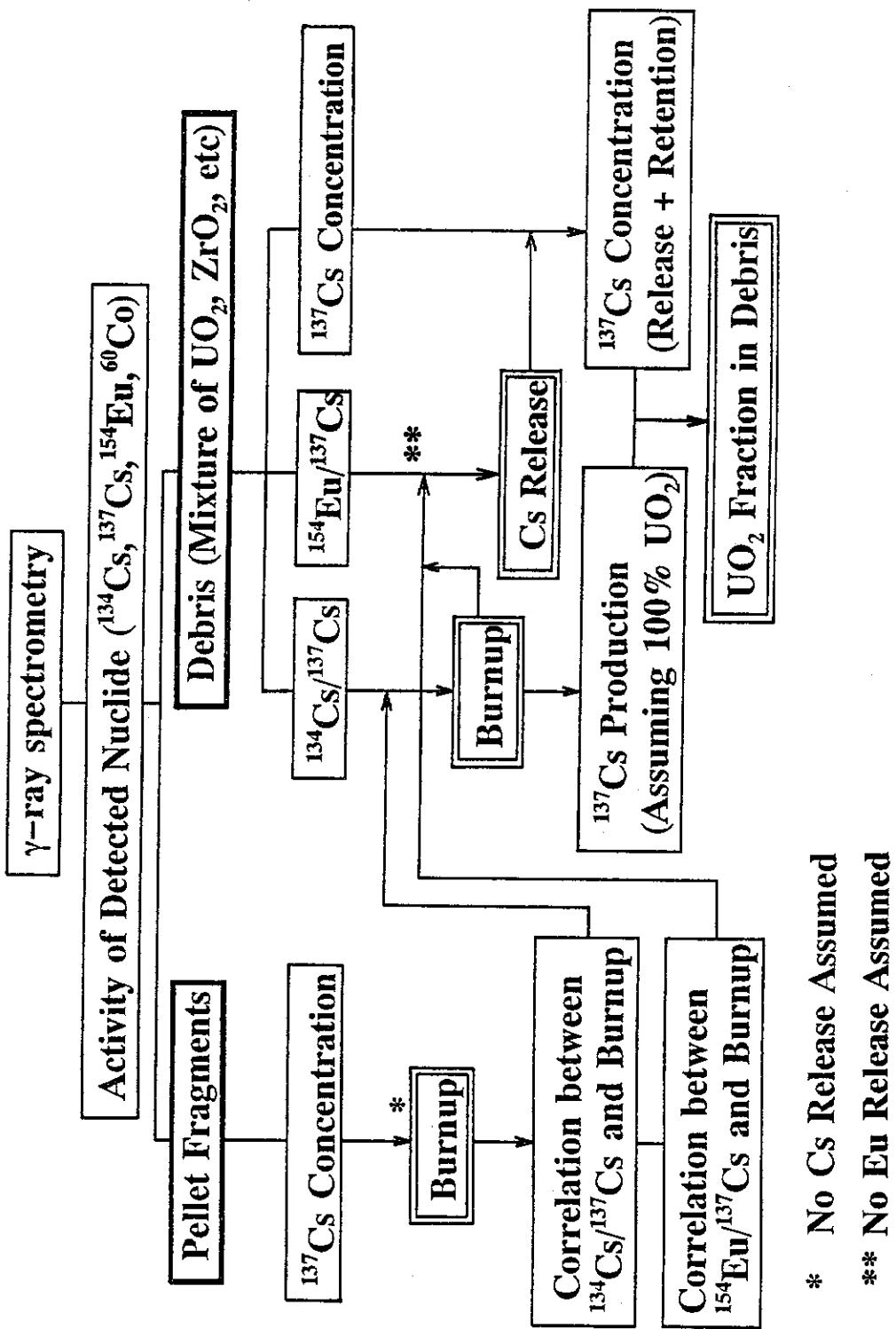


Fig. 4 Flow diagram of estimation for burnup, Cs retention and UO_2 fraction in TMI-2 debris

