

平成 31 年度原子力規制庁委託成果報告書

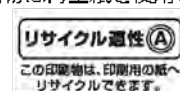
再処理施設等における火災事故時影響評価試験

国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構
令和 2 年 3 月

本報告書は、原子力規制委員会原子力規制庁からの委託により実施した業務の成果を取りまとめたものです。

本報告書に関する問合せは、原子力規制庁までお願いします。

この印刷物は再生紙を使用しています



目 次

目 次

表リスト

図リスト

1. まえがき	1-1
1.1 業務目的	1-1
1.2 事業内容	1-1
2. 熱分解ガス着火・燃焼特性試験	2-1
2.1 概要	2-1
2.2 試験（平成 31 年度）	2-1
2.2.1 試験材料	2-1
2.2.2 試験方法	2-9
2.2.3 結果及び考察	2-14
2.3 試験で得られた知見の整理	2-16
2.3.1 知見の整理に関する基本方針	2-16
2.3.2 各試験で得られたデータの性質の違い	2-17
2.3.3 断熱火炎温度による検討	2-17
2.3.4 FDS による検討	2-20
2.4 本章のまとめ	2-31
参考文献	2-32
3. グローブボックスパネル材料燃焼特性評価試験	3-1
3.1 概要	3-1
3.2 試験装置	3-1
3.2.1 火災時フィルタ目詰り挙動観察装置	3-1
3.3 グローブボックスパネル材料燃焼特性評価試験の実施	3-8
3.3.1 複数種類の GB パネル材の燃焼特性の把握	3-8
3.3.2 GB パネル材燃焼に伴う HEPA フィルタ目詰まりデータの取得	3-72
3.3.3 GB パネル材の形状の変化の観察	3-83
3.4 本章のまとめ	3-128
参考文献	3-131

4. 外部専門家のレビュー	4-1
5. 全体のまとめ	5-1
5.1 概要	5-1
5.2 GB 構成材料熱分解特性試験	5-3
5.2.1 年度展開	5-3
5.2.2 昇温に伴う重量減少速度（平成 29 年度の成果）	5-4
5.2.3 熱分解ガス放出速度・組成（平成 30 年度の成果）	5-4
5.2.4 熱分解ガスの燃焼性（平成 31 年度の成果）	5-4
5.3 GB パネル材料燃焼特性試験	5-5
5.3.1 年度展開	5-5
5.3.2 GB パネル材単独系燃焼特性試験（平成 30 年度の成果）	5-6
5.3.3 GB パネル材複合系燃焼特性試験（平成 31 年度の成果）	5-8
参考文献	5-9

Appendix

A.1 ①限界酸素濃度測定試験の結果	A-1
A.2 ②酸素指数測定試験の結果	A-9
A.3 ③消炎酸素濃度測定試験の結果	A-14
A.4 断熱火炎温度の計算例	A-18
参考文献	A-18

表リスト

表 2.1	熱分解ガス着火・燃焼特性試験の試験材料の一覧	2-3
表 2.2	限界酸素濃度測定試験の結果	2-15
表 2.3	酸素指数測定試験の結果	2-15
表 2.4	消炎酸素濃度測定試験の結果	2-16
表 2.5	FDS に入力した各物性値	2-24
表 2.6	実試験結果と FDS による計算結果の比較	2-28
表 3.1	複数種類の GB パネル材の燃焼特性の把握のための試験条件一覧	3-10
表 3.2	ばい煙化率の評価結果（試験 ID:1-1~1-4）	3-16

表 3.3	試験 ID:1-7 及び 1-8 におけるばい煙化率の評価結果	3-51
表 3.4	試験 ID:1-9、1-10 におけるばい煙化率の評価結果	3-67
表 3.5	GB パネル材料燃焼に伴う HEPA フィルタ目詰まりデータの取得のための試験条件	3-73
表 3.6	GB パネル材の形状の変化の観察のための試験条件	3-84
表 3.7	試験 ID : 3-1~3-5 の PC 板の観察結果のまとめ	3-85
表 3.8	試験 ID : 3-1~3-5 の PC 板の気泡の形成、融解及び延焼挙動のまとめ	3-86
表 4.1	再処理施設等火災事故時影響評価研究専門部会の委員構成	4-1
表 5.1	GB パネル材料燃焼特性試験の研究展開の概要	5-6
表 A.1	メタクリル酸メチルの消炎酸素濃度測定結果	A-14
表 A.2	りん酸トリス(1-クロロ-2-プロピル)の消炎酸素濃度測定結果	A-14
表 A.3	カンフェンの消炎酸素濃度測定結果	A-14
表 A.4	フェノールの消炎酸素濃度測定結果	A-15
表 A.5	メチルフェノールの消炎酸素濃度測定結果	A-15
表 A.6	エチルフェノールの消炎酸素濃度測定結果	A-15
表 A.7	4-tert-ブチルフェノールの消炎酸素濃度測定結果	A-15
表 A.8	4- α -クミルフェノールの消炎酸素濃度測定結果	A-16
表 A.9	キシレンの消炎酸素濃度測定結果	A-16
表 A.10	N-(1,3-ジメチルブチル)-N'-フェニル-p-フェニレンジアミンの 消炎酸素濃度測定結果	A-16
表 A.11	スチレンの消炎酸素濃度測定結果	A-16
表 A.12	1,4-ペンタジエンの消炎酸素濃度測定結果	A-17
表 A.13	アクリルの消炎酸素濃度測定結果	A-17

図リスト

図 2.1	アクリルのガスクロマトグラム (平成 30 年度試験結果)	2-5
図 2.2	難燃アクリルのガスクロマトグラム (平成 30 年度試験結果)	2-6
図 2.3	ポリカーボネートのガスクロマトグラム (平成 30 年度試験結果)	2-7
図 2.4	クロロプレンゴムのガスクロマトグラム (平成 30 年度試験結果)	2-8
図 2.5	限界酸素濃度の概念図	2-10

図 2.6	限界酸素濃度測定試験の試験装置概略図	2-11
図 2.7	酸素指数測定試験及び消炎酸素濃度測定試験の試験装置概略図	2-13
図 2.8	異なる試験で得られた断熱火炎温度の比較	2-19
図 2.9	作成した FDS 用メッシュモデル (左) とその境界条件 (右)	2-22
図 2.10	FDS 解析 (酸素 18%条件) における吸光係数と試料残存量の関係	2-26
図 2.11	FDS 解析結果の例 (酸素 17%条件)	2-27
図 2.12	メタクリル酸メチルに対する③試験についての FDS 解析結果	2-30
図 3.1	ACUA の概略図	3-4
図 3.2	ACUA の外観図	3-5
図 3.3	試験に使用した HEPA フィルタの概要	3-6
図 3.4	試験試料加熱用ヒーターの概要	3-7
図 3.5	試料温度測定用熱電対の測定位置	3-12
図 3.6	燃焼物重量の経時変化 (試験 ID:1-1~1-4)	3-18
図 3.7	試験 ID:1-4 と単一の PMMA 燃焼時の燃焼物重量の経時変化の比較	3-19
図 3.8	HRR の経時変化 (試験 ID:1-1~1-4)	3-20
図 3.9	試験 ID:1-4 と PMMA 単一燃焼時の HRR の経時変化の比較	3-21
図 3.10	試料温度 (熱電対測定位置 : ⑥) の経時変化 (試験 ID:1-1~1-4)	3-22
図 3.11	PC の TG 測定結果 (平成 29 年度結果)	3-23
図 3.12	試料の燃焼の様子 (試験 ID: 1-4、全面燃焼開始から約 7.0 分後)	3-24
図 3.13	試料の燃焼の様子 (試験 ID: 1-4、全面燃焼開始から約 12.0 分後)	3-25
図 3.14	試料の燃焼の様子 (試験 ID: 1-4、全面燃焼開始から約 15.5 分後)	3-26
図 3.15	試験後の試料の燃焼の様子 (試験 ID: 1-4)	3-27
図 3.16	試料の燃焼の様子 (試験 ID: 1-1、全面燃焼開始から約 17.7 分後)	3-28
図 3.17	試料の燃焼の様子 (試験 ID: 1-1、全面燃焼開始から約 22.1 分後)	3-29
図 3.18	試料の燃焼の様子 (試験 ID: 1-1、全面燃焼開始から約 24.3 分後)	3-30
図 3.19	ばい煙の粒径分布の経時変化 (試験 ID:1-1)	3-31
図 3.20	ばい煙の粒径分布の経時変化 (試験 ID:1-2)	3-32
図 3.21	ばい煙の粒径分布の経時変化 (試験 ID:1-3)	3-33
図 3.22	ばい煙の粒径分布の経時変化 (試験 ID:1-4)	3-34
図 3.23	ばい煙の粒径分布の中位径、 σ_g の経時変化 (試験 ID:1-1~1-4)	3-35
図 3.24	PMMA 単一燃焼の場合と試験 ID:1-1 の全面燃焼開始から 6~9 分後までのばい煙の粒径分布の比較	3-36
図 3.25	PMMA 単一燃焼の場合と試験 ID:1-2 の全面燃焼開始から 6~9 分後までのばい煙の粒径分布の比較	3-37

図 3.26	PMMA 単一燃焼の場合と試験 ID:1-3 の全面燃焼開始から 6～9 分後までのばい煙の粒径分布の比較	3-38
図 3.27	PMMA 単一燃焼の場合と試験 ID:1-4 の全面燃焼開始から 6～9 分後までのばい煙の粒径分布の比較	3-39
図 3.28	燃焼物重量の経時変化 (試験 ID:1-4, 1-5)	3-42
図 3.29	H _{RR} の経時変化 (試験 ID:1-4, 1-5)	3-43
図 3.30	試料の燃焼の様子 (試験 ID: 1-5、全面燃焼開始から約 9.0 分後)	3-44
図 3.31	試料の燃焼の様子 (試験 ID: 1-5、全面燃焼開始から約 12.0 分後)	3-45
図 3.32	試料の燃焼の様子 (試験 ID: 1-5、全面燃焼開始から約 16.0 分後)	3-46
図 3.33	試験後の試料の様子 (試験 ID: 1-5)	3-47
図 3.34	ばい煙の粒径分布の経時変化 (試験 ID:1-5)	3-48
図 3.35	燃焼物重量の経時変化 (試験 ID:1-5, 1-7)	3-52
図 3.36	燃焼物重量の経時変化 (試験 ID:1-8)	3-53
図 3.37	燃焼物重量の経時変化 (試験 ID:1-6)	3-54
図 3.38	試料の燃焼の様子 (試験 ID: 1-6)	3-55
図 3.39	試料の燃焼の様子 (試験 ID: 1-7、全面燃焼開始から約 4.2 分後)	3-56
図 3.40	試料の燃焼の様子 (試験 ID: 1-7、全面燃焼開始から約 19.9 分後)	3-57
図 3.41	試料の燃焼の様子 (試験 ID: 1-7、全面燃焼開始から約 20.3 分後)	3-58
図 3.42	試験後の試料の様子 (試験 ID: 1-7)	3-59
図 3.43	試料の燃焼の様子 (試験 ID: 1-8、全面燃焼開始から約 2.9 分後)	3-60
図 3.44	試料の燃焼の様子 (試験 ID: 1-8、全面燃焼開始から約 9.7 分後)	3-61
図 3.45	試料の燃焼の様子 (試験 ID: 1-8、全面燃焼開始から約 11.8 分後)	3-62
図 3.46	試験後の試料の様子 (試験 ID: 1-8)	3-63
図 3.47	ばい煙の粒径分布の経時変化 (試験 ID:1-7)	3-64
図 3.48	単一 PMMA 燃焼時のばい煙の粒径分布に対する 試料形状の影響 (試験 ID:1-8)	3-65
図 3.49	燃焼物重量の経時変化 (試験 ID:1-9, 1-10)	3-68
図 3.50	H _{RR} の経時変化 (試験 ID:1-9, 1-10)	3-69
図 3.51	ばい煙の粒径分布の経時変化 (試験 ID:1-9)	3-70
図 3.52	ばい煙の粒径分布の経時変化 (試験 ID:1-10)	3-71
図 3.53	HEPA フィルタの単位面積当たりのばい煙負荷量と HEPA フィルタの差圧の関係 (試験 ID:2-1～2-3)	3-75
図 3.54	M で規格化した HEPA フィルタに負荷された ばい煙粒子の積算体積の変化	3-76
図 3.55	HEPA フィルタろ紙断面の SEM 撮影結果	

	(試験 ID:2-1 のばい煙負荷の初期段階)	3-77
図 3.56	HEPA フィルタろ紙表面の SEM 撮影結果 (試験 ID:2-1 のばい煙負荷の初期段階)	3-78
図 3.57	HEPA フィルタろ紙断面の SEM 撮影結果 (試験 ID:2-1 のばい煙負荷の中期段階)	3-79
図 3.58	HEPA フィルタろ紙表面の SEM 撮影結果 (試験 ID:2-1 のばい煙負荷の中期段階)	3-80
図 3.59	HEPA フィルタろ紙断面の SEM 撮影結果 (試験 ID:2-1 のばい煙負荷の後期段階)	3-81
図 3.60	フィルタろ紙表面の SEM 撮影結果 (試験 ID:2-1 のばい煙負荷の後期段階)	3-82
図 3.61	試験装置のセットアップの概略図	3-88
図 3.62	試験装置のセットアップ (試験 ID: 3-3)	3-89
図 3.63	試験装置のセットアップ (試験 ID: 3-3)	3-90
図 3.64	PC 背面側の熱電対の取付け位置	3-91
図 3.65	PE 板を用いた試験装置のセットアップ例 (試験 ID: 3-6)	3-92
図 3.66	試験中の試料の様子 (試験 ID:3-1、板間距離 : 5 cm)	3-93
図 3.67	試験後の PC 板の様子 (試験 ID:3-1、板間距離 : 5 cm)	3-94
図 3.68	試験中の試料の様子 (試験 ID:3-2、板間距離 : 10 cm)	3-95
図 3.69	試験後の PC 板の様子 (試験 ID:3-2、板間距離 : 10 cm) (火炎暴露表面)	3-96
図 3.70	試験後の PC 板の様子 (試験 ID:3-2、板間距離 : 10 cm) (背面)	3-97
図 3.71	試験中の試料の様子 (試験 ID:3-3、板間距離 : 15 cm)	3-98
図 3.72	試験後の PC 板の様子 (試験 ID: 3-3、板間距離 : 15 cm)	3-99
図 3.73	試験後の PC 板の様子 (試験 ID:3-3、板間距離 : 15 cm) (背面)	3-100
図 3.74	試験中の試料の様子 (試験 ID:3-4、板間距離 : 25 cm)	3-101
図 3.75	試験後の PC 板の様子 (試験 ID:3-4、板間距離 : 25 cm) (火炎暴露表面)	3-102
図 3.76	試験後の PC 板の様子 (試験 ID: 3-4、板間距離 : 25 cm) (背面)	3-103
図 3.77	試験中の試料の様子 (試験 ID:3-5、板間距離 : 40 cm)	3-104
図 3.78	試験後の PC 板の様子 (試験 ID:3-5、板間距離 : 40 cm)	3-105
図 3.79	試験後の PC 板の様子 (試験 ID:3-5、板間距離 : 40 cm)	3-106
図 3.80	PC 試料の火炎暴露表面の温度分布及びヒストグラム (試験 ID:3-1、板間距離 : 5 cm)	3-107
図 3.81	PC 試料の火炎暴露表面の温度分布及びヒストグラム (試験 ID:3-1、板間距離 : 5 cm)	3-108
図 3.82	PC 試料の火炎暴露表面の温度分布及びヒストグラム	

	(試験 ID:3-1、板間距離 : 5 cm)	3-109
図 3.83	PC 試料の火炎暴露表面の温度分布及びヒストグラム (試験 ID:3-1、板間距離 : 5 cm)	3-110
図 3.84	PC 試料の火炎暴露表面の温度分布及びヒストグラム (試験 ID:3-2、板間距離 : 10 cm)	3-111
図 3.85	PC 試料の火炎暴露表面の温度分布及びヒストグラム (試験 ID:3-2、板間距離 : 10 cm)	3-112
図 3.86	PC 試料の火炎暴露表面の温度分布及びヒストグラム (試験 ID:3-3、板間距離 : 15 cm)	3-113
図 3.87	PC 試料の火炎暴露表面の温度分布及びヒストグラム (試験 ID:3-3、板間距離 : 15 cm)	3-114
図 3.88	PC 試料の火炎暴露表面の温度分布及びヒストグラム (試験 ID:3-4、板間距離 : 25 cm)	3-115
図 3.89	PC 試料の火炎暴露表面の温度分布及びヒストグラム (試験 ID:3-5、板間距離 : 40 cm)	3-116
図 3.90	PC 板の火炎暴露の背面側の温度分布 (試験 ID:3-1、パネル間距離 5 cm) ·	3-117
図 3.91	PC 試料の温度分布 (試験 ID:3-2、パネル間距離 10 cm)	3-118
図 3.92	PC 試料の温度分布 (試験 ID:3-3、パネル間距離 15 cm)	3-119
図 3.93	PC 試料の温度分布 (試験 ID:3-4、パネル間距離 25 cm)	3-120
図 3.94	PC 試料の温度分布 (試験 ID:3-5、パネル間距離 40 cm)	3-121
図 3.95	試験 ID:3-6 の PE の着火操作時の様子	3-122
図 3.96	試験 ID:3-6 の PE の着火操作終了直後の様子	3-123
図 3.97	試験 ID:3-6 の PE の燃焼中の様子	3-124
図 3.98	試験 ID:3-7 の PE の着火操作終了直後の様子	3-125
図 3.99	試験 ID:3-7 の PE の燃焼中の様子	3-126
図 3.100	試験 ID:3-7 の燃焼後の PE の様子	3-127
図 5.1	GB 火災において考慮される事故事象の例	5-2
図 5.2	GB 構成材料熱分解特性試験の年度展開の概要	5-3
図 A.1	メタクリル酸メチル (60°C) の限界酸素濃度測定結果	A-1
図 A.2	メタクリル酸メチル (80°C) の限界酸素濃度測定結果	A-2
図 A.3	メタクリル酸メチル (100°C) の限界酸素濃度測定結果	A-3
図 A.4	2,3-ジヒドロベンゾフランの限界酸素濃度測定結果	A-4
図 A.5	キシレンの限界酸素濃度測定結果	A-5

図 A.6	1,4-ペンタジエンの限界酸素濃度測定結果	A-6
図 A.7	リモネンの限界酸素濃度測定結果	A-7
図 A.8	スチレンの限界酸素濃度測定結果	A-8
図 A.9	ビスフェノール A の酸素指数測定結果	A-9
図 A.10	アクリルの酸素指数測定結果	A-10
図 A.11	難燃アクリルの酸素指数測定結果	A-11
図 A.12	ポリカーボネートの酸素指数測定結果	A-12
図 A.13	クロロプレンゴムの酸素指数測定結果	A-13

1. まえがき

1.1 業務目的

本事業では、MOX 加工施設及び再処理施設での特徴的な火災の一つであるグローブボックス（以下「GB」という。）火災に着目し、事故進展評価や事故時の放射性物質の移行挙動・閉じ込め

評価に必要なデータ等を取得することにより、火災解析評価に関する手法の整備に資することを目的とした。

1.2 事業内容

GB 火災事故時の放射性物質の環境への漏えいについては、A.火災の発生→B.発生した火災による放射性物質の気相への移行→C.放射性物質及びばい煙の排気系への移行又は各閉じ込めの障壁からの漏えい(GB→工程室→建屋→環境)など、火災の進展に伴う放出経路について検討して評価することになる。A.ではばい煙の発生を含む可燃物の燃焼特性が、B.では火勢による放射性物質の空気中への拡散が、また、C.については、放射性物質の移行率、すすの移行経路での沈着率及び換気フィルタの性能への影響の情報が必要となる。

この観点を踏まえ、本事業では、①GB 構成材料の熱分解特性、②GB 構成材料の燃焼特性及び③換気系フィルタに対する影響に係るデータを想定される事故対策と関連付けて取得することとしている。

平成 31 年度は、グローブボックス火災評価試験として、①～③に位置付けられる試験を実施した。具体的には次のとおり。

(1)グローブボックス火災評価試験

・熱分解ガス着火・燃焼特性試験

平成 30 年度に実施した試験を踏まえ、GB 構成材料(アクリル樹脂、ポリカーボネート等)の熱分解に伴って放出される可燃性ガス成分について着火試験を行い、それらの燃焼特性に関するデータを取得し、得られた知見を整理した。

・グローブボックスパネル材料燃焼特性評価試験

大型の燃焼セルを備え、実機サイズの高性能粒子エアフィルタが取付け可能な火災試験装置を用い、複数種類の GB パネル材の同時燃焼時及び必要に応じて単一の GB パネル材の燃焼時の基礎的な燃焼特性データ(重量減少速度、ばい煙放出量、ばい煙粒径分布等)とフィルタ目詰まりへの影響評価データを取得した。また、複数種類の GB パネル材の燃焼時と単一の GB パネル材燃焼時のデータを比較した。

(2)本事業に関する研究成果の取りまとめ

平成29年度から平成31年度までに実施したグローブボックス火災評価試験全体の研究成果をまとめた。

なお、事業の実施に当たっては、研究計画、試験方法、取得したデータの透明性及び客観性を高めるために、再処理及び加工の事業者並びに再処理施設及び加工施設の主たる設計・製造業者とは独立している外部有識者から構成される委員会を設置し、外部有識者の意見を参考にするとともに技術的側面からのレビューを受けた。

2. 熱分解ガス着火・燃焼特性試験

2.1 概要

本試験は、平成 29 年度及び平成 30 年度に行われた GB 構成材料（アクリル、難燃アクリル、ポリカーボネート及びクロロプレンゴム）の熱分解挙動に関する研究を踏まえて実施されるものである。以下に平成 29 年度試験及び平成 30 年度試験での成果と、平成 31 年度試験での展開について、その概要を示す。

平成 29 年度試験では、熱天秤－質量分析装置（TG-DTA-MS）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取得した。その結果、外部からの入熱による材料の温度変化から、熱分解による材料の重量減少量及び重量減少速度を推定できるようになった。

平成 30 年度の試験では、GB 構成材料の熱分解に伴って放出される主な有機ガス成分の温度上昇に伴う放出挙動（放出量＋放出速度）を観察した。その結果、熱分解による材料の重量減少量に対し、どのような成分の熱分解ガスがどの程度の量放出されるかを把握することができた。

平成 31 年度の試験では、平成 30 年度試験で把握された各有機ガス成分が気相中で燃焼に至るための条件を調べた。具体的には、①限界酸素濃度測定試験、②酸素指数測定試験及び③消炎酸素濃度測定試験の 3 種類の試験を実施し、各ガス成分が燃焼に至る酸素濃度に関するデータを取得した。また、これらの試験で得られた知見を整理した。

2.2 試験（平成 31 年度）

2.2.1 試験材料

表 2.1 に試験材料の一覧を示す。なお、表中の①試験、②試験及び③試験の各手法については 2.2.2 項で後述する。

試験材料とするガス成分は、以下の基準を全て満たすものを選定した。選定された成分の純物質を試薬として調達し、それを試験材料とした。

- ・平成 30 年度に実施した熱分解ガスクロマトグラフ質量分析（Py-GC-MS 分析）においてクロマトグラム上で明瞭にピークが現れたもの（図 2.1～図 2.4 に各 GB 材料のクロマトグラムを示す。）
- ・純物質を試薬として調達できるもの
- ・限界酸素濃度の文献値が存在しないもの

なお、上述の「純物質を試薬として調達できるもの」の条件により試験対象から除外した物質としては、りん酸トリス(1-クロロ-2-プロピル)の類似化合物及びカンフェンの類似化合物が存在する。これらの化合物はクロマトグラム上でも大きなピークを有するため、これらの類似化合物も本来であれば逐一試験対象とすべきものであった。そこで、本研究では、類似化合物の物性は代表物質（りん酸トリス(1-クロロ-2-プロピル)及びカンフェン）の物性とほぼ同等という仮定を導入することで、本研究の目的と合致させることとした。これらの代

