

令和6年度  
JAEA-NRA安全研究成果報告会

燃料からの放射性物質の放出モデルにおける  
ヨウ化セシウムの放出速度係数に関する研究

令和6年11月14日

原子力規制庁長官官房技術基盤グループ  
シビアアクシデント研究部門

平等雅巳

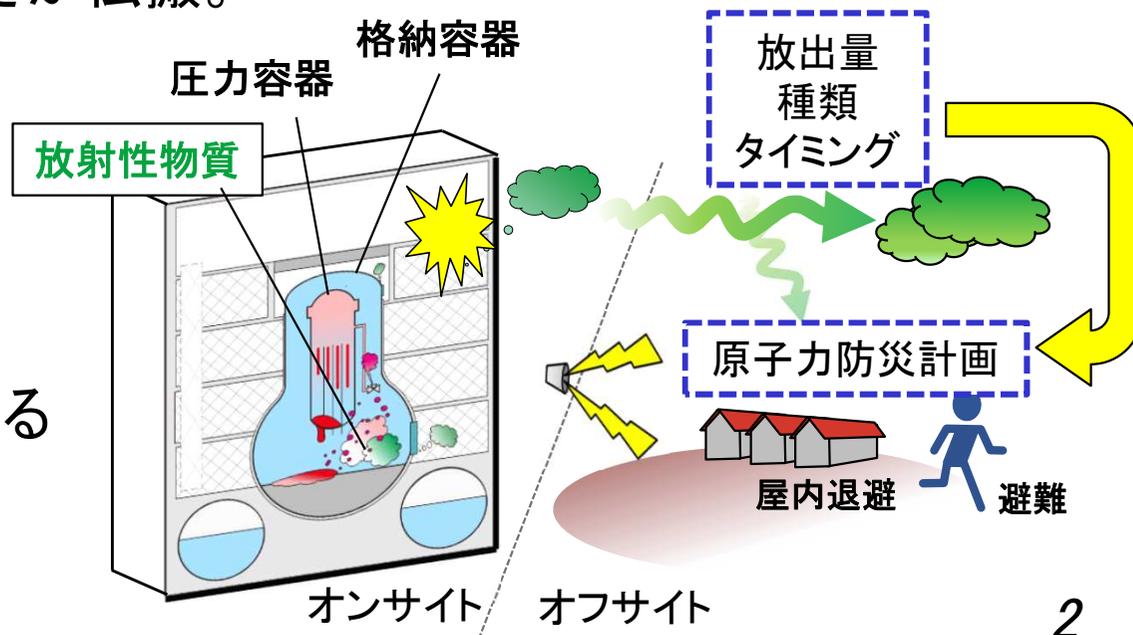
本研究の一部は福井大学との共同研究「ソースターム評価におけるFPの化学種毎における放出速度の導出及び新規モデルに関する研究」の成果である。



# 緒言

- ◆ 燃料破損を伴う原子炉の重大事故時には、放射性物質は燃料より放出され圧力容器、格納容器等を経由して、最終的に環境へ放出される可能性がある。
- ◆ 周辺住民の避難等を伴う原子力防災計画の立案等においては、環境へ放出される放射性物質の情報が必要不可欠。
- ◆ 放射性物質の放出量等は解析コードを用いて評価。しかしながら、評価モデルに不確かさがあると環境に放出される放射性物質の放出量・種類・タイミング等の情報に不確かさが伝搬。

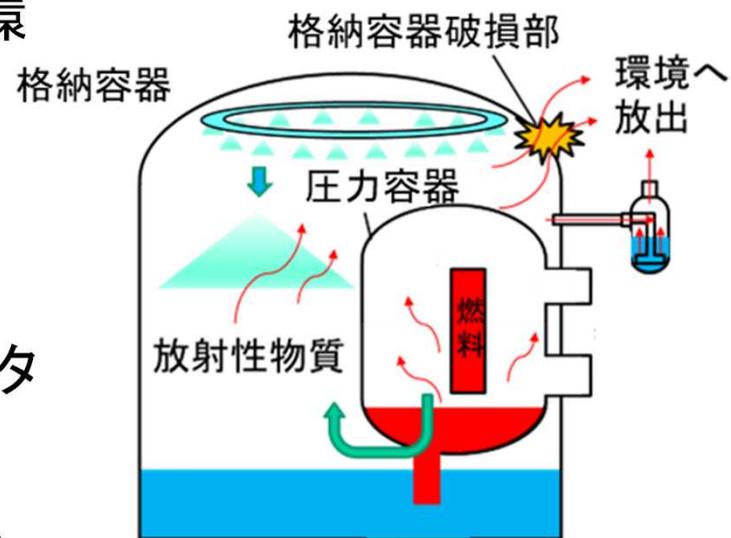
- ✓ 解析コードの信頼性確保が重要
- ✓ 継続的不確かさ低減が求められる



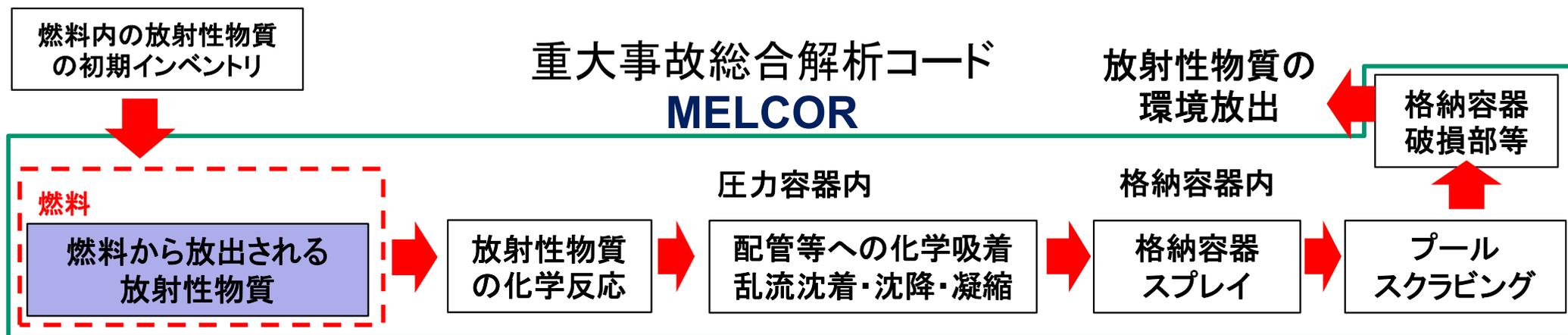


# 緒言

- ◆ 原子炉の重大事故を解析するコードMELCORでは環境へ放出される放射性物質の量や種類等を評価
- ◆ MELCORでは燃料から放出される放射性物質は元素の形でのみ考慮
- ◆ これは燃料からの化合物の放出に関する実験データがないため
- ◆ 解析コードの不確かさを低減するためには、燃料からの化合物の放出に関する実験データが必要