* No Cs Release Assumed

** No Eu Release Assumed

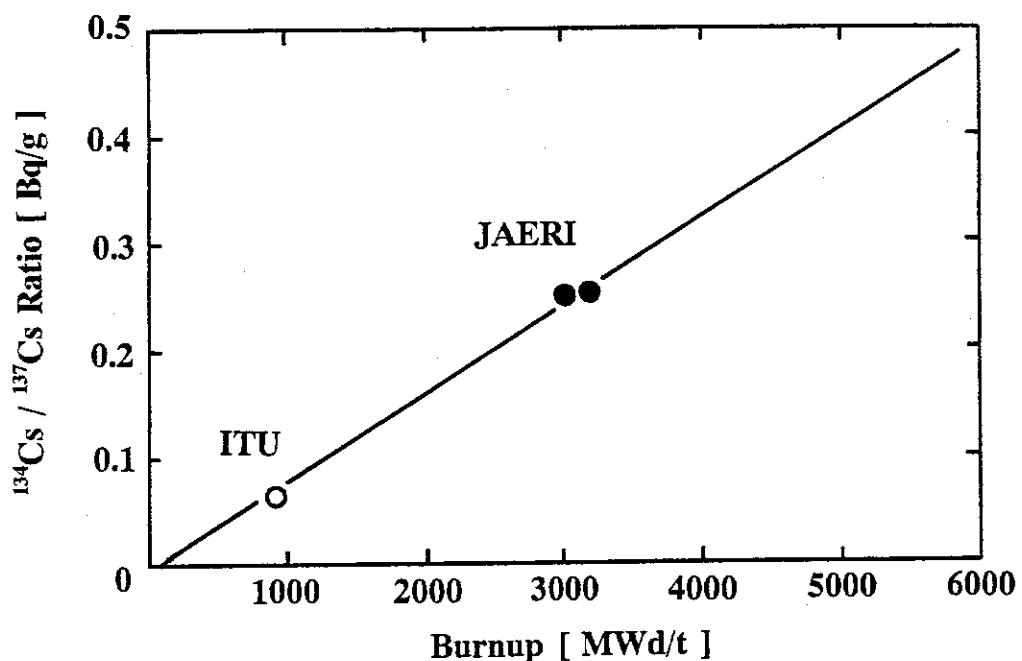


Fig. 5 Correlation between Cs-134/Cs-137 and burnup

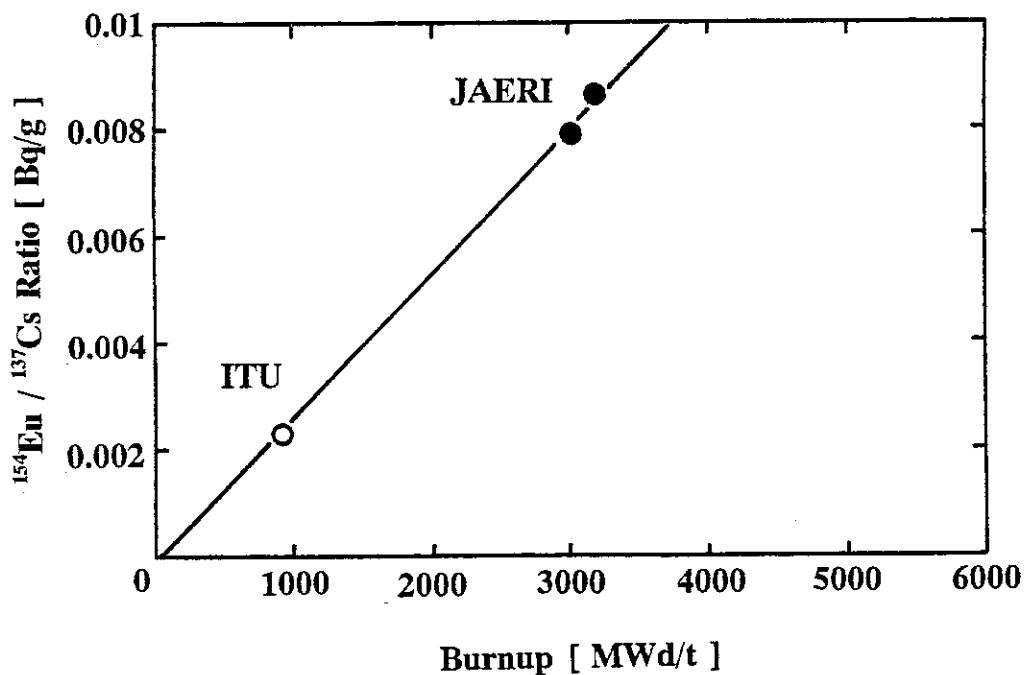


