



スリーマイル島原子力発電所2号機（TMI-2）から採取したデブリの試験と評価

発表者 P.D.W.ボトムリー（JAEA客員研究員）

前職：欧州委員会総局 共同研究センター – カールスルーエ、セクター長
総局－原子力安全保証部 G.III.8－廃棄物管理

PO Box 2340, Hermann-von-Helmholtz Pl. 1, 76125 Karlsruhe, Germany

dboksb3@gmail.com

発表の概要

- 共同研究センター（**JRC**）の原子力ネットワークプログラムの紹介
- **TMI-2**事故およびサンプル調査プロジェクト
- その他の燃料デブリサンプル
 - a) **Phébus FP**の集合体照射後試験
 - b) チェルノブイリのサンプル
- 結論

欧州委員会直属の科学及びナレッジサービス組織

**JRCカールスルーエサイト＝
ユニットグループ：原子力安全＋セキュリ
ティー**

**ユニットグループ.III 原子力廃止措置 ＝
カールスルーエ拠点 ＋ イスプラにおける
各ユニット (HoD VVR)**

**ユニットグループ.III.8 ホットセル外での
廃棄物管理 (HoU JS)**

JRCにおける欧州原子力共同体（EURATOM）ワークプログラム（JRC原子力WP）



JRCーペッ テン



JRCーヘール

原子力安全基準

原子力の安全性に関する知識、原子炉安全性、緊急時対応



JRCーカールスルーエの使命は、高放射性物質の取り扱いと貯蔵に関わるリスクから欧州市民を保護するための科学的基盤を提供することである。

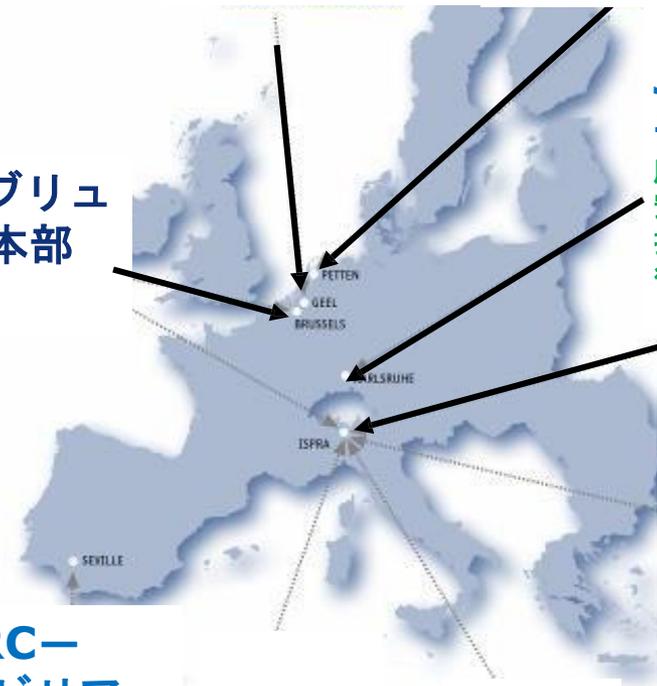
JRCーブリュ ッセル本部

JRCーカールスルーエ

廃棄物管理・浄化、原子燃料安全性、原子力安全、保全措置と安全科学、先端核技術に関する知識

JRCーカールスルーエの主たる目的は以下のとおり。

- アクチニドの基礎研究に関する情報サービス本部として機能する
- 効果的な原子燃料サイクルの安全・保障措置システムに貢献する
- 超ウラン元素の技術的・医学的応用を研究する



JRCーイスプラ

核安全保障、廃炉、イスプラ原子力安全部

JRCーセベリア

将来的研究

- 非核研究施設
- 1) 健康・消費者保護
 - 2) 市民保護・セキュリティ
 - 3) 環境・持続可能性研究所 (IES)

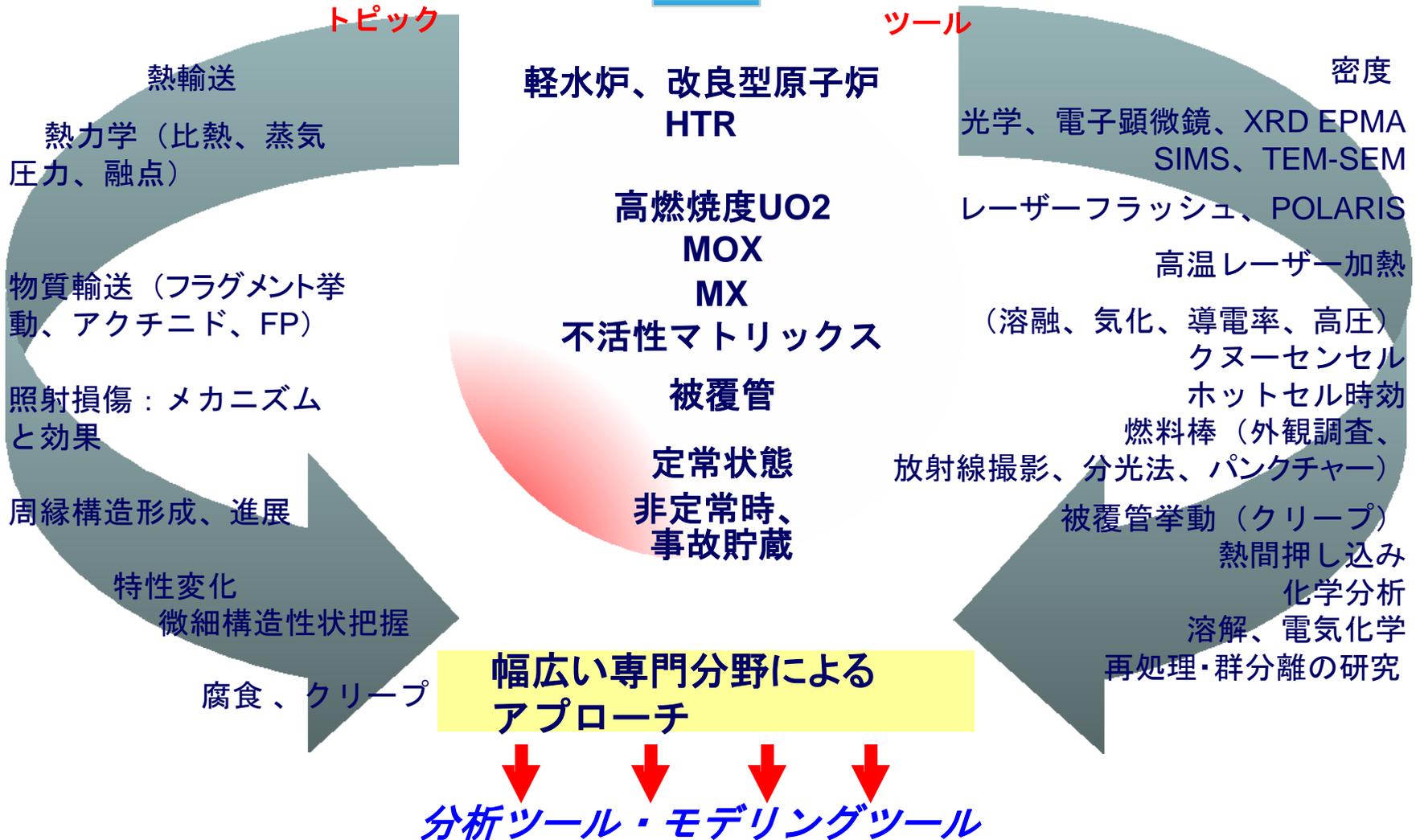
JRC拠点



JRC—カールスルーエのホットセル 施設

- ホットセル24基（認可容量 10^6 Ci = 3.7×10^{16} Bq）
- 最大160kgの照射済燃料（80本の軽水炉燃料棒）と3.5kgのプルトニウム
- 遮へい付走査電子顕微鏡（SEM）、光学顕微鏡（OM）、電子線マイクロアナライザー（EPMA）、二次イオン分析質量装置（SIMS）、X線回析装置（XRD）
- インフラ：マニピュレータのメンテナンスを含めた支援ワークショップ
- 未照射物質の性状把握を扱う3つのホットラボ

JRC—カールスルーエにおける核燃料研究



スリーマイル島 (TMI-2)



TMI2号機 (TMI-2) は、1979年3月28日にLOCA (冷却材喪失事故) に見舞われた。以降、TMI-2のサンプル試験は、米国エネルギー省 (US DOE) の主導の下、欧州の主要な国立研究機関の大多数を巻き込みつつ、OECD-NEA、CSNIプロジェクトとして組織された。

アイダホ原子力工学研究所は(主契約者として)、TMI-2からサンプルを抽出して試験、その後、北米または欧州の研究所にサンプルを提出した。研究所は以下のとおり：

カナダ原子力公社、ビューレンリンゲン パウル・シェラー研究所 (PSI) (スイス)
アルゴンヌ国立研究所 (米)、スタズビック社 (スウェーデン)、
FZK—カールスルーエ (独)、CEAサクレ (仏)、
JRC—カールスルーエ 超ウラン元素研究所 (ITU) (独)、AEAウインズケール (英)
並びに日本原子力研究所 (JAERI)