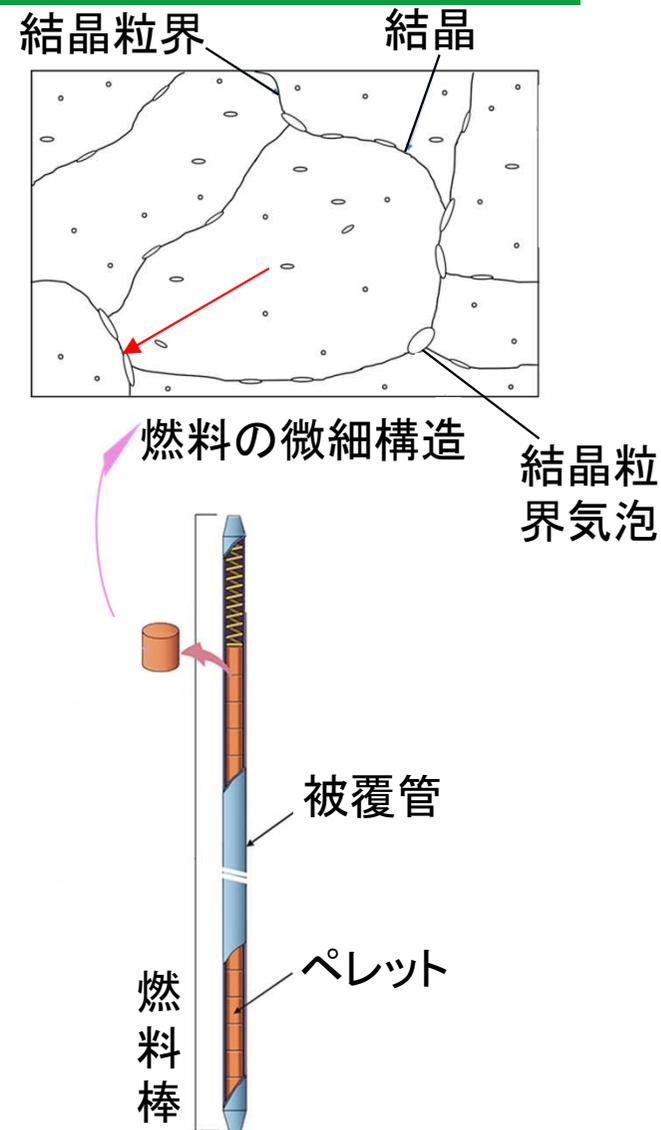
重大事故時における放射性物質の移行経路の模式図





# 燃料からの放射性物質の放出

- ◆ 燃料ペレットは二酸化ウランを焼成してペレット形状としている。それらを積み上げて被覆管で密閉
- ◆ 原子炉の運転時にはウランの核分裂により、燃料ペレットである二酸化ウランの結晶粒内にセシウム、ヨウ素等の放射性物質が発生
- ◆ 結晶粒内の放射性物質は拡散挙動により、結晶粒の界面に移動する。希ガス類は単体で、他の元素は化合物を形成して気体状となり、結晶粒の界面からペレットの外へ移行すると想定
- ◆ 炉心溶融を伴う事故時には燃料ペレットが高温状態となり、被覆管の外に放射性物質が放出
- ◆ 原子炉圧力容器が破損し原子炉格納容器の隔離機能が喪失すると、放射性物質が環境へ放出される



燃料ペレットから放出される放射性物質のイメージ図※



# 目的

## ◆ 燃料から放出される放射性物質の放出モデル

$$\text{放出量} = \text{初期インベントリ} \times F_i$$

$$\text{放出割合: } F_i = 1 - \exp(-k_i(T) \cdot t)$$

$k_i(T)$ は温度  $T$ における放射性物質  $i$ の放出速度係数、 $T$ は温度、 $t$ は時間

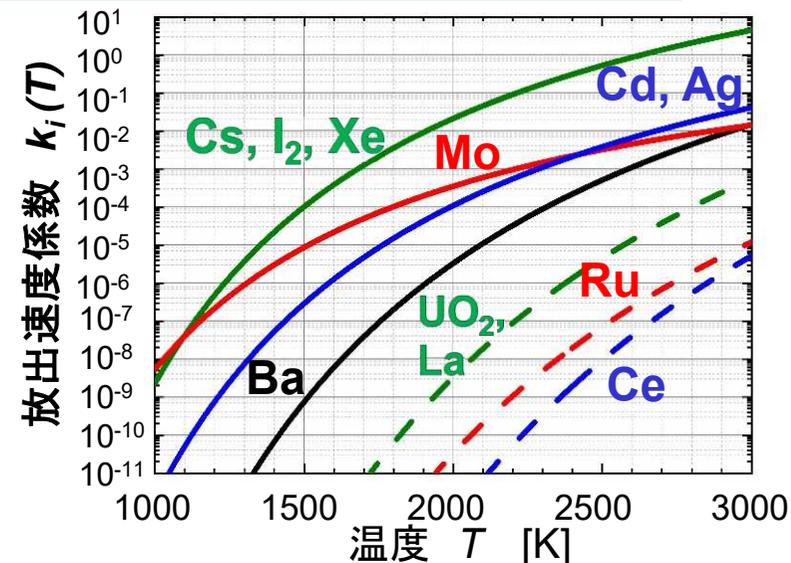
## ◆ 放出速度係数 $k_i(T)$ の算出モデル

$$\text{CORSOR-Mモデル: } k_i(T) = k_0 \cdot \exp\left(-\frac{Q}{R \cdot T}\right)$$