Fig. 6 Correlation between Eu-154/Cs-137 and burnup

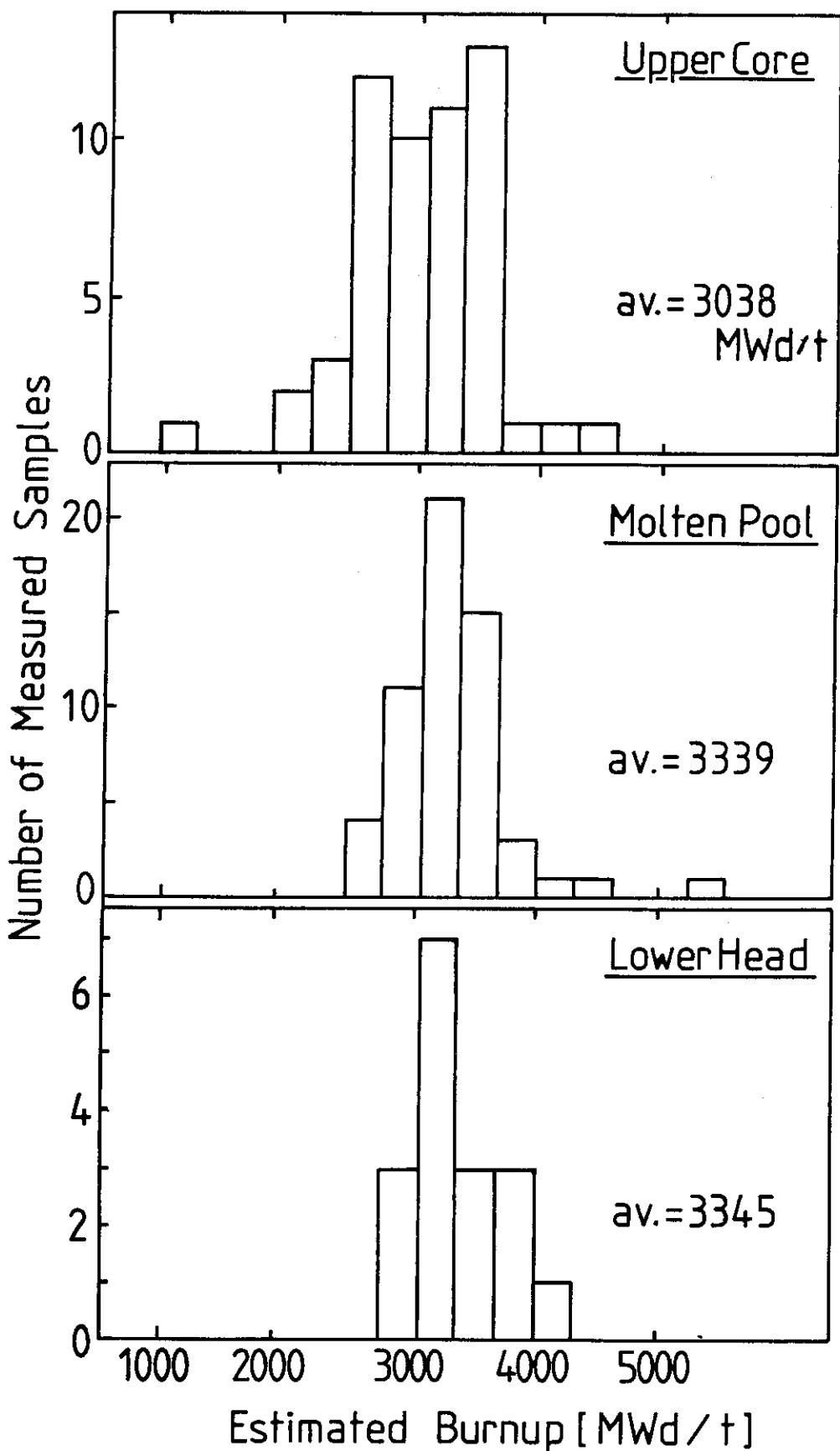


Fig. 7 Burnup distribution of TMI-2 debris samples estimated on γ spectrometry data base obtained by INEL