試験の主な目的は以下を明らかにすること。

- コリウム (および他相) の組成物
- 温度は何度に達したか
- どのような条件 (酸素ポテンシャル / H₂生成*) でどのような劣化反応が起きそうか

TMI-2試験：ITU サンプルの位置



TMI2号機炉心の最終状態における炉心損傷の状態

燃料棒残骸
C7-3-35

デブリサンプル
H8 7.2-
7.9

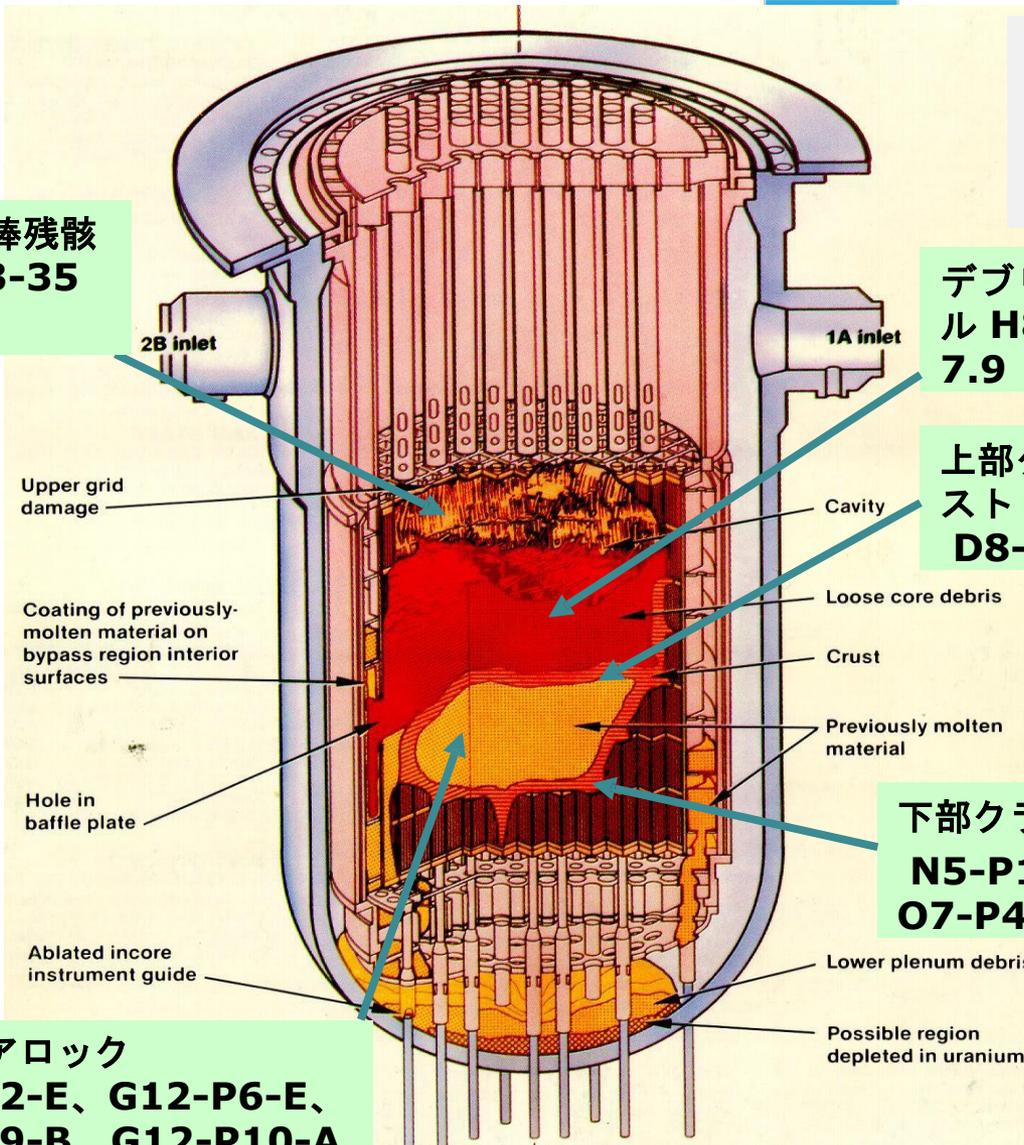
上部クラ
スト
D8-P2、3

- 1) 溶融炉心 (黄色)
- 2) 融合クラスト・凝集体 (橙色)
- 3) ルーズデブリ上部 (赤色)
- 粉状・散乱燃料残骸の位置

下部クラスト
N5-P1-E
O7-P4

緑色のラベルは、OECD のTMI-2サンプル分析プロジェクトでJRC-カールスルーエが受け取ったサンプルを示す。

コアポアロック
G12-P2-E、G12-P6-E、
G12-P9-B、G12-P10-A



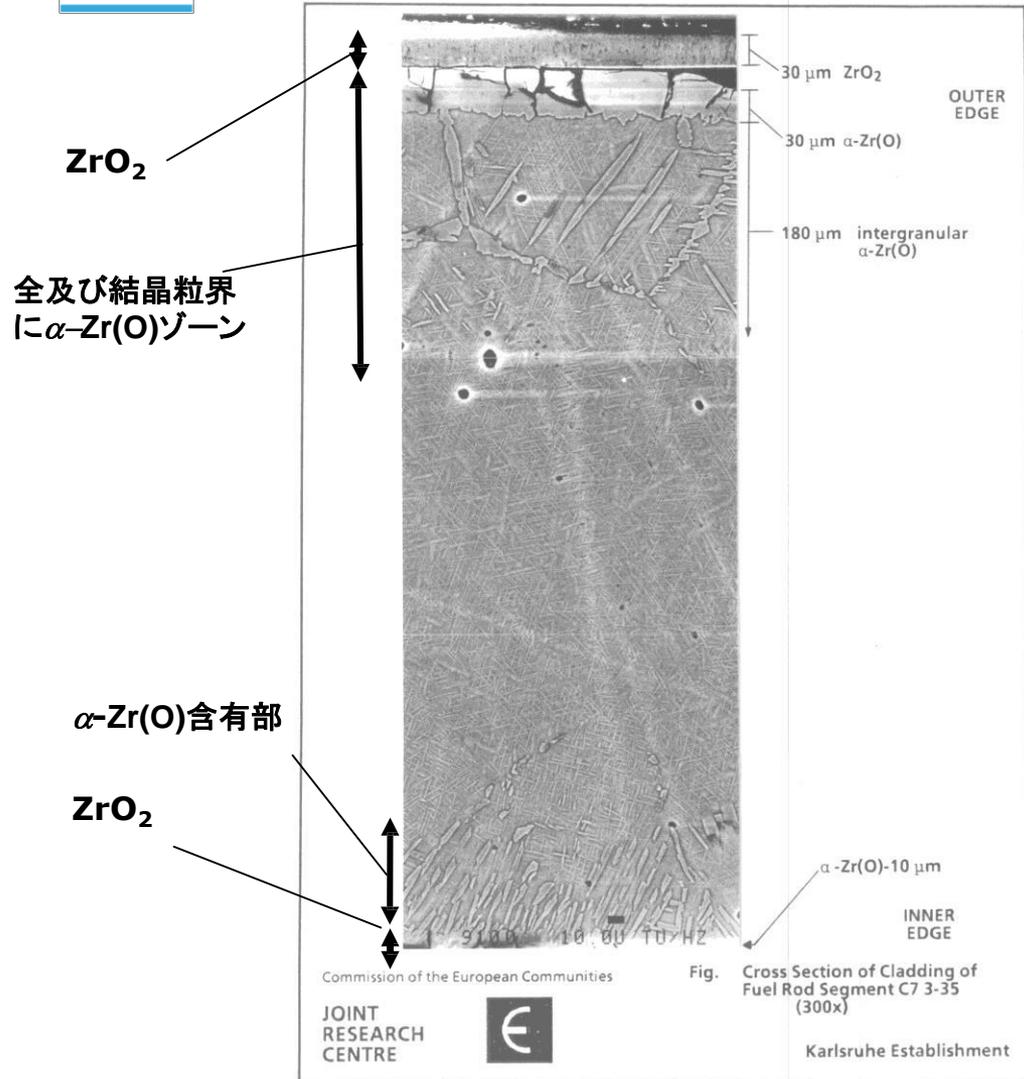
TMI-2試験：溶融炉心上に析出するデブリ



燃料棒残骸被覆管の断面 C7-3-35

C7-3-35 燃料棒セグメント
注) 下方に α -Zr(O)含有層が存在する
薄い外部ZrO₂酸化物層がある。

薄い外部酸化物層は、温度上昇(～800℃)にわずかにさらされたことを示している。



TMI-2試験： コアボアロック

コアボアロックは主として酸化物

G12-P9-E 破面-SEM

