



Japan Atomic Energy Agency

未来へげんき
To the Future / JAEA

令和3年度
原子力規制庁技術基盤グループ-原子力機構安全研究・防災支援部門
合同研究成果報告会

燃料加工施設の重大事故時における安全性評価研究 ーグローボックス火災時の可燃性ガス放出特性評価ー

令和3年11月2日

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構
安全研究・防災支援部門 安全研究センター
サイクル安全研究グループ

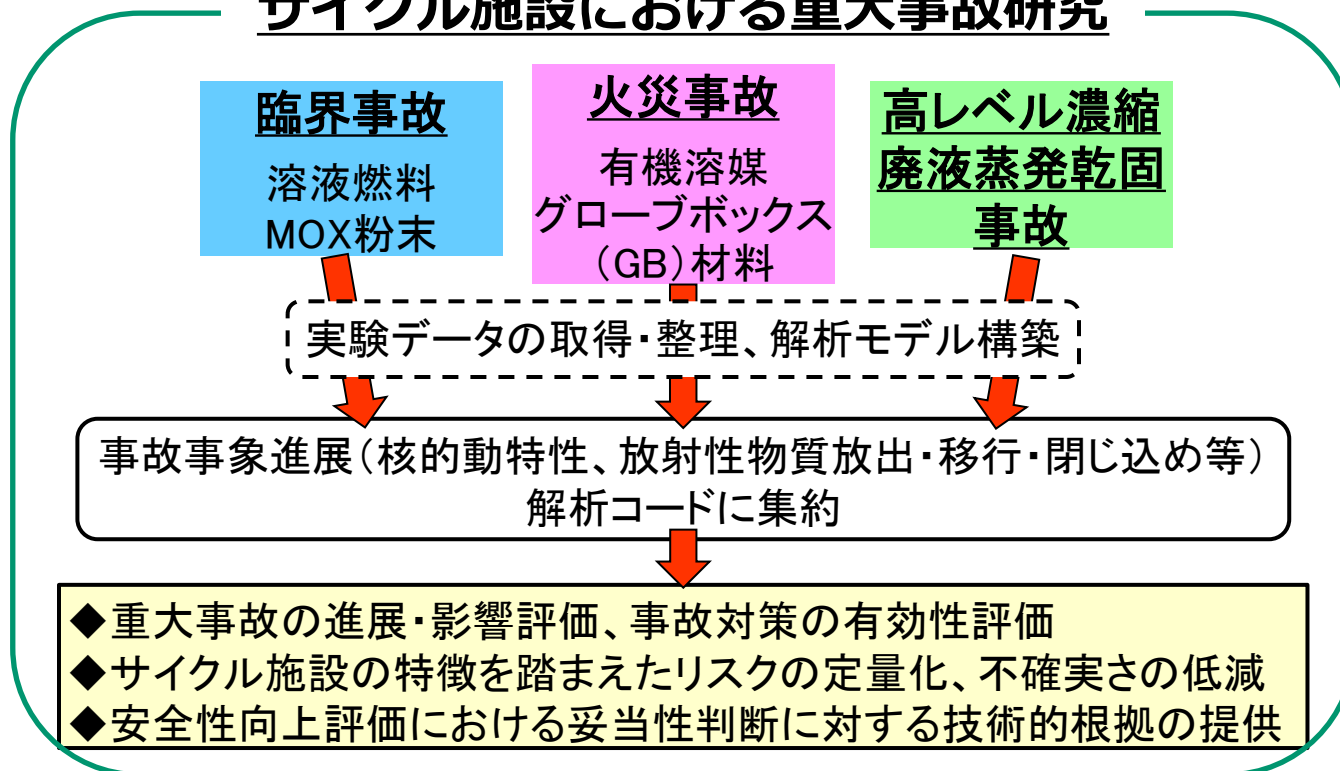
大野 卓也

本研究は原子力施設等防災対策等委託費(再処理施設等における火災事故時影響評価試験)事業の成果を含む。

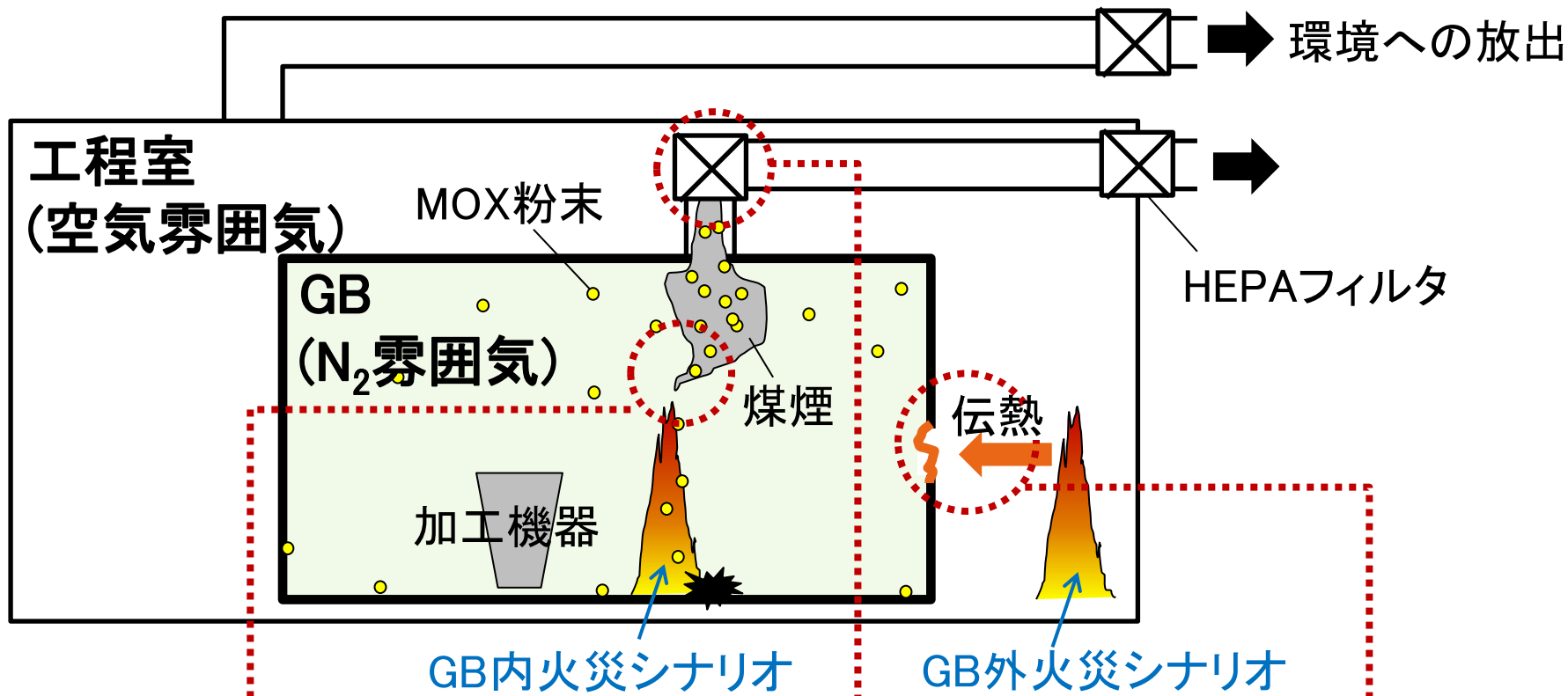
背景と研究の全体像

- 福島第一原子力発電所の事故を受けてサイクル施設に対しても「重大事故」の概念が導入された
- 重大事故時の影響評価及び安全対策の有効性評価に関する実験データの取得及び現象のモデル化を行うとともに解析コードの性能を向上し、事象進展及びソースタームを精度良く評価しうる手法の整備が必要