$k_0$ と $Q$ は放射性物質  $i$ に固有の定数、 $R$ は気体定数

## ◆ 放射性物質ごとに $k_0$ と $Q$ を与えることで燃料から放出される挙動を評価。

元素に対してはパラメータ  $k_0$ と $Q$ が設定されているが、ヨウ化セシウム等の化合物に対しては  $k_0$ と $Q$ は設定されていない。



各元素の放出速度係数の温度依存性

## 目的

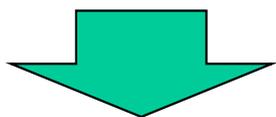
燃料からの化合物の放出速度係数を評価する方法を開発し、化合物であるヨウ化セシウムを対象に模擬燃料からの  $k_0$ と $Q$ を実験により求める



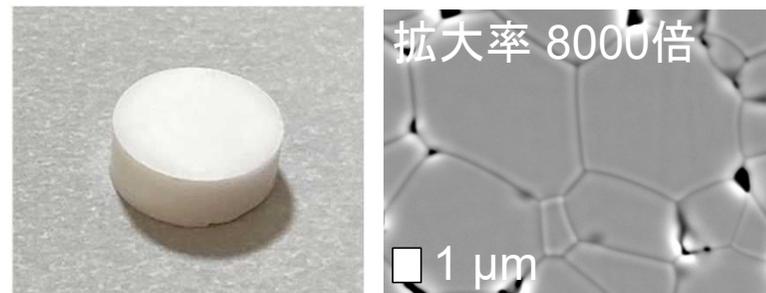
# 実験

重大事故時における主要な放射性物質であるヨウ化セシウムを対象に、模擬燃料からの放出実験を行う

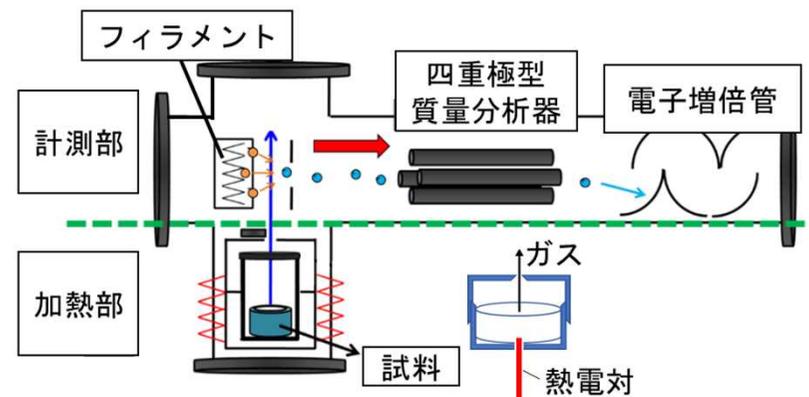
1.  $UO_2$ の結晶構造を模擬した試料を作製
2. 模擬燃料にヨウ化セシウムを含浸させる
3. 試料を加熱し放出されるヨウ化セシウムのイオン電流を質量分析器により計測
4. イオン電流の計測値から蒸気圧を算出
5. 放出速度係数の導出モデルを新たに開発し、蒸気圧からヨウ化セシウムの $k_0$ と $Q$ を評価