a) とb) は高密度（Uリッチ相、白色）及び、低密度（Zrリッチ酸化物相、暗色）を示す

c) 大量の微細金属であるAgが表面に析出。

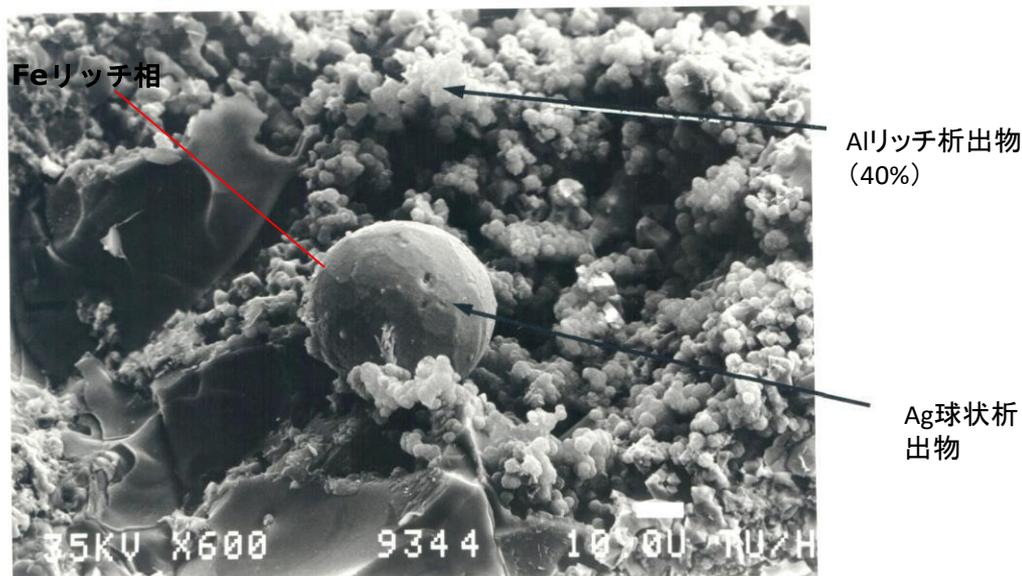
Feリッチ酸化相も存在。



a) 二次電子像
60倍拡大



b) 後方散乱画像
60倍拡大

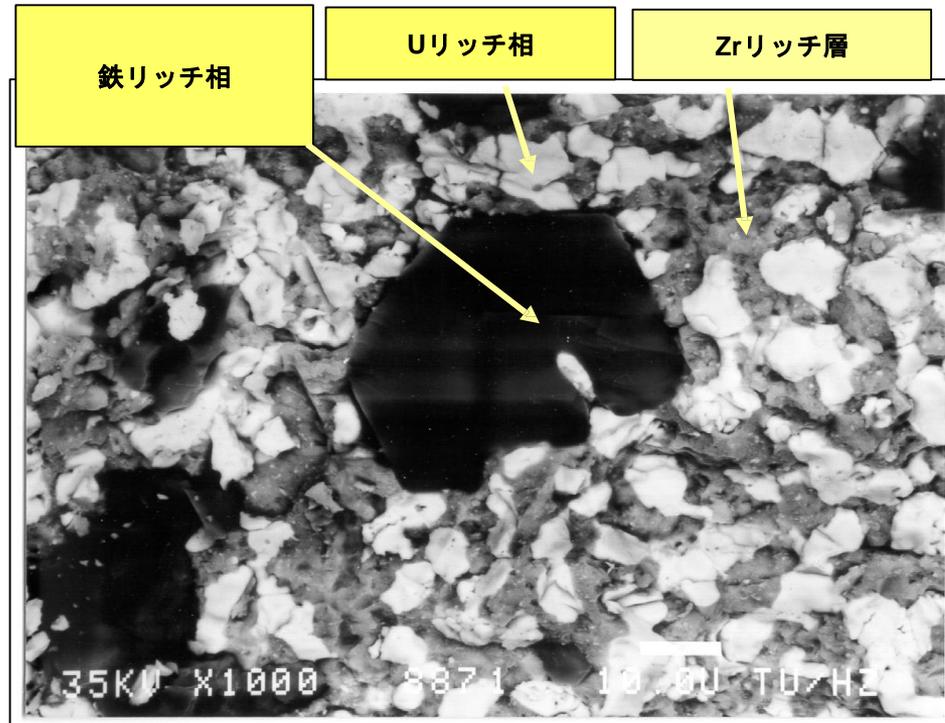


c) Ag球状析出物
600倍拡大

TMI-2サンプル試験 コアボアロックのサンプル



TMI-2 - 溶融炉心の例 - 掘削されたコアボアロックのサンプル

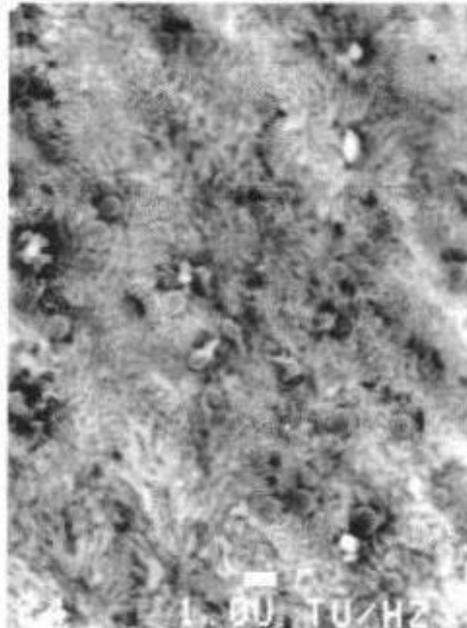
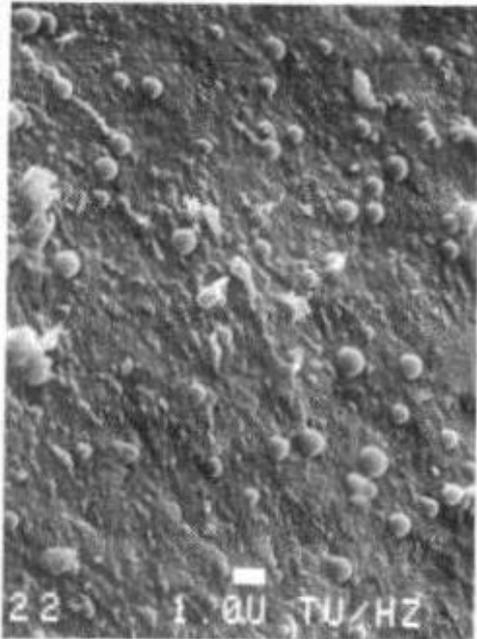


コアボアロック G12-P9-B

完全溶融したコアボアロックの3相を示す後方散乱画像：

- 高密度または白色（Uリッチ）相
- 低密度（灰色）（Zrリッチ）相
- 軽元素（暗色） Fe、Ni、Cr含有相

TMI-2試験: コアボアサンプルの分析



G12-P10-A 破面

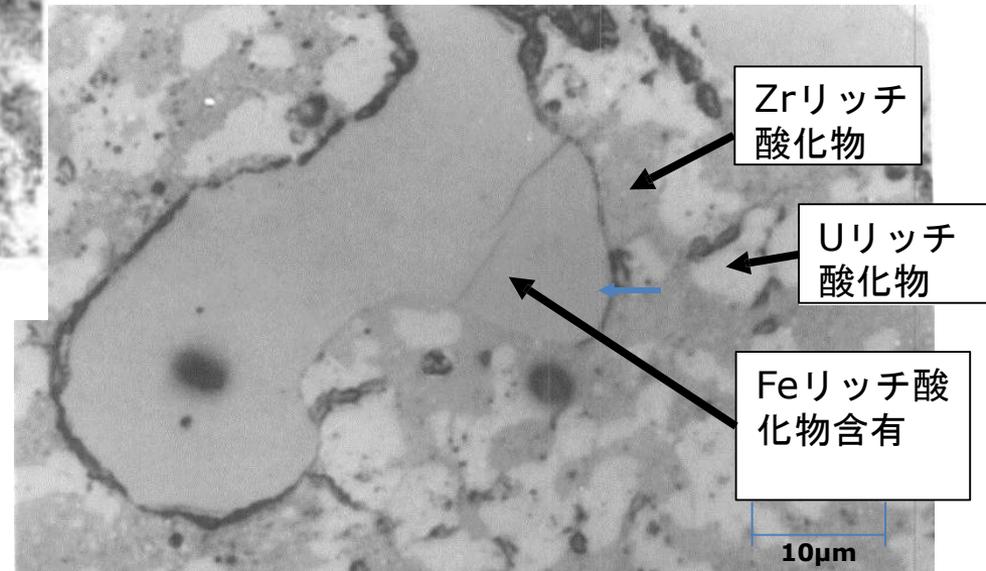
a) 二次画像像

b) 後方散乱の画像 (2760倍)

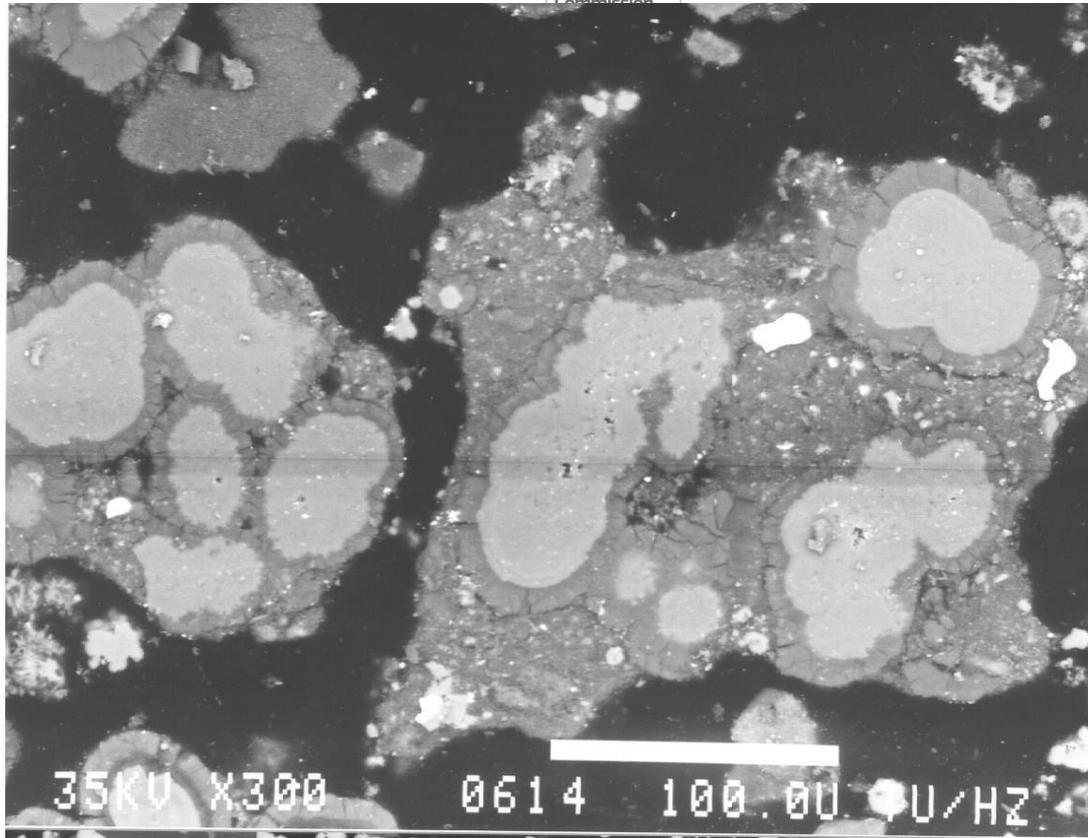
注

a) 精密共晶ラメラ約 $0.5\mu\text{m}$ 幅 (冷却速度を推定)