表物質については、試験対象物質に含まれている。また、クロマトグラムに示す通り、その他にも同条件を満たさなかったことにより試験対象から除外した成分が存在する。しかしながら、これらの物質はクロマトグラム上でのピークは比較的小さいものであり、全ガスに対して量的には無視できる程度と思われる。よって、今回は試験対象から除外しても本研究の目的に資することができるものと判断した。

また、上述の「限界酸素濃度の文献値が存在しないもの」の条件により試験対象から除外した物質としては、トルエンが存在する。

以上の基準により選定したガス成分のほか、細片状にした GB 材料（実材料）も試験対象とした。これは、各ガス成分を対象とした試験データより、実材料の燃焼性をどの程度模擬できるかの検討材料とするためである。

表 2.1 熱分解ガス着火・燃焼特性試験の試験材料の一覧

材料 ID	試験材料	室温での状態	由来する GB 材料	型番/メーカー	試験方法*
1	メタクリル酸メチル	液体	アクリル 難燃アクリル	139-02726 / Wako	①③
2	りん酸トリス(1-クロロ-2-プロピル)	液体	難燃アクリル	QA-1555 / Combi-Blocks	③
3	カンフェン	固体	難燃アクリル	A18040 / Alfa Aesar	③
4	フェノール	固体	ポリカーボネート	168-01035 / Wako	③
5	メチルフェノール	液体	ポリカーボネート	037-16385 / Wako	③
6	エチルフェノール	固体	ポリカーボネート	053-02555 / Wako	③
7	2,3-ジヒドロベンゾフラン	液体	ポリカーボネート	322-66492 / Wako	①
8	4-tert-ブチルフェノール	固体	ポリカーボネート	020-07545 / Wako	③
9	4- α -クミルフェノール	固体	ポリカーボネート	036-08925 / Wako	③
10	ビスフェノール A	固体	ポリカーボネート	166-05115 / Wako	②

*) ①限界酸素濃度測定試験 ②酸素指数測定試験 ③消炎酸素濃度測定試験

表 2.1 熱分解ガス着火・燃焼特性試験の試験材料の一覧（続き）

材料 ID	試験材料	室温での状態	由来する GB 材料	型番/メーカー	試験方法*
11	キシレン	液体	ポリカーボネート	244-00145 / Wako	①③
12	リモネン	液体	クロロプレンゴム	46838 / Fluorochem	①
13	N-(1,3-ジメチルブチル)-N'-フェニル-p-フェニレンジアミン	固体	クロロプレンゴム	323-33295 / Wako	③
14	1,4-ペンタジエン	液体	クロロプレンゴム	P0038 / 東京化成工業	①③
15	スチレン	液体	クロロプレンゴム	191-08206 / Wako	①③
16	アクリル	固体	(実材料)	アクリライト L001/三菱レーヨン	②③
17	難燃アクリル	固体	(実材料)	アクリライト FR3/三菱レーヨン	②
18	ポリカーボネート	固体	(実材料)	ポリカーボネート板 1600/タキロンシーアイ	②
19	クロロプレンゴム	固体	(実材料)	(非公開) **	②

*) ①限界酸素濃度測定試験 ②酸素指数測定試験 ③消炎酸素濃度測定試験

**） 商社からの聞き取りにより、原子力施設への納入量が多いものを選定した

黄色掛けのピーク:
試験材料とした物質のピーク

黒字:未定量成分
赤字:定量済み成分
%:定量値(サンプル量に対するwt%)

アクリルのガスクロマトグラム

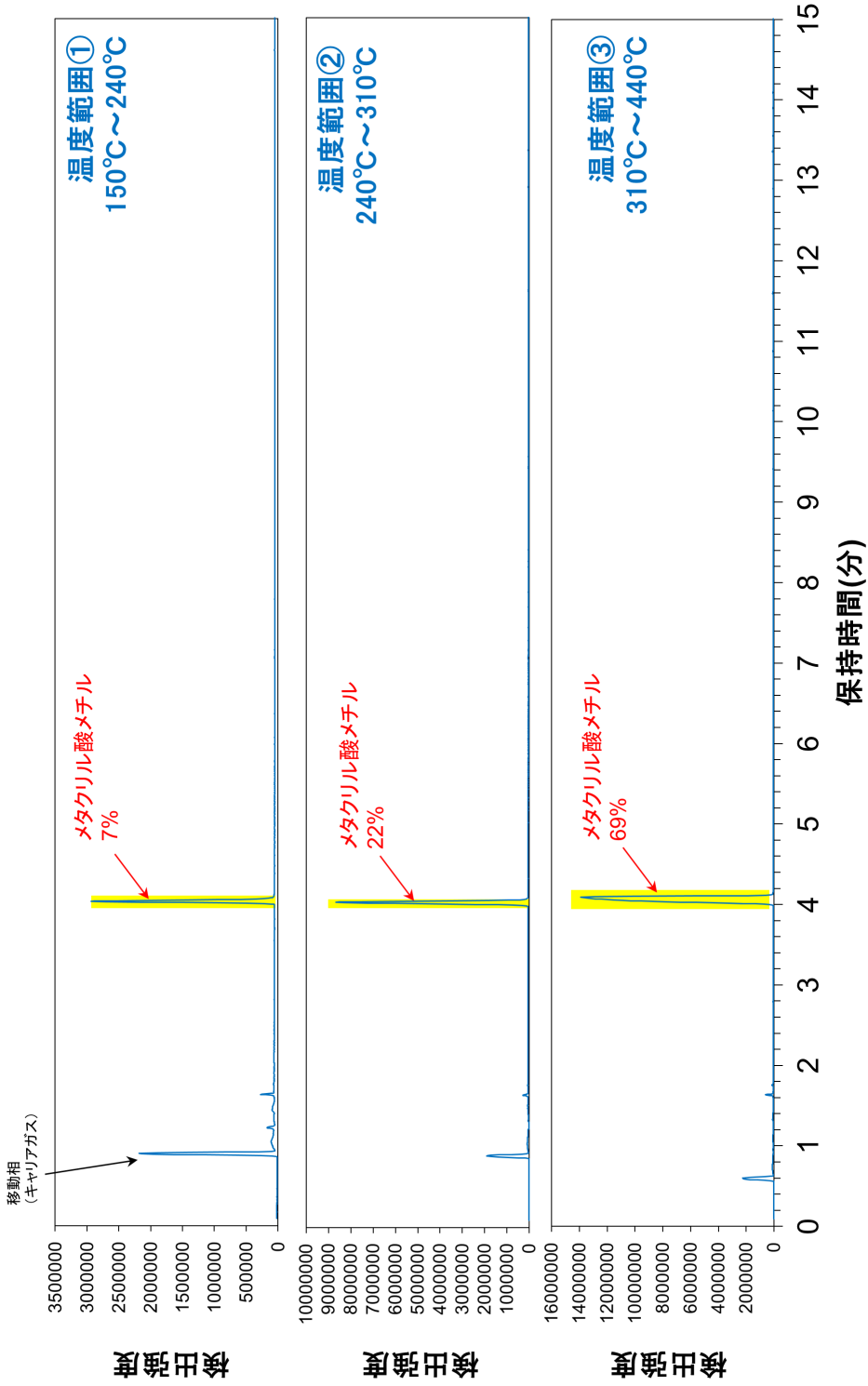


図 2.1 アクリルのガスクロマトグラム (平成 30 年度試験結果)

黄色掛けのピーク:
試験材料とした物質のピーク

難燃アクリルのガスクロマトグラム

黒字:未定量成分
赤字:定量済み成分
%:定量値(サンプル量に対するwt%)

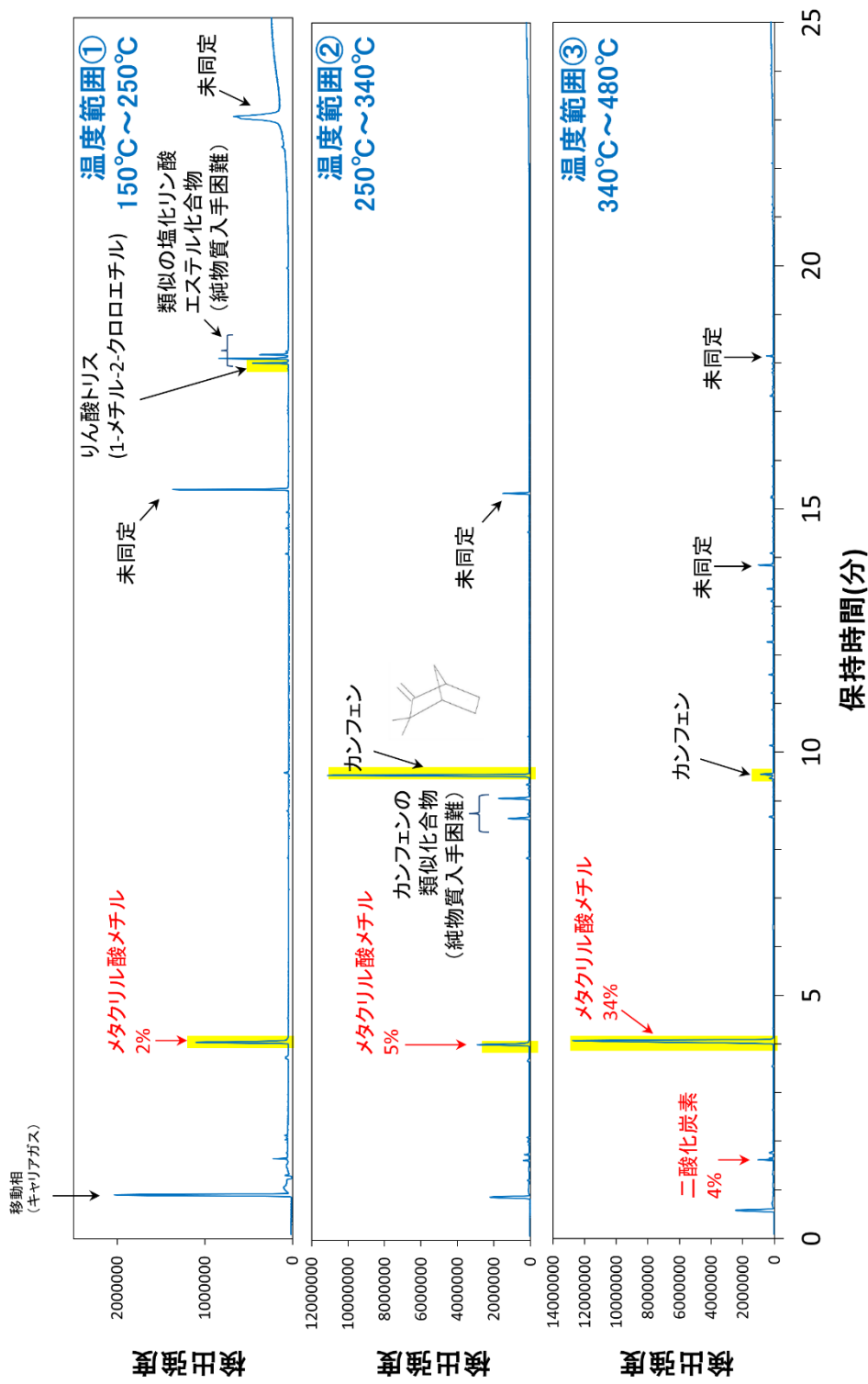


図 2.2 難燃アクリルのガスクロマトグラム (平成 30 年度試験結果)

黄色掛けのピーク：
試験材料とした物質のピーク

ポリカーボネートのガスクロマトグラム

黒字：未定量成分
赤字：定量済み成分
%：定量値(サンプル量に対するwt%)

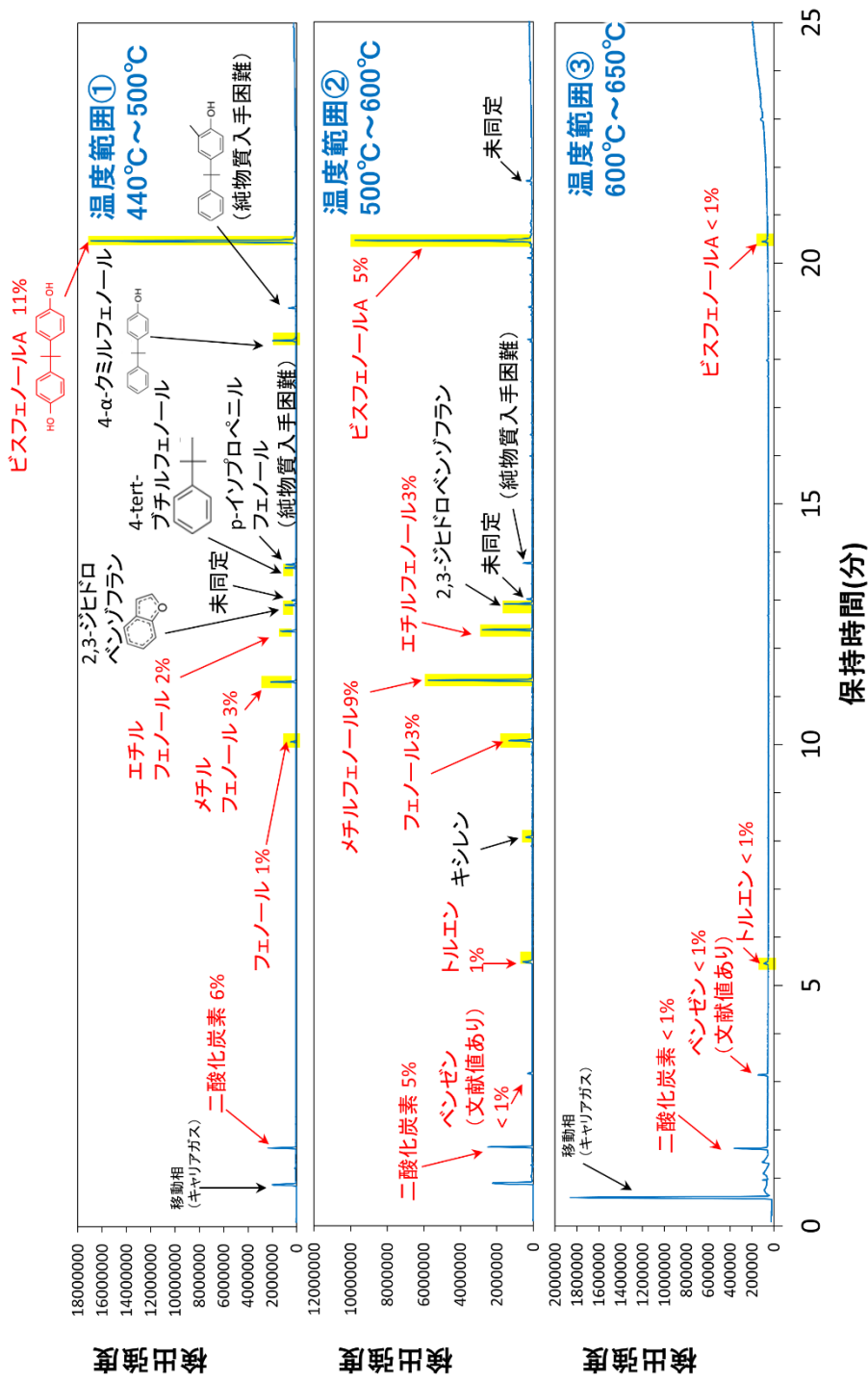


図 2.3 ポリカーボネートのガスクロマトグラム (平成 30 年度試験結果)

黄色掛けのピーク:
試験材料とした物質のピーク

クロロプレンゴムのガスクロマトグラム

黒字: 未定量成分
赤字: 定量済み成分
%: 定量値(サンプル量に対するwt%)

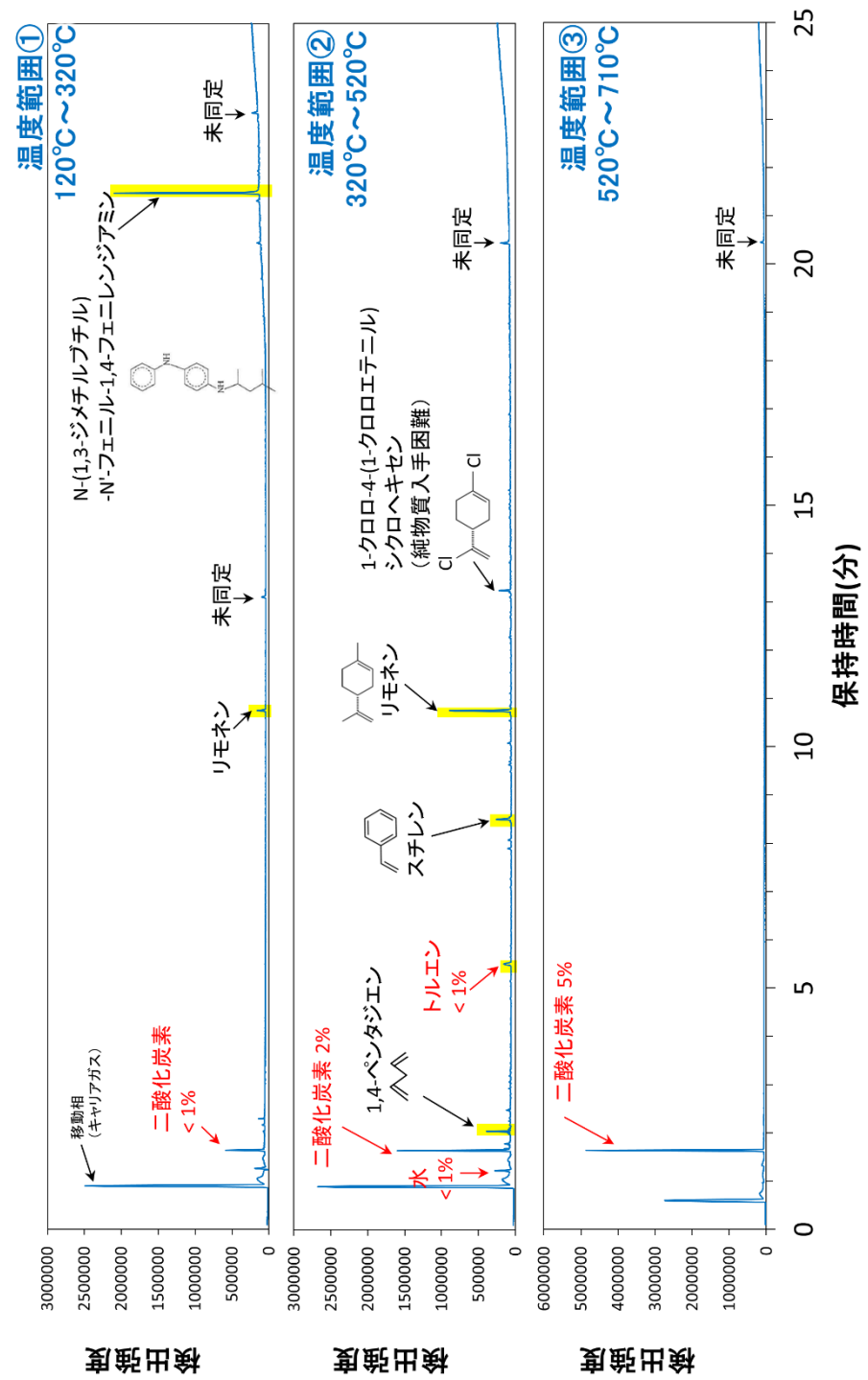


図 2.4 クロロプレンゴムのガスクロマトグラム (平成 30 年度試験結果)

2.2.2 試験方法

試験方法は、試験材料の特性（常温での状態（固体か液体か）、沸点、燃えやすさ（酸素指数にして18%未満かそれ以上か））に合わせて、3種類の試験から選択した。3種類の試験方法とは、①限界酸素濃度測定試験、②酸素指数測定試験及び③消炎酸素濃度測定試験の3つである。各試験材料に対して選択した試験方法は表2.1に示した。

なお、メタクリル酸メチル、キシレン、1,4-ペンタジエン及びスチレンについては①試験と③試験の両試験を実施し、アクリルについては②試験と③試験の両試験を実施した。これは各試験結果の関連付けの検討に資するためである。

①限界酸素濃度測定試験

限界酸素濃度とは、可燃ガス—酸素—不活性ガス（窒素）の三成分系において、いかなる可燃ガス濃度においても燃焼反応が起こらなくなる酸素濃度である（図2.5）。この限界酸素濃度は他の2試験で得られるデータと比較してより普遍的なものであると考えられる。その理由は次のとおりである。すなわち、限界酸素濃度の測定試験はガス化した状態での可燃成分の反応性を調べる試験であるため、実際の気相中での反応に近い条件下で燃焼反応が生じるか否かの境界条件となるパラメータが取得されることが考えられる。事実、FDS（Fire Dynamics Simulator⁽²⁻¹⁾）等の火災解析コードではこうした気相反応の境界条件となる酸素濃度やそれに準ずる値が入力パラメータとして要求される場合が多く見受けられる。

図2.6に限界酸素濃度測定試験に用いた試験装置の概略図を示す。また、試験方法の概要は以下の通りである。本試験方法は、有機ガス成分の燃焼性評価試験で広く用いられている手法であり（例えば、Burgessほか⁽²⁻²⁾）、本試験で採用した方法もそれにのっとったものである。

- 1) 試験器（1L球形）の温度を試験温度に安定化し、真空引きをする。
- 2) 試験器に任意量の試料ガス、窒素及び酸素を導入し、攪拌する。試料ガスは、試料気化器を用いた試薬の加熱により発生させる。
- 3) 電極をつなぐニクロム線を溶断することで着火し、爆発（すなわち、ガスの燃焼）が生じるか調べる。
- 4) 以上1)～3)を繰り返し、限界酸素濃度の値（0.2%刻み）を得る。