ヨウ化セシウムに対する放出速度係数と放出割合を評価



作製した燃料ペレットと  
結晶粒径の電子顕微鏡画像

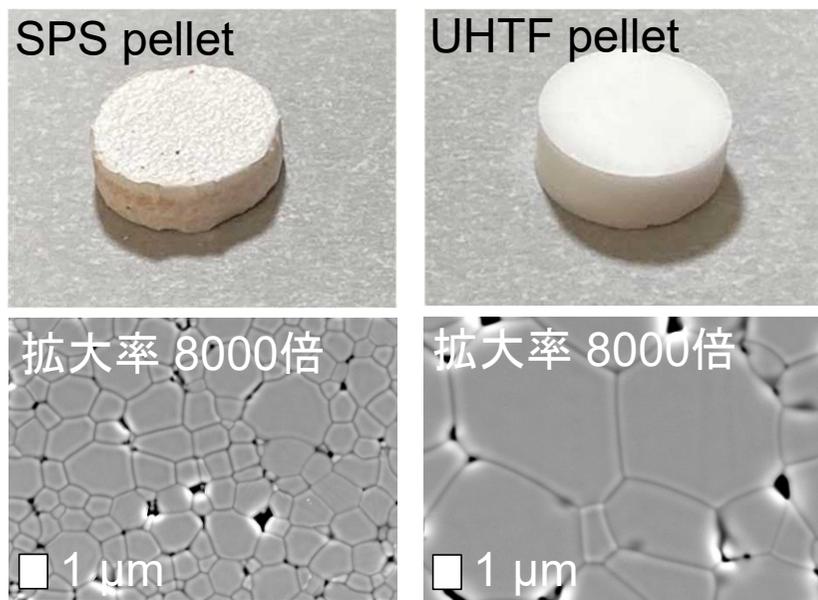


四重極型質量分析器を用いて  
構成される実験装置



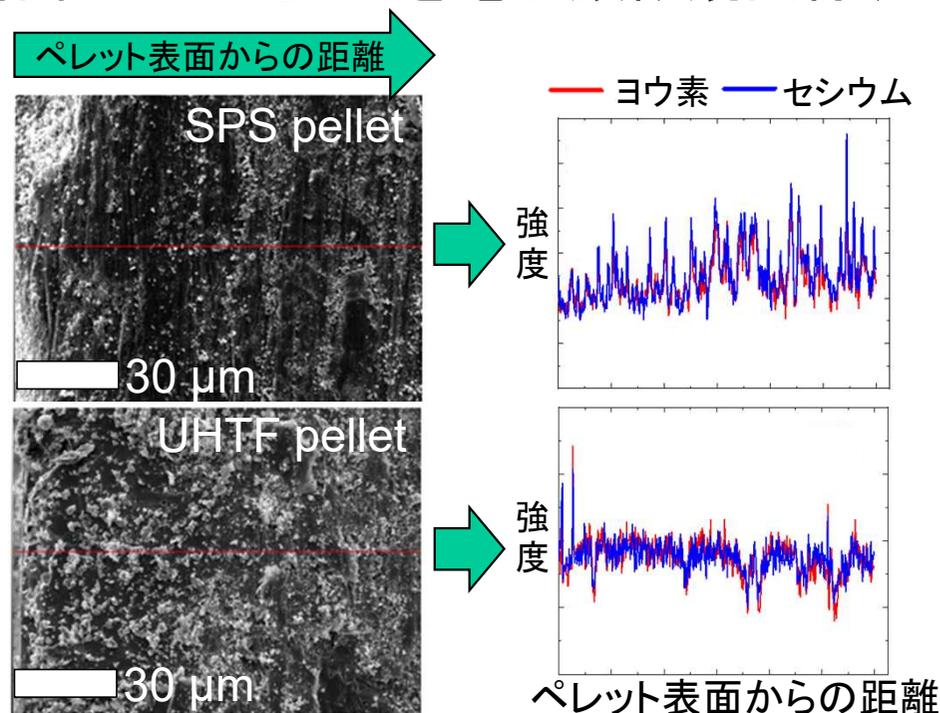
# 模擬燃料の作製

- ◆ 酸化イットリウム $Y_2O_3$ を酸化ジルコニウム $ZrO_2$ に含有させたイットリア安定化ジルコニアYSZ( $UO_2$ と同じ螢石形の結晶構造)をペレットの母材として、結晶粒径が異なる試料を2種類作製 (SPS pellet、UHTF pelletと称する)  
SPS pellet : Spark Plasma Sintering装置を用いて作製  
UHTF pellet : 超高温炉焼結 (Ultra-High-Temperature Furnace) 法により作製
- ◆ 作製した試料の上にヨウ化セシウムを乗せ、933 Kで加熱し、ペレットに浸透
- ◆ ペレット内にヨウ化セシウムが一定量存在していることを電子顕微鏡画像、元素分析画像等より確認



作製した燃料ペレットと  
結晶粒径の電子顕微鏡画像

➡ 結晶粒の異なる模擬燃料を作製



作製した燃料ペレットの  
電子顕微鏡画像と元素分析画像

➡ 模擬燃料へのヨウ化セシウムの含浸を確認



# 四重極型質量分析器による ヨウ化セシウムのイオン電流の計測

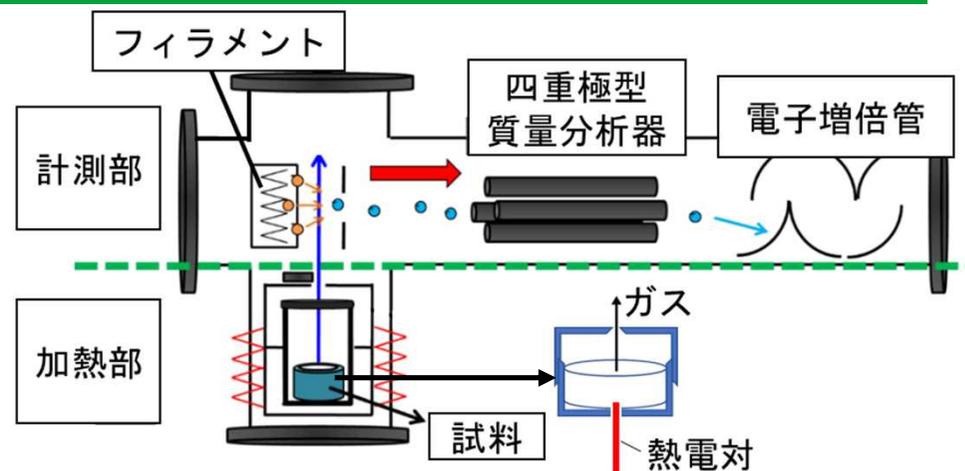
作製した試料から放出するガスを  
分析するため、質量分析器を使用

- ・試料をヒーターで加熱
- ・発生したガスを電子衝撃法でイオン化
- ・四重極型質量分析器へ導入
- ・電子増倍管で観測値を増幅

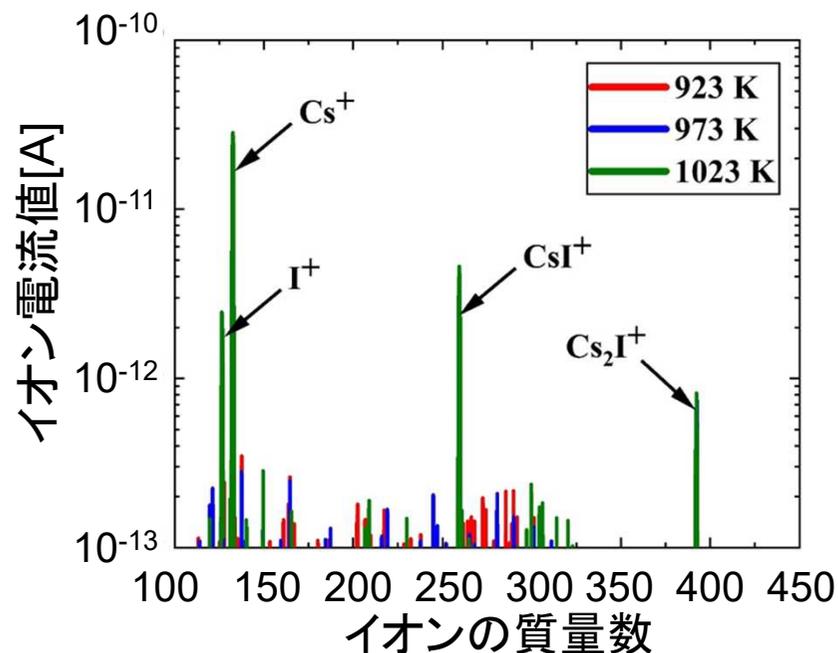


ヨウ化セシウムを観測

- セシウムイオン $\text{Cs}^+$
- ヨウ素イオン $\text{I}^+$
- ヨウ化セシウムイオン $\text{CsI}^+$
- ヨウ化セシウムの二量体のイオン $\text{Cs}_2\text{I}^+$