b) 小球体はAg-In-Cd中性子吸収剤から成るAg球状体



G12-P2-E (拡大率~900倍) 2相コリウム、軽元素のUリッチ酸化物及び、暗色のZrリッチ酸化+Fe含有物。母材組成はほぼ等モルの(U,Zr)O₂



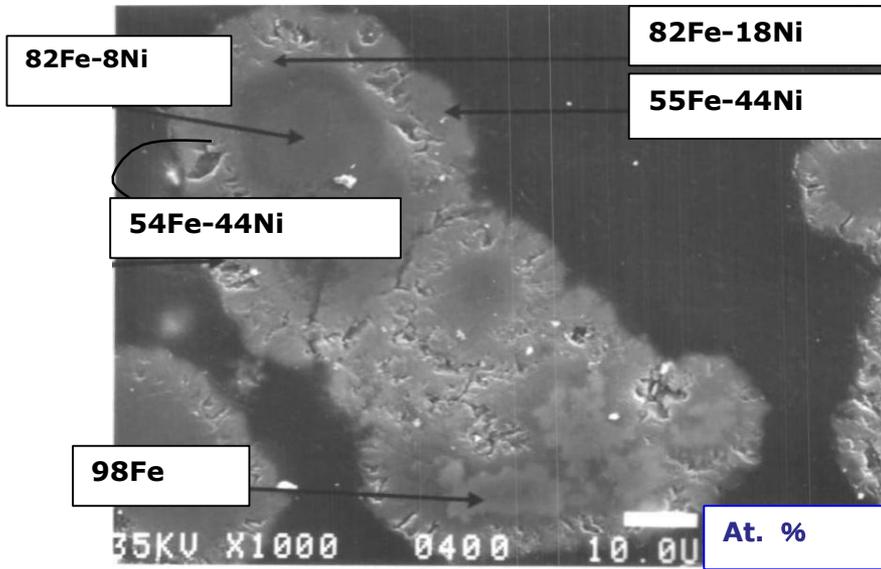
凝集体クラスト O7-P4-EA

優先酸化によるFe-Ni酸化物クラスト（暗めの部分）で囲まれた純Fe金属核（明るめの金属中心）を有するFe-Ni小塊（BEI-1000倍）

TMI-2サンプル試験 凝集体

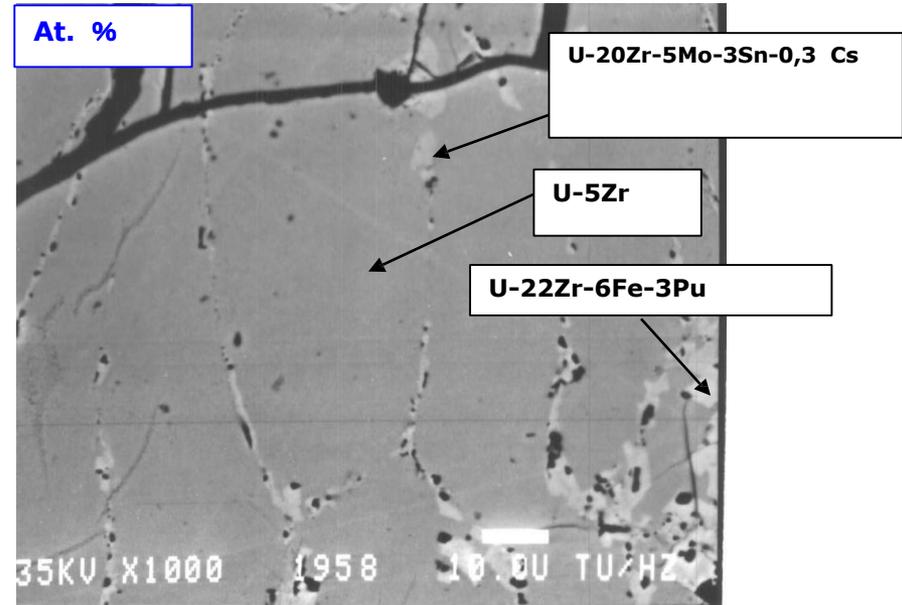


TMI-2クラストサンプル (凝集体)



下部クラストのO7-P4-Eゾーンから採取した凝集体サンプルのSEM画像。

- 外部にNiリッチ酸化物層を有するFe-Ni小塊が見られる
- Ni (中間酸素レベル) の優先酸化の例



上部クラスト (凝集体) サンプルD8 P3-Aの後方散乱電子SEM画像。

燃料、被覆管および構造材料の要素が見られる。
Uリッチ粒子には広い粒界 (ZrとFe等を含む) がある。これは、炉心よりも低温の状態で、段階的な物質の相互作用が発生したことを示す

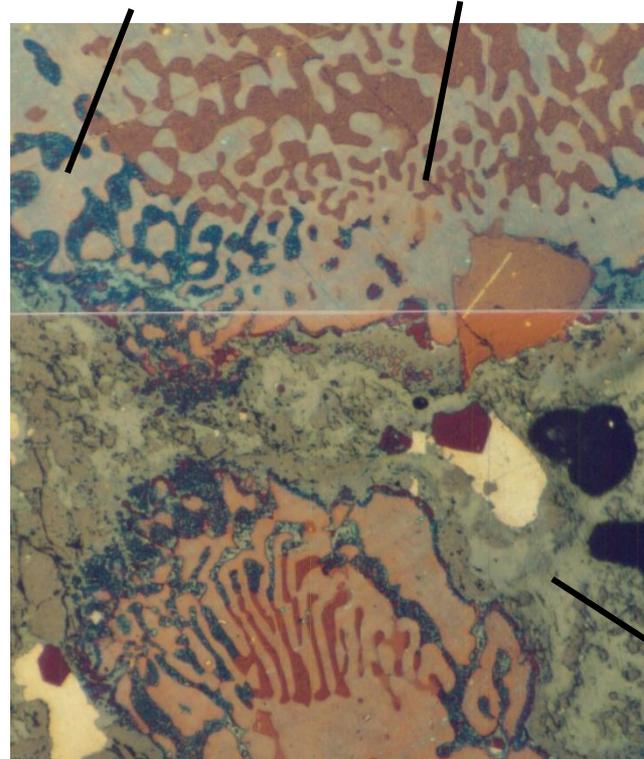


2相金属・酸化物部

2相金属部

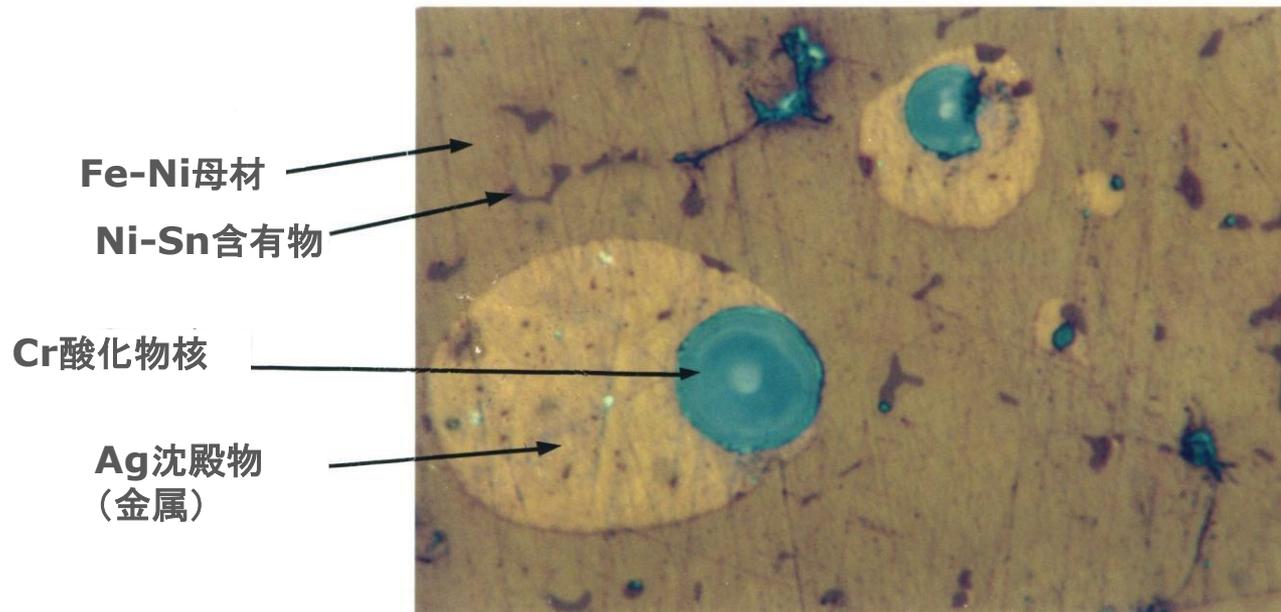
D8-P3-A 凝集体サンプル (190倍)
干渉顕微鏡は、金属部と酸化物部を示し、両方が二次相を伴う。

不完全な相互作用 (低温またはある温度での短持続時間) を示す。



二次沈殿物を伴う酸化物部

凝集体から取り出した部分酸化物質の例



b) 干渉顕微鏡写真(1033x)

凝集体 N5-P1-E (1033倍)

(CrO蒸気浮動)