サイクル施設における重大事故研究



火災事故シナリオ と 本研究の位置づけ



研究課題(1)

気相中へのMOX粉末の飛散

研究課題(2)

HEPAフィルタの目詰まりと破損

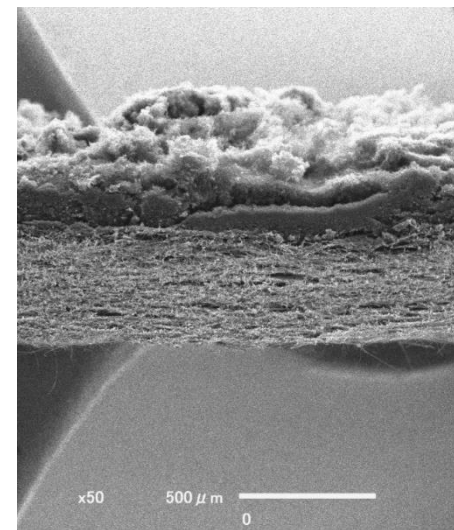
研究課題(3)

グローブボックスへの熱的影響と延焼

研究課題(1)及び(2)に関する取り組み

GB構成材料の燃焼試験

- MOX粉末の模擬物質を添加したGB材料を用いた燃焼試験
 - ・模擬物質の移行割合の測定
 - ・煤煙発生量・発熱量の測定
- GBパネル材を縦置きにした状態での燃焼試験
 - ・パネル材の溶融・変形挙動の観察
- 実サイズHEPAフィルタを用いた煤煙負荷試験
 - ・目詰まり進行にともなうフィルタ差圧の上昇挙動を測定
 - ・フィルタのSEM観察による目詰まりプロセスの推測



※画像出典:委託事業報告書 JAEA(2019)[2]

研究課題(3)の目的

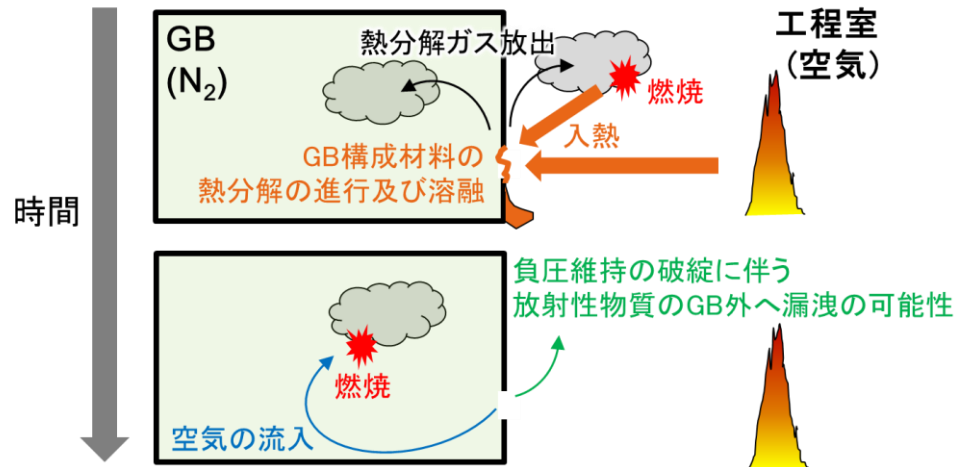
GB火災時の可燃性ガス放出特性評価試験

GB構成材(パネル等)の燃焼継続(自己消炎性の有無等):