四重極型質量分析器によって  
構成される実験装置

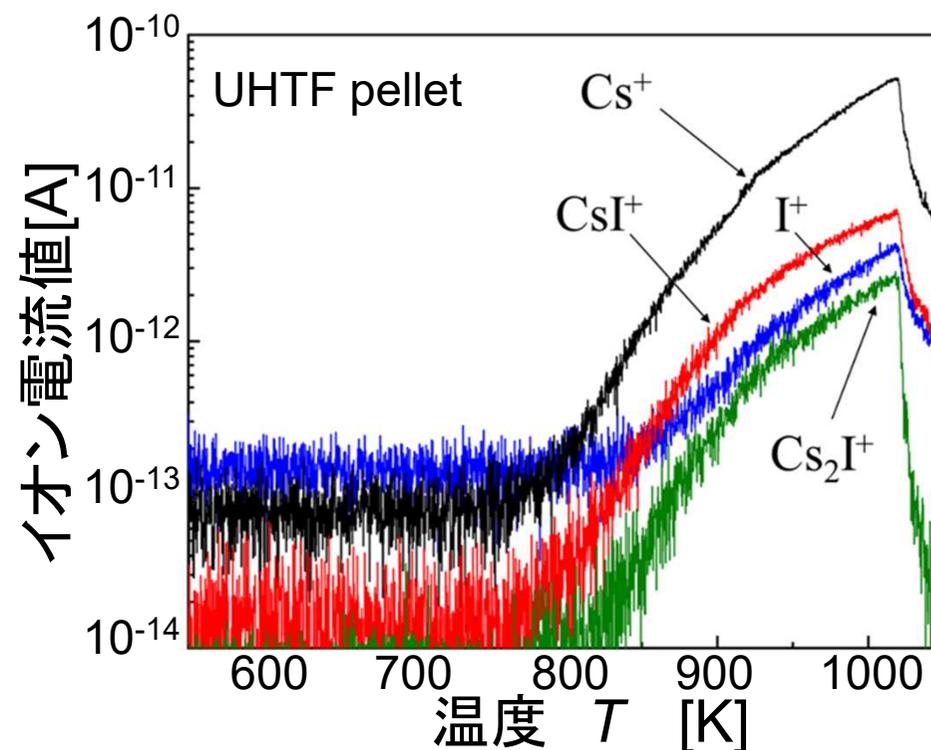
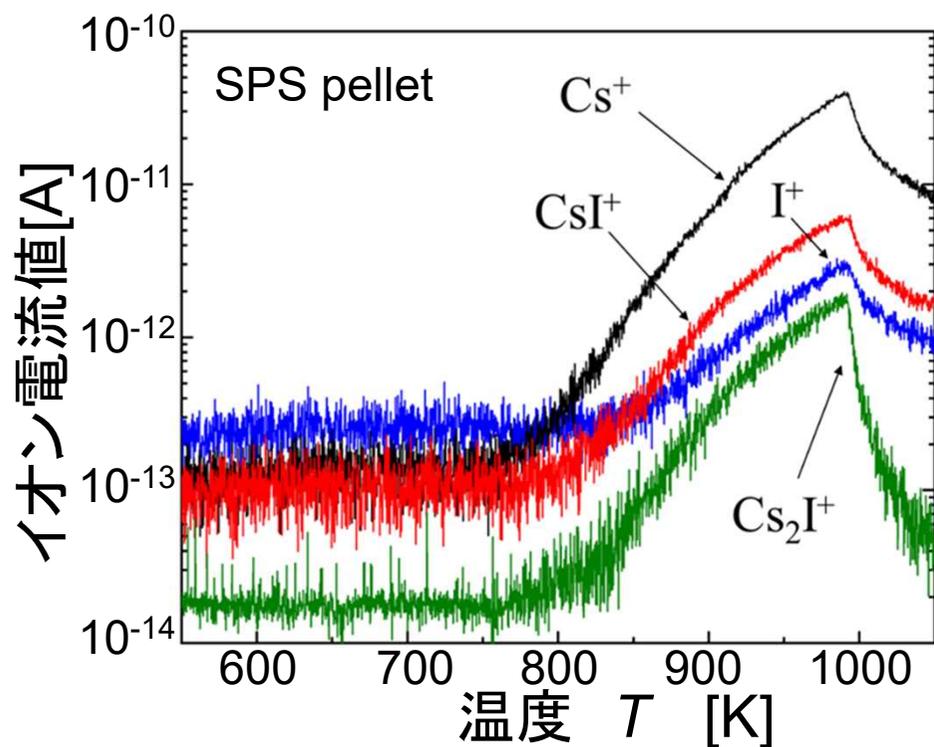


試料から放出したガスの分析結果 8



# 質量分析器によるヨウ化セシウムのイオン電流の計測

- 検出された4種のイオン電流に対する温度依存性を確認
- 約770 Kからイオン電流値が上昇し、約970 ~ 1000 Kで減少
- ヨウ化セシウムの放出を評価する際は、感度が高いセシウムイオン $\text{Cs}^+$ とヨウ化セシウムイオン $\text{CsI}^+$ のイオン電流値を評価