Cr酸化物核を含むAg球体を有するステンレス鋼製制御棒被覆管。

制御棒の金属支配相

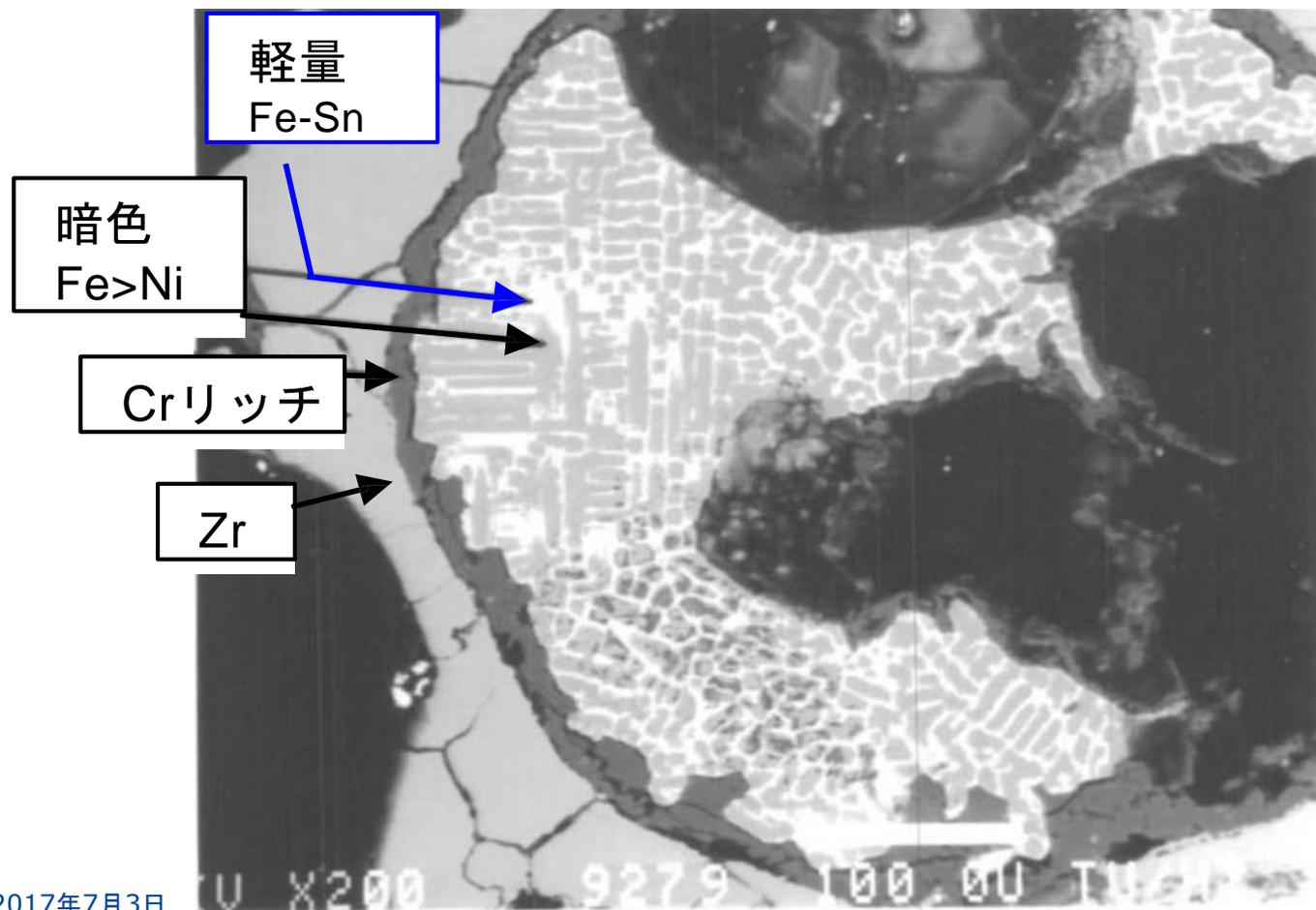
密度 $\sim 6.7 \text{ g/cm}^3$ は、(鉄の密度 $= 7.93 \text{ g/cm}^3$ なので) スチール支配を意味する。

TMI-2デブリサンプル

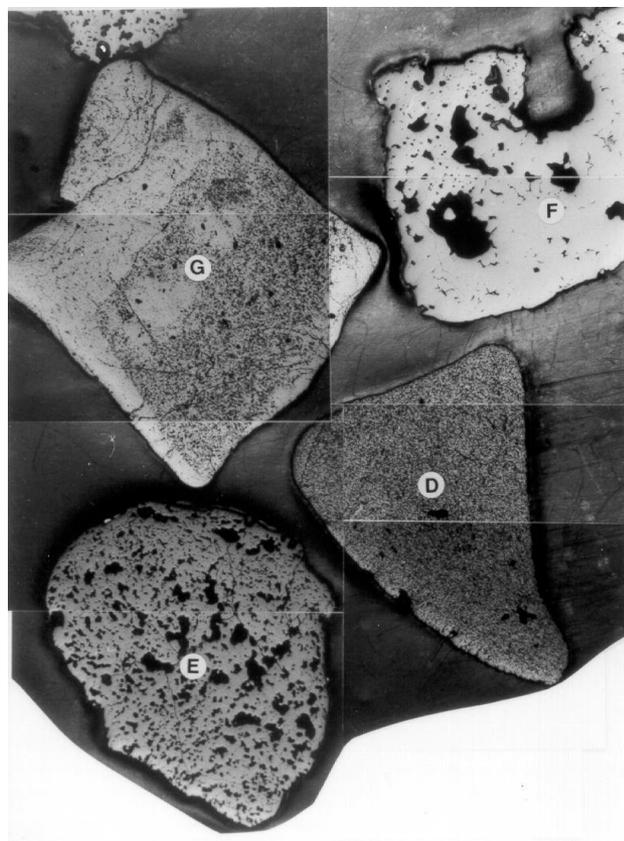


上部クラストの上から採取したH8 7-3 - デブリサンプルの後方散乱図

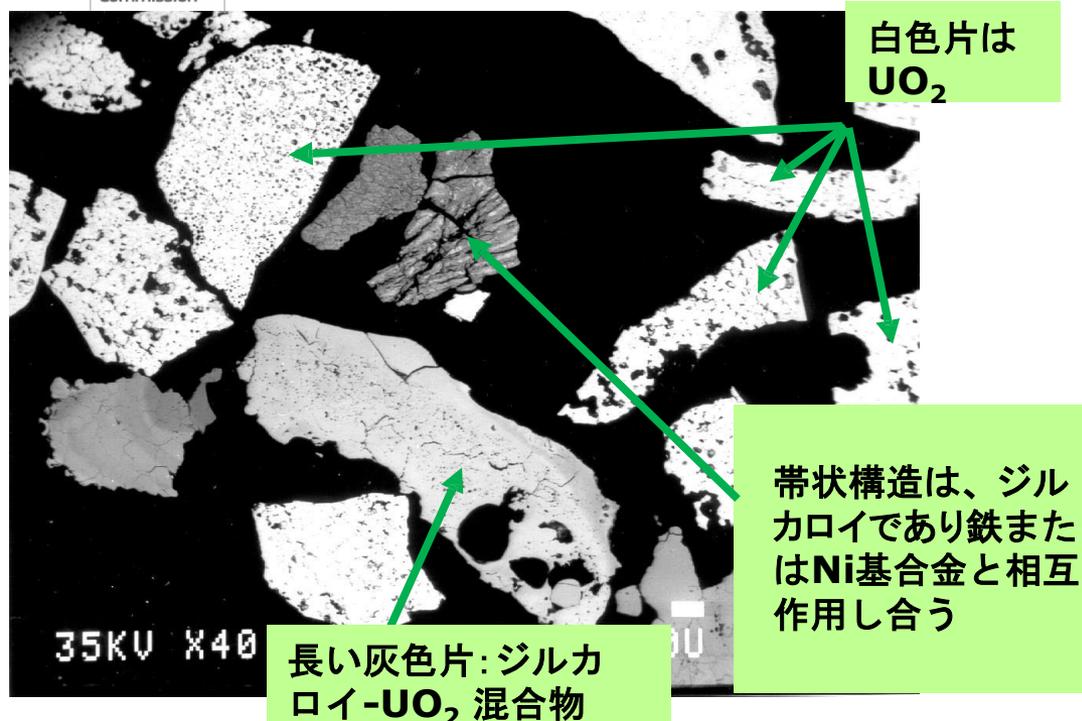
- 注) Feの層状構造を有する小塊
- Crリッチ相に囲まれたNi相とFe-Sn相。
- 小塊自体はZrで囲まれている。
- Fe、Fe-NiおよびFe-Sn相は、光沢のある金属の外観を有する。



TMI-2 サンプル分析 - デブリ



各種デブリの拡大写真
(約5倍)