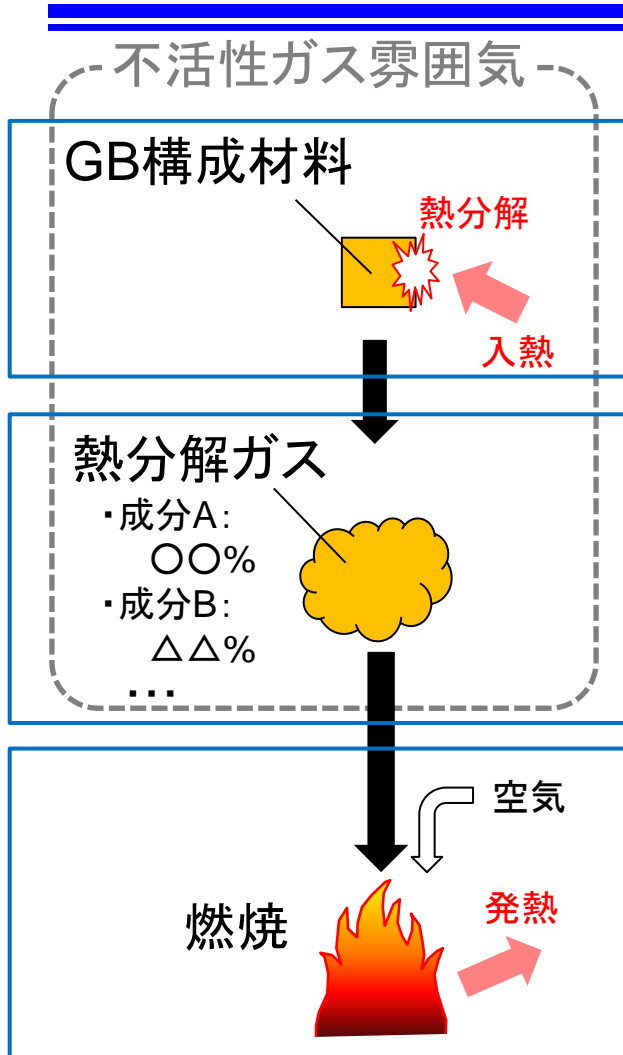
・燃焼性を有する熱分解ガスの放出 ⇒ 着火・延焼 ⇒ GB構成材への加熱 ⇒ 熱分解の進行と熱分解ガスの発生 のプロセスがサイクルとして継続する必要有

⇒ GB構成材による閉じ込め機能の経時変化を評価するためには、GB構成材毎のこれら熱分解ガス発生挙動(発生量・速度、成分、引火性)を定量的に把握し、上記のサイクルをシミュレートするモデルの構築が必要(特に自己消炎性を有するポリカーボネートに着目)

⇒ 過去の文献やいくつかの分析手法を組み合わることで、詳細な熱分解ガス成分毎の発生挙動を把握し、現在進めている各成分の燃焼性に係るデータと組み合わせることで、様々な加熱条件下での各GBパネル材の燃焼継続の有無や焼失に至るまでの経時変化を評価できるモデルの構築を目指している。



研究展開



ステップ①

- GB構成材料の熱分解実験(①-A) 及び文献情報との比較
- 熱分解による材料の重量減少速度のモデル化(①-B)

ステップ②

- 熱分解ガス構成成分の同定・定量 及び文献情報との比較
- 材料の重量減少速度から各ガス成分の放出量を推定

ステップ③

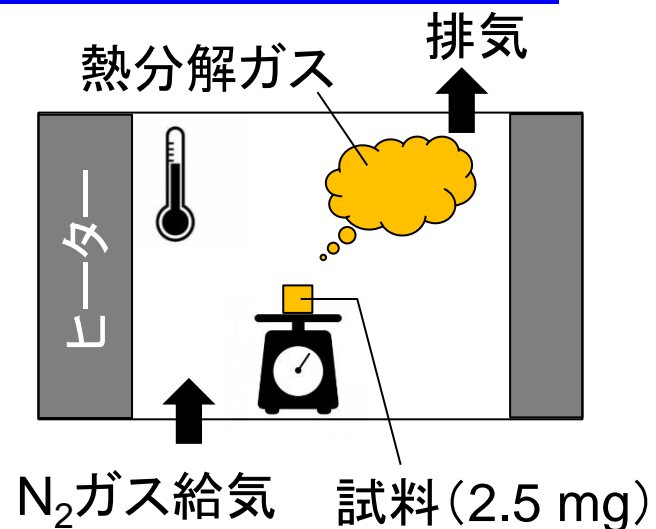
- 熱分解ガスの着火・燃焼特性の把握

本発表

ステップ①-A: GB構成材料の熱分解実験

試験方法: 熱重量(TG)分析

- ヒーターで試料を昇温しながら試料の重量変化(TG)を測定
- 重量減少挙動の解析(後述)のため、昇温速度を5, 10, 15, 20 °C/minと変えて実施