点 a の試料濃度 ; 上限界濃度
点 b の試料濃度 ; 下限界濃度
点 c の酸素濃度 ; 限界酸素濃度

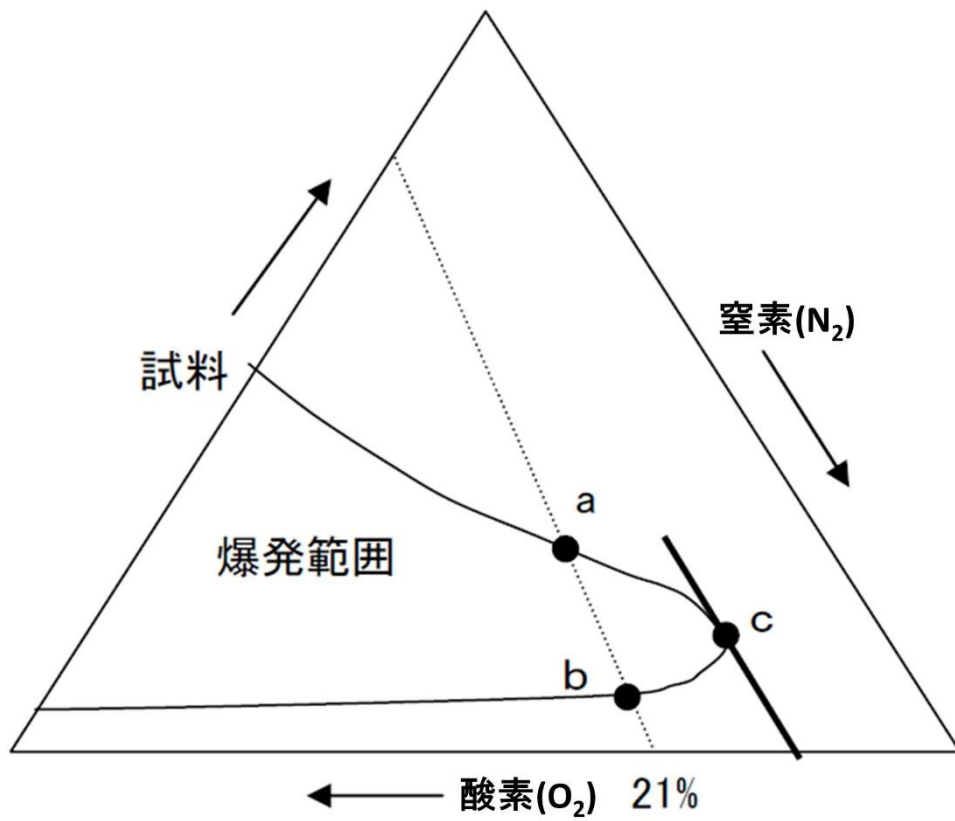


図 2.5 限界酸素濃度の概念図

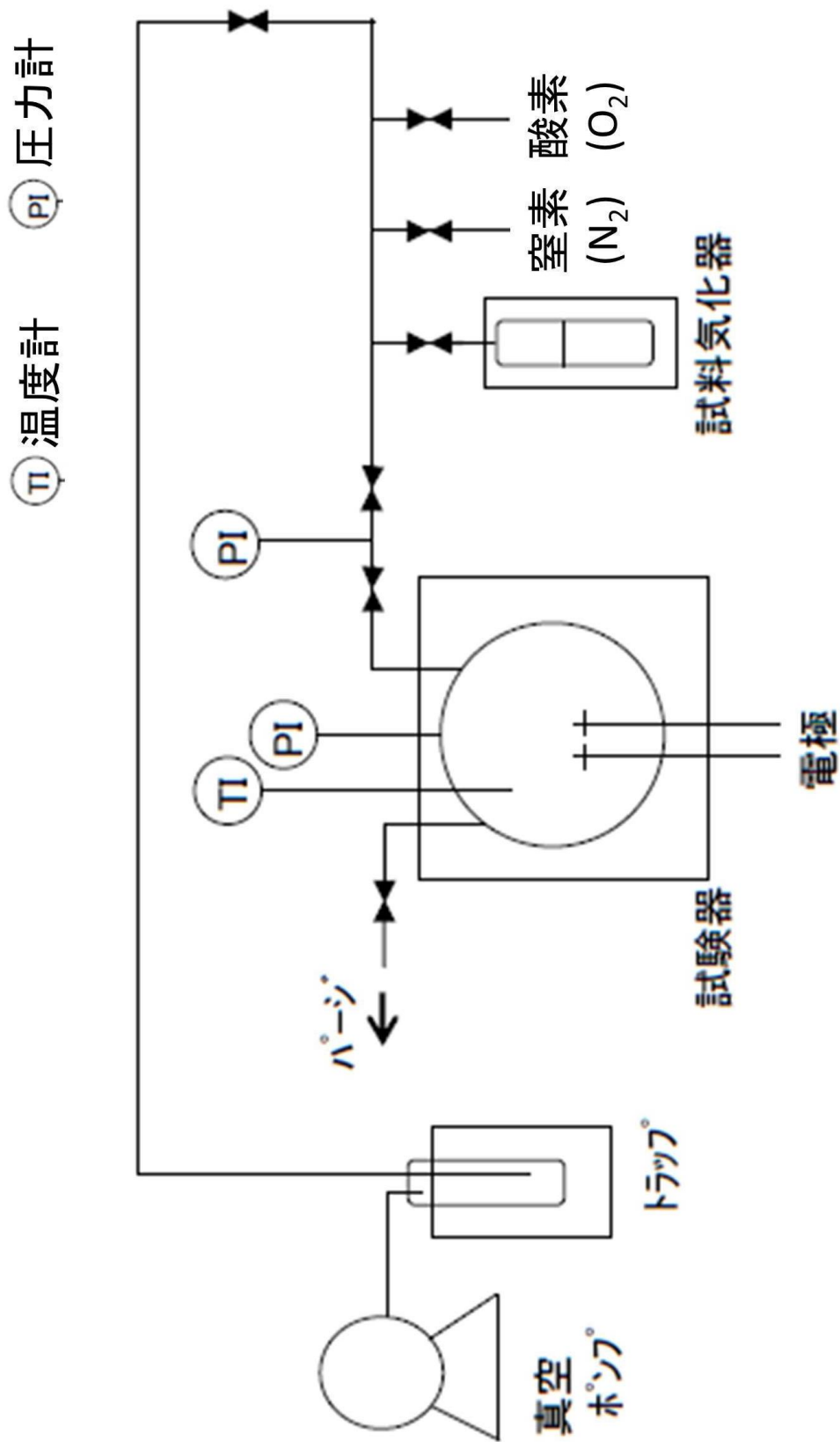


図 2.6 限界酸素濃度測定試験の試験装置概略図

なお、試験温度は示差走査熱量測定（DSC）で現れたシグナルピーク位置を参考に、熱分解の可能性のない範囲でできるだけ高温条件に設定した。また、試験温度による測定値への影響を把握するため、メタクリル酸メチルに対しては試験温度 60℃、80℃及び 100℃の 3 条件で試験を行った。その他の試験材料について設定した試験温度は、試験結果とともに表 2.2 に示す。

また、この試験方法は、固体試料若しくは揮発性の低い液体試料に対しては適用することができなかった。その理由は、固体試料については、減圧時に舞い上がった粉じんが装置内部で目詰まりを起こす可能性があったからである。また、揮発性の低い液体試料については、ガス化するために試験系を高温にする必要があるが、高温すぎる条件では系の密封性を担保できなくなる可能性があったため、この試験方法には不適と判断した。

②酸素指数測定試験

酸素指数とは、固体試料の継続燃焼が起こらなくなる酸素濃度を指す。ここで測定する酸素指数とは、材料の難燃性を評価する指標として広く用いられているものである。酸素指数の定義及びその測定方法は、平成 7 年消防危第 50 号^(2・3)により公準化されており、本試験でもそれに従った。酸素指数測定試験に用いた試験装置の概略図を図 2.7 に示す。また、その試験方法は以下のとおりである。

- 1) 試料の初期重量を秤量後、試料セルに充填する。試料セルは石英ガラス製で、内径 18 mm、深さ 2 mm の円筒形である。試料は粉状若しくは 2 mm 四方に収まる細片状のものを使用し、1 試験あたり約 0.2 g 充填した。
- 2) 窒素ガス及び酸素ガスを試験条件となる酸素濃度 X%で導入しながら、着火器により試料に着火する。ここで、X は酸素濃度を変化させることを意味する。窒素ガス及び酸素ガスの合計流量は 11.4 L/min で一定となるようにした。
- 3) 試料の炎が鎮火した後、試料の残重量を測定する。測定された残重量より、燃焼による試料の重量減少量を計算し、以下に定義される換算燃焼率を求める。

$$\text{換算燃焼率(\%)} = \frac{\text{酸素 X\% 下での重量減少量}}{\text{酸素 100\% 下での重量減少量}} \times 100$$

- 4) 以上 1)～3) を繰り返し、換算燃焼率が 50%となる酸素濃度を酸素指数とする。

この試験方法は、液体試料若しくは燃えやすい固体試料（酸素指数 18 未満）に対しては適用することができなかった。その理由は、液体試料については、試料の揮発により秤量中や着火中に重量減少が生じ、再現性のある秤量値が得られなかったためである。また、燃えやすい固体試料については、導入する酸素濃度を 18%未満とすると着火器の炎が消えてしまい、試料を燃焼させることができなかったためである。

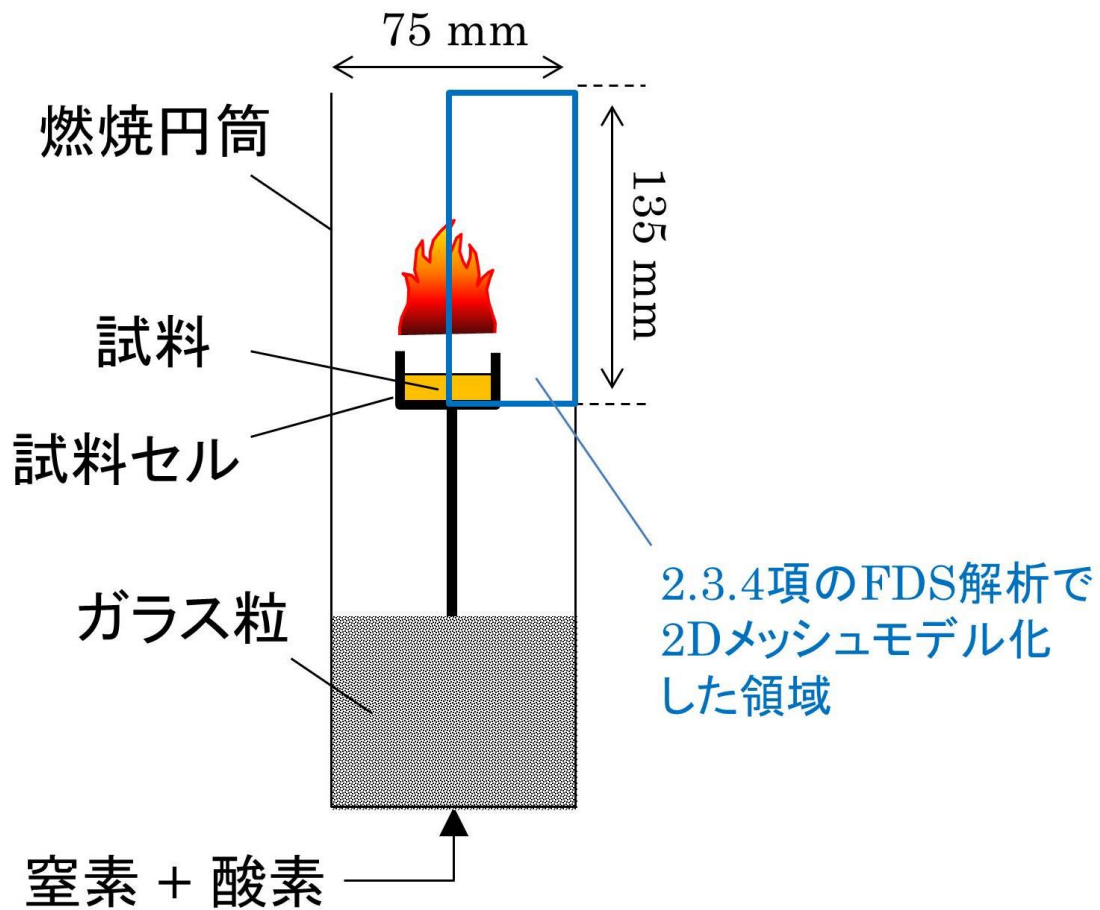


図 2.7 酸素指数測定試験及び消炎酸素濃度測定試験の試験装置概略図

③消炎酸素濃度測定試験

消炎酸素濃度測定試験は、本事業において②酸素指数測定試験の代替試験として考案された手法である。その考案に際しては、上述の酸素指数測定試験法及び JIS 規格 K7201:1999⁽²⁻⁴⁾を参考に行っている。

消炎酸素濃度測定試験の測定方法は、以下のとおりである。なお、試験装置は②酸素指数測定試験と同じ試験装置を用いた。

- 1) 試料を試料セルに充填した。試料セルは石英ガラス製で、内径 25 mm、深さ 12 mm の円筒形である。試料は、1 試験あたり 2 ml (液体試料の場合) 若しくは 2 g (固体試料の場合) を充填した。
- 2) 初期酸素濃度に調整した窒素ガス及び酸素ガスを導入しながら、着火器により試料に着火する。以降、窒素ガス及び酸素ガスの合計流量は 11.4 L/min で一定となるようにした。なお、初期酸素濃度は、各試料が燃焼するのに十分な酸素濃度として、試料毎に異なる値を設定した。具体的な値は表 2.4 を参照されたい。
- 3) 燃焼が始まってから 30 秒間保持した後、試験条件の酸素濃度に調整した。試験条件として設定する酸素濃度は 1%を最小きざみとした。
- 4) 酸素濃度を調整して 30 秒間保持したところから、燃焼時間を計測した。
- 5) 燃焼時間 180 秒以上継続して燃焼した場合を「燃焼」と判断し、180 秒未満で消炎した場合を「不燃」と判断した。この判断基準は、JIS 規格での燃焼の判断基準と同じである。
- 6) 試験条件とする酸素濃度を徐々に小さくしながら、以上の 1)～5) を繰り返す。これにより初めて「不燃」と判断された酸素濃度を測定値として得た。3 回の測定値の平均値を消炎酸素濃度とした。

2.2.3 結果及び考察

①限界酸素濃度測定試験

表 2.2 に限界酸素濃度測定試験の試験結果を示す。また、各試験材料について作成した可燃ガス—酸素—不活性ガス（窒素）の三成分系に対する三角ダイアグラムを、Appendix 内の図 A.1～図 A.8 に示す。

メタクリル酸メチルは 60°C～100°Cの範囲で試験温度を変化させたが、得られた限界酸素濃度の値には変化がなかった。一方で、三角ダイアグラムからは試験温度の上昇にともなって、わずかながら燃焼範囲が拡大していく（限界酸素濃度の値が小さいほうへ変化する）傾向が示唆された。

表 2.2 限界酸素濃度測定試験の結果

No.	試験材料	試験温度	試験結果
1	メタクリル酸メチル	60℃	9.4 %
2	メタクリル酸メチル	80℃	9.4 %
3	メタクリル酸メチル	100℃	9.4 %
4	2,3-ジヒドロベンゾフラン	110℃	10.0 %
5	キシレン	150℃	10.4 %
6	1,4-ペンタジエン	60℃	9.8 %
7	リモネン	80℃	10.4 %
8	スチレン	80℃	9.6 %

②酸素指数測定試験

表 2.3 に酸素指数測定試験の試験結果を示す。また、各試験材料についての換算燃焼率の変化を表したグラフを Appendix 内の図 A.9～図 A.13 に示す。換算燃焼率の定義については 2.2.2 項を参照されたい。

No.2～No.4 の試験は、GB パネル材として使用されている実材料を対象として行った試験である。その結果としては、アクリル、難燃アクリル、ポリカーボネートの順に酸素指数が大きくなった。一般的に、酸素指数が大きい材料ほど難燃性の高い材料であると解釈される。同様の傾向は、平成 29 年度に実施した空気雰囲気下での熱分解試験でも確認されている。その熱分解試験では、同量のサンプルを同じ昇温速度で加熱した場合、アクリル、難燃アクリル、ポリカーボネートの順に早く分解することが示唆された。

表 2.3 酸素指数測定試験の結果

No.	試験材料	試験結果
1	ビスフェノール A	18.2 %
2	アクリル	18.3 %
3	難燃アクリル	20.6 %
4	ポリカーボネート	35.9 %
5	クロロプレンゴム	27.7 %

③消炎酸素濃度測定試験

表 2.4 に消炎酸素濃度測定試験の試験結果を示す。また、各試験材料についての測定結果の詳細を Appendix 内の表 A.1～表 A.13 に示す。

表 2.4 消炎酸素濃度測定試験の結果

No.	試験対象	初期酸素濃度	試験結果
1	メタクリル酸メチル	25.0 %	15.7 %
2	りん酸トリス(1-クロロ-2-プロピル)	45.0 %	32.0 %
3	カンフェン	25.0 %	16.0 %
4	フェノール	25.0 %	16.7 %
5	メチルフェノール	35.0 %	17.0 %
6	エチルフェノール	30.0 %	17.0 %
7	4-tert-ブチルフェノール	25.0 %	16.7 %
8	4- α -クミルフェノール	30.0 %	18.3 %
9	キシレン	25.0 %	17.0 %
10	N-(1,3-ジメチルブチル)-N'-フェニル-p-フェニレンジアミン	40.0 %	20.0 %
11	スチレン	25.0 %	15.0 %
12	1,4-ペンタジエン	21.0 %	15.0 %
13	アクリル	25.0 %	18.0 %

No.2 の試験で対象としたりん酸トリス(1-クロロ-2-プロピル)は、他の成分と比較して高い消炎酸素濃度の値を示した。消炎酸素濃度が高いということは、燃焼を継続させるのに必要な酸素濃度が高いということを示し、比較的燃えにくい成分であるといえる。この成分は、平成 30 年度に実施した Py-GC-MS 分析により、難燃アクリルに添加されている難燃剤と推定された成分である。この推定結果と今回測定された消炎酸素濃度の値は、整合していると考えられる。

2.3 試験で得られた知見の整理

2.3.1 知見の整理に関する基本的方針

前述のとおり、今回実施した 3 種類の試験のうち得られるデータが最も普遍的なものであると考えられるものは①限界酸素濃度測定試験である。そのため、知見の整理に関する基本的方針としては、②酸素指数測定試験及び③消炎酸素濃度測定試験で取得されたデータより、①試験で取得されるはずの限界酸素濃度の値を推定することを試みた。

2.3.2 各試験で得られたデータの性質の違い

各試験で得られたデータの性質の違いについて概観する。まず、①試験と他の2試験で大きく異なる点は、①試験では試料が予混合燃焼するのに対し、②試験及び③試験では拡散燃焼する点にある。①試験では着火前の段階で試料がガス化しており、さらに可燃ガスと酸素が混ざり合い、分子同士の衝突が生じやすい状態にある。このような状態には、可燃性ガスの酸化反応の進行に対して律速を与えるような要素が含まれない。一方で、②試験及び③試験では、燃焼反応に用いられる可燃ガスが固体試料若しくは液体試料から供給される必要があり、その熱分解反応や昇華・蒸発にともなう吸熱が生じる。吸熱が生じると、雰囲気温度は低下し、酸化反応の進行速度を低下させる。また、可燃性ガスが燃焼に至るためには外部から供給される空気と混ざりあうための時間が必要となる。これらの要素は可燃性ガスの酸化反応の進行を遅らせるような要素となる。燃焼とは反応速度が十分大きい酸化反応であると定義されるから、総じて、①試験は、②試験及び③試験よりも「燃焼が生じやすい」試験であると考えられる。

また、①試験では球形の閉じた反応容器のほぼ中心点に着火し、その燃焼反応は球の中心部から外側に向かって進行していくため、系外への熱ロス是比较的少ない試験であると考えられる。一方で、②試験及び③試験ではキャリアガスを流通させた状態で燃焼させる試験であるため、系外への熱ロスは大きいと考えられる。

そのため、以上に示した試験データの差異を考察により補正していく必要がある。

2.3.3 断熱火炎温度による検討

各試験結果を関連づけるために以下に示す断熱火炎温度の概念を用いた。断熱火炎温度とは、燃焼反応によって発生した燃焼熱の全てが排ガスの加熱に使われると仮定した際の排ガスの理論温度である。断熱火炎温度に関する知見として、ある限界条件下（例：酸素限界濃度、爆発限界濃度等）での断熱火炎温度は試験温度によらず一定になることが知られている（例えば、Burgess ほか(1991)⁽²⁻²⁾）。この知見に基づき、多くの燃焼計算コード（例えば FDS）では、ある試験温度で測定された限界酸素濃度より、他の温度での限界酸素濃度を導出するアルゴリズムが採用されている。

本検討では、まず、この断熱火炎温度の概念のみを応用し、②試験及び③試験の結果から限界酸素濃度の値を推定することを試みた。この検討は、各試験で計算される断熱火炎温度の間に何らかの線形関係が成り立つという前提に立つものである。その具体的方法は以下のとおりである。まず、②試験及び③試験で得られた測定値から断熱火炎温度を計算する。このとき、発生した燃焼熱の一部が試料のガス化（相変化及び昇温）に使用されると仮定し、その吸熱分を考慮する。先述の前提に立てば、ここで計算された②試験若しくは③試験の断熱火炎温度は、何らかの補正係数を乗ずることで①試験の断熱火炎温度に換算することができると考えられる。このようにして①試験の断熱火炎温度の換算値が得られれば、任意の温度についての限界酸素濃度を推定できると思われる。なお、断熱火炎温

度の計算例を Appendix 内の A.4 項に示す。

各試験の線形関係の有無を把握するために、複数種の試験を行った試験材料について着目した。まず、①試験及び③試験の両試験を実施した材料としては、メタクリル酸メチル、キシレン、1,4-ペンタジエン及びスチレンの4つが挙げられる。これらの材料について、①試験及び③試験の結果から計算された断熱火炎温度の値を図 2.8 に示す。なお、断熱火炎温度の計算に必要な物性値（窒素二酸化炭素水蒸気及び比熱、試験材料の融解熱・蒸発熱、燃焼熱を計算するための生成エネルギー等）には NIST Chemistry Webbook⁽²⁻⁵⁾に掲載されている値を使用した。

図中にプロットした 4 点はほぼ直線上に並び、それらの回帰直線は①試験での断熱火炎温度(X)と③試験での断熱火炎温度(Y)の間に以下の関係式が成り立つことを示唆した。

$$Y = 1.3066 X + 83.973 \quad (R^2 = 0.9626)$$

この関係式を用いることで、③試験の結果から①試験の結果である限界酸素濃度の推定値を得ることができると考える。ただし、この関係式は 4 種類の試料のみから得られた回帰直線であることに留意する必要がある。①試験と③試験で断熱火炎温度の値にどの程度の差が生ずるかについては試料毎の物性の違いに影響を受ける可能性がある。特に、今回の回帰直線は比較的可燃性の高い物質の試験結果から得られたものであるため、難燃性物質への適用については注意が必要であると思われる。なお、今回の試験では①試験と②試験について直接比較することはできなかった。しかしながら、②試験と③試験の両方を実施したアクリルの測定値は、②試験では 18.3%の酸素指数が、③試験では 18.0%の消費酸素濃度が得られている。この 2 つの測定値が近い値になっていることを鑑みると、②試験の結果から計算された断熱火炎温度からも上式を用いて限界酸素濃度の推定値を得られる可能性があると考えられる。②試験、③試験は同じ試験装置を用いた試験であり、どちらも特定の酸素条件下で試料の燃焼が継続するか否かを調べた試験である。これらの共通点は、②試験と③試験の結果がほぼ一致する可能性を支持するものであると考えられる。