# イオン電流値から蒸気圧への換算

四重極型質量で得られたイオン電流値を蒸気圧に変換※

$$p(i) = \sum_j W \cdot \frac{I_j(i)T}{\gamma_j S_j \sigma(i) \Delta E_j}$$

ただし、

$p(i)$  : ガス種*i*の分圧

$W$  : 装置定数

$I_j(i)$  : ガス種*i*から得られたイオン*j*の電流値

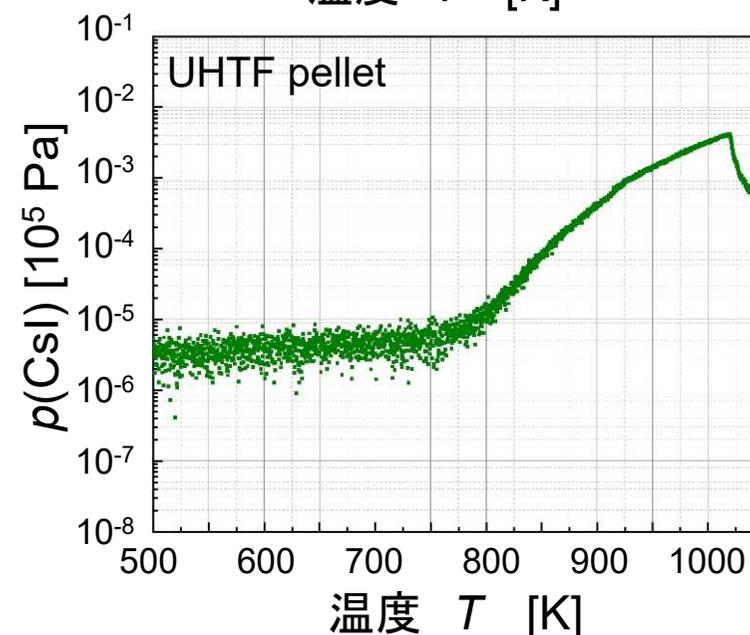
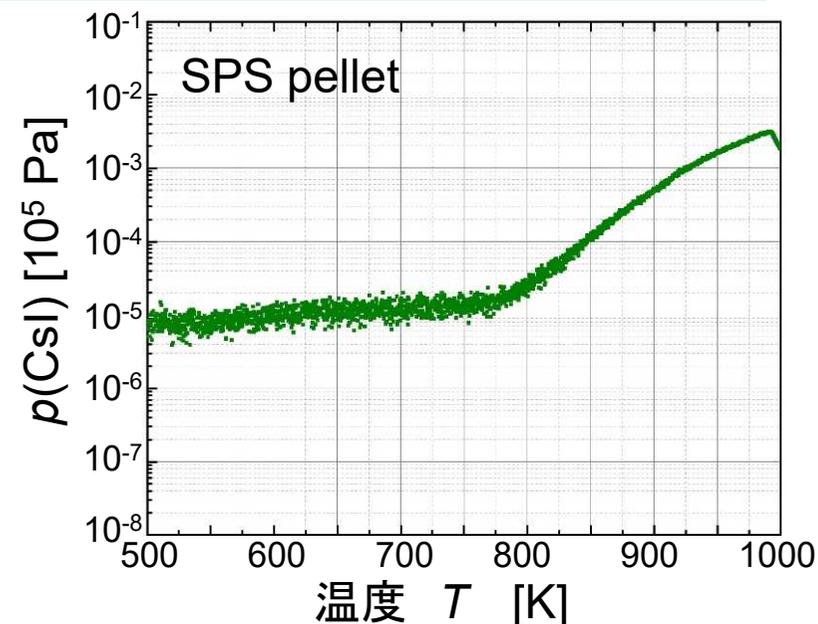
$T$  : 試料温度

$\sigma(i)$  : ガス種*i*のイオン化断面積

$S_j$  : イオン*j*の同位体存在比

$\gamma_j$  : イオン*j*における二次電子増倍管の感度係数

$\Delta E_j$  : イオン*j*のイオン化電圧と装置にかけた電圧の差

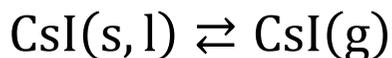


※ K. Murase, G. Adachi, M. Hashimoto, H. Kudo, "Mass Spectrometric Investigation of the Vapor over the LnCl<sub>3</sub>-KCl Equimolar Melt (Ln=Nd, Er) at High Temperatures", *Bulletin of the Chemical Society of Japan*, **69**, 353-357 (1996), <https://doi.org/10.1246/bcsj.69.353>



# ヨウ化セシウムの放出速度係数の導出モデルの開発

加熱された模擬燃料内のヨウ化セシウムCsIは凝縮相(s, l)から気体(g)へと変化し、模擬燃料から放出されるものと仮定する。この凝縮相(s, l)から気体(g)へと変化する反応は次式により支配される。



その際の平衡定数Kは以下となる。

$$K = \frac{[\text{CsI}(g)]_{\infty}}{[\text{CsI}(s, l)]_{\infty}}$$

ただし、  
[CsI(s,l)] : 固体及び液体のCsIの濃度  
[CsI(g)] : 気体のCsIの濃度  
 $\infty$  : 無限時間が経過した状態

熱力学に基づき平衡定数Kは以下の式となる。

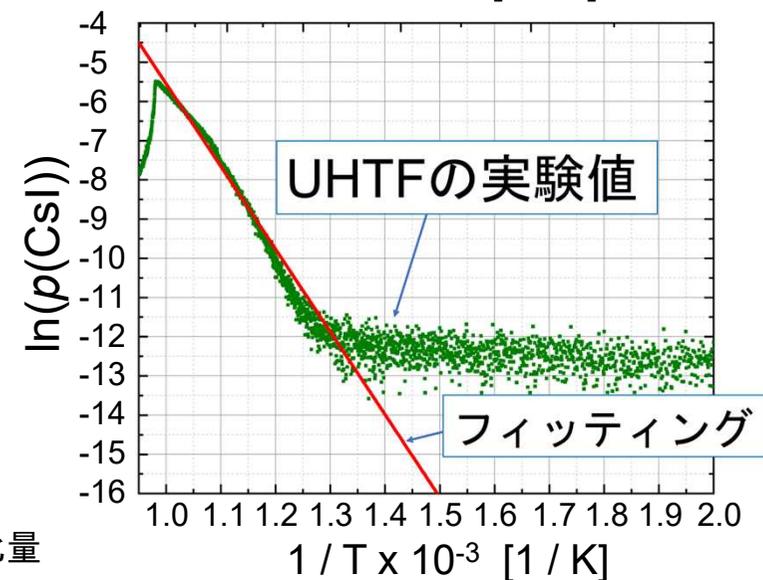
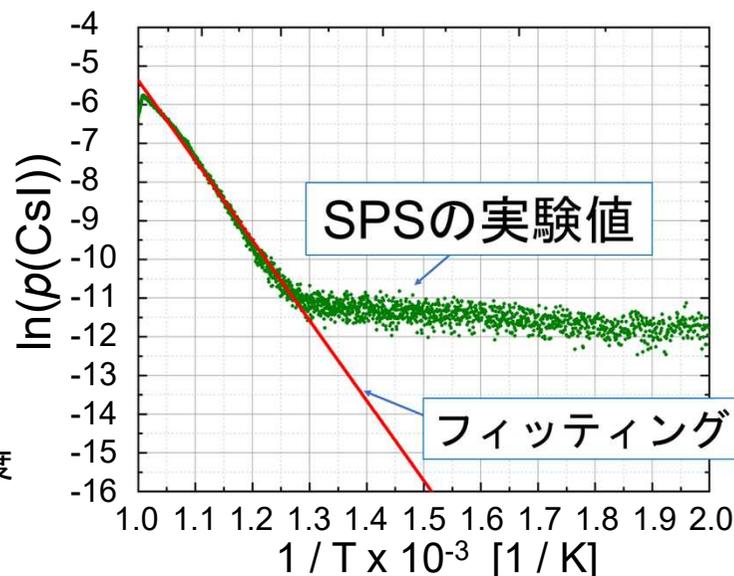
$$K = \frac{\alpha_{\text{CsI}(g)}}{\alpha_{\text{CsI}(s,l)}} \doteq \frac{f_{\text{CsI}(g)}}{1} \doteq p(\text{CsI})$$