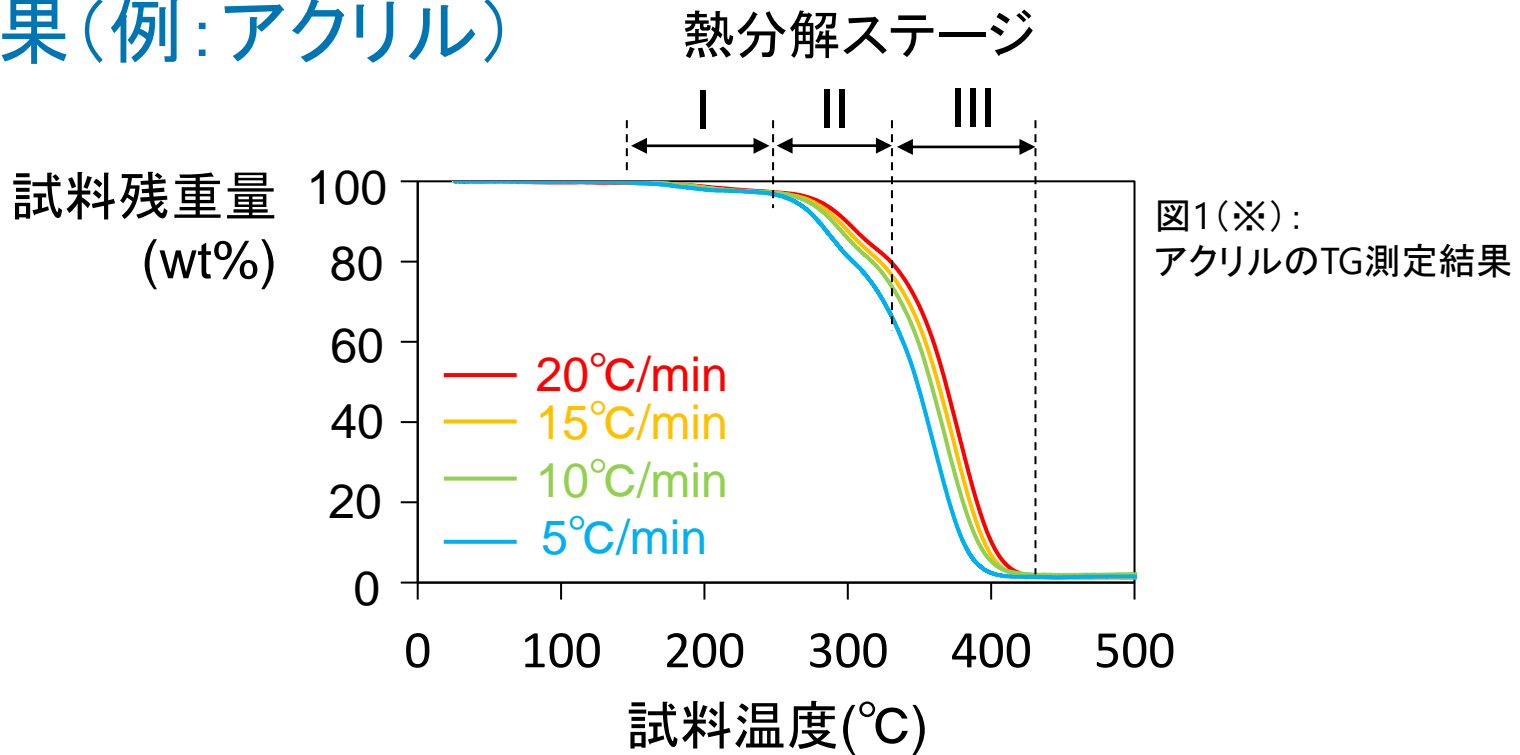
試験に使用した材料

- パネル材: アクリル、ポリカーボネート、難燃化アクリル
…GBを構成する可燃性材料の大部分を占める
- グローブ材及びパッキン材: クロロプレンゴム
…GBの閉じ込め機能を保つうえで重要な材料



ステップ①-A: GB構成材料の熱分解実験

結果(例: アクリル)



- 熱分解の挙動はいくつかのステージに区分できる
- 実験では昇温速度を一定としたが、事故時には一定とならない
- どのような温度変化に対しても各GB構成材料の熱分解及び熱分解ガス放出挙動を予測できるよう、重量減少速度定数の導出を試みた

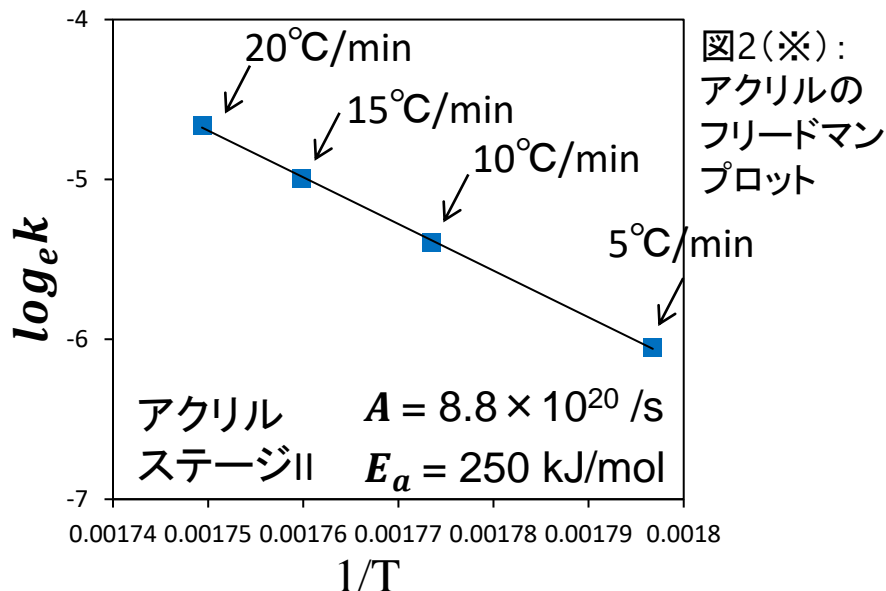
ステップ①-B: 熱分解挙動のモデル化

- 各ステージでの熱分解反応を便宜上一次反応と仮定し、左下のようなプロットから熱分解反応に固有な定数 (A と E_a) を決定することで、温度 T にあわせて変化する見かけ上の熱分解速度 k をその都度計算できるようにした