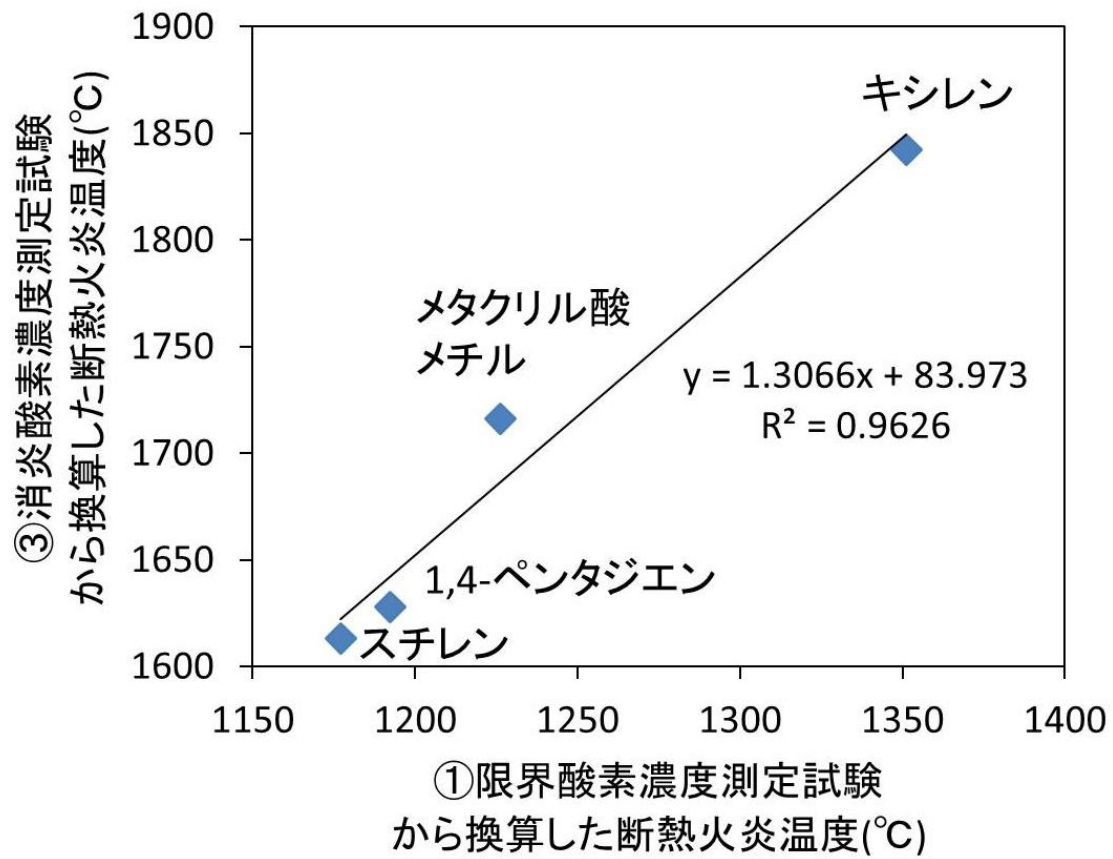


図 2.8 異なる試験で得られた断熱火炎温度の比較

2.3.4 FDS による検討

前節では断熱火炎温度のみに基づいた量論的考察を行ったが、そこには熱ロスの影響について考慮されていない。量論的考察では、燃焼により発生した熱の全てが燃焼反応の維持に寄与すると考えているが、実際の現象では異なると思われる。具体的には、発生した熱は、放射・伝導・対流により周囲に伝達され、その一部は燃焼反応を維持するために供されることなく試験系外へ逃げてしまうものと考えられる。こうした熱ロスの影響を考慮したうえで断熱火炎温度に基づいた計算を行うため、**Fire Dynamics Simulator⁽²⁻¹⁾ (FDS)** による熱流動解析的な検討を行った。

FDS は、米国商務省国立標準技術研究所 (NIST) が開発している火災 CFD 計算コードである。FDS は、主にラージ・エディ・シミュレーションを用いて燃焼に関する各ガス (可燃ガス、給気ガス、排ガス等) の流体運動計算を行う。また、燃焼反応については、**Mixture Fraction** モデル⁽²⁻⁶⁾に従って計算し、計算過程で放射熱も考慮する。FDS へは、入力データとして、計算領域内に配置される物体 (可燃物及び不燃物) の寸法とそれらの物性を入力することができる。FDS は与えられたこれらの入力データをもとに、燃焼反応の進展を計算し、発熱速度(HRR)分布、温度分布、各ガス成分の濃度分布、流動速度分布等を出力することができる。FDS は主に建物火災の解析等に使用されている (例えば、阿部⁽²⁻⁷⁾) が、より小規模な燃焼現象を視野に入れたコードの改良が進められている。なお、本検討ではバージョン 6.7.0 の FDS を使用した。

本検討では、限界酸素濃度 (①試験の結果) を断熱火炎温度に換算して FDS に入力し、③試験を模擬計算することで実際の試験結果を再現することを試みた。このとき、FDS にはその他の物性値 (試料、試験装置、キャリアガスの熱容量、熱伝導率等) も入力した。この検討の動機は、②試験及び③試験で起きている現象を限界酸素濃度の値とその他の物性値によって説明できるようになれば、②試験及び③試験の結果から限界酸素濃度の値を逆解析的に推定できるのではないかという考えにある。ここでは、その一環として行った、メタクリル酸メチルを試験材料とした③酸素濃度測定試験の FDS 解析について述べる。

FDS の仕様について、限界酸素濃度に関する範囲を以下に説明する。FDS では、火炎内部とその周辺の空間を複数の計算セルに分割し、各計算セル内での試料ガスと酸素ガスの局所的な燃焼反応を計算することで、火炎 (全体の現象) を模擬する。この各計算セル内における燃焼反応が停止する条件として限界酸素濃度から換算した断熱火炎温度を入力することができる。なお、FDS では、限界酸素濃度条件下において酸素と可燃ガスが過不足なく反応した際の断熱火炎温度を限界火炎温度と称している。すなわち、FDS に実装されている計算モデルでは、限界火炎温度が個々の計算セル内での燃焼反応が停止するか否かを支配するパラメータとして位置づけられており、その値とその他の物性値 (試料、試験装置、キャリアガスの熱容量や熱伝導率等) によって全体の現象を説明するモデルになっている。本検討では、①試験の結果から得られた限界火炎温度を FDS に入力することにより、FDS を①試験と他の試験を理論的に結び付けるツールとして利用する。

FDS 解析では、図 2.9 に示したような 2D メッシュモデルを使用した。このメッシュモデルは、③試験に用いた試験装置のうち、試料セルよりも下流側を模擬して作成したものである（図 2.7 参照）。メッシュモデルは 2D であるが、計算上は回転方向に対して対称性が成り立つと仮定して 3 次元的に扱われる。モデルを構成するメッシュサイズは 2 mm×2 mm であり、総セル数は 1292 セルである。このメッシュサイズは、燃焼解析を目的とするにはやや大きすぎるように思われるが、ここでは繰り返し計算を行うことを鑑みて計算時間を短縮することを重視した。なお、実際の試験装置の円筒部分は半径 37.5 mm、高さ 135 mm であるが、メッシュサイズとの兼ね合いにより、半径 38 mm、高さ 136 mm に近似してメッシュモデルを作成した。また、実際の試料容器の内半径は 12.5 mm であるが、メッシュモデルでは 12 mm とした。

メッシュモデル内には図 2.9 に示すような境界条件を設定した。図中の「石英ガラス」や「試料表面」では、それぞれの物性値を参照した熱交換が行われる。また、「試料表面」への入熱量から試料温度が計算され、その温度に応じて決定された可燃性ガスが「試料表面」から導入される。その際、液体試料の残存量も考慮される。また、「給気」からは窒素と酸素の混合ガスが指定の流量比で導入される。導入された混合ガス及び燃焼反応によって生成したガスは、図中「開口」と示した箇所から自然排気される。

なお、図中の「イグナイタ」は、実際の試験系では存在しない部分である。計算上の着火操作を行う際には、ある範囲に専用の境界条件を設定する必要があるため、この部分に設定した。計算上は、この「イグナイタ」の箇所が瞬間的に高温に加熱されることにより着火される。

FDS 内で計算する時間は 240 秒間である。その内訳として、最初の 30 秒間は酸素濃度 25%（メタクリル酸メチルに対して実施した③試験での初期酸素濃度）となるように給気した。その後の 210 秒間は試験条件となる任意の酸素濃度にて給気した。着火操作は計算開始から 0.001 秒間、前述の「イグナイタ」部分の表面温度を 1000℃に設定することにより行った。着火操作後、「イグナイタ」と周囲のセルとの間での熱交換は行われなくなる。着火後、FDS 上で試料が「消炎した」と判断する基準は、計算領域内の総発熱量（HRR）がゼロとなることとした。

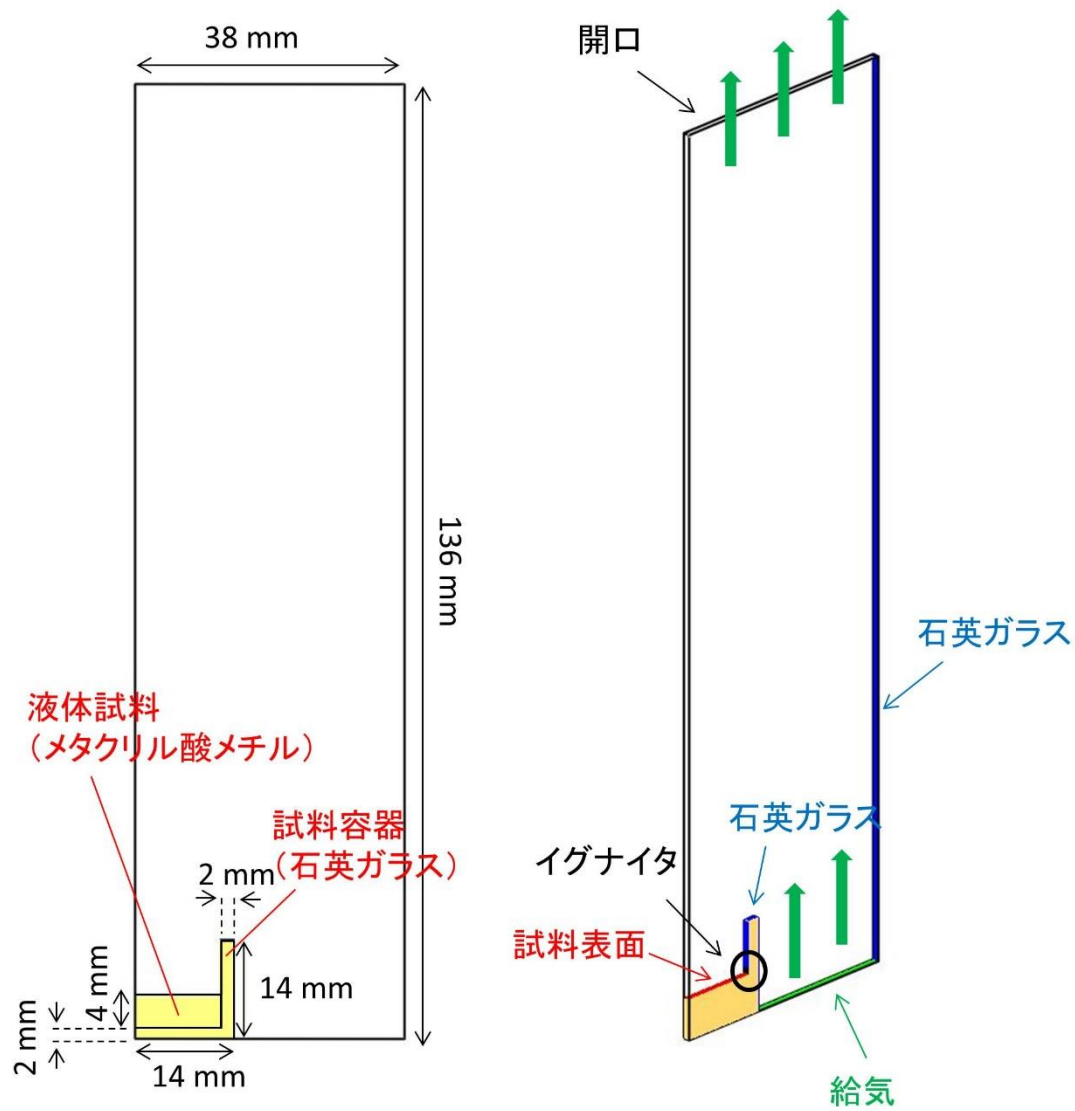


図 2.9 作成した FDS 用メッシュモデル (左) とその境界条件 (右)

表 2.5 に FDS に入力したメタクリル酸メチル及び石英ガラス(燃焼容器及びガラス円筒)の物性値を示す。なお、石英ガラスの物性値は、製品によってばらつきがあるため、いくつかの公表値を参考にその中央付近の値を採用した。また、窒素、酸素、二酸化炭素、水蒸気の物性値は FDS に格納されているデフォルト値を使用した。

発火点については、大気雰囲気下での測定値(430℃)の報告例⁽²⁻⁸⁾がある。一方で、Furno ほか⁽²⁻⁹⁾の文献によると、多くの可燃性ガスは酸素濃度が低くなるほど自然発火温度が高くなる傾向があるとされている。メタクリル酸メチルについても同様の傾向が考えられるが、それについて調査を行っている文献は見つからなかった。そこで本解析では、同文献で測定されているトリクロロエチレンの酸素 10%雰囲気下での発火点を参考に、低酸素濃度下でのメタクリル酸メチルの発火点を 450℃に設定した。同文献中のトリクロロエチレンをメタクリル酸メチルの代替物質として読み替えた理由は、Air 雰囲気下での発火点の測定値が最も近かったためである。

燃焼熱については平成 29 年度の報告書にて算出した値を使用した。この値は、完全燃焼反応を仮定したうえで、メタクリル酸メチル、水、二酸化炭素の生成エネルギーから推定した値である。

また、FDS への入力値のうち、吸光係数はフィッティングパラメータとして使用した値である。この点について次段落以降に述べる。

表 2.5 FDS に入力した各物性値

材料	パラメータ	FDS への入力値
メタクリル酸メチル	密度 (液体)	940 kg/m ³ (2-8)
	比熱 (液体)	1.98 kJ/(kg · K)@ 0°C 2.66 kJ/(kg · K)@ 100°C … 以上のデータ点 (2-5)を線形補間して計算
	沸点	101°C (2-10)
	蒸発熱	401 kJ/kg (2-5)
	熱伝導率 (液体)	0.156 W/(m · K)@ 0°C 0.147 W/(m · K)@ 25°C 0.137 W/(m · K)@ 50°C 0.127 W/(m · K)@ 75°C 0.117 W/(m · K)@ 100°C … 以上のデータ(2-11)を線形補間して計算
	組成	C ₅ H ₈ O ₂ … この組成から気体状態での密度、比熱、熱伝導率等が自動計算される。
	燃焼熱	25700 kJ/kg ※
	発火点 (気体)	450°C ※
	断熱火炎温度	1226.2°C … ①試験の測定結果 限界酸素濃度 9.4%より換算
	吸光係数	100 m ⁻¹ ※
石英ガラス	密度	2196 kg/m ³ ※
	比熱	1.0 kJ/(kg · K) ※
	熱伝導率	1.5 W/(m · K) ※
窒素、酸素、二酸化炭素、水蒸気	密度、比熱、熱伝導率等	FDS のデフォルト値を使用

※) 出典については本文参照

まず、FDSにおける吸光係数の取り扱いについて概観する。FDSに入力できる吸光係数は、次のランベルト・ベール則の式における吸光係数 α に相当する値である。

$$I = I_0 e^{-\alpha x}$$

ここで、 I_0 は試料へ入射する輻射光の入射強度を、 I は試料を透過した後の輻射光強度を、 x は入射光の通過距離をそれぞれ表す。ランベルト・ベール則を採用した場合のFDS計算では、上式から I_0 に対する I が計算され、その差分から輻射による試料への入熱量が得られる。なお、FDSにはシュテファン・ボルツマン則に基づいた数値計算モードも実装されているが、計算負荷量の観点からランベルト・ベール則による計算モードを採用することとした。

本研究においてFDS解析をはじめた当初、吸光係数の値として $\alpha=1140 \text{ m}^{-1}$ の値を使用していた。この値は、FDSに同梱されている解析例データにおいて、メタノールの吸光係数として使用されている値である。この値を使用した理由は、メタクリル酸メチルの吸光係数を報告している文献が見つからなかったためである。しかしながら、この吸光係数を用いて解析を行ったところ、得られる解析結果が実際の現象よりも「燃焼が早く進む」側にずれる傾向を示した。例えば、実際の③試験において、着火から30秒後に酸素濃度を18%に変更する条件で試験を行った場合、その結果は「試料は途中で鎮火せずに240秒間燃え続ける」というものであった。一方で、FDS解析では、燃焼が早く進みすぎることにより、「途中で試料が燃え尽きて鎮火する」という結果が得られた(図2.10)。この解析結果は、実際の実験結果とは異なるものである。

そこで、吸光係数 α をフィッティングパラメータとして、FDSを今回の試験条件に対して最適化することを試みた。具体的には、前述の酸素濃度を18%に変更する条件の試験を再現できるように、吸光係数 α の入力値を変更することとした。図2.10に、 α をパラメータとしながら実試験を模擬計算し、試料残存量がどの程度になるかを調べた結果を示す。実試験での試料残存量については詳細な記録は残っていないが、ここでは、着火から240秒後に初期重量の約20%が残っていたものと仮定することにした。その場合、同図より吸光係数 α の入力値は 100 m^{-1} と決定される。以降の解析では、このようにして決定した吸光係数の値を使用した。

図2.11に解析結果の例を示す。この例は、最初の30秒間は酸素濃度25%となるように給気し、その後の210秒間は酸素濃度17%となるように給気した例である。図中のHRRは、着火後240秒間、ゼロになることがなかったため、この解析例は「継続燃焼した」と判断される。また、図中の酸素濃度の分布をみると、計算領域上部に酸素濃度21%前後の領域が形成されていることが見て取れる。この領域は、試験装置の上端から外部空気が流入していることによって形成されていると考えられる。同様の外部空気の流入は、③試験で用いた試験装置を規定するJIS規格⁽²⁻⁴⁾でも認識されており、燃焼円筒を基準値より長くして大気流入の影響を小さくすることを義務付けている。実際の③試験ではこの基準値を満たす試験装置を用いている。

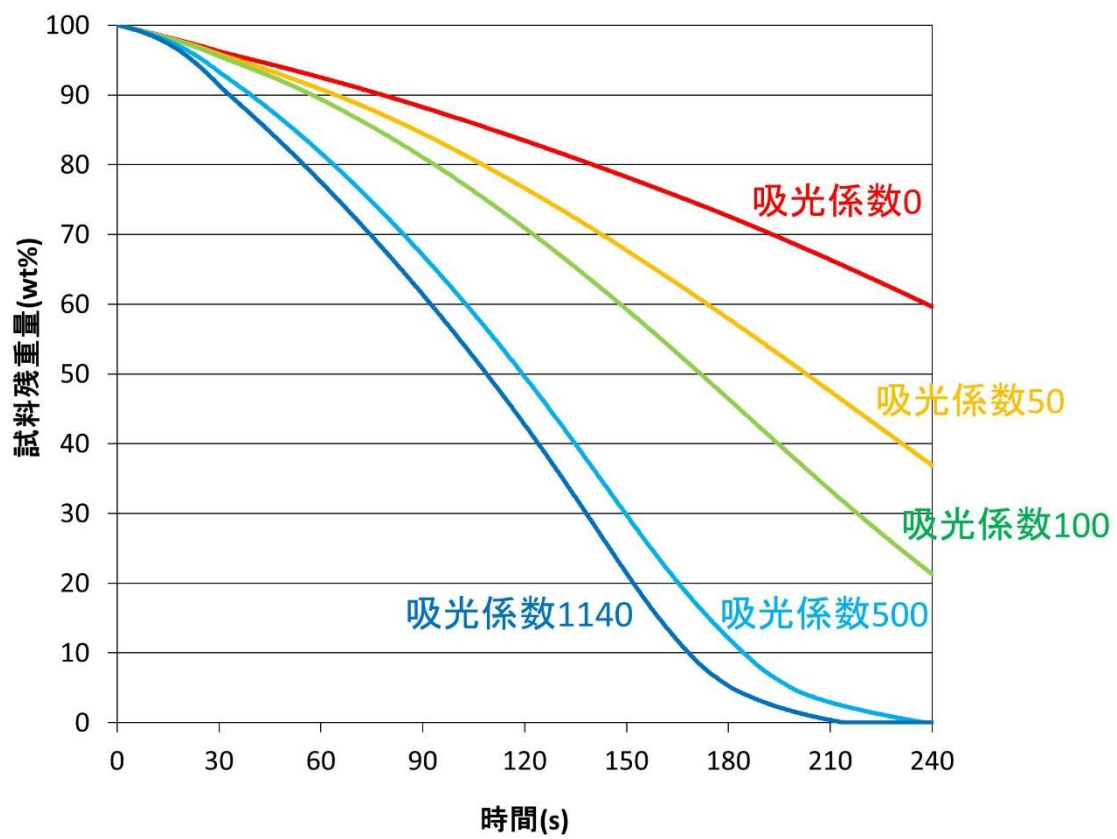


図 2.10 FDS 解析（酸素 18%条件）における吸光係数と試料残存量の関係

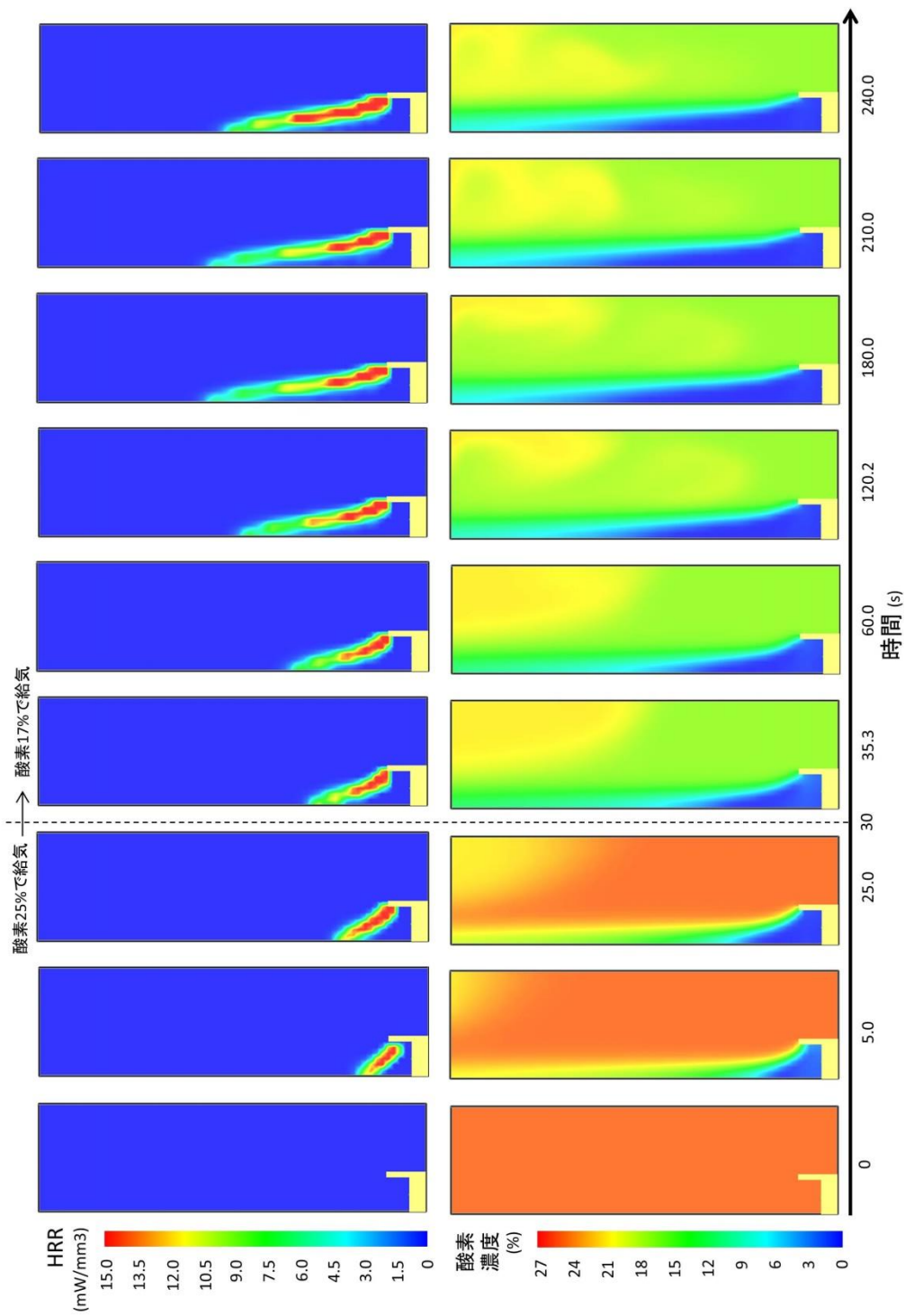


図 2.11 FDS 解析結果の例 (酸素 17%条件)