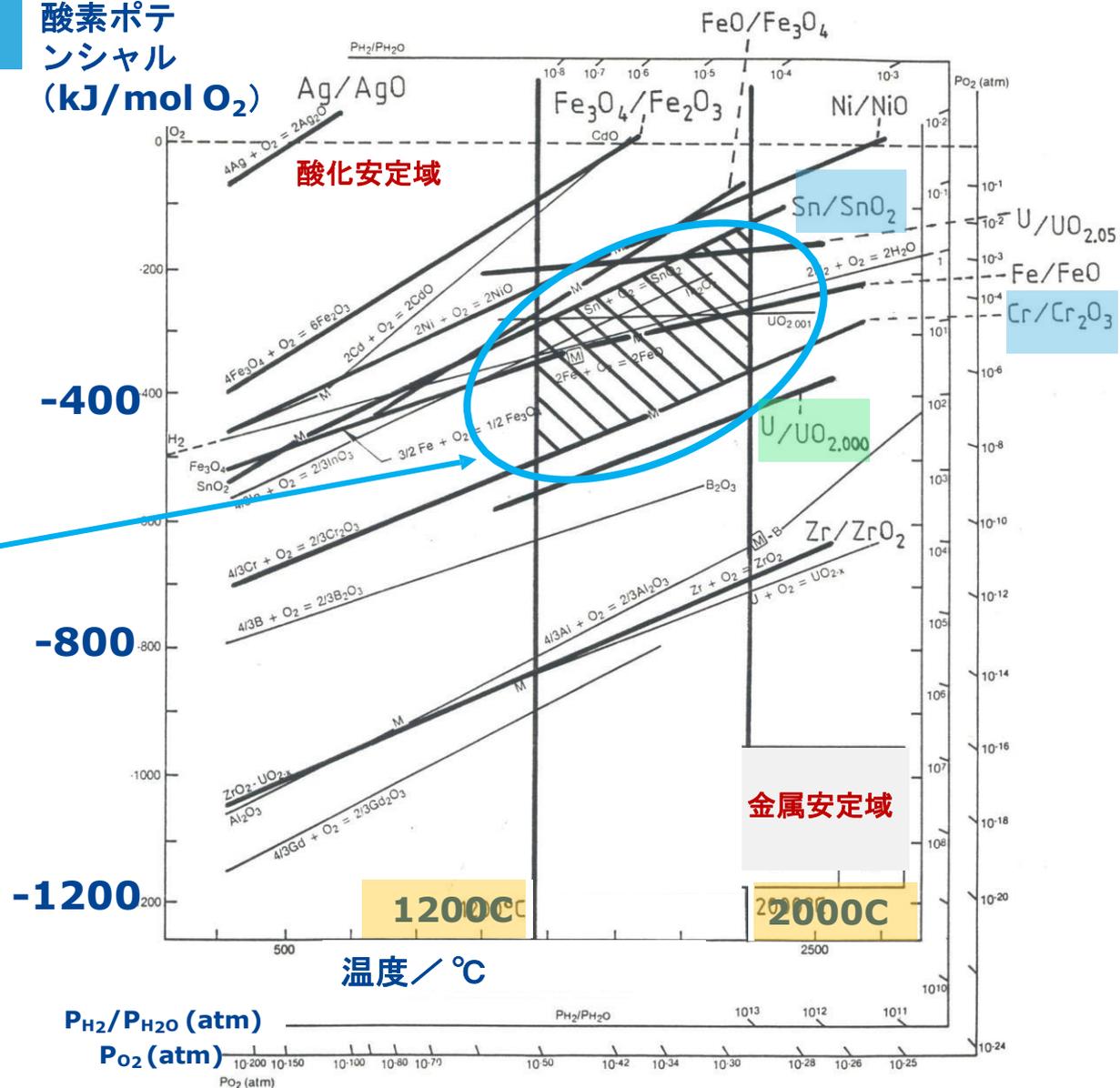


上部凝集体上のデブリ H8-7-5-1 (40倍)

注) 各種デブリ粒子: 変化していないUO₂燃料粒子と被覆管、酸化被覆管、混合被覆管、鉄-被覆管相互作用が存在。各粒子は異なる起源や経緯があり、異なる温度にさらされてきた。

TMI-2 サンプルのエリンガム図

酸素ポテンシヤル
(kJ/mol O₂)



コアボアロックや凝集体部で観測される酸素ポテンシヤルの範囲

中央のコアボアロックや周囲の凝集塊について、炉内条件 (Tおよび P_{O2} または P_{H2}/P_{H2O}) の指標となる。

金属安定域

1200°C

2000°C

Area of possible ΔG_{O_2} values.



事故時の状態

1) 最大温度

- 原子炉端部 $T < 800^{\circ}\text{C}$
- 凝集体 $T \sim 1500^{\circ}\text{C}$ (ステンレス鋼融点)
- 完全溶融炉心 $T = 2000 \sim 2500^{\circ}\text{C}$
(一部の UO_2 は $T=2850^{\circ}\text{C}$?)

2) 冷却

- 炉心 - 低速 (2-54 時間)
- 凝集体 - 急速かつ可変
- 炉心端部 - 過渡温度上昇。
わずかな劣化のみ

相形成

炉心

- 水蒸気中で酸化され、 H_2 を形成する UO_2 燃料とZr被覆管溶融物及び、
Uリッチ相を有するU、Zry含有酸化物と少量のFe、Ni、Cr酸化物、Ag小塊

凝集体

- 金属とセラミックの混合相
燃料・被覆管・構造相互作用 (多くの場合、不完全) から発生
例: $(\text{U}, \text{Zr})\text{O}_2$ 相 (Fe,Ni)-Zr-U酸化物、Ni-Fe-Sn金属、部分的に酸化したNi、
Fe小塊、および多少のAg金属小塊

TMI-2事故：発生した条件と温度のまとめ 2



- 1) コアボアロックは、Feリッチ相(クロム、ニッケル含)を有するU、ZrO₂の完全な酸化物。
- 2) Al₂O₃は可燃性(Gd₂O₃)毒物である燃料棒からも検出。
- 3) わずかに化学量論的な組成範囲を外れている。
- 4) 事故時の酸素ポテンシャルは、温度2000°Cで-150kJ/mol (pH₂/pH₂O=1)、1200°Cの場合に-510kJ/mol (pH₂/pH₂O = 10⁶)と推定。時折、高いH₂存在の可能性あることを示唆している。
- 5) 炉心部は4～50時間で冷却されたと推定(構造内の各種ラメラ厚から推定)。
- 6) 凝集体は、被覆管、燃料、構造材料のデブリの混合物で部分的に酸化物と金属の形態を成す。

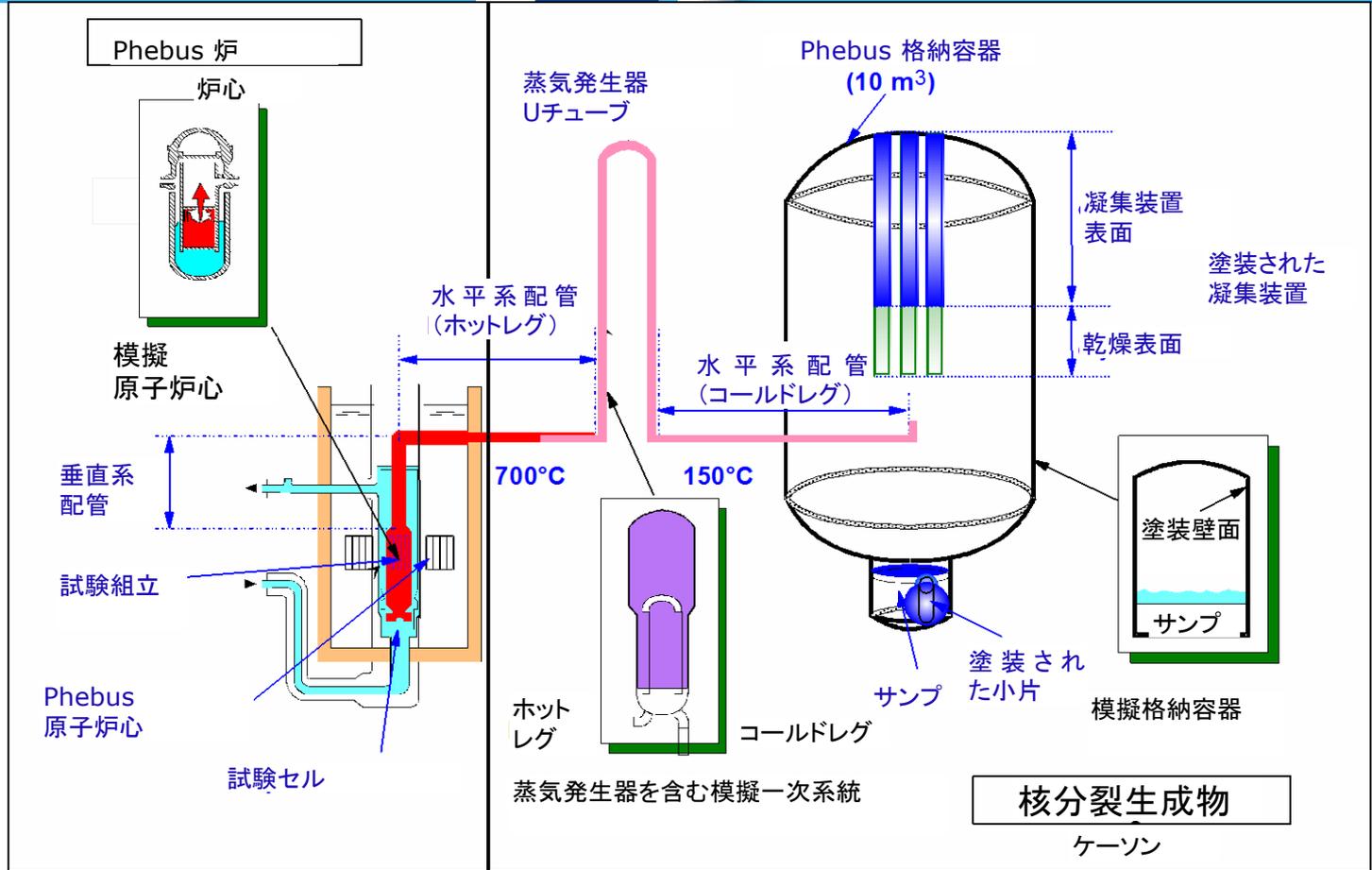
(Fe-Ni-Sn金属、(Fe,Ni)-Zr-U酸化物、部分酸化Ni、Fe小塊、金属Ag小塊)