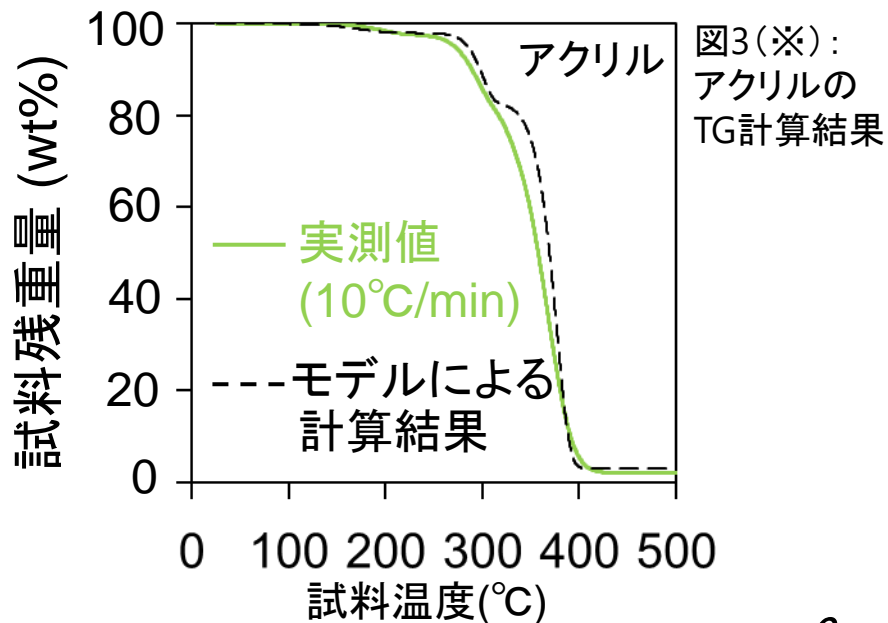
$$k = A \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right)$$

両辺の自然対数をとって ↓

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



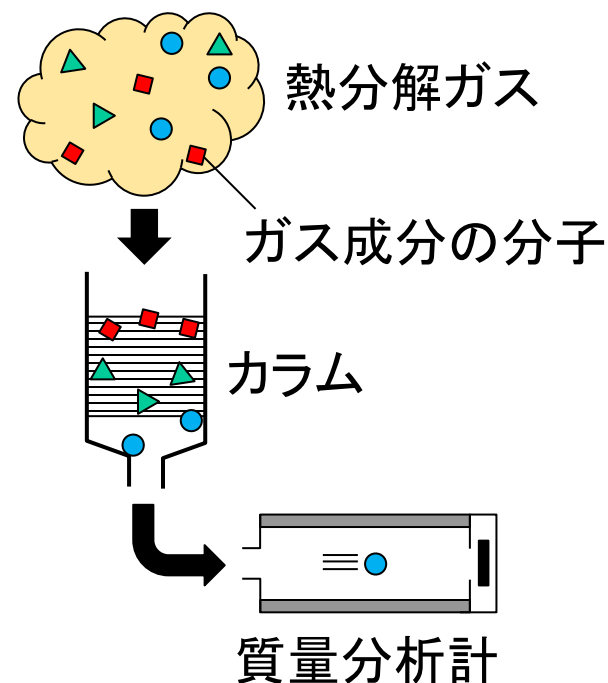
- k : ある時点における熱分解反応の見かけの速度定数
- A : 頻度因子
- E_a : 活性化エネルギー



ステップ②： 熱分解ガス成分の同定・定量

試験方法：主に熱分解GC/MS

- 加熱炉で材料から熱分解ガスを発生させる
- 各熱分解ガス成分をカラムでクロマト分離
- 質量分析により分離された各熱分解ガス成分を定性・定量
- 熱分解GC/MSでの測定に不向きな一部の成分に対しては、他手法を併用
 - ・カールフィッシャー法 : 水
 - ・イオンクロマトグラフィー : 塩化水素
 - ・ガスクロマトグラフィー : 低沸点成分



試験に使用した材料(試料量:約0.1mg)