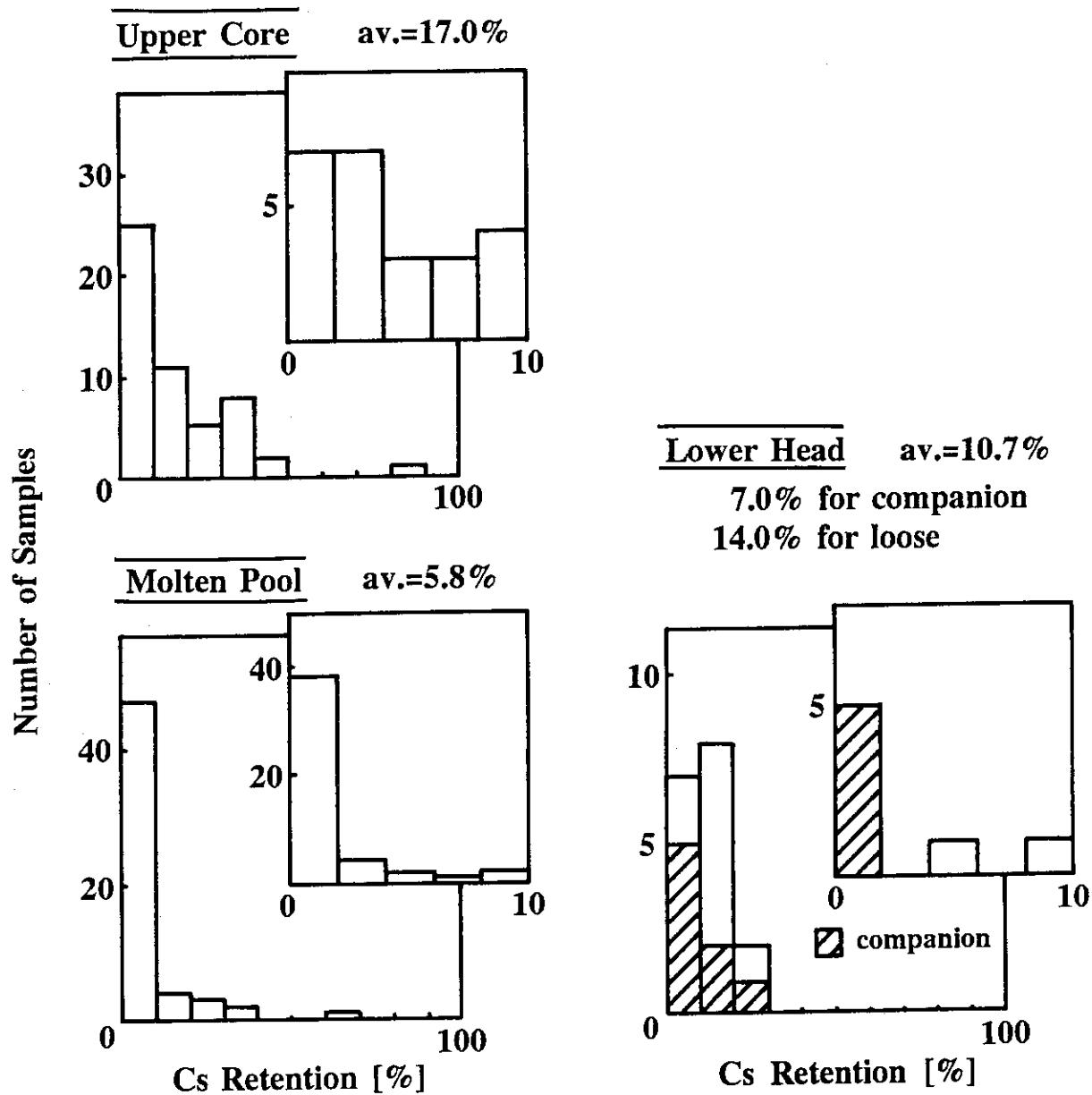


Fig. 8 Cs retention of TMI-2 debris samples estimated on γ spectrometry data base obtained by INEL

		1	2	3	4	5							
		A-06	A-07	A-08	A-09	A-10							
		2.96	2.96	2.96	2.96	2.96							
		6	7	8	9	10	11	12	13	14			
		B-04	B-05	B-06	B-07	B-08	B-09	B-10	B-11	B-12			
		2.96	2.96	2.96	2.64	2.96	2.64	2.96	2.96	2.96			
		15	16	17	18	19	20	21	22	23	24	25	
		C-03	C-04	C-05	C-06	C-07	C-08	C-09	C-10	C-11	C-12	C-13	
		2.96	2.96	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.96	2.96	
		26	27	28	29	30	31	32	33	34	35	36	38
		D-02	D-03	D-04	D-05	D-06	D-07	D-08	D-09	D-10	D-11	D-12	D-14
		2.96	2.96	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.96
		39	40	41	42	43	44	45	46	47	48	49	51
		E-02	E-03	E-04	E-05	E-06	E-07	E-08	E-09	E-10	E-11	E-12	E-14
		2.96	2.96	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.96
52	53	54	55	56	57	58	59	60	61	62	63	64	65
F-01	F-02	F-03	F-04	F-05	F-06	F-07	F-08	F-09	F-10	F-11	F-12	F-13	F-15
2.96	2.96	2.64	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.64	2.96
67	68	69	70	71	72	73	74	75	76	77	78	79	80
G-01	G-02	G-03	G-04	G-05	G-06	G-07	G-08	G-09	G-10	G-11	G-12	G-13	G-15
2.96	2.64	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.96
82	83	84	85	86	87	88	89	90	91	92	93	94	95