ただし、  
 $\alpha$  : 活量  
 $f$  : フガシティー  
 $p$  : 蒸気圧

この蒸気圧 $p(\text{CsI})$ は熱力学的関係式により以下となる。

$$\ln(p(\text{CsI})) = \ln(C) - \frac{\Delta H}{R} \cdot \frac{1}{T}$$

ただし、  
C : 定数  
 $\Delta H$  : エンタルピー変化量  
R : 気体定数

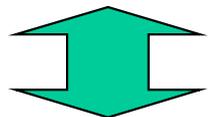


試料ごとのヨウ化セシウムの蒸気圧の自然対数と温度の逆数の関係



# ヨウ化セシウムのパラメータ $k_0$ と $Q$ の算出

$$\ln(p(CsI)) = \ln(C) - \frac{\Delta H}{R} \cdot \frac{1}{T}$$



$$p_{CsI(g)} = C \cdot \exp\left(-\frac{\Delta H}{RT}\right)$$

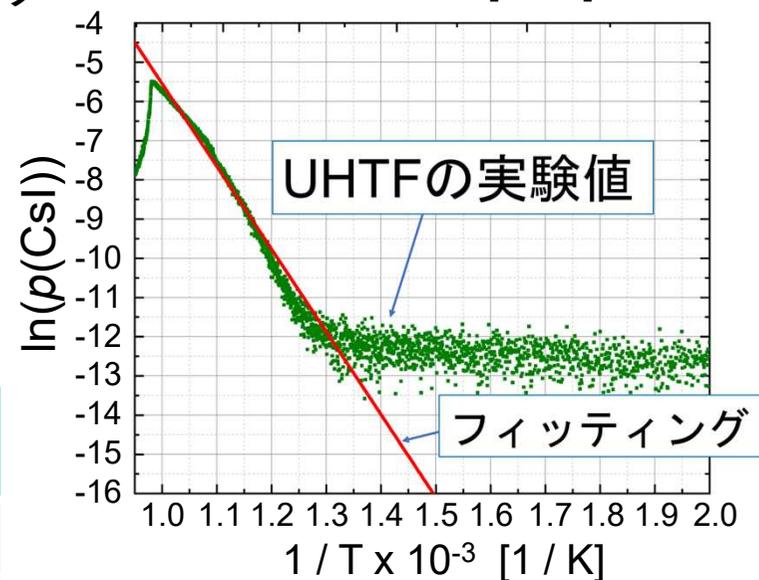
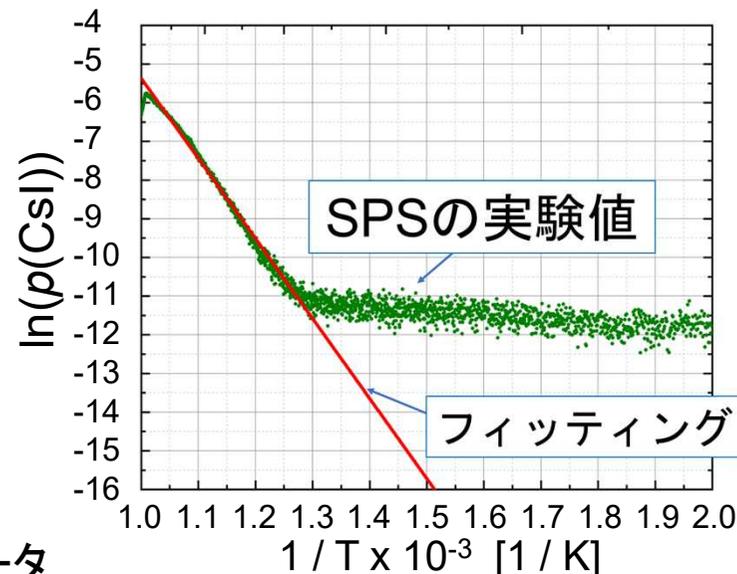
この式が、CORSOR-Mモデルである。