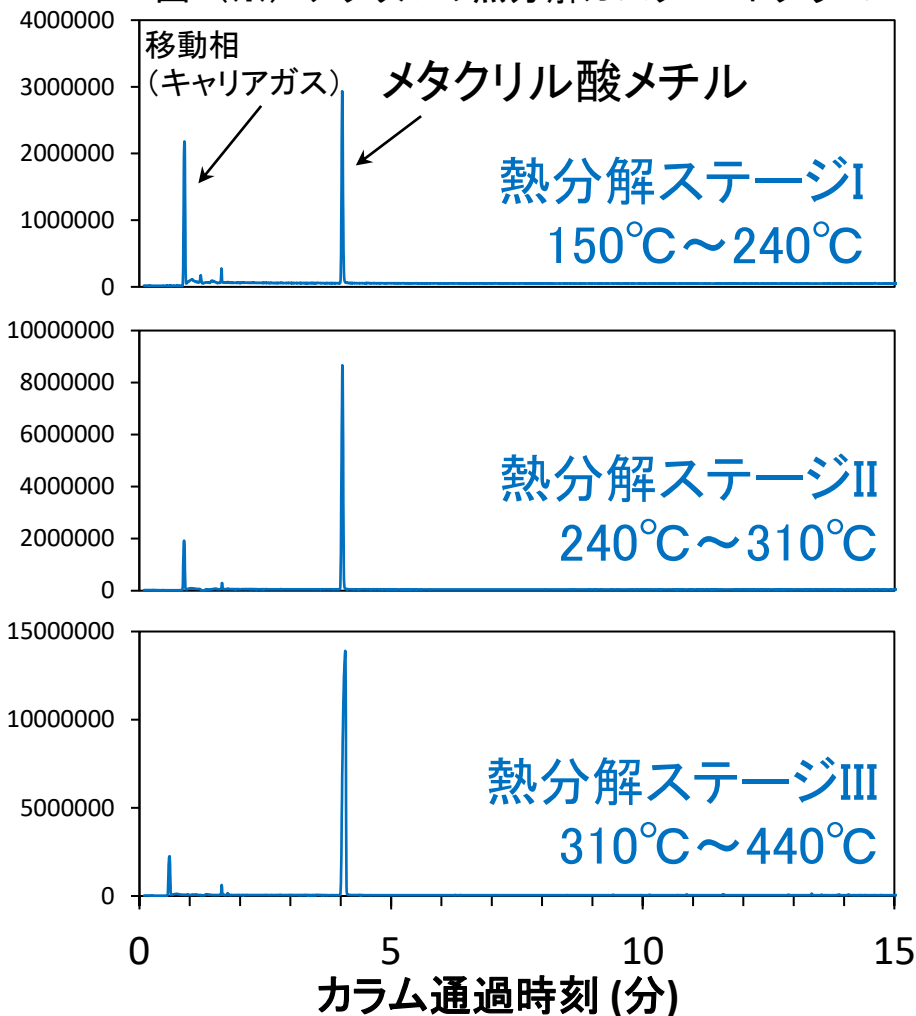
- パネル材: アクリル、ポリカーボネート、難燃化アクリル
- グローブ材: クロロプレンゴム

ステップ②： 熱分解ガス成分の同定・定量

熱分解GC/MS分析結果(例: アクリル)

図4(※): アクリルの熱分解ガスクロマトグラム

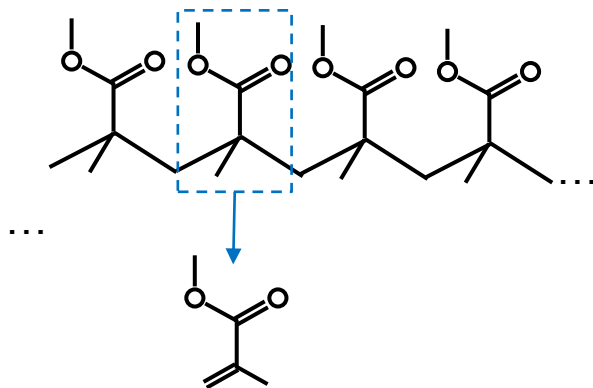
検出強度



➤ アクリルの熱分解ガスの組成はほぼメタクリル酸メチルのみで近似できることを確認できた (材料の重量減少量の98%に相当)

➤ メタクリル酸メチルはアクリルのモノマー材料に相当

アクリル (ポリメタクリル酸メチル)

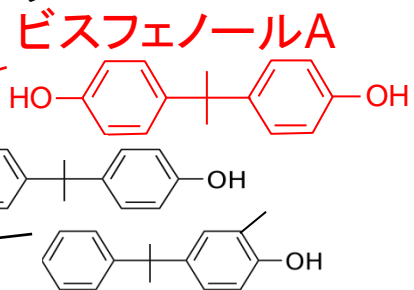
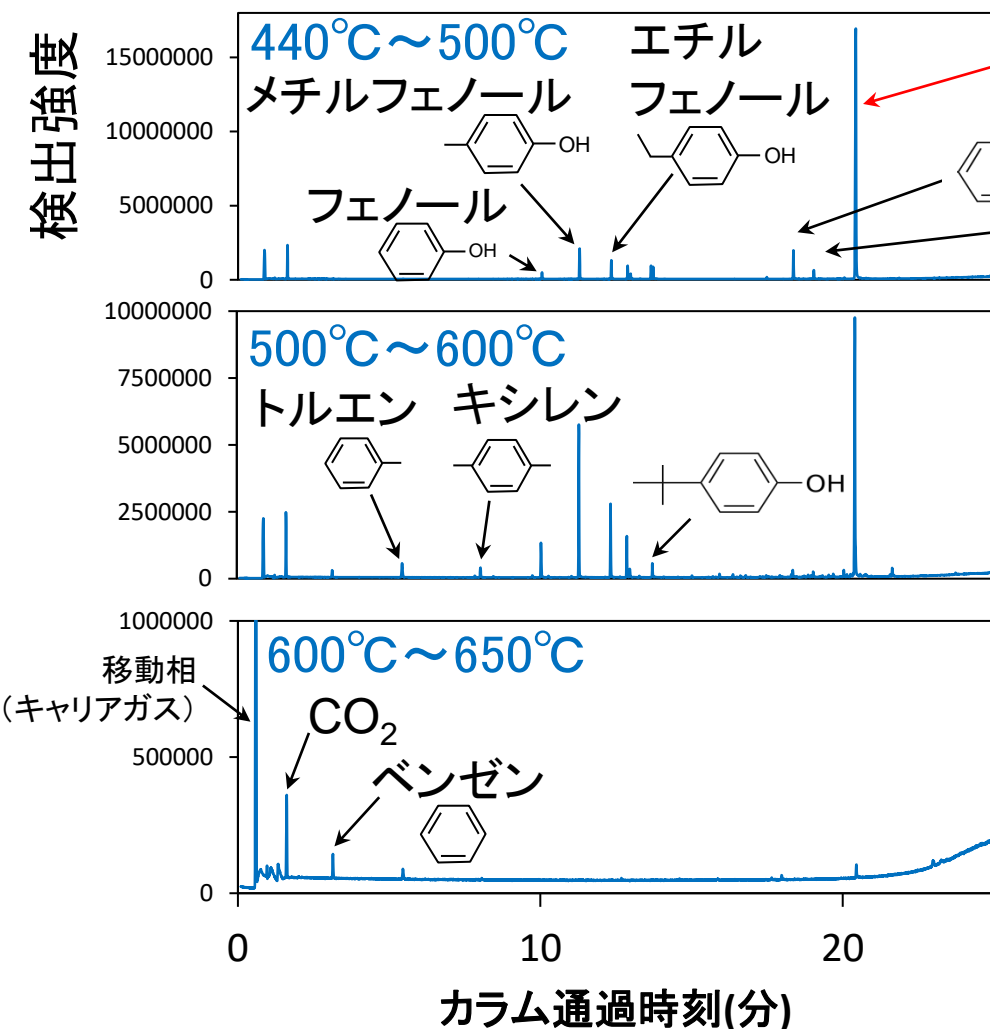