図 2.12 に、時刻 30 秒以降に設定する酸素濃度をパラメータとした FDS 計算結果を示す。図のように、HRR のグラフは時間に対して山なりの変化を描く。この理由は、着火後に徐々に試料温度が上昇して試料からの可燃性ガスの放出速度が大きくなること、及び燃焼晩期には試料残存量が少なくなることによって可燃性ガスの放出速度が小さくなることによると考えられる。この図のうち、酸素濃度 17%、15%、13%、11% の解析結果は「継続燃焼した」と判断し、酸素濃度 10% の解析結果は「鎮火した」と判断した。以上より、FDS による模擬計算試験では、メタクリル酸メチルの消炎酸素濃度は 10%～11% の間にあると推定される。

以上の FDS による計算結果と実試験結果の比較を表 2.6 に示す。FDS による計算結果は③試験で得られた消炎酸素濃度と完全には一致しなかった。しかしながら、表 2.6 より次のことがわかる。すなわち、①試験で得られた限界酸素濃度を断熱火炎温度に換算して FDS で計算すると、計算結果として得られる消炎酸素濃度はもともとの限界酸素濃度よりも高い濃度となるということは事実である。このことは、消炎酸素濃度測定試験で得られた酸素濃度が限界酸素濃度測定試験で得られた酸素濃度よりも高いという実験事実と傾向は一致している。

表 2.6 実試験結果と FDS による計算結果の比較

	実試験結果	FDS による計算結果
①限界酸素濃度	9.4 %	(入力値* 9.4%)
③消炎酸素濃度	15.7 %	10%～11%

*) FDS による計算時には、限界酸素濃度から算出した断熱火炎温度を使用

FDS による計算結果と実試験結果が完全には一致しなかった理由としては、以下の点が考えられる。

計算に使用した吸光係数は、酸素 18% 条件下での試料残存量を仮定することで決定した暫定値であった。また、メタクリル酸メチルの発火点の入力値についても他の物質の文献値を参考に決定した暫定値である。これらの暫定値が真値から大きく異なることにより、計算結果と実試験結果の不一致が生じた可能性がある。そのため、今後の検討課題の一つとしてはこれらの入力値に対する感度解析が挙げられる。

また、今回の計算ではメッシュサイズを 2 mm×2 mm としたが、この設定値が計算結果に影響を与えている可能性がある。特に、FDS コードの場合は、計算メッシュの密度が計算結果に大きく影響することが知られており、シミュレーションを行う前段階としてメッシュ密度の最適化を慎重に行っている文献⁽²⁻¹²⁾も散見される。そのため、メッシュサイズをパラメータとした感度解析についても検討する必要があると思われる。

さらに、今回のような検討に対し、FDS コードの計算結果にどれほどの信頼性があるかについては不透明な部分が残っていると考えられる。前述のとおり、FDS コードは建物火災等の大規模現象の解析を主目的として構築されたコードである。そのため、今回のような小規模の燃焼現象への適用可能性については今後より詳細に検討される必要があると思われる。

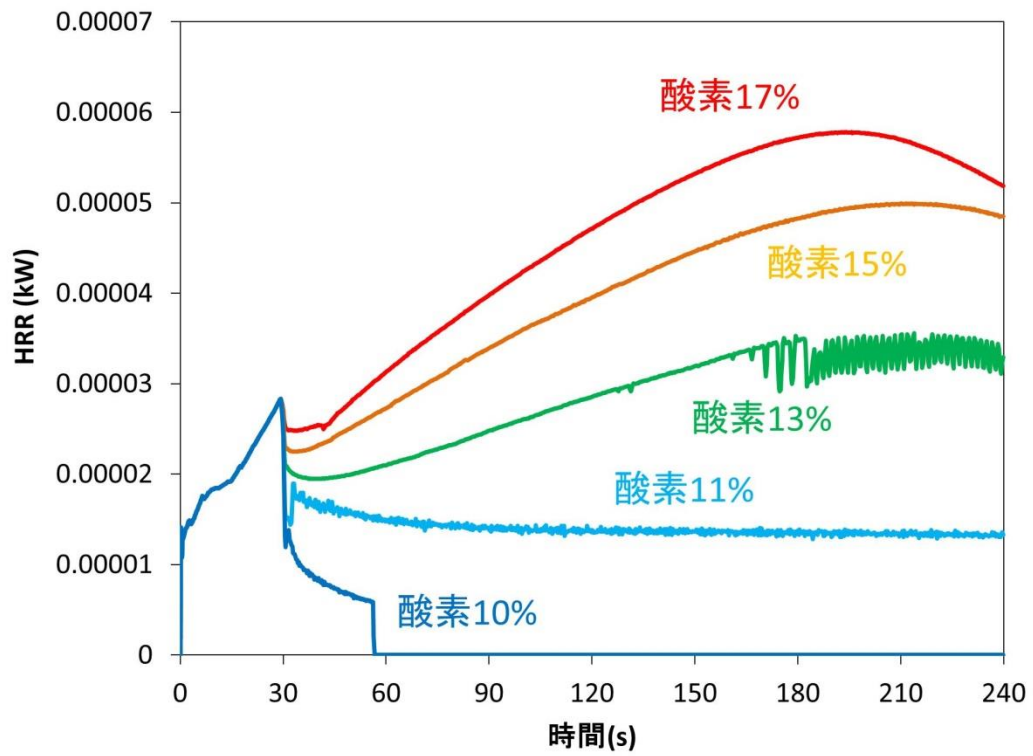


図 2.12 メタクリル酸メチルに対する③試験についての FDS 解析結果

2.4 本章のまとめ

本試験では、GB 材料（アクリル樹脂、難燃アクリル樹脂、ポリカーボネート、クロロブレンゴム）の熱分解に伴って放出される主な有機ガス成分が気相中で燃焼に至るための条件を調べた。具体的には、各ガス成分の特性（常温での物理状態、揮発性、可燃性等）を考慮して、①限界酸素濃度測定試験、②酸素指数測定試験及び③消炎酸素濃度測定試験の3試験の中から適切な方法を選択して実施した。これらの試験結果では、難燃剤由来の成分が燃焼に至るためには高い酸素濃度が必要である等、これまでに得られた知見と整合する測定値が得られている。

また、計算コード等への応用を視野に入れて、各試験結果を関連付けるための検討を進めた。断熱火炎温度を用いた近似的な検討では、①試験と③試験の測定結果から計算した断熱火炎温度の間にほぼ直線的な関係が見られた。また、アクリルを試験材料とした測定結果は②試験と③試験についても関連付けられる可能性を示唆した。一方で、FDS を用いた検討では、①試験から得られた限界酸素濃度から断熱火炎温度を導出し、その値を FDS コードに入力することで③試験を計算によって模擬できるかどうかを検討した。FDS 計算の結果として得られた消炎酸素濃度は、入力値のもととなった限界酸素濃度の値よりも大きくなった。実試験結果でも限界酸素濃度より消炎酸素濃度のほうが大きくなる傾向が得られており、この点については実試験結果と解析結果で一致したと言える。しかしながら、FDS での計算値と実験値は完全には一致しなかった。その原因としては、FDS へ入力した吸光係数及び発火点の値が暫定値であったこと、メッシュサイズによる計算結果への影響及び FDS コードの本検討への適用可能性について検証の余地があることが考えられる。このように今後の課題もいくつか見出されたが、全体としては FDS による検討手法が有効である可能性を示唆するものであったと思われる。

参考文献

- (2-1) K. M. Grattan, S. Hostikka, R. M. Dermott, J. Floyd, M. Vanella, “Fire Dynamics Simulator User’s Guide”, NIST Special Publication 1019 Sixth Edition (2013).
- (2-2) M.J.Burgess, R.V.Wheeler, “The Lower Limit of Inflammation of Mixtures of the Paraffin Hydrocarbons with Air”, Journal of the Chemical Society, Transactions (1911).
- (2-3) 消防庁, “「引火」の取扱い並びに合成樹脂の不燃性及び難燃性の試験方法について (通知)”, 平成7年消防危第50号 (1995) .
- (2-4) 日本工業規格 (JIS) , “プラスチック—酸素指数による燃焼性の試験方法”, JIS K7201 (1999).
- (2-5) NIST, “NIST Chemistry WebBook”, NIST Standard Reference Database Number 69, DOI: <https://doi.org/10.18434/T4D303>, Last update to data: (2018).
- (2-6) W. E. Mell, K. B. McGrattan, H. R. Baum, “Numerical Simulation of Combustion in Fire Plumes”, 26th Symposium (International) on Combustion, **26**, 1, 1523-1530 (1996).
- (2-7) 阿部 伸之, “CFD を用いた火災の数値シミュレーション”, 日本流体学会数値流体力学部門 Web 会誌, **12**, 2, 69-84 (2004).
- (2-8) Wako, “安全データシート メタクリル酸メチル, モノマー”, W01W0113-0272 JGHEJP (2019).
- (2-9) A. L. Furno, A. C. Imhof, J. M. Kuchta, “Effect of pressure and oxidant concentration on auto-ignition temperatures of selected combustibles in various oxygen and dinitrogen tetroxide atmospheres”, Journal of Chemical and Engineering data. **13**, 2, 243-249 (1968).
- (2-10) K. Verschueren, “Handbook of Environmental Data on Organic Chemicals, 3rd Edition”, John Wiley & Sons (1996).
- (2-11) W. M. Haynes, “CRC Handbook of Chemistry and Physics, 95th Edition”, CRC Press (2014).
- (2-12) T. S. Shen, Y. H. Huang, S. W. Chien, “Using fire dynamic simulation (FDS) to reconstruct an arson fire scene”, Building and Environment. **43**, 1036-1045 (2008).

3. グローブボックスパネル材料燃焼特性評価試験

3.1 概要

複数種類のグローブボックス（以下「GB」という。）パネル材の同時燃焼時の影響を調べるため、大型の燃焼セルを備え実機サイズの高性能粒子エア（以下「HEPA」という。）フィルタが取付可能な火災試験装置を用い、複数種類の GB パネル材（構成材料はアクリル樹脂（以下「PMMA」という。）及びポリカーボネート（以下「PC」という。）、又は PMMA 及び難燃アクリル（以下「難燃 PMMA」という。）の同時燃焼時の基礎的な燃焼特性データ（重量減少速度、ばい煙放出量、ばい煙粒径分布、燃焼速度、試料の発熱量及び放熱速度（ H_{RR} ）とフィルタ目詰まりへの影響評価データを取得した。具体的には、以下の 3 項目の試験を実施した。

- ① 複数種類の GB パネル材の燃焼特性の把握（3.3.1 項参照）
- ② GB 構成材料燃焼に伴う HEPA フィルタ目詰まりデータの取得（3.3.2 項参照）
- ③ GB パネル材の形状の変化の観察（3.3.3 項参照）

3.2 試験装置

3.2.1 火災時フィルタ目詰り挙動観察装置

図 3.1 及び図 3.2 に火災時フィルタ目詰り挙動観察装置（以下「ACUA」という。）の概略図及び外観写真を示す。ACUA は、ガス吸引部、燃焼試験部、希釈用給気部、排気ガス部及び HEPA フィルタ用ハウジング部、制御盤等から構成される。

ガス吸引部は、燃焼セルに流量制御した清浄空気の給気を行うための配管系である。給気用 HEPA フィルタ、ガス吸引部のガス流量を測定するための流量計（FT2A-12I-SS-ST-E3-B0-G1）、ガス吸引部の流量を制御するためのバルブとそれらの機器を接続する SUS 製 250A 配管から構成されている。さらに、ガス吸引部のフランジには燃焼試験消火用機器が接続されており、燃焼試験部内で燃焼している試料の速やかな消火を行うことができるようになっている。

燃焼試験部は、燃焼セル及び試料の重量を経時的に測定可能な重量測定装置から構成されている。燃焼セルの形状は円筒形（1 m ϕ \times 1.5 mH）であり、ガス吸引部からの給気ガスは燃焼セルの下部から給気され、燃焼セル頂上部より HEPA フィルタ用ハウジング部側に排気される。燃焼セル内のガス吸引部との接続部と燃焼容器設置位置の間に設置した 2 枚の SUS 製の整流板により、燃焼セルを上昇するガスの整流を行った。重量測定装置としては、オーハウス社製 EX350001G（最大測定可能重量 35 kg、最小表示 0.1 g）を用いた。燃焼セル内の温度については、熱電対（タイプ K）を用いて、GB パネル材試料温度（1 点）、燃焼セル内壁温度（1 点）、燃焼セル内空間部温度（燃焼セル底部から高さを変えて 5 点）を測定した。燃焼セルの側面には、開閉用ドア、セル内部の観察が可能な観察用窓、開閉用ドアを閉めた状態で燃焼容器に装荷した GB パネル材試料への着火を行うための着火器を装備した。

燃焼試験において、燃焼セル内の重量測定装置の秤量皿上に置き、燃焼用の GB パネル材試料

を装荷する燃焼容器としては、SUS製の円筒容器を使用した。

排気ガス部は、燃焼セル頂上部に接続し、GB構成材料の燃焼に伴って燃焼セル内に放出されたばい煙粒子や燃焼ガスを含む燃焼セルからの排気ガスを下流に位置するHEPAフィルタに移行させるためのSUS304製配管である。希釈用給気部との合流部を除き、配管サイズは250Aである。試験①において、燃焼セルから排気ガス部に流出したばい煙は、図中に示す配管孔より、120℃に加熱した配管を介して、ACUAに付属のばい煙捕集用サンプリング機器（SUS配管、2方分岐用マニホールド、2方ボールバルブ、フィルタホルダ（並列に2個配置）、流量調整用ニードルバルブ付流量計、吸引用ポンプを配置した架台で構成）に導いてガラス繊維フィルタ（東京ダイレック(株)製、TX40HI20-WW、ろ紙直径：60mm）を装着したフィルタホルダに等速吸引して捕集した。また、同位置に設置した別の配管孔からばい煙粒子を、希釈部を80℃に加熱した高倍率希釈器（Matter Engineering製 MD 19-2E⁽³⁻¹⁾）を用いて91倍に希釈した上でELPI（エレクトロカルロープレッシャーインパクト）（DEKATI製 ELPI+^{(3-2),(3-3)}）に導き、粒径分布を測定した。さらに図中に示す別の配管孔から排ガスの一部を分取してガラス繊維フィルタでばい煙を除去した後、排ガス分析計（Testo社製 testo350）に導き、排ガス中のO₂、CO、CO₂濃度を測定した。

希釈用給気部は、排気ガス部との合流箇所にて清浄空気を供給し、合流箇所より下流の流量をHEPAフィルタの定格流量とするための配管系である。この配管系には、希釈給気用HEPAフィルタ、流量計（FOX製 FT2A-12I-SS-ST-E3-B0-G2）及び流量調整用バルブが備わっている。

HEPAフィルタ用ハウジング部は、排気ガス部と希釈用給気部の合流箇所から装置外への排気までの配管部分であり、実施設で使用されている多風量仕様のHEPAフィルタを装着可能なHEPAフィルタ用ハウジング、HEPAフィルタ用ハウジングに装着したHEPAフィルタを通過するガスを吸引、流量制御するための流量計（FOX製 FT2A-12I-SS-ST-E3-B0-G2）、バルブ、ブローア、有機ガス吸収用フィルタハウジング（内部にカートリッジ型の有機ガス吸収剤（破碎炭形状の活性炭）を8枚収納したユニット形状（外寸：610mm×610mm×630mm）の有機ガス吸収用フィルタ（日本無機(株)製ピュアスメルフィルタ、PUR-56-C、最大処理風量：56m³/min）を1枚装着）及び装置外への排気用配管から構成される。HEPAフィルタとしては、日本ケンブリッジフィルタ(株)製1LEU-180-MFA（開口部寸法：580mm×580mm、ろ過面積：30m²、定格流量：50m³/min、DOP粒子（粒径：0.15μm）を用いた初期粒子捕集効率：99.97%以上）を用いた。同フィルタの概要を図3.3に示す。フィルタ用ハウジング下流にあるブローアとしては、vB92(2.8)M/25HL6を使用した。HEPAフィルタ用ハウジングのHEPAフィルタ間の差圧は、長野計器製差圧トランスミッタ（GC52-212-V5111X0XXXX1）を用いて計測した。試験②において、HEPAフィルタに負荷されるばい煙は、図中に示すHEPAフィルタ用ハウジング側面の配管孔（HEPAフィルタの上部）より、ばい煙サンプリング装置（先述のACUAに付属のばい煙捕集用サンプリング機器と同様の装置で、SUS配管、2方分岐用マニホールド、2方ボールバルブ、フィルタホルダ（並列に2個配置）、流量調整用バルブ付流量計、吸引用ポンプを配置した架

台で構成) に導き、試験①と同一のガラス繊維フィルタを装着したフィルタホルダに等速吸引して捕集した。また、同位置に設置した別の配管孔からばい煙粒子を、ELPI に導き、粒径分布を測定した。

平成 31 年度に試験対象とした GB パネル材のうち、PC や難燃 PMMA はそれぞれ自己消炎性や難燃性を有している^{(3-4),(3-5)}。平成 30 年度の試験結果を踏まえると、PC や難燃 PMMA の燃焼を継続させるためには、着火前に外部から加熱して PC や難燃 PMMA を熱分解開始温度以上の温度にしておく必要があり、さらに着火後も外部からの加熱を継続する必要があると考えられる。そこで平成 31 年度試験では、PMMA 及び PC 又は PMMA 及び難燃 PMMA を対象とした燃焼試験を可能な限り PC や難燃 PMMA の燃焼が継続させた条件で行うことを目的として、一部の試験において平成 30 年度と同様に試験試料加熱用ヒーターを使用した。試験試料加熱用ヒーターのスペックを以下に示す。また、概要を図 3.4 に示す。試験では、PC 又は難燃 PMMA を含む試験用試料を挿入した燃焼容器を試料加熱用ヒーターの上部に設置し、試験用試料を下部から加熱した。

[試験試料加熱用ヒーターのスペック]

- ・ 外径 450 mm×高さ 150 mm (ヒーター有効発熱部直径： 300 mm)
- ・ 加熱制御：加熱出力最大 6.6 kW (制御盤のつまみで変更可能)、固体試料の温度をユーザーが定めた目標値にできるように、ヒーターの温度 (ヒーター本体中心部を測定) を制御可能
- ・ 耐熱温度：800℃ (ヒーターを収納したケース材質：SUS304)
- ・ 燃焼セル下部の天秤：(株) エー・アンド・デイ製 MC-100KS
(最大測定可能重量値約 100 kg、最小重量表示 0.1 g)

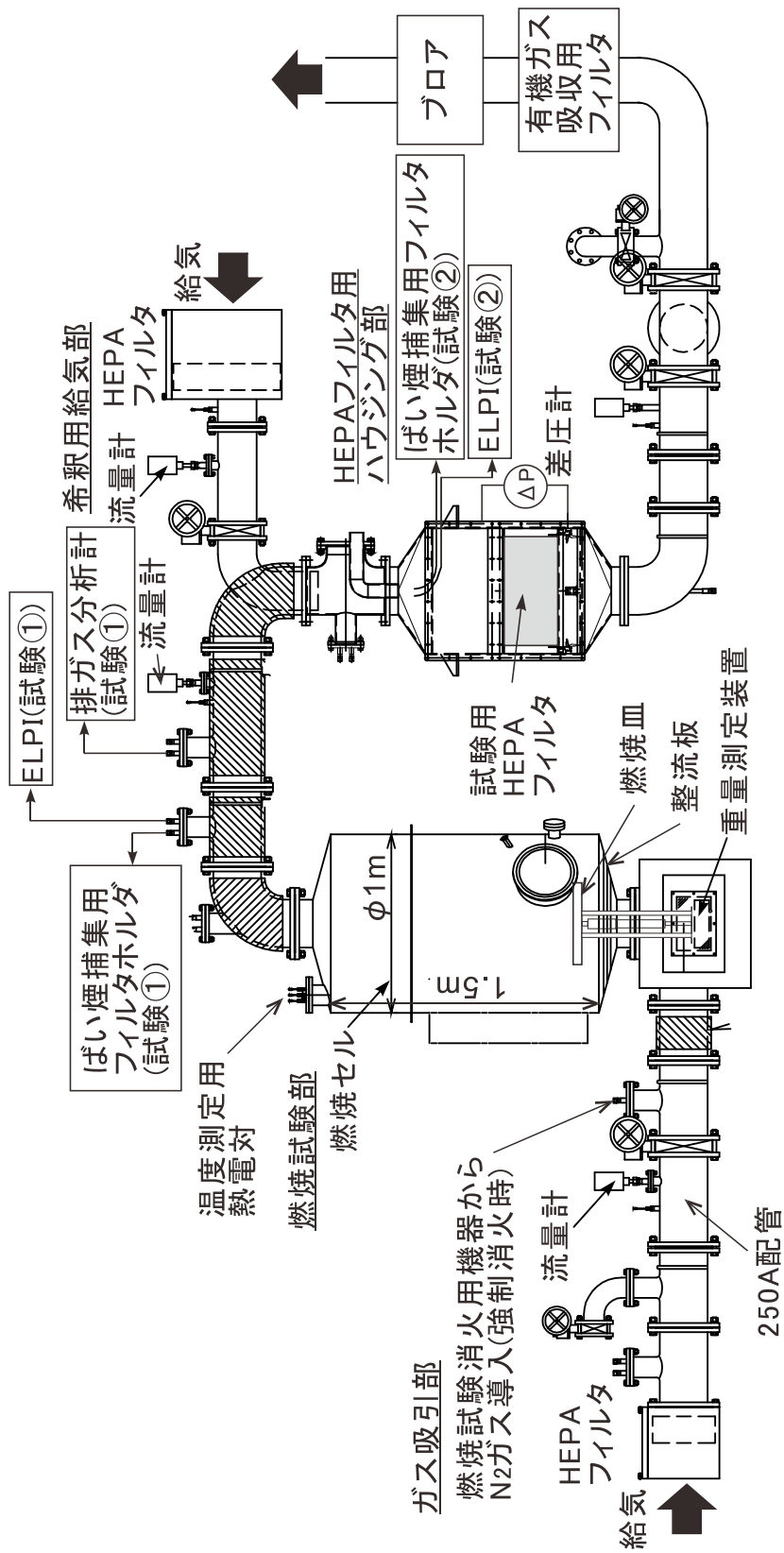
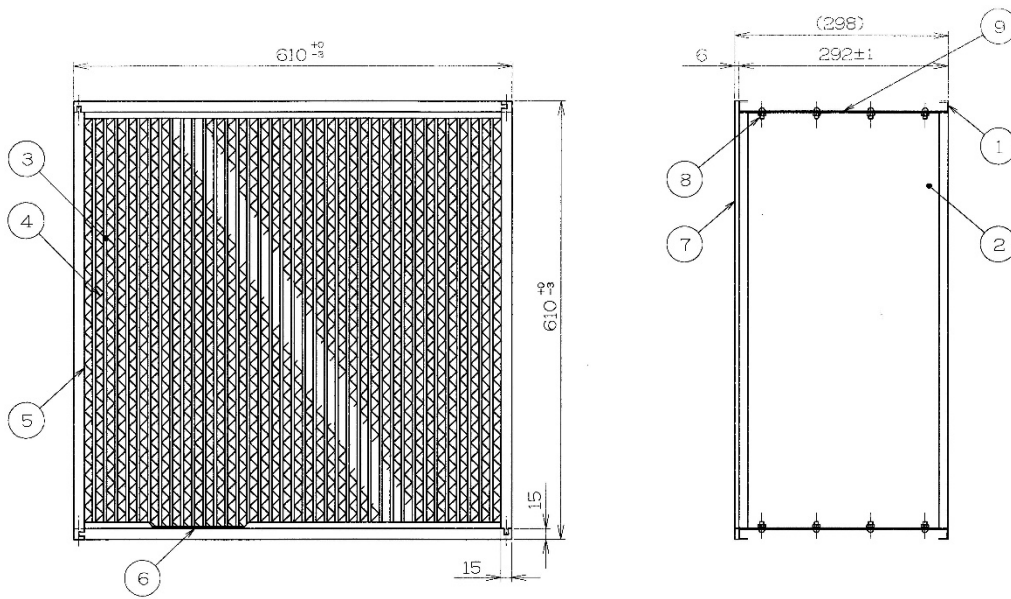