Phébus FPプロジェクト

IRSNガダラッシュの指揮下（EC支援あり）、
EUの多くの国家機関が参加



Phébus FP 施設



Phébus FP（核分裂生成物）とドライバーコア、試験集合体、および模擬一次系統につながる垂直系配管。回路には、浮遊核分裂生成物が貯蔵タンクおよび液体を集めるサンプルに流入する前に、模擬蒸気発生器を有する水平系配管がある。



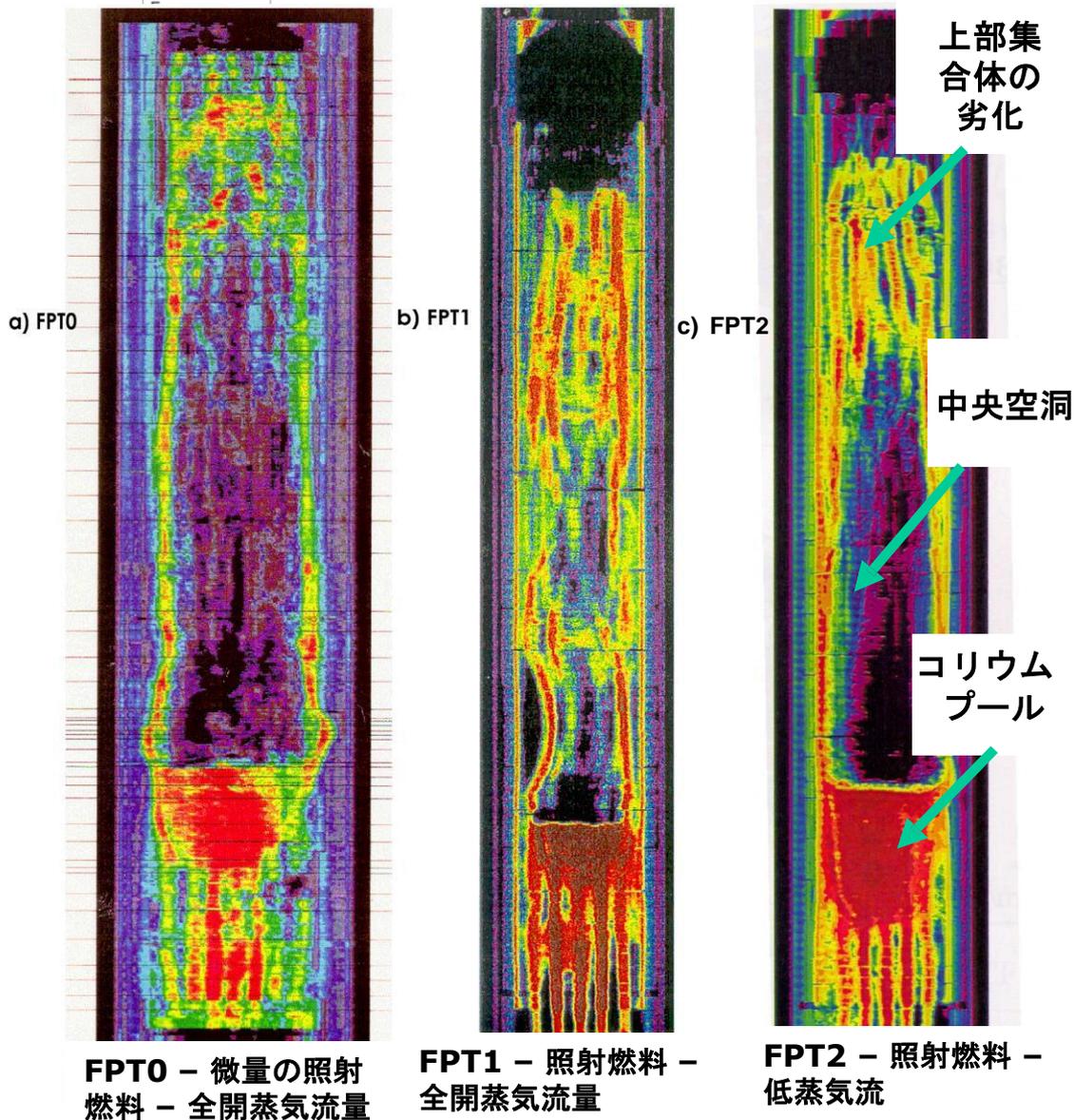
集合体照射後試験 (PIE) の比較

試験直後にIRSNが作成したX線断層撮影画像:

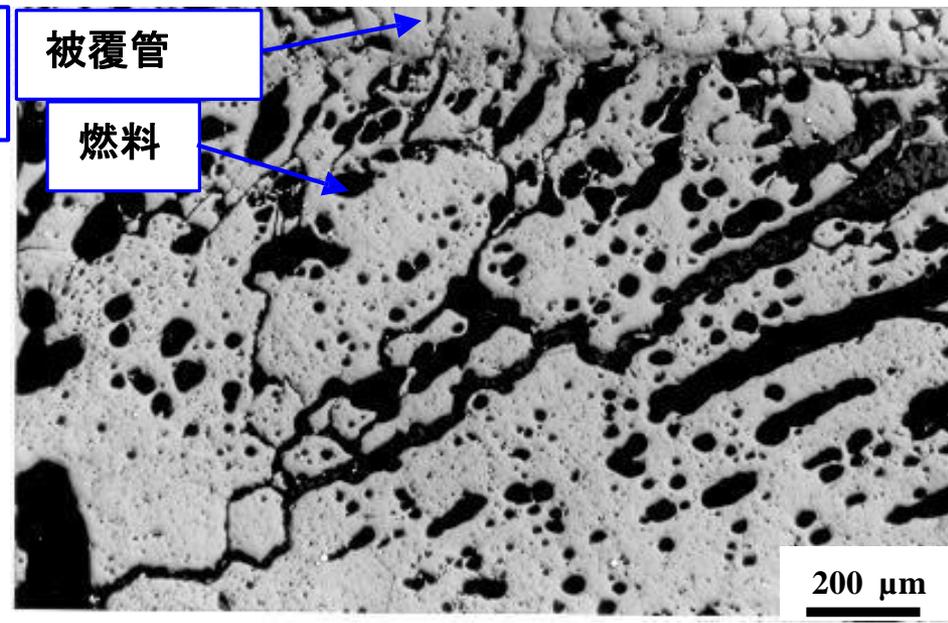
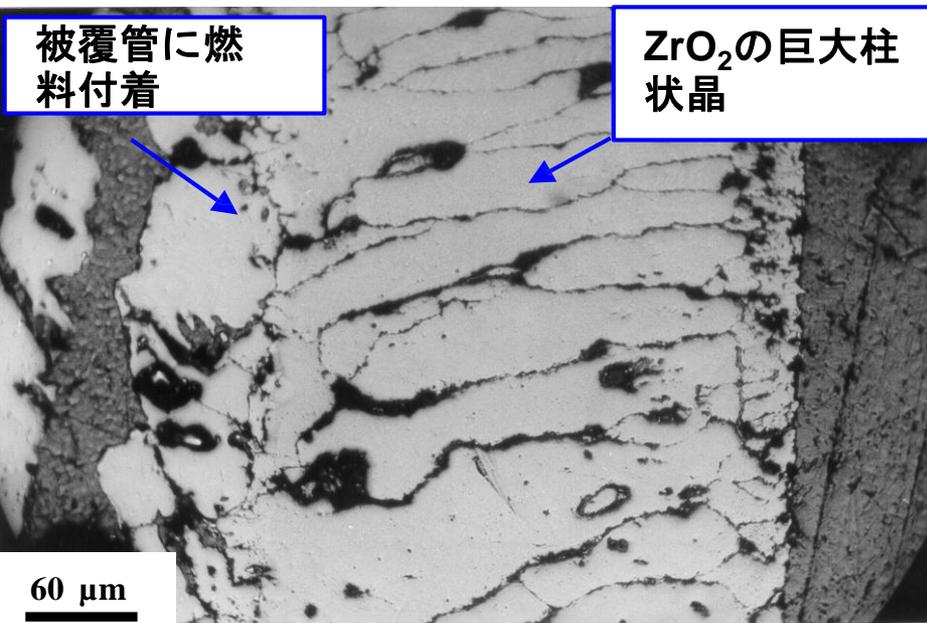
- a) FPT0 (微量 (8日) 照射燃料)
- b) FPT1 (2年照射燃料) と蒸気流
- c) FPT2 (低蒸気流量条件)

3回の試験すべてに共通の劣化結果:

- a) 高酸化上部集合体
- b) 中央高温部の溶融とその再配置
- c) 4分の1高さのコリウムプールができる



上部Phébus集合体 (FPT1)