メタクリル酸メチル

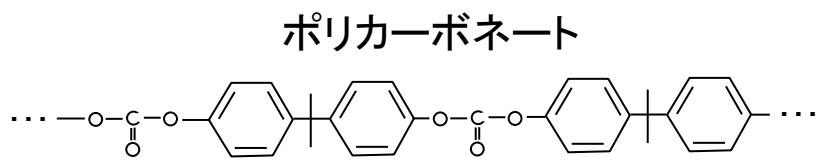
ステップ②： 熱分解ガス成分の同定・定量

熱分解GC/MS分析結果(例:ポリカーボネート)

図5(※):ポリカーボネートの熱分解ガスクロマトグラム



- モノマー材料の**ビスフェノールA**が熱分解ガス組成の最多を占める
- ビスフェノールAの発生量は、材料の重量減少量の約20%に相当
- 高温領域ほど、より分解の進んだ低分子量の芳香族化合物を検出



※出典:委託事業報告書 JAEA(2019)[2]を一部修正

ここまでのモデル化の確認試験

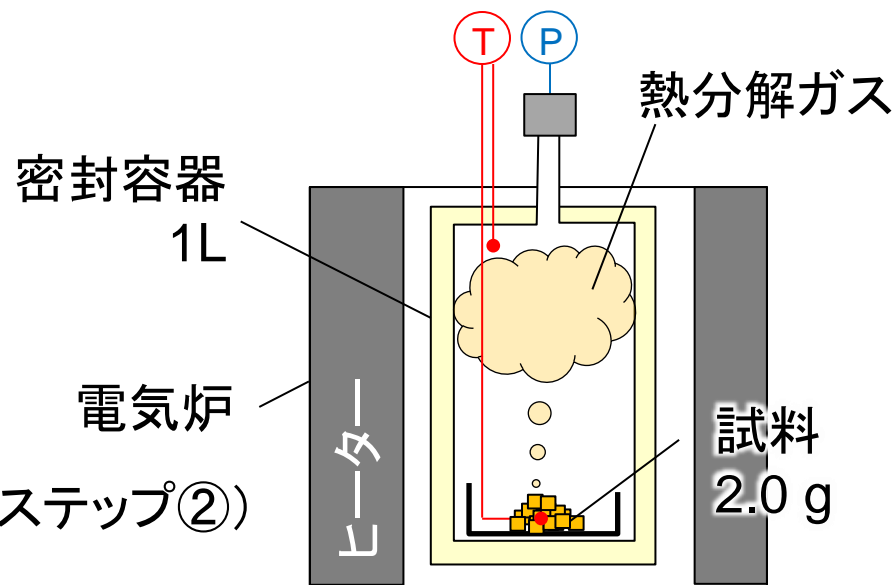
目的

- ステップ①及びステップ②で取得したデータで、熱分解ガスの発生をどの程度予測できるか確認
- 火災防護に資するためのデータであることを念頭に、mgオーダーでの試験結果からより大規模の現象を予測できるのか確認



試験方法

- 試料を密封して加熱
(容器内は N_2 ガス雰囲気)
- **温度T**から材料の重量減少量を計算し(ステップ①)、それを各ガス成分の発生量に換算する(ステップ②)
- これにより**内圧P**の変化を説明できるかを調べる



ここまでのモデル化の確認試験

結果

図6(※1):
密封加熱試験結果と
モデル計算結果の比較(アクリル)