図 3.1 ACUA の概略図

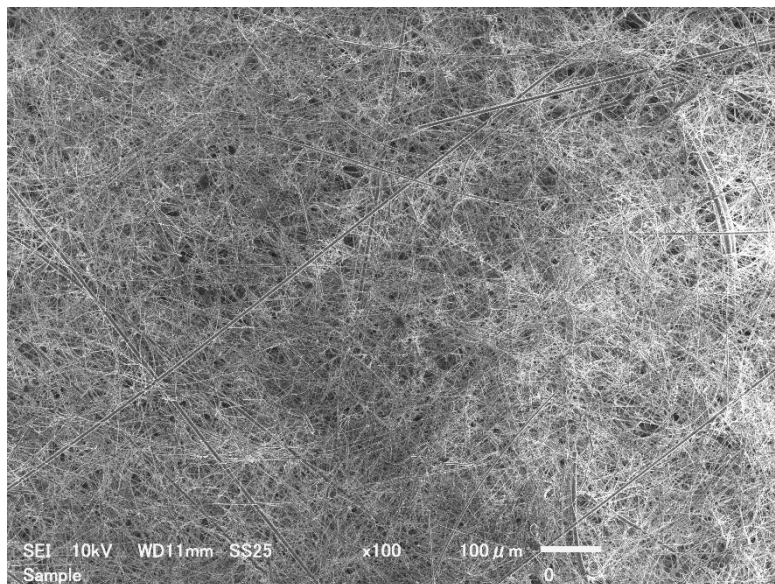


図 3.2 ACUA の外観図



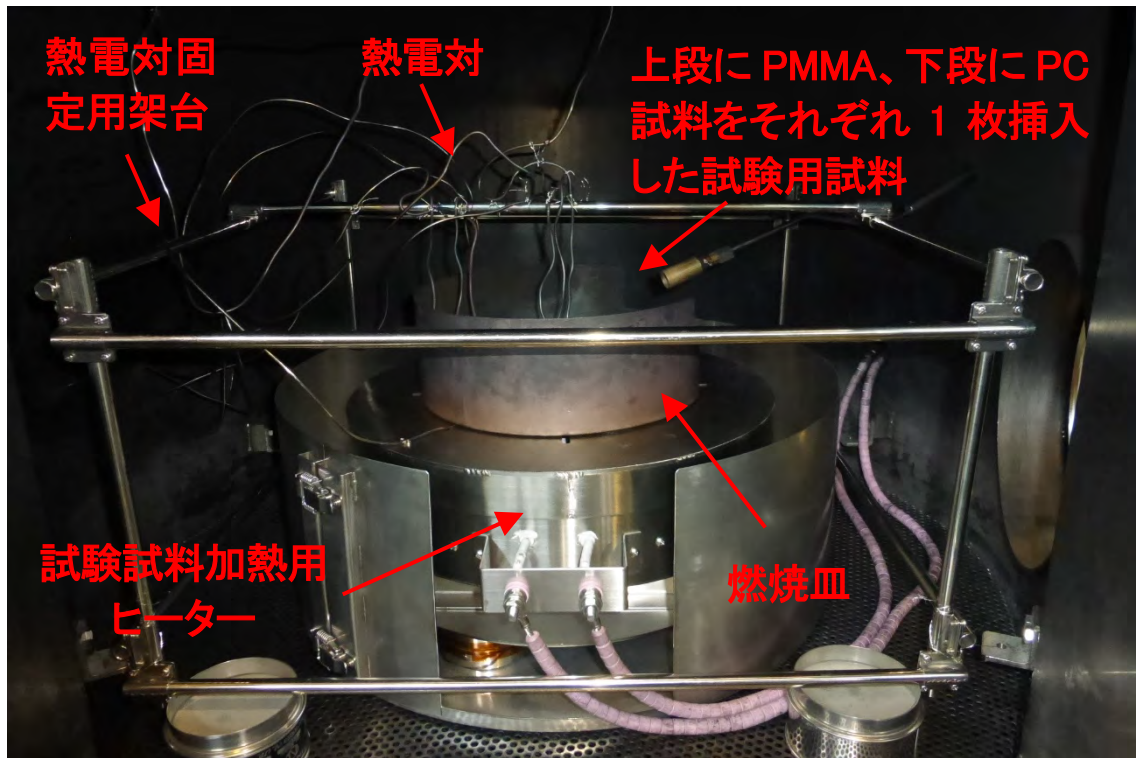
番号	品名	材質	数量
1	ケーシングエンドプレート	Al	2
2	ケーシングサイドプレート	Al	2
3	メディア	グラスファイバー	
4	セパレータ	アルミニウム	
5	シーラー	ウレタン樹脂	
6	シーラー	ウレタン樹脂	
7	ガスケット	ネオプレンスポンジ	4
8	タッピンねじ	SWCH	16
9	ラベル	ポリエステル	1

(概略図)



(HEPA フィルタろ紙(メディア)表面の様子)

図 3.3 試験に使用した HEPA フィルタの概要



(試験用セットアップの様子の一例)

図 3.4 試験試料加熱用ヒーターの概要

3.3 グローブボックスパネル材料燃焼特性評価試験の実施

3.3.1 複数種類の GB パネル材の燃焼特性の把握

(1) 概要

MOX 燃料加工施設の火災発生防止のための要求事項の一つとして、核燃料物質を取り扱う GB 等の設備・機器は、不燃性材料又は難燃性材料を使用する設計とすることが挙げられている。この要求事項に対する対応の一つとして、MOX 燃料加工施設の事業者は、GB パネル材や遮蔽体の配置を、GB 内部側からパネル材（難燃性材料）、遮蔽体（可燃性材料）、遮蔽体に被覆した難燃性材料の順とした計画を示している⁽³⁻⁶⁾。そのうち、中性子線の遮蔽材に対しては、遮蔽性能の高いポリエチレン(PE)、視認性を要するガンマ線の遮蔽材に対しては、含鉛ガラス又は含鉛 PMMA を用いる設計方針を示している。含鉛 PMMA を難燃性材料で覆う場合には、UL 垂直燃焼試験（UL94 V-0、UL: Underwriters Laboratories）で確認した材料で覆うこととしている。このような GB パネル材や遮蔽材を用いる場合においては、仮に可燃性の遮蔽材（PE 又は含鉛 PMMA）の燃焼が拡大して難燃性材料の GB パネル材に延焼した場合には GB の閉じ込め機能が喪失する恐れがある。難燃性材料として PC を使用する場合においても外部から輻射熱が PC に照射された場合に PC の燃焼が生じることも報告されている^{(3-7),(3-8)}。平成 31 年度のグローブボックスパネル材料燃焼特性評価試験においては、何らかの原因で可燃性の遮蔽体（PE 又は含鉛 PMMA）の燃焼が生じて PC への延焼が生じる場合を想定し、PMMA と PC（又は PMMA と難燃 PMMA）が同時に燃焼する場合の燃焼特性、HEPA フィルタの目詰まり挙動及び PMMA から PC への延焼性を把握する観点から試験を行うように計画した。

平成 30 年度に実施した ACUA を用いた単一の GB パネル材（PMMA 又は PC）の場合の燃焼試験結果では、重量減少速度や全面燃焼時間での時間平均で評価した放熱速度は、燃焼セルへの給気流量によらず、ほぼ一定の結果が得られている（すなわち表面積律速段階であることを示唆）。一方、ばい煙化率は燃焼セルへの給気流量の増加とともに増加する傾向がみられた。

これを踏まえ、平成 31 年度では、GB パネル材（PMMA と PC）が重なって存在し、かつ PMMA から燃焼開始して PC に延焼する場合を想定した試験を行った。上層に PMMA、下層に PC を置いて PMMA に着火させ、燃焼の進行とともに、PMMA 単一の燃焼から PMMA と PC の同時燃焼に変化していく過程における燃焼特性（重量減少速度、放熱速度、ばい煙化率及びばい煙の粒径分布）を把握することを試みた。本試験においては、給気流量、試験試料加熱用ヒーターの加熱の有無、下層の試料を PC 難燃 PMMA に置き換えた場合を試験パラメータとした。さらに、粒状の PMMA と PC の混合試料を用いた燃焼試験を実施し、PMMA と PC の同時燃焼が継続するような場合の燃焼特性を調べた。

(2) 試験条件設定の考え方

試験用試料の選定条件、試験パラメータ等の試験条件設定（A、B）について述べる。

A. 上層に PMMA、下層に PC を置いた試験用試料を用いた試験

上層の PMMA の燃焼が主となって燃焼が進行するものと予想される（すなわち基本的には表面積流速での燃焼が進行）。ただし、燃焼が進行して燃焼面が低下するにつれて、火炎から PMMA より下層の PC への入熱量が増加することで PC の一部が延焼する可能性も想定される。この場合には、PMMA と PC の同時燃焼は、燃焼過程の一時期において生じるものと考えられる。試験前の PC の重量と試験後に残存する燃焼物の重量の差から PMMA の燃焼に伴って生じる PC の燃焼重量を求めることにより本試験試料の下でどの程度 PC への延焼が生じたかを評価することとした（平成 30 年度の試験結果を踏まえ、上層の PMMA は完全に焼失するものと仮定）。

3.3.1(1)項で述べたように、PMMA の燃焼に伴うばい煙化率は、燃焼セルへの給気流量による影響が見られたことを踏まえ、燃焼面積としては平成 30 年度試験で使用した最大（断面積 $S=約 0.07 m^2$ ）とした上で給気条件を変えた試験を行い、平成 30 年度に得られた PMMA 単一燃焼時の挙動との比較を行うこととした。また、給気条件も固定した条件の下で試験試料加熱用ヒーターを用いた場合の PC への延焼の影響や下層の PC を難燃 PMMA に置き換えた場合の試験も実施して、比較することとした。

B. 粒状の PMMA と PC の混合試料

後述の 3.3.2 項の試験（GB 構成材料燃焼に伴う HEPA フィルタ目詰まりデータの取得）では、PMMA と PC の同時燃焼における HEPA フィルタの目詰まりデータを取得することを目的としていることから、PMMA と PC の同時燃焼において発生したばい煙を HEPA フィルタに負荷させる必要がある。そのためには、PMMA と PC の同時燃焼が継続するような燃焼条件を選定して、その燃焼特性を把握する必要がある。

B. の試験では、板状の GB パネル材を切断して作成した粒状（約 5 mm の直方体形状）の PMMA 及び PC 試料を、均一になるように混合させた試料を用いることにより、PMMA と PC の同時燃焼が継続した条件での燃焼特性が観察されるものと予想される。粒状試料のサイズについては、均一に混合させるためには可能な限り小さくする必要がある一方、燃焼セル内の給排気に伴う試料容器近傍の上昇流れや燃焼時の燃焼セル気相内の温度上昇によって生じる浮力による試料の飛散が生じないサイズに留める必要があり、FSEA（火災時ソースターム実験装置（Fire Source-term Evaluation Experiment Apparatus））で粒状の試料を用いた試験³⁻⁷を参考に選定した。

B. の試験における粒状の PMMA 及び PC の混合試料の使用は、3.3.2 項の試験において PMMA と PC の同時燃焼が継続した条件でのばい煙を発生させることが目的であるため、燃焼セル内への給気流量は、3.3.2 項の試験と同じく $6 m^3/min$ で固定することとした。また、試験試料加熱用ヒーターの使用の有無による 2 試験（それぞれ表 3.1 の試験 ID:1-6 及び ID:1-7）を行い、どちらが PMMA と PC の同時燃焼がより継続するかを観察することとした。さらに、本試験と同じ給気流量条件である A. の試験（表 3.1 の試験 ID:1-4 及び ID:1-5）結果との比較

により、B.の試験の燃焼特性を把握するため、混合させる粒状の PMMA 及び PC の試料の初期重量は、A.の試験で用いる PMMA 及び PC の円板状試料 1 枚の重量と同じとした。平成 30 年度の円板状 PMMA の試験結果（パネル材（290 mmφ×10 mmt）1 枚使用）との比較により、燃焼特性に対する試料の形状（円板状、粒状）の影響を観察するため、粒状 PMMA のみ（初期重量：円板状 PMMA（290 mmφ×10 mmt）1 枚と同じ）を用いた試験（表 3.1 の試験 ID:1-8）も実施することとした。

以上の考え方を基に表 3.1 に示す試験条件をまとめた。

表 3.1 複数種類の GB パネル材の燃焼特性の把握のための試験条件一覧

試験 ID	燃焼容器内の GB パネル試料の配置	給気流量 F_v (m ³ /min)	ガスバーナーによる PMMA への着火	試験試料加熱用ヒーター使用有無	
1-1	上層：円板状 PMMA 下層：円板状 PC	1	有	無	
1-2		2			
1-3		4			
1-4					
1-5					有 (400 °C)
1-6	粒状 PMMA 及び PC	6			無
1-7	の混合試料				有
1-8	粒状 PMMA				無
1-9	上層：円板状 PMMA				
1-10	下層：円板状難燃 PMMA				有 (400 °C)

(3) 試験方法

ACUA の燃焼セル内（図 3.1 参照）に置いた SUS 製の燃焼容器に、PMMA を上層とした種類の異なる同一サイズの円板状の GB パネル材試料 2 枚（PMMA 及び PC、又は PMMA 及び難燃 PMMA、パネル材サイズ：290 mmφ×10 mmt）、又は粒状（約 5 mm の直方体形状）の PMMA 及び PC の混合試料を入れる。一定流量で給気している ACUA の燃焼セル内で、ガスバーナーを用いて PMMA に着火し燃焼させた。表 3.1 に示した試験 ID:1-5, 1-7, 1-10 については、3.2.1 項で述べた試験試料加熱用ヒーターにより加熱することで燃焼を維持した。具体的には、図 3.4 に示すようにセットアップの後、試験試料加熱用ヒーター（ヒーター温度設定値：600°C、ヒーターの加熱出力の設定値：約 2~3 kW）で加熱を開始し、ヒーター温度が 600°C に達して温度一定に制御され、さらに試料から白煙（同時に熱分解ガスも放出されていると考えられる。）が生じ始めていることを確認した後にガスバーナーを用いて上層の PMMA 又は粒状の試料を着火し燃焼させた。

重量測定装置を用いて試料全体の重量変化を計測し、重量減少速度 m_b (kg/s) を求めた。また、

排ガス分析計を使用し、燃焼セルの下流位置において燃焼セルから流出した流体中の酸素濃度 (vol. %) を連続的に計測することで、燃焼セル内での酸素消費速度 (kg/s) を算出した。消費された酸素重量当たりの試料の発熱量は、PMMA や PC を含む非常に多くの種類の燃焼物質でほぼ一定であることが報告⁽³⁻⁹⁾されており、ASTM E 1354-04a⁽³⁻¹⁰⁾では約 13.1×10^3 kJ/(酸素消費 kg)としている。算出された酸素消費速度にこの数値を乗じることで、次式で表される試料の放熱速度 H_{RR} (kJ/s) を評価した。

$$H_{RR} = F_v \rho_{O_2} \frac{(21.1 - \text{酸素濃度測定値})}{100} \times 13.1 \times 10^3 \quad (3-1)$$

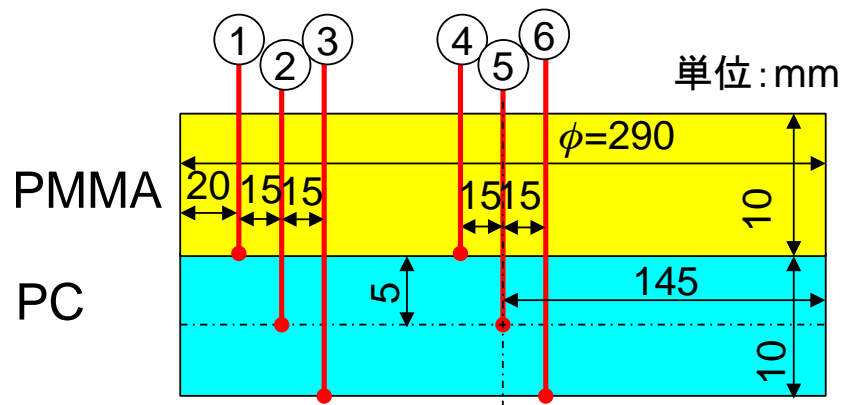
ここで、 F_v は給気の体積流量(m^3/s)、 ρ_{O_2} は酸素の密度(kg/m^3)、21.1 は給気中の酸素濃度 (vol.%)、 13.1×10^3 は消費された酸素重量当たりの試料の発熱量(kJ/kg -酸素消費)である。

ばい煙サンプリング孔に接続したフィルタホルダによるばい煙捕集量から次式で定義したばい煙化率 G (%) を評価した。

$$G = \frac{\text{ばい煙放出量}}{\text{燃焼物の重量減少量}} \times 100 \quad (3-2)$$

ここで、ばい煙放出量は、フィルタホルダによるばい煙捕集量に流量比 564 倍 (= F_v / フィルタホルダの吸引流量) を乗じて算出される。燃焼物の重量減少量は、フィルタホルダによるばい煙捕集開始時と終了時の燃焼物重量の差である。この G は、燃焼物の重量減少量で規格化したばい煙放出量を意味する。

ばい煙サンプリング孔を通して吸引したばい煙を含むガスを高倍率希釈器を用いて 91 倍に希釈したうえで ELPI 等に導き、ばい煙の粒径分布を測定した。また、円板状の試料を用いた試験 (試験 ID:1-1~1-5、1-9、1-10) については、熱電対 (測定位置: 図 3.5 参照) を用いて試料温度を測定した。ただし、試験中に熱電対を測定位置のズレが生じないように固定 (固定の様子は図 3.4 参照) する必要があるが生じた。一方でこのような固定方法は、重量測定装置による試料全体の重量測定に影響を及ぼす懸念が生じたことから、試験 ID 毎に別途、試料温度測定用の試験を行って測定した。



(図中の①～⑥の赤線が配置した熱電対で、赤線部丸状の先端が測定位置を示す。)

図 3.5 試料温度測定用熱電対の測定位置

(4) 試験結果

1) 給気流量の影響 (試験 ID:1-1~1-4)

a) 重量減少速度 m_b

図 3.6 に試験 ID:1-1~1-4 で得られた燃焼物重量減少の経時変化を示す。本図では、上層の PMMA 試料表面全体で燃焼 (以下「全面燃焼」という。)を開始した時刻をゼロとし、全面燃焼が終了して試料表面の一部の燃焼 (以下「部分燃焼」という。)に移行して自然鎮火までの結果を示している。なお、上記の確認は目視にて行った。縦軸の燃焼物重量は、横軸の時間における全面燃焼開始以降の燃焼物重量と全面燃焼開始時の燃焼物重量の測定値の差である。それぞれの燃焼物重量の傾きから算出される重量減少速度 m_b (kg/s) を各試験 ID 間で比較すると、試験 ID:1-1 の約 17~25 分後までの m_b が低下していることを除いて、給気流量 F_v を増加させても m_b に大きな差がない結果となった。この結果は、平成 30 年度に実施した燃焼物の燃焼面積 S を一定とした場合の単一の PMMA 又は PC の燃焼における m_b が表面積律速段階を示唆する結果であったことと同様である。なお、他の試験 ID の結果と比べて、試験 ID:1-1 の約 17~25 分後までの m_b が低下した要因については、d)において述べる。

図 3.7 に試験 ID:1-4 と PMMA 単一燃焼 (平成 30 年度実施) の燃焼物重量減少の経時変化を示す。併せて、本図には試験 ID:1-4 の全面燃焼開始からの燃焼割合 (%) の結果も示した。全面燃焼開始からの燃焼割合は、全面燃焼開始時と全面燃焼開始以降の試料重量の差を全面燃焼開始時の試料重量で除した値に 100 を乗じて評価した。試験 ID:1-4 と PMMA 単一燃焼の重量減少の経時変化を比較すると、全面燃焼開始直後において試験 ID:1-4 と PMMA 単一燃焼の m_b はほぼ同じであるが、全面燃焼開始から 10 分 (同時刻での試験 ID:1-4 の燃焼割合 : 約 50%) より若干早い時刻から、試験 ID:1-4 の m_b は PMMA 単一燃焼の m_b より低下している。試験 ID:1-4 の 0~10 分まで、10~25 分までの m_b を評価すると、それぞれ、 1.2×10^{-3} kg/s、 6.3×10^{-4} kg/s であり、ほぼ半減していることが分かる。これは、全面燃焼開始から 10 分前後より、PMMA に比べて燃焼性が低い PC の燃焼が開始するためと考えられる。

b) 放熱速度 H_{RR}

図 3.8 に、試験 ID:1-1~1-4 で得られた放熱速度 H_{RR} の経時変化を示す。図 3.8 において、試験 ID:1-1 の場合を除いて、 m_b の傾向と同様に給気流量 F_v を増加させても H_{RR} に大きな差がない結果となった。試験 ID:1-1 において H_{RR} が他の試験結果よりも低くなった原因としては、この試験における F_v が最も低かったため、 H_{RR} の評価においては、給気律速の傾向が若干ながら表れたためであると考えている。

図 3.9 に試験 ID:1-4 と PMMA 単一燃焼 (平成 30 年度実施) の H_{RR} の経時変化を示す。図 3.9 より、試験 ID:1-4 の H_{RR} の最大は全面燃焼開始から 10 分より若干早い時刻において生じ、最大値に至るまでの H_{RR} の推移は、PMMA 単一燃焼の H_{RR} に近いことがわかる。また、それ以降の H_{RR} については、PMMA は次第に燃え尽き、燃焼性の低い PC の燃焼が開始するために低下した

ものと推測される。この傾向は、3.3.1(4)1a)項で述べた試験 ID:1-4 の m_b と同じである。この m_b や H_{RR} の傾向は、燃焼初期から PMMA が優先的に燃焼するものと仮定すると、10 分より若干早い時刻から PMMA だけでなく PC の燃焼も開始することを示唆していると考えられる。

c) 試料温度

図 3.10 に、試験 ID:1-1～1-4 で得られた試料温度（熱電対測定位置：⑥（図 3.5 参照））の経時変化を示す。図 3.5 に示したように、熱電対測定位置⑥は、下層の円板状 PC の水平方向に対してはほぼ中心に位置し、高さ方向に対してはほぼ PC の底面に位置していることから、他の熱電対測定位置と比べて燃焼中の試料高さ減少による熱電対先端の露出が遅く、火炎の影響を受けにくい状態で PC の試料温度が測定されていると考えられる。図 3.10 の各試験 ID の試料温度の推移は、試験間で多少バラつきはあるが、全面燃焼開始から 10 分前後で PC 試料温度が 400℃に達していることが分かる。この温度は、TG 測定（平成 29 年度実施）で得られた PC の熱分解開始温度（図 3.11 参照）と同等である。このことから、少なくとも全面燃焼開始より 10 分前後からは PC の試料底部においても PC の熱分解が始まっているものと考えられる。この PC の試料底部における熱分解開始時刻は、3.3.1(4)a)及び 3.3.1(4)b)項で述べた PMMA だけでなく PC の燃焼も開始したことを示唆する時間より遅い。この違いは、図 3.10 に示した試料温度計測位置が PC の底面であったため、若干の時間遅れが生じたためであるものと推測される。

d) 試料燃焼の様子

一例として、図 3.12～図 3.14 に試験 ID:1-4 の試料の燃焼の様子を示す。図 3.12（全面燃焼開始後約 7.0 分）では試料容器の開口面全体が火炎で覆われるように燃焼しているが、試料の隆起は見られていない。一方、図 3.13（全面燃焼開始後約 12.0 分）と図 3.14（全面燃焼開始後約 15.5 分）では試料の隆起が生じている。試料の隆起については、PC 単一燃焼の様子（平成 30 年度実施）においても生じることが観察されている。また、燃焼に伴う PC の隆起は既往研究⁽³⁻⁸⁾でも報告されている。これらの PC 単一燃焼の隆起に関する観察結果から、図 3.12 では PC の顕著な燃焼は生じておらず、図 3.13 と図 3.14 では PC の燃焼が生じていると推測される。図 3.12～図 3.14 の試料隆起に基づく PC の燃焼に関する推測は、同時刻における試料 ID:1-4 と PMMA 単一燃焼の m_b （図 3.7 参照）や H_{RR} （図 3.9 参照）の比較結果から推測した PC の燃焼の進行と矛盾していない。

