

核燃料サイクル施設における火災事故研究 - グローブボックス火災試験の計画策定及びパネル材熱分解評価試験 -

サイクル安全研究Gr. ○田代信介、大野卓也、阿部 仁

研究背景: グローブボックス(GB)火災で想定されるシナリオ

GB構成材料からの熱分解ガスの放出

本発表分

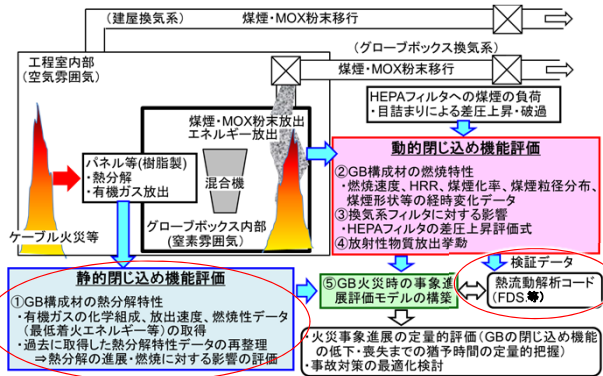
外部火源からの輻射熱により温度上昇したGB構成材料から、GB内外に熱分解ガスを放出
可燃性ガスが空気と接触
新たな火源となる可能性
熱分解ガスが蓄積している場合爆発的な燃焼を誘引する可能性

煤煙や放射性物質の気相への放出

GB構成材料として多量に存在しているパネル材(アクリルやポリカーボネート)の燃焼
パネル材燃焼により煤煙が発生
パネル材に付着している放射性物質も煤煙に伴って気相へ放出
煤煙や放射性物質の換気系への移行

HEPAフィルタの目詰まり

放射性物質を含む煤煙によるHEPAフィルタへの負荷
フィルタ差圧の上昇によるHEPAフィルタ破過
放射性物質の漏洩



グローブボックス火災試験計画

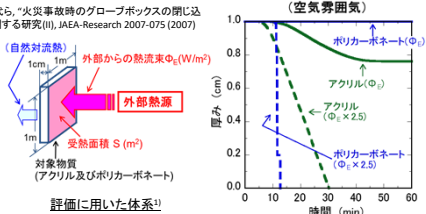
JAEA先行研究と課題の抽出

- 熱天秤-質量分析装置(TG-DTA)を用いて、GB構成材料を複数の昇温速度条件や酸素濃度条件下で加熱し、熱分解に伴う吸発熱量、重量減少量などの熱的データを測定
- 取得したTG-DTAデータを基に、GB材料の熱分解挙動を特徴づける定数を導出し、入熱に対するGB/パネルの熱分解の進行を計算するモデルを構築

阿部 達彦, 田代 仁, "火災事故時のグローブボックスの閉じ込め機能評価に関する研究(I)", JAEA-Research 2007-075 (2007)

課題: モデル化されていない要素

- ✓ 熱分解ガスの燃焼
- ✓ 新しい材料
- ✓ GB材料が融解・流動する挙動



アクリル及びポリカーボネートの熱分解の進行による厚みの経時変化に係る評価例

本研究の実施内容

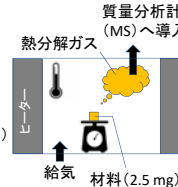
(目的) 火災時のGB構成材料の静的閉じ込め機能の低下及び喪失に至る条件並びに事象進展を評価する手法の整備を進める。

(内容)

- GB構成材料の熱分解挙動の把握
熱天秤-質量分析装置等の熱分析装置(TG-DTA-MS)を用いて、GB構成材料の熱分解に伴う吸発熱量、重量減少量などの熱的データと合わせて、放出される熱分解ガスの化学組成を測定。
パラメータ: 昇温速度、酸素濃度
- 事象進展評価の手法の整備
取得した試験データを基に、事象進展を総合的に評価するために必要な、吸発熱速度、重量減少速度及び熱分解ガス放出速度を導出。