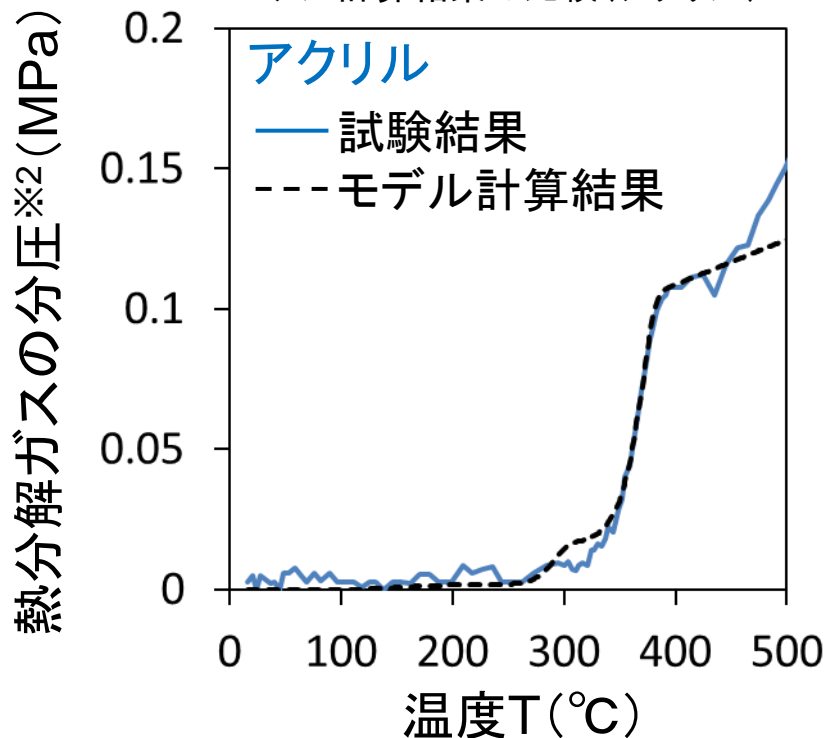
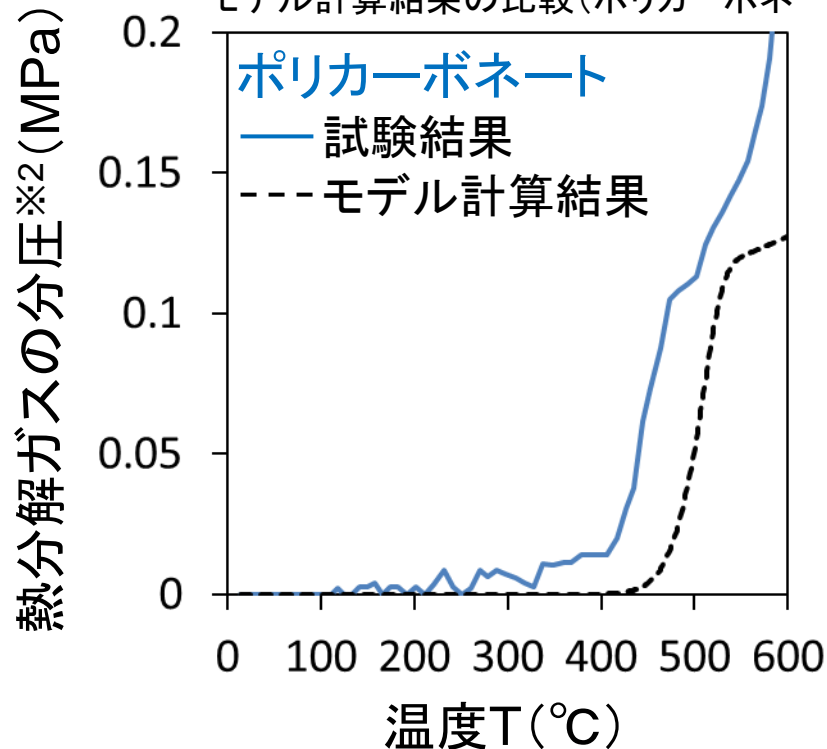


図7(※1):
密封加熱試験結果と
モデル計算結果の比較(ポリカーボネート)



- アクリルについては、モデル計算により試験結果をよく再現できた
- 課題としては、気相中における熱分解反応のモデル化等が挙げられる

※1 出典: 委託事業報告書 JAEA(2019)[2]を一部修正

※2 圧力Pの測定値及びブランク試験(N₂のみ)の結果から熱分解ガスの分圧を計算

まとめ・今後の展開

- 熱重量(TG)分析、熱分解GC/MS分析等によりGB材料からの熱分解ガス放出挙動のモデル化を検討
- パネル材であるアクリルについては、現状のモデルでも精度よく試験結果を模擬できており、モデル化手法の妥当性を確認できた
- ⇒ 熱分解ガスの着火・燃焼特性の把握(ステップ③)で得られる結果も合わせることで、GB構成材料の燃焼状態や燃焼継続の有無を評価するためのモデルを構築
- ⇒ 次のステップとして、**実パネル材を用いた燃焼試験結果**を踏まえ、燃焼継続に伴うGBパネル材表面の溶融や変形についても評価することで、閉じ込め機能喪失に至る事象進展を評価

【参考文献】

- [1] 日本原子力研究開発機構(JAEA), 平成29年度原子力規制庁委託成果報告書, 再処理施設等における火災事故時影響評価試験 (2018)
- [2] 日本原子力研究開発機構(JAEA), 平成30年度原子力規制庁委託成果報告書, 再処理施設等における火災事故時影響評価試験 (2019)
- [3] Takuya Ohno et al., “Consistent modelling of material weight loss and gas release due to pyrolysis and conducting benchmark tests of the model—A case for glovebox panel materials such as polymethyl methacrylate”, PLOS ONE, 16(1), e0245303 (2021)