図 3.15 に試験 ID:1-4 の試験後の試料の様子の写真を示す。図 3.15 より、PC の燃焼に伴って生成した残渣（チャー）以外に試料容器底部の縁付近に半透明部分の未燃 PC が残存していることがわかる。残渣と半透明部分の未燃 PC がともに未燃 PC であると見做した場合の PC の残存率 L_1 (%) は次式で表される。

$$L_1 = \frac{(K_1 - M_{empty})}{K_0} \times 100 \quad (3-3)$$

ここで、 K_0 はPCの初期重量 (kg)、 K_1 は試験後の (残渣+半透明の未燃 PC) が残存した試料容器の重量 (kg)、 M_{empty} は空の試料容器重量 (kg) である。また、半透明の未燃 PC のみを未燃 PC とした場合の PC の残存率 L_2 (%) は次式で表される。

$$L_2 = \frac{(K_2 - M_{empty})}{K_0} \times 100 \quad (3-4)$$

ここで、 K_2 は半透明の未燃 PC のみが残存した試料容器の重量 (kg) である。 M_{empty} 、 K_0 、 K_1 、 K_2 を測定して、試験 ID:1-1~1-4 の L_1 、 L_2 をそれぞれ、(3-3) 式、(3-4) 式を用いて評価すると、 $L_1 =$ 約 17~23%、 $L_2 =$ 約 0.4~7.5%であった。

図 3.16~図 3.18 に、試験 ID:1-1 の全面燃焼開始後約 17.7~24.3 分の試料の燃焼の様子を示す。図 3.16~図 3.18 に示した時間は、図 3.6 において、他の試験 ID の結果と比べて試験 ID:1-1 の m_b が変動した全面燃焼開始後約 17~25 分に近い時間である。図 3.16 (全面燃焼開始後約 17.7 分) 及び図 3.17 全面燃焼開始後約 22.1 分) では、他試験 ID や約 17 分より以前の状態に比べて PC のドーム状の隆起が大きく成長している。また、図 3.18 (全面燃焼開始後約 24.3 分) では、ドーム状の隆起が小さくなっていることがわかる。このことは、試験 ID:1-1 においては、PC の燃焼開始により、まず熱分解ガスが PC 内部に閉じ込められドーム状の隆起を生じ、その後、PC 外部に放出された可能性があることを示唆するものと考えられる。このような現象が生じると、熱分解ガスがドーム状の隆起内部に閉じ込められている時間帯では燃焼に伴う重量減少速度が一旦低くなり、その後の熱分解ガスの PC 外部への放出により重量減少が増加することが予想される。図 3.6 に示した試験 ID:1-1 における約 17~25 分間で観察された m_b の低下とその後の増加は、このような PC 内部への熱分解ガスの閉じ込めとその後の放出による可能性があると考えている。

e) ばい煙化率 G

ばい煙化率 G は、(3-2)式で示した通り、燃焼物の重量減少量で規格化したばい煙放出量を意味する。表 3.2 に、(3-2) 式を用いて評価した試験 ID:1-1~1-4 の G (%) を示す。ここで評価した G は、各試験 ID の全面燃焼開始から自然鎮火までの値である。表 3.2 中の V は燃焼セルの体積 (m^3) である。表 3.2 より、G は換気回数が多いほど増加していることがわかる。この傾向は、単一の PMMA 又は PC 燃焼の場合 (平成 30 年度実施) と同様である。ただし、単一の PMMA 又は PC 燃焼の場合と異なり、表 3.2 の G は、燃焼物 (PMMA と PC) の組成の経時変化を伴った燃焼により放出されたばい煙放出に関するデータであることから、表 3.2 中の各試験 ID 間のばい煙放出量及び G を比較する場合には、換気回数の影響だけでなく、燃焼物の燃焼重量の組成の経時変化の影響を受けている可能性があると考えられる。

表 3.2 ばい煙化率の評価結果 (試験 ID:1-1~1-4)

試験 ID	F_v (m^3/min)	換気回数 F_v/V (min^{-1})	ばい煙化率 G (%)
1-1	1	0.85	1.1
1-2	2	1.7	1.6
1-3	4	3.4	2.5
1-4	6	5.1	3.1

f) ばい煙の粒径分布

図 3.19～図 3.22 に、試験 ID:1-1～1-4 で得られたばい煙の粒径分布の経時変化を示す。図 3.19～図 3.22 における 50%カットオフ径は ELPI の各分級段内のインパクターで慣性分級される粒子の空気力学等統計基準の 50%分離径である。粒子個数濃度は、ACUA の燃焼セル上部のダクト (位置詳細は図 3.1 参照) に流出したばい煙の個数濃度であり、ELPI で出力された粒子個数濃度に対して試験方法で述べた高倍率希釈器で使用した希釈倍率を乗じて算出した粒子個数濃度である。なお、ELPI で出力された粒子個数濃度は、ELPI の制御ソフトを用いて ELPI の各段のインパクターの下部のエレクトロメーター付の捕集板で捕集されたばい煙粒子の帯電量から粒子個数に変換されて出力された値である^{(3-2)、(3-3)}。また図 3.23 に、得られたばい煙の粒径分布が対数正規分布に従うと仮定して評価した中位径 $d_{p,N50}$ (μm) (ばい煙の粒径分布の各カットオフ径における粒子個数濃度を全粒子個数濃度で除して得られたばい煙の個数基準の頻度分布 (頻度の合計値は 1) をフィットした対数正規分布において、粒径の小さい側から積算した頻度が 0.5 となる粒径。中位径の定義と評価方法の詳細は文献⁽³⁻¹¹⁾参照。) と幾何標準偏差 σ_g (-) (フィットした対数正規分布において、粒径の小さい側から積算した頻度が 0.841 となる粒径を頻度が 0.5 となる粒径で除して得られる値。幾何標準偏差と評価方法の詳細は文献⁽³⁻¹¹⁾参照。) の経時変化を示す。

図 3.19～図 3.22 及び図 3.23 から、各試験 ID におけるばい煙の粒径分布は全面燃焼開始から約 10 分を境にした変化が見られた。燃焼開始から 10 分までは、図 3.19～図 3.22 の最頻度径 (一つの分布を構成するプロット点のうち最も個数濃度が大きいプロット点の粒径) 及び最頻度径における個数濃度、並びに図 3.23 の $d_{p,N50}$ 及び σ_g (分布の幅に対応) の変化はほとんど見られなかった。一方、燃焼開始から 10 分より後の分布では、最頻度径における個数濃度は減少するとともに、 $d_{p,N50}$ 及び σ_g も変化している。各試験 ID におけるばい煙の粒径分布が約 10 分を境にして変化したのは、3.3.1(4)1a)項、b)で述べた m_b 及び H_{RR} の変化を踏まえると、PMMA だけでなく PC も顕著に燃焼しはじめたためと考えられる。

図 3.24～3.27 に、同じ S と F_v 条件で得られた単一の PMMA 燃焼の場合の粒径分布を比較した結果を示す。図 3.21～3.27 に示すように、いずれの試験 ID の最頻度径及び最頻度径における粒子個数濃度及び分布巾は、同じ S と F_v 条件の単一の PMMA 燃焼に近い。このような結果となった原因も、各試験 ID の燃焼開始から 10 分より前の燃焼では PMMA が優先的に燃焼している

ためと考えられる。

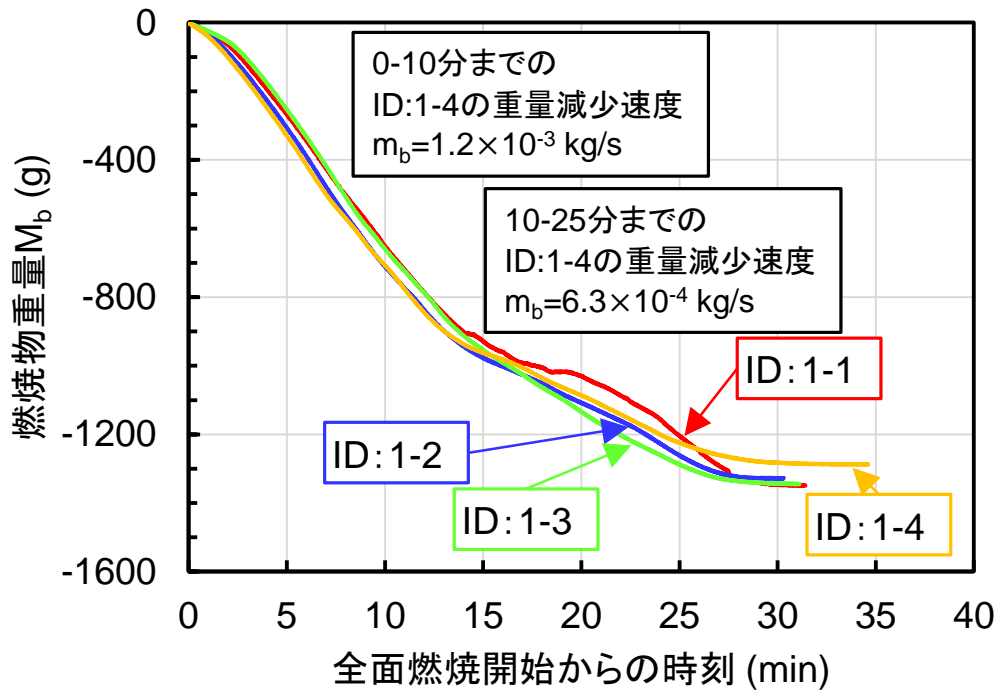


図 3.6 燃焼物重量の経時変化 (試験 ID:1-1~1-4)

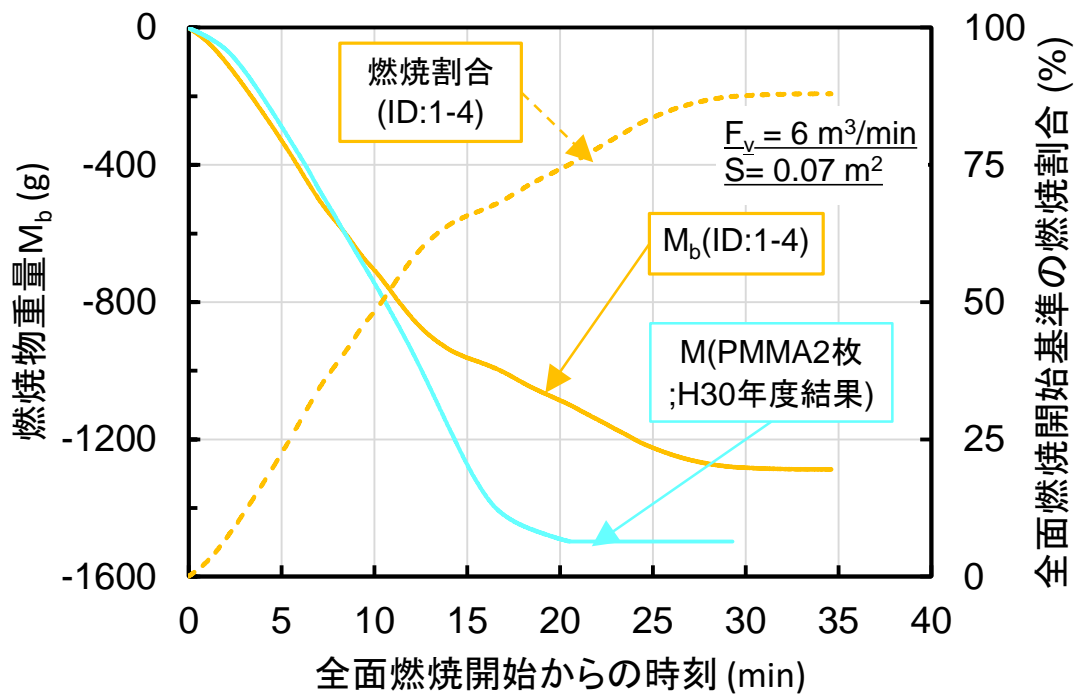


図 3.7 試験 ID:1-4 と単一の PMMA 燃焼時の燃焼物重量の経時変化の比較

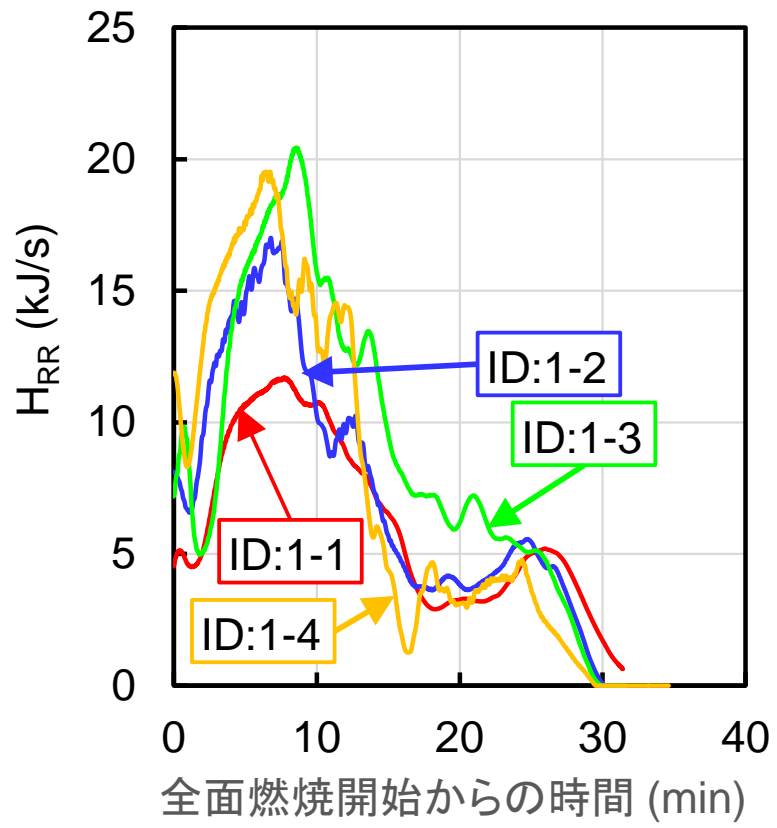


図 3.8 H_{RR} の経時変化 (試験 ID:1-1~1-4)

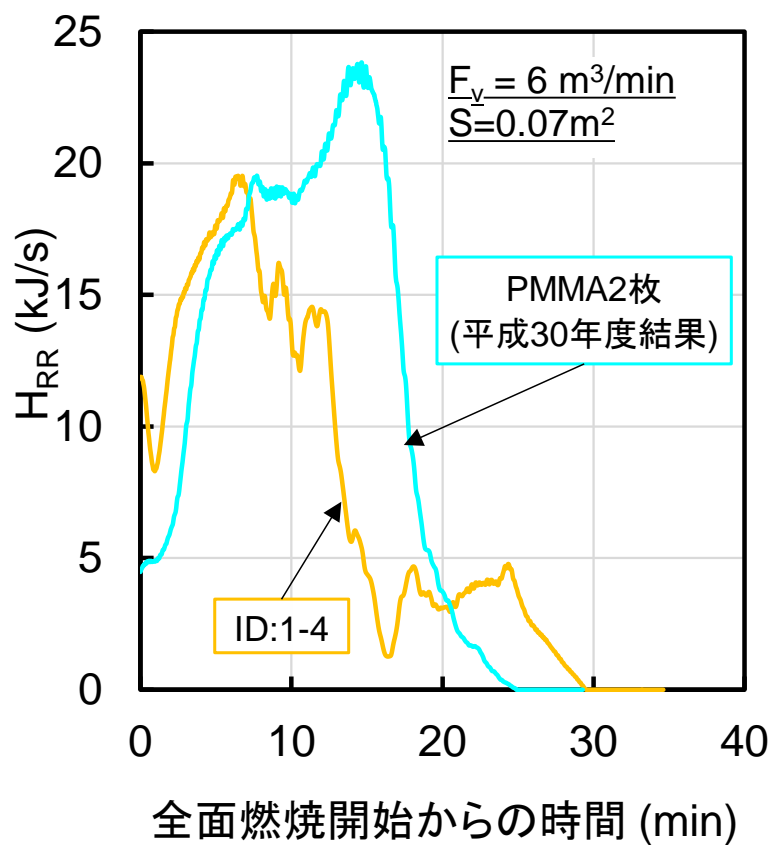


図 3.9 試験 ID:1-4 と PMMA 単一燃焼時の H_{RR} の経時変化の比較

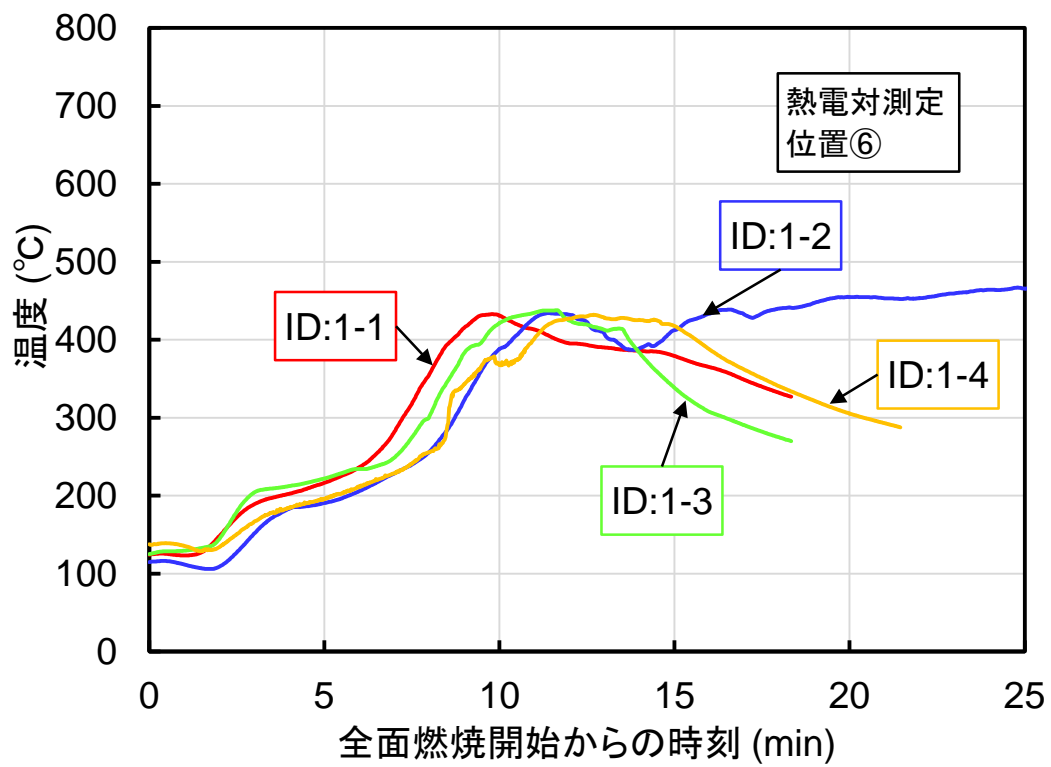


図 3.10 試料温度（熱電対測定位置：⑥）の経時変化（試験 ID:1-1～1-4）

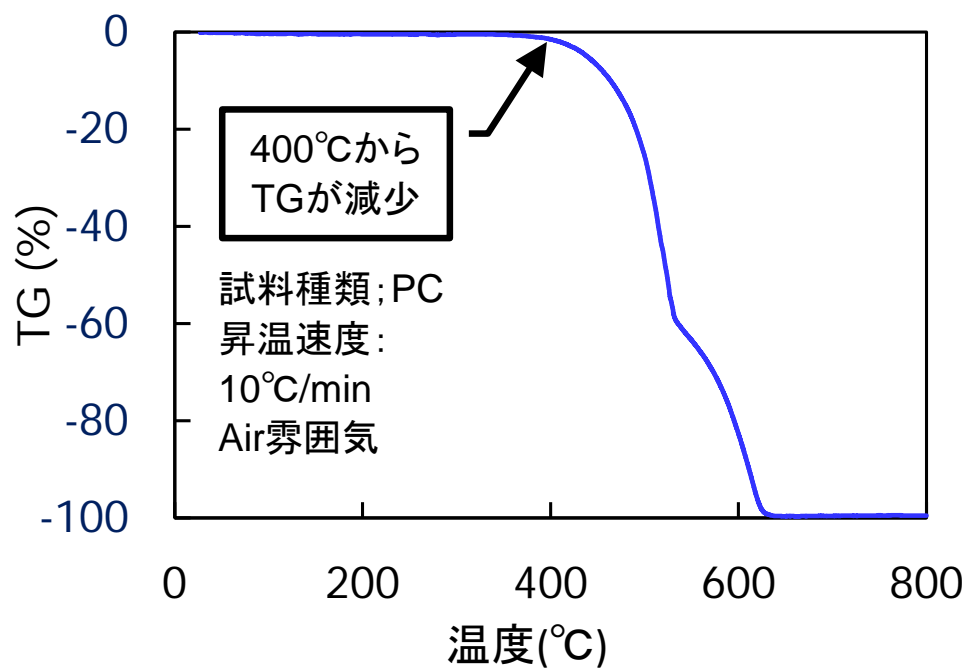


図 3.11 PC の TG 測定結果 (平成 29 年度結果)

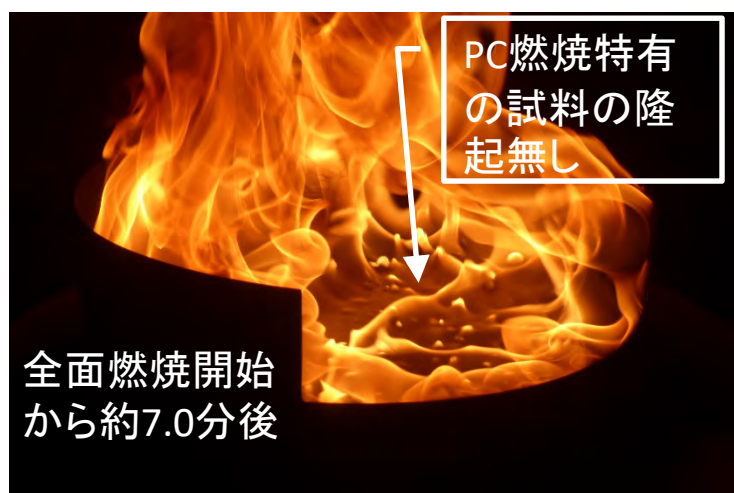


図 3.12 試料の燃焼の様子（試験 ID: 1-4、全面燃焼開始から約 7.0 分後）



図 3.13 試料の燃焼の様子（試験 ID: 1-4、全面燃焼開始から約 12.0 分後）



図 3.14 試料の燃焼の様子（試験 ID: 1-4、全面燃焼開始から約 15.5 分後）



底部の半透明
部分:未燃PC

図 3.15 試験後の試料の燃焼の様子 (試験 ID: 1-4)