H-01	H-02	H-03	H-04	H-05	H-06	H-07	H-08	H-09	H-10	H-11	H-12	H-13	H-15
2.96	2.96	2.64	1.98	2.64	1.98	2.64	2.64	1.98	2.64	1.98	2.64	2.64	2.96
97	98	99	100	101	102	103	104	105	106	107	108	109	110
K-01	K-02	K-03	K-04	K-05	K-06	K-07	K-08	K-09	K-10	K-11	K-12	K-13	K-15
2.96	2.64	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.96
112	113	114	115	116	117	118	119	120	121	122	123	124	125
L-01	L-02	L-03	L-04	L-05	L-06	L-07	L-08	L-09	L-10	L-11	L-12	L-13	L-15
2.96	2.96	2.64	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.64	2.96
127	128	129	130	131	132	133	134	135	136	137	138	139	
M-02	M-03	M-04	M-05	M-06	M-07	M-08	M-09	M-10	M-11	M-12	M-13	M-14	
2.96	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.96	
140	141	142	143	144	145	146	147	148	149	150	151	152	
N-02	N-03	N-04	N-05	N-06	N-07	N-08	N-09	N-10	N-11	N-12	N-13	N-14	
2.96	2.96	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.96	2.96	
153	154	155	156	157	158	159	160	161	162	163			
O-03	O-04	O-05	O-06	O-07	O-08	O-09	O-10	O-11	O-12	O-13			
2.96	2.96	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.64	1.98	2.96	2.96			
164	165	166	167	168	169	170	171	172					
P-04	P-05	P-06	P-07	P-08	P-09	P-10	P-11	P-12					
2.96	2.96	2.96	2.64	2.96	2.96	2.96	2.96	2.96					
		173	174	175	176	177							
		R-06	R-07	R-08	R-09	R-10							
		2.96	2.96	2.96	2.96	2.96							