試験方法

TG-DTA-MS
2020SA (Bruker AXS)
TG: 重量減少量
DTA: 吸発熱量
(標準試料で校正)
MS: マススペクトル



パラメータ

- 雰囲気 (N₂雰囲気, Air雰囲気)
→ GB内外の雰囲気を模擬
- 昇温速度 (5, 10, 15, 20 °C/min)
→ 反応速度論解析に使用

試験に用いた材料

| 材料 | 用途 | 型番/メーカー |
|----------|-------|--------------------|
| アクリル | パネル材 | アクリライトL001/三菱レイオン |
| 難燃アクリル | パネル材 | アクリライトFR3/三菱レイオン |
| ポリカーボネート | パネル材 | ポリカーボネート板1600/タキロン |
| クロロプレンゴム | グローブ材 | (非公開*) |

* R1施設への納入量が最も多いものを商社を通して選定

熱分解速度に関する定数の導出

アレニウスの式の対数表示

$$\log_e k = -\frac{E_a}{R} \times \frac{1}{T} + \log_e A$$

k: ある時点における熱分解反応の見かけの速度定数
A: 頻度因子
E_a: 活性化エネルギー

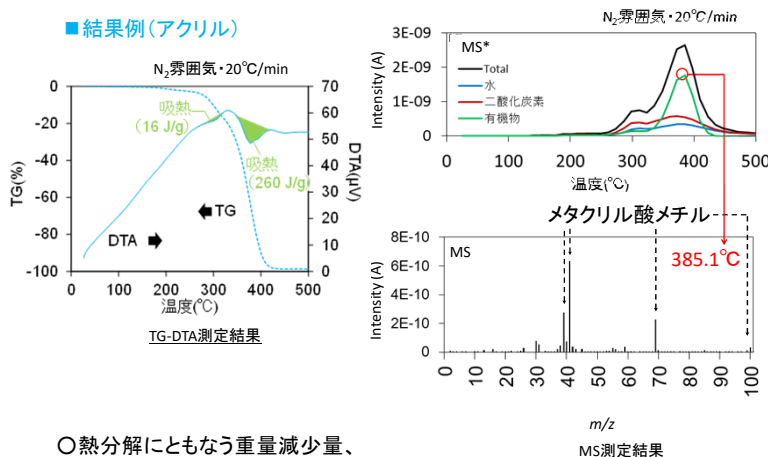
- $k = da/dt$ を代入する。
 a は反応度 (化学反応の進行度) であり、TGデータから重量割合として算出。
- 横軸に $\frac{1}{T}$ 縦軸に $\log_e k$ をプロットし、切片と傾きから A と E_a 決定

Friedman-小澤法

試験結果

GB構成材料の熱分解挙動の把握

結果例(アクリル)

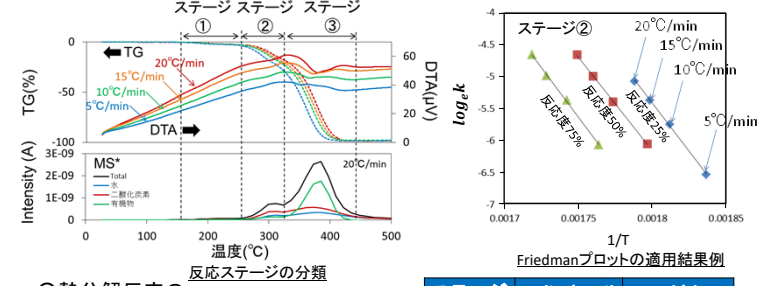


- 熱分解にともなう重量減少量、吸発熱量を測定。
- 窒素雰囲気下で熱分解ガスに含まれる可燃性成分を検出。
- 昇温速度条件による成分の違いは見られなかった。

* m/z=17, 18を水、m/z=12, 16, 44を二酸化炭素、それ以外を有機物と解釈した。

事象進展評価の手法の整備

試験結果の解析(アクリルの例)



○ 熱分解反応の見かけの反応速度定数 k を求める
材料固有パラメータを導出

$$k = A \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right)$$

| ステージ | Ea(kJ/mol) | A(s) |
|------|------------|-------------------------------------|
| ① | 62 ± 20 | 10 ³ ~ 10 ⁵ |
| ② | 250 ± 17 | 10 ²⁰ ~ 10 ²¹ |
| ③ | 265 ± 10 | 10 ¹⁸ ~ 10 ¹⁹ |

今後の展開

- 各熱分解ガス成分の定量、熱分解ガスの燃焼性データ取得
- 火災時の熱流動解析に資するため、GB構成材料の熱分解に伴って放出される全熱分解ガスの発生量及び速度データ取得
- 材料表面での燃焼モデル、グローブボックス静的閉じ込め機能喪失モデルの構築