高さ+607mmのFPT1集合体にある燃料棒から採取した完全酸化被覆管の顕微鏡写真

高さ+607mmのFPT1集合体から採取した劣化照射燃料の顕微鏡写真
- 過熱燃料内のFPガスの気泡挙動によるレンズ状の気孔率。

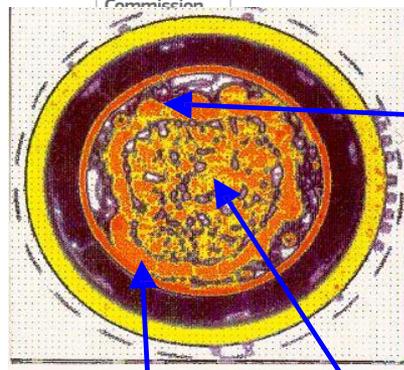
注) 激しい酸化被覆管と半液化状態の劣化燃料

Phébus FPプロジェクト



コリウムプール PIE

(集合体底部から) 高さ+228mmにある
FPT1集合体のコリウムプールと同位置の断層撮影との比較。



残存
燃料棒

外部ク
ラスト

中央プール

FPT0、FPT1、FPT2から成るコリウムプール：
U/Zr原子比 = 1.06 ~ 1.44

TMI-2炉心 (G12-P 9-B) U/Zr推定1.18

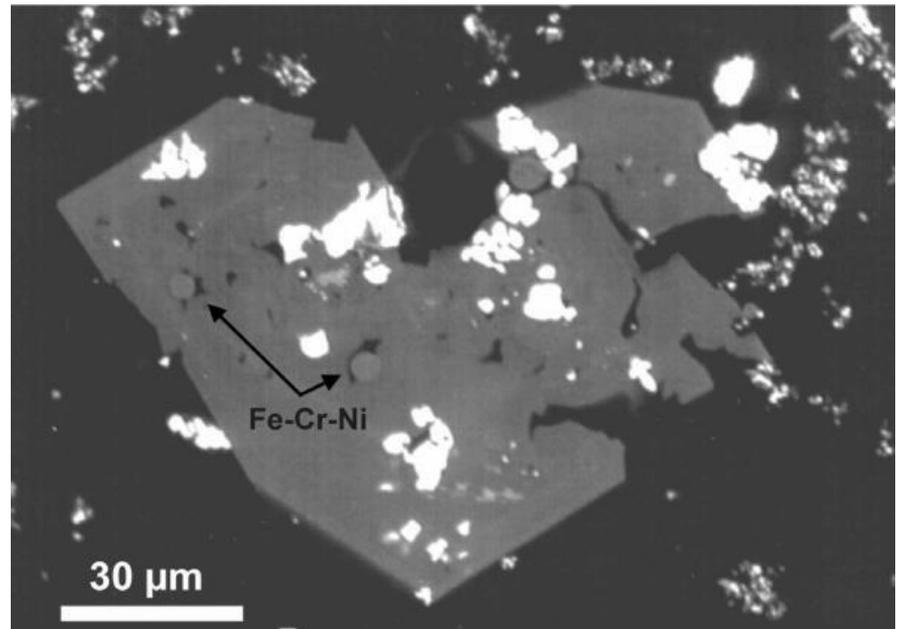
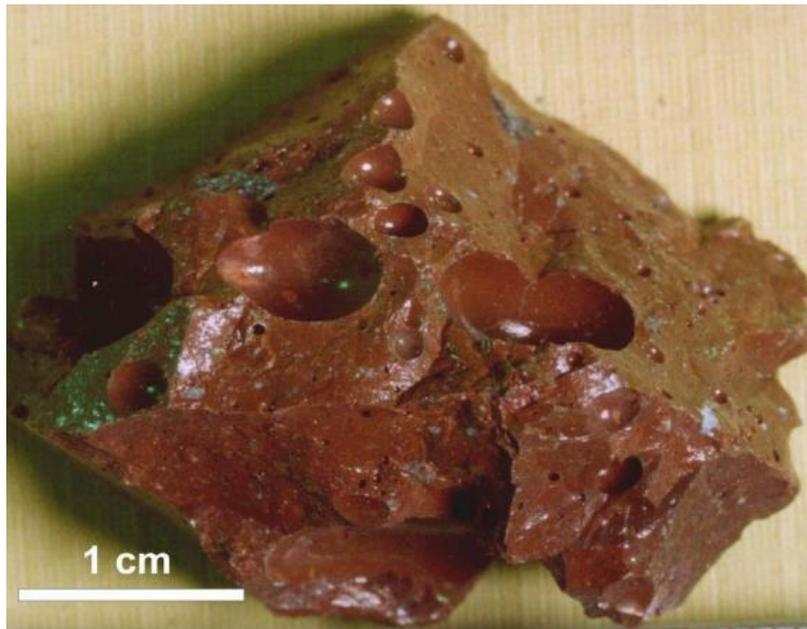
- 非破壊断層撮影は非常に高精度
- コリウムプール組成は、Phébus試験とTMI-2データの間で合理的な一貫性が見られる

ITUがチェルノブイリ原子炉2号機から採取したラバサンプル



JRCカールスルーエとフローピン、サンクトペテルブルクの協力の一環

(P.ポエムル/B.ブラコフ)

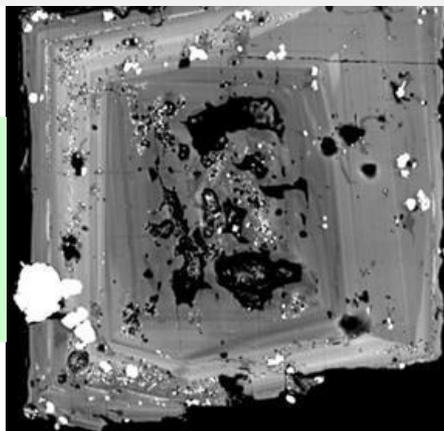


褐色ラバのサンプルとこのラバサンプルに見られる結晶構造のSEM顕微鏡写真。高密度（白色）相は、多相母材内のUリッチ燃料粒子。

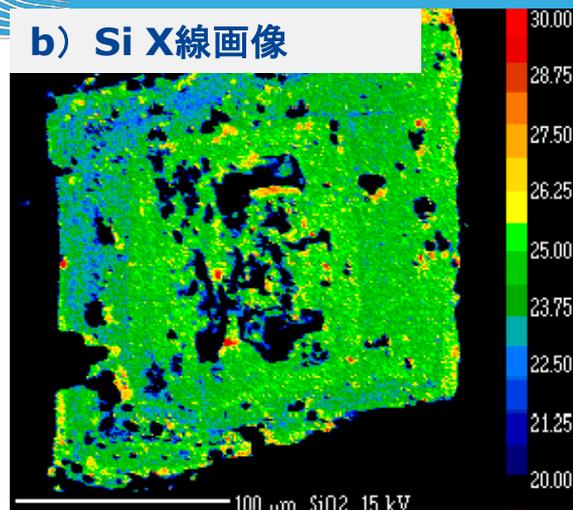
ITUがチェルノブイリ原子炉2号機から採取したラバサンプル



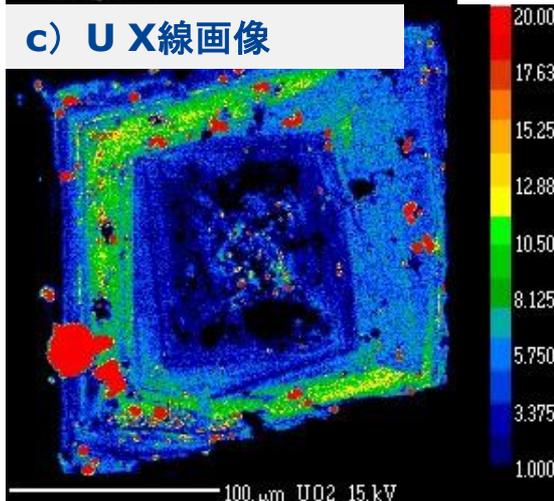
a) 二次電子画像



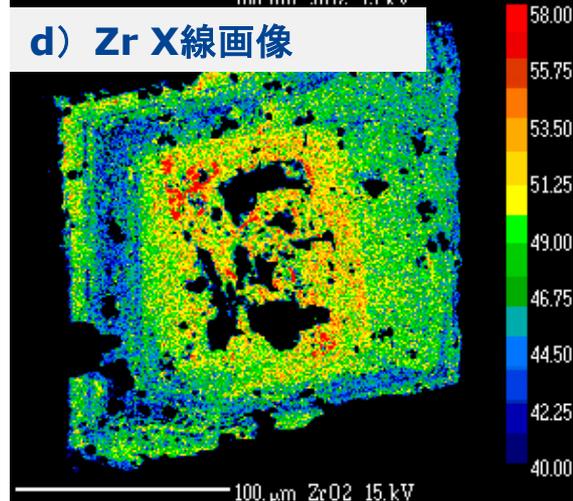
b) Si X線画像



c) U X線画像



d) Zr X線画像



不純物を有するU
ジルコン結晶の後
方散乱画像

- X線画像マッピングは、徐冷中の層状組成物がUリッチ中心およびZr・Siリッチ外縁を形成する様子を示す。
- これを利用して固体化時の温度を判断できる。このデータは、燃料デブリ形成フローモデルの検証と事故の状況の理解に役立つ。



- **TMI-2調査におけるサンプル検査により、原子炉劣化メカニズムの理解に関する大きな進歩を遂げることが可能となった。**
- **手法としては、サンプルの予備特性把握・分類のための密度・気孔率測定、(SEM/TEM/EDS/WDXによる) 詳細な組成分析および、結晶学的測定 (XRD) がある。**
- **形成された金属・酸化物の化合物を評価することにより、発生しうる相互作用や損傷メカニズムの提示が可能になった。形成の条件 (例：到達温度、 O_2 ポテンシャル・蒸気組成)、 H_2 生成の推定もされうる。**



- その後の研究（Phébus FPプロジェクト、チェルノブイリをはじめとする各所）で集合体損傷とFP放出の知見が拡充されている。
 - 再現可能なコリウムプールの形状を実証
 - 燃料に影響して低温（～1200℃）移行を誘発する（低融点混合物を与える）原子炉鋼等とZry被覆管相互作用が確認された。
 - 詳細な形状効果（例：BWR/VVER設計）やその他材料（例：B₄C中性子吸収剤）については引き続き研究を行う必要がある。
- X線断層撮影技術は非常に高精度で強力な非破壊技術である（γ分光法等、他のNDT技術の進歩も続いている）
- モデル化とシミュレーションの技術は、原子炉事故や物質挙動のモデルを理解するうえで非常に重要。
- 現在の研究は、核分裂生成物の挙動、コリウムと原子炉容器の相互作用とその保持、およびコリウムとコンクリート封じ込めの相互作用の理解に対して、より重点を置いている。