上式中の $C$ と $\Delta H$ は、以下のCORSOR-Mモデルのパラメータ $k_0$ と $Q$ に対応し、右図の計測値より求められる。

$$k_i(T) = k_0 \cdot \exp\left(-\frac{Q}{R \cdot T}\right)$$



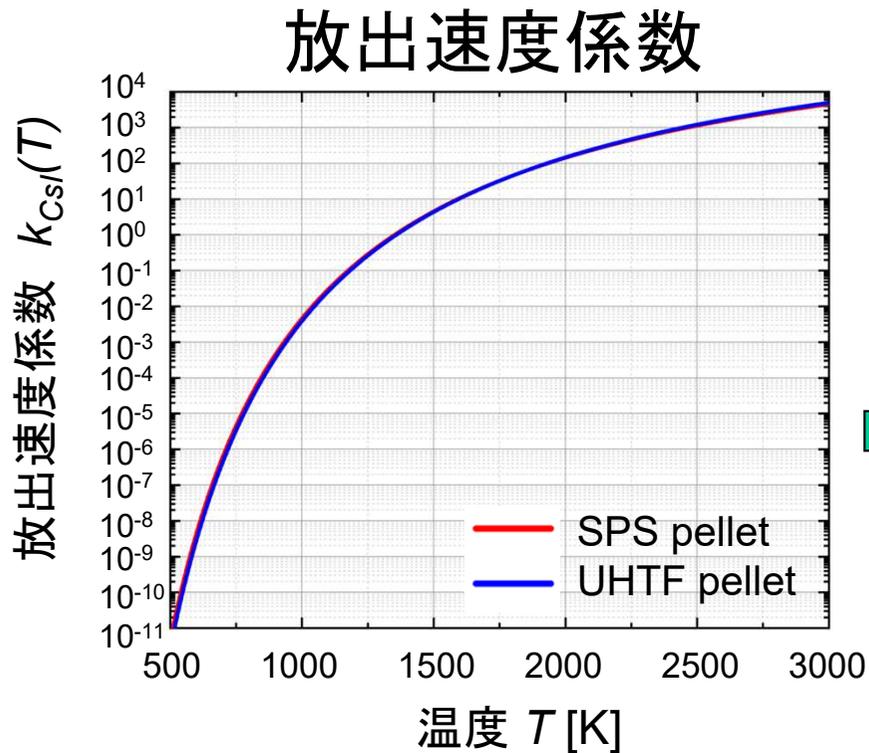
	$k_0$ [min <sup>-1</sup> ]	$Q$ [kJ/mol]
SPS pellet	$4.50 \times 10^6$	172
UHTF pellet	$5.61 \times 10^6$	175



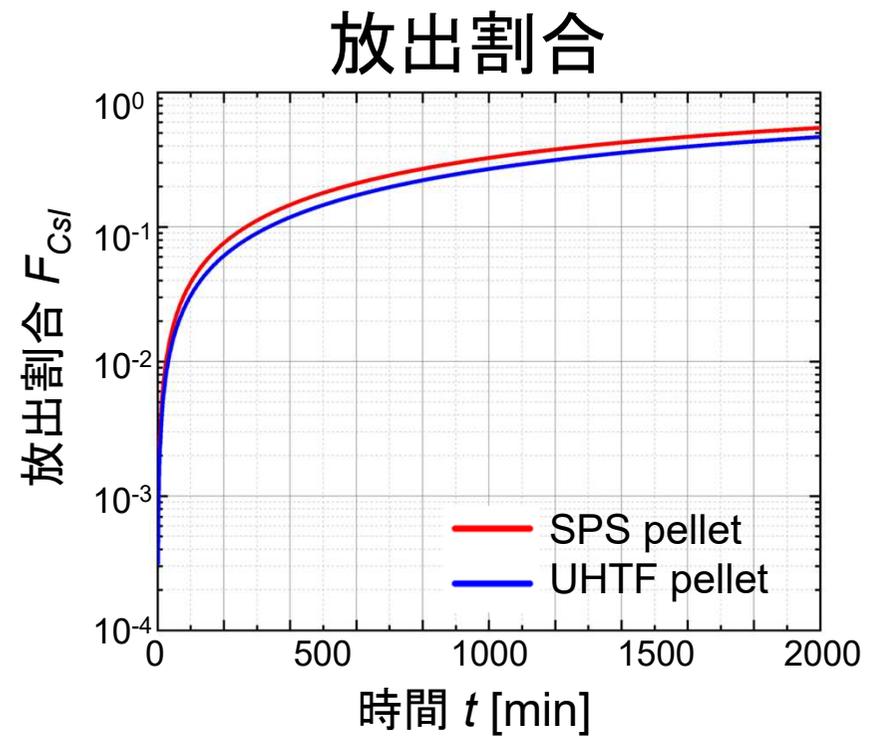
試料ごとのヨウ化セシウムの蒸気圧の自然対数と温度の逆数の関係



# 本研究の成果を用いたヨウ化セシウムに対する 放出速度係数と放出割合の評価



894 Kの $k_{CsI}$   
を用いて $F_{CsI}$   
を算出



$$k_i(T) = k_0 \cdot \exp\left(-\frac{Q}{R \cdot T}\right)$$

$$F_i = 1 - \exp(-k_i(T) \cdot t)$$



放出量 = 初期インベントリ ×  $F_i$



燃料ペレットからのヨウ化セシウムの放出量を求めるために  
に必要な放出速度係数を評価することが可能となった



## 結言

燃料からの放射性物質の放出モデルにおける放出速度係数を、ヨウ化セシウムを対象に模擬燃料を用いて評価

- 結晶粒径の異なる模擬燃料を2種類作製、ヨウ化セシウムを含浸
- 四重極型質量分析器を用いて試料から放出するヨウ化セシウムを観測、4種のイオンのイオン化電流を計測
- 計測したセシウムイオンとヨウ化セシウムイオンの電流値から蒸気圧を評価
- 熱力学の観点からヨウ化セシウムの放出速度係数の導出モデルを開発、蒸気圧からCORSOR-Mモデルにおけるヨウ化セシウムの $k_0$ と $Q$ を評価



模擬燃料からの化合物の放出速度係数を評価するための手法の構築

### 【参考文献】

- Masami TAIRA, Takuma FUJIWARA, Yuji ARITA, “Study on CsI release rate coefficient from fuel for source term evaluation”, *Annals of Nuclear Energy*, submitting.
- 共同研究成果報告書“ソースターム評価における FP の化学種毎における放出速度の導出及び新規モデルに関する研究“, 令和5年6月 <https://www.nra.go.jp/data/000437953.pdf> (アクセス日: 2024年9月2日).
- 藤原卓真, 有田裕二, “模擬燃料ペレットからの Cs 化合物放出に関する基礎的評価“, 日本原子力学会 2020 年秋の大会予稿集, 2E18, 令和 2 年.



---

**ご清聴ありがとうございました。**