Fig. 9 Enrichment map of TMI-2 reactor core

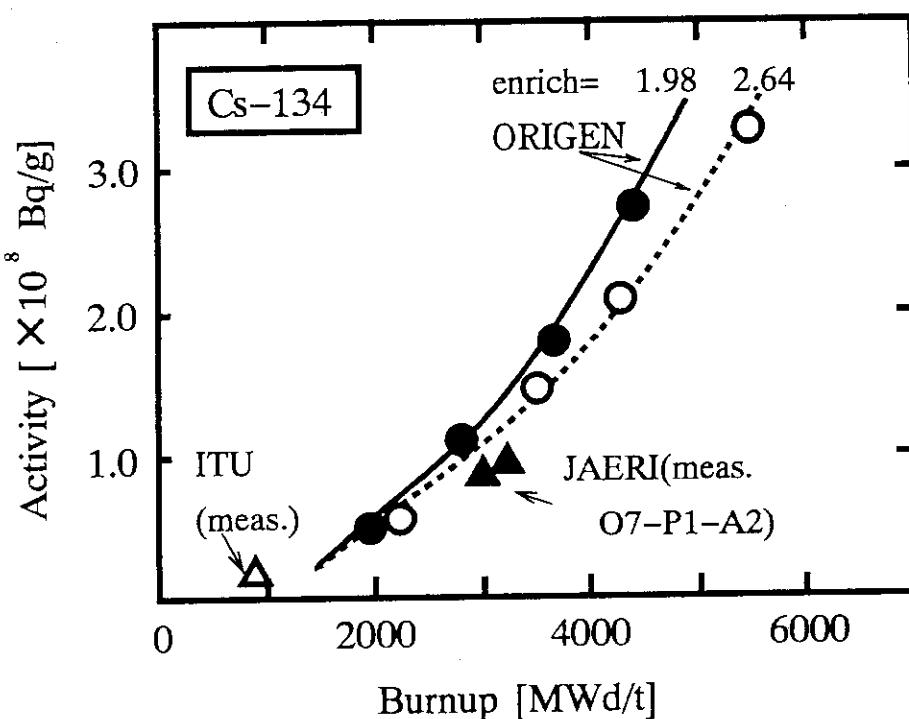


Fig. 10 Calculated Cs-134 concentration produced in TMI-2 fuel

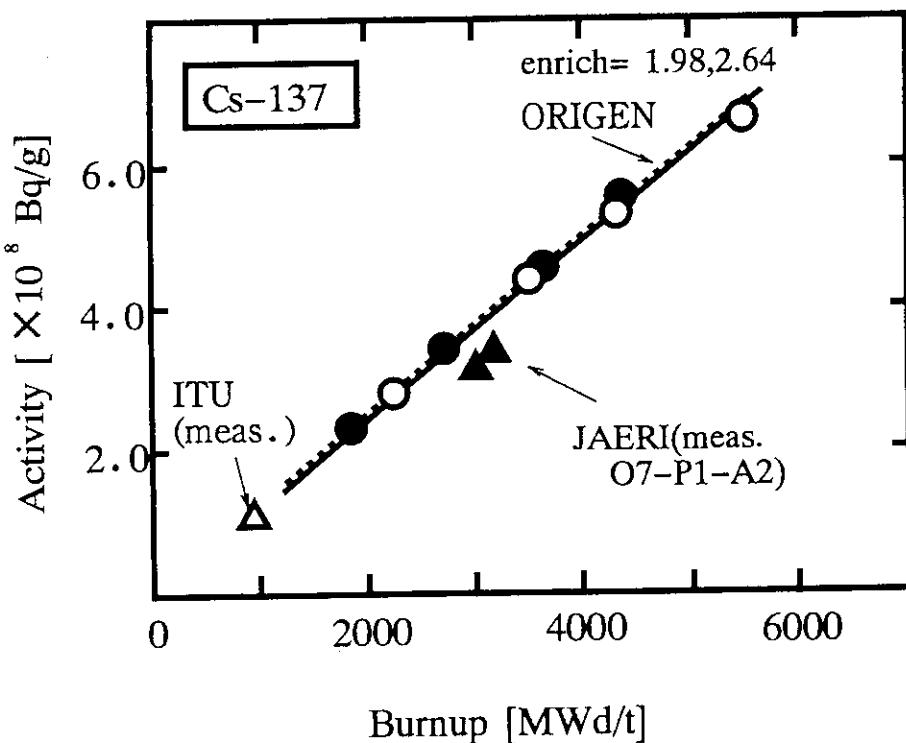


Fig. 11 Calculated Cs-137 concentration produced in TMI-2 fuel

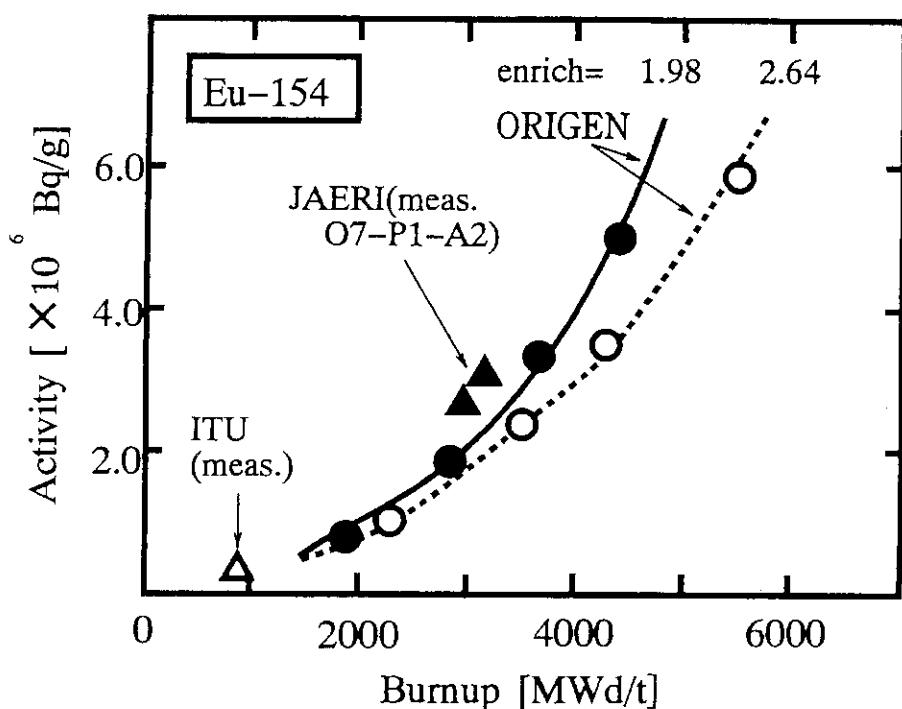


Fig. 12 Calculated Eu-154 concentration produced in TMI-2 fuel