図 3.16 試料の燃焼の様子（試験 ID: 1-1、全面燃焼開始から約 17.7 分後）



図 3.17 試料の燃焼の様子（試験 ID: 1-1、全面燃焼開始から約 22.1 分後）

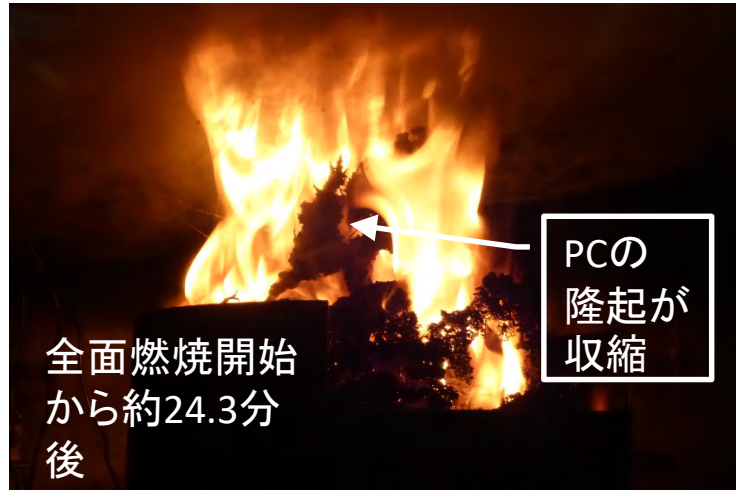


図 3.18 試料の燃焼の様子（試験 ID: 1-1、全面燃焼開始から約 24.3 分後）

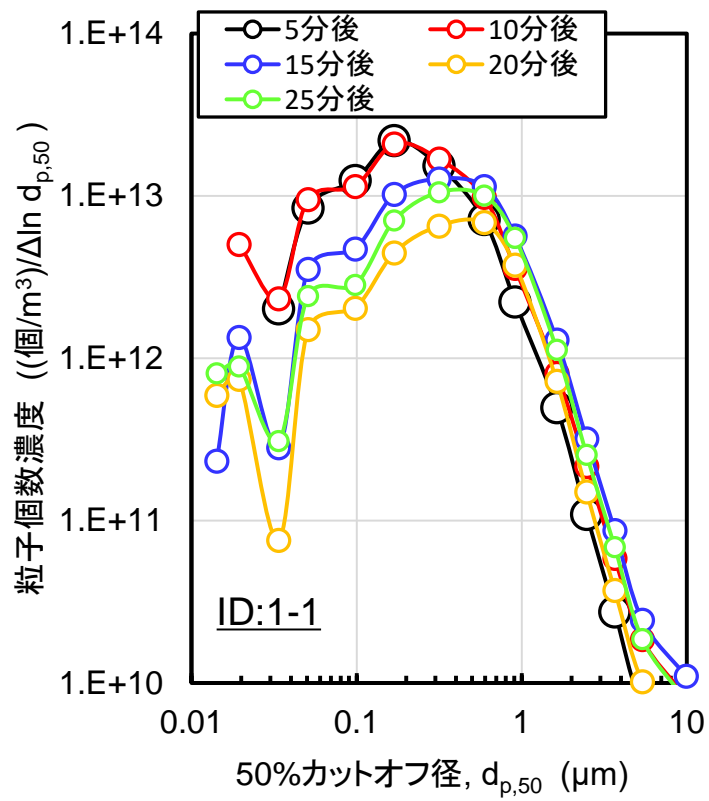


図 3.19 ばい煙の粒径分布の経時変化 (試験 ID:1-1)

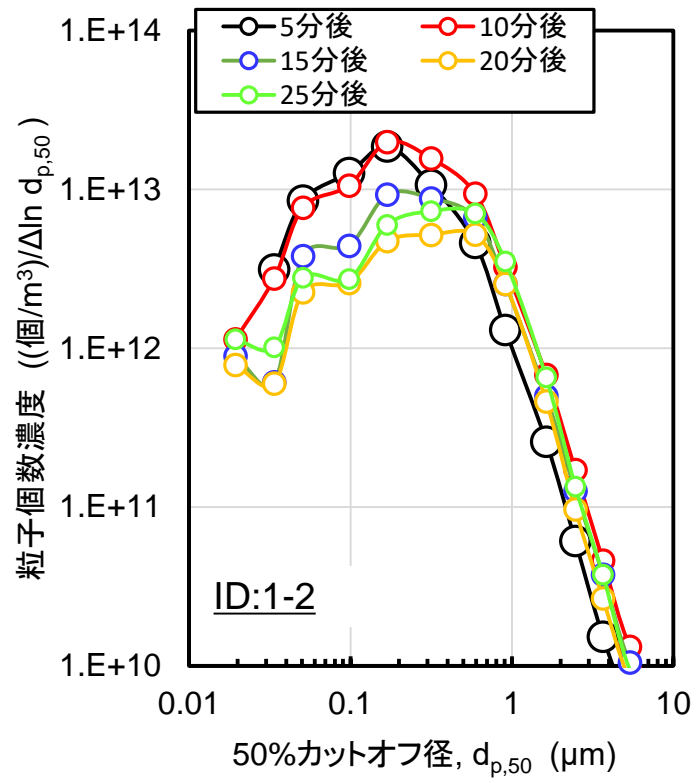


図 3.20 ばい煙の粒径分布の経時変化 (試験 ID:1-2)

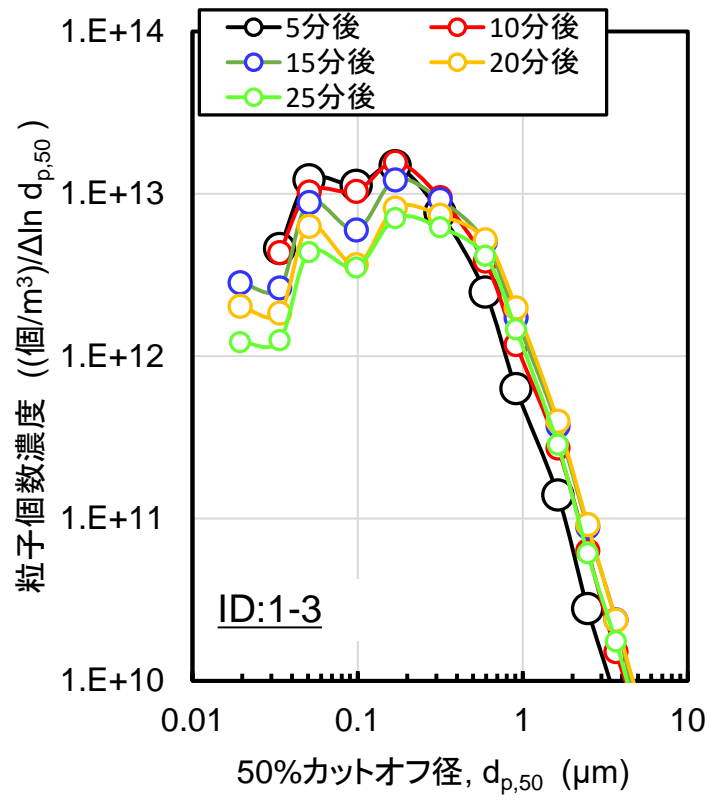


図 3.21 ばい煙の粒径分布の経時変化 (試験 ID:1-3)

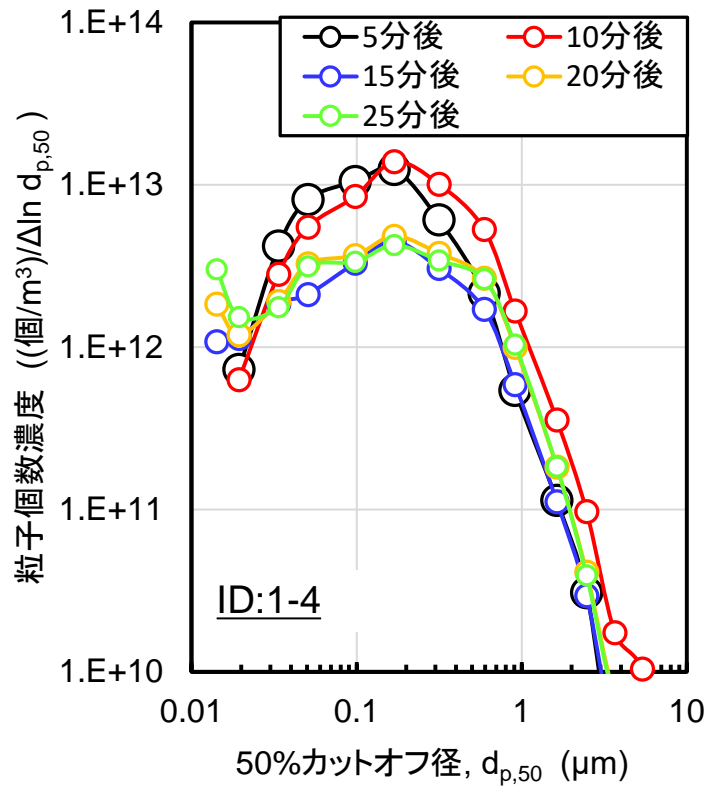


図 3.22 ばい煙の粒径分布の経時変化 (試験 ID:1-4)

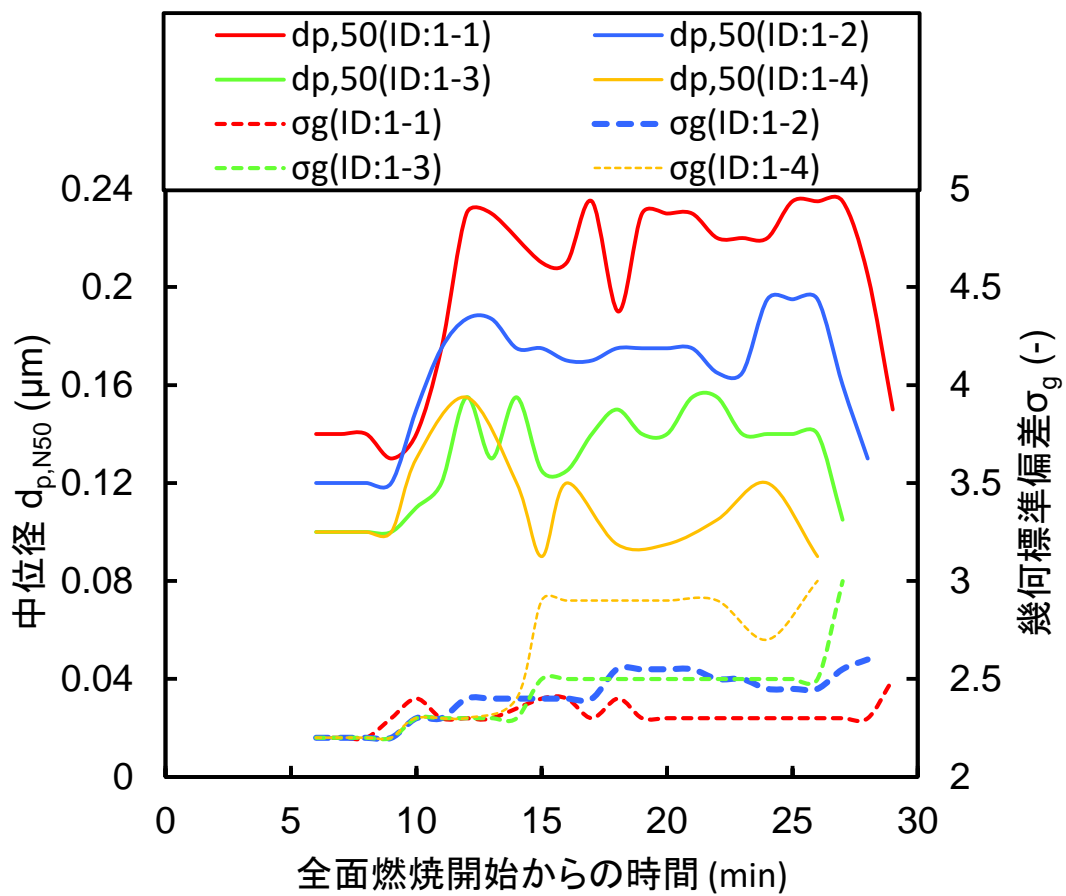


図 3.23 ばい煙の粒径分布の中位径、 σ_g の経時変化 (試験 ID:1-1~1-4)

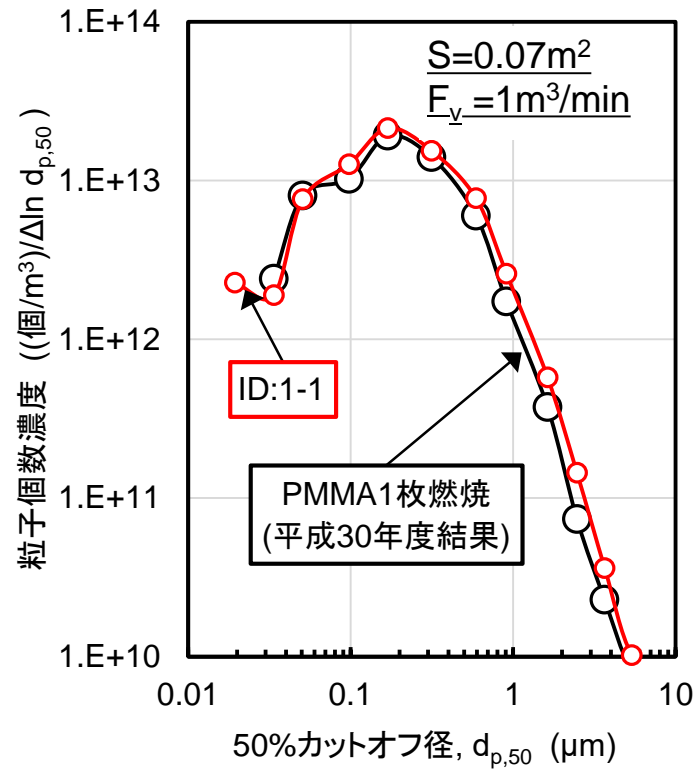


図 3.24 PMMA 単一燃焼の場合と試験 ID:1-1 の全面燃焼開始から 6~9 分後までの
 ばい煙の粒径分布の比較

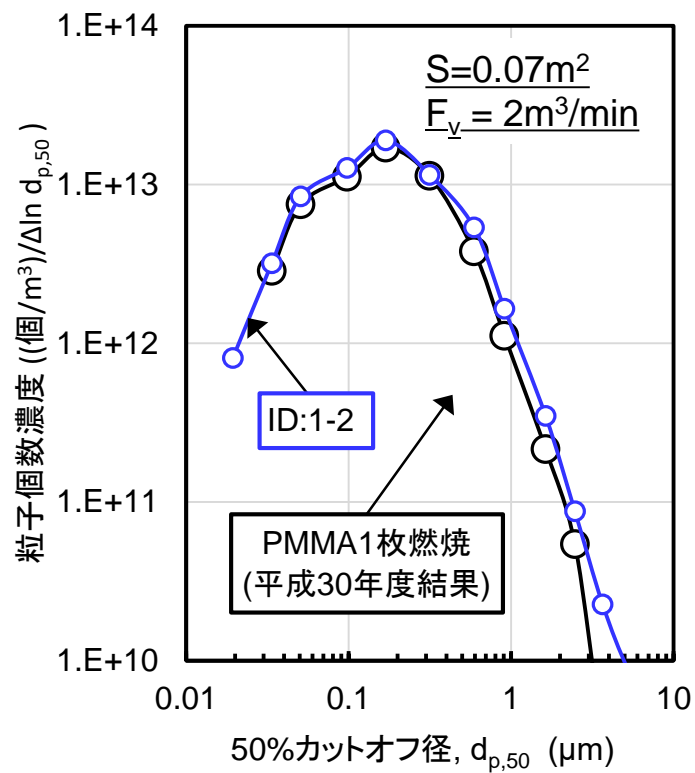


図 3.25 PMMA 単一燃焼の場合と試験 ID:1-2 の全面燃焼開始から 6~9 分後までの
 ばい煙の粒径分布の比較

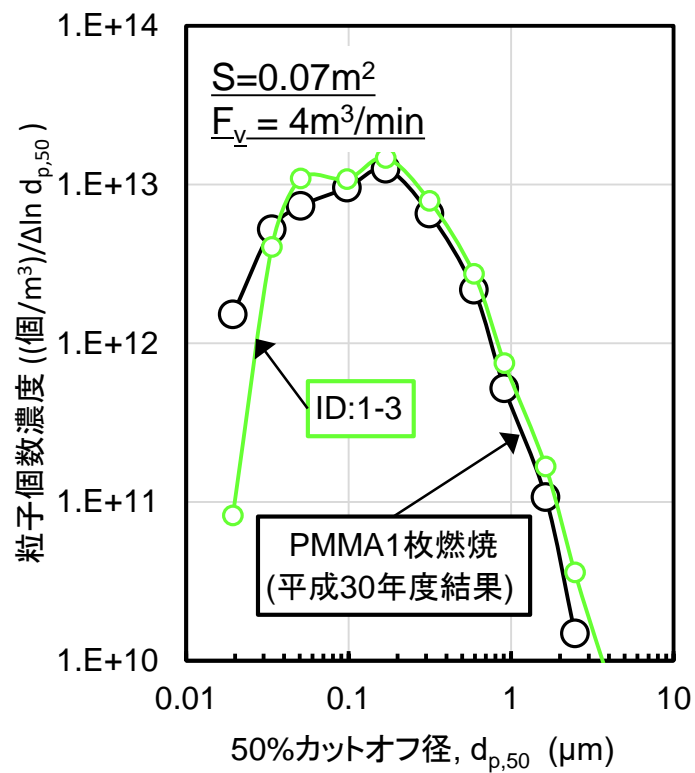


図 3.26 PMMA 単一燃焼の場合と試験 ID:1-3 の全面燃焼開始から 6~9 分後までの
 ばい煙の粒径分布の比較

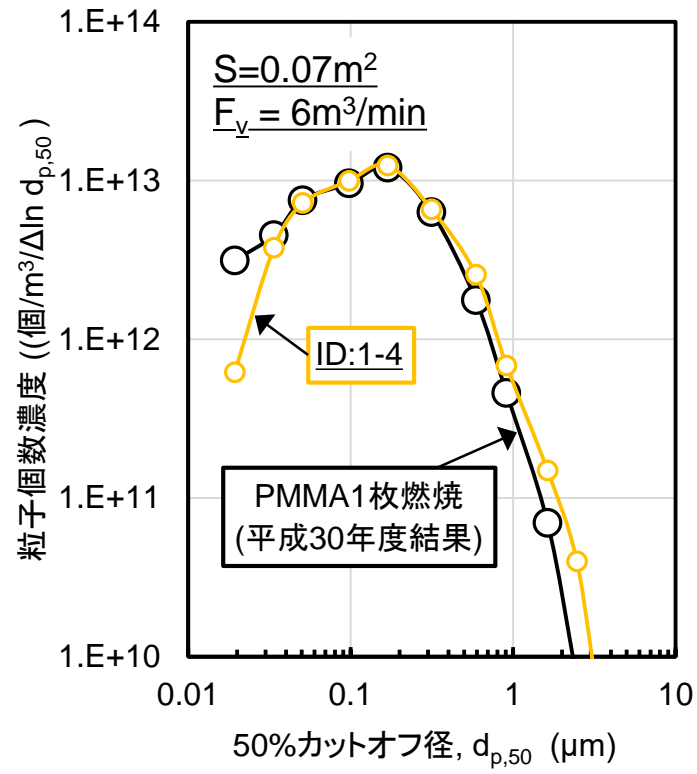


図 3.27 PMMA 単一燃焼の場合と試験 ID:1-4 の全面燃焼開始から 6~9 分後までの
 ばい煙の粒径分布の比較

2) 試験試料加熱用ヒーター使用の影響 (試験 ID:1-4, 1-5)

a) 重量減少速度 m_b

図 3.28 に、試験 ID:1-5 で得られた燃焼物重量と燃焼割合の全面燃焼開始からの経時変化を示す。比較のために、試験試料加熱用ヒーターを用いなかった場合 (試験 ID:1-4) の結果も併せて示した。全面燃焼開始直後の試験 ID:1-5 と試験 ID:1-4 の m_b (図 3.28 の M_b の傾き)はほぼ同じであるが、全面燃焼開始から 8 分 (同時刻での試験 ID:1-5 の燃焼割合:約 40%) より若干早い時刻から、試験 ID:5 の m_b の方が試験 ID:4 の m_b より大きい状態が続いている。この時刻辺りから PC の燃焼が増加し始めたと仮定すると、試験 ID:1-4 の場合よりも試験試料加熱用ヒーターを使用したことにより燃焼物への入熱量が多い試験 ID:1-5 の場合の方が PC の熱分解速度が増大したためと推測される。

b) 放熱速度 H_{RR}

図 3.29 に、試験 ID:1-5 で得られた放熱速度 H_{RR} の経時変化を示す。比較のために、試験 ID:1-4 並びに単体の PMMA 燃焼 (平成 30 年度実施) の H_{RR} の経時変化も併せて示した。図 3.29 の試験 ID:1-5 と試験 ID:1-4 の H_{RR} の経時変化は、10 分より前に現れたピーク値について試験 ID:1-5の方が大きい点を除いては、試験 ID:1-4 に近い結果となった。10 分より前に現れた H_{RR} のピーク値の時刻 (約 6 分後) に対応している m_b (図 3.28 参照) は、試験 ID:1-4 と試験 ID:1-5 ではほとんど差が見られていない。一方、6~10 分後にかけて試験 ID:1-5 の m_b が試験 ID:1-4 と比べて大きくなっていることから、この時間では可燃性の熱分解ガスの放出速度及び燃焼速度も試験 ID:5の方が大きくなっているものと推測される。そのために、10 分より前に現れた H_{RR} のピーク値についても試験 ID:1-5の方が大きくなったと考えられる。

c) 試料燃焼の様子

図 3.30~図 3.32 に試験 ID:1-5 の試料の燃焼の様子を示す。また、図 3.33 に試験 ID:1-5 の試験後の試料の様子の写真を示す。試験 ID:1-5 の燃焼の様子及び試験後の試料の様子を試験 ID:1-4 (図 3.12~図 3.14 及び図 3.15 参照) と比較すると、試料加熱用伝熱ヒーターの有無による違いは観察されなかった。また、3.3.1(4)1)d)項で述べた方法と同様に試験 ID:1-5 の PC 初期重量に対する試験後の未燃 PC の残存率を評価した結果、残渣と半透明部分の未燃 PC がともに未燃 PC であると見做した場合の PC の残存率 L_1 = 約 26 %、半透明の未燃 PC のみを未燃 PC とした場合の PC の残存率 L_2 = 約 4.5%であり、試料加熱用伝熱ヒーターを用いなかった場合の L_1 、 L_2 (3.3.1(4)1)d)項参照) と比較して大きな差は見られなかった。

d) ばい煙化率 G

ばい煙化率 G は、(3-2)式で示した通り、燃焼物の重量減少量で規格化したばい煙放出量を意味する。3.3.1(4)1)e)項と同様に、全面燃焼開始から自然鎮火までの試験 ID:1-5 の G を評価した結

果、約 2.3 (%) であった。この値は試験試料加熱用ヒーター使用しなかった試験 ID:1-4 より若干低かった。この違いについて、燃焼物の燃焼重量の組成の経時変化の影響を受けている可能性もあるが、全面燃焼開始から 10 分より前の時刻からの試験 ID:1-5 の m_b 及びピーク値前後の H_{RR} が試験 ID:1-4 よりも大きくなっている点を踏まえると、試料試料加熱用ヒーターを用いた分だけ燃焼物の燃焼効率が高くなったために試験 ID:1-5 のばい煙化率の方が試験 ID:1-4 より若干低下したものと推測される。

e) ばい煙の粒径分布

図 3.34 に、試験 ID:1-5 で得られたばい煙の粒径分布の経時変化を示す。図 3.34 から、試験 ID:1-5 の分布の経時変化では、燃焼開始から 10 分までは最頻度径及び最頻度径における個数濃度の変化はほとんど見られず、燃焼開始から 10 分より後の分布では、最頻度径における個数濃度は減少するとともに、分布の幅も変化している点は、試験 ID:1-4 の場合 (図 3.22) と同じ傾向となっている。試験 ID:1-5 のばい煙の粒径分布が約 10 分を境にして変化したのは、3.3.1(4)2a) 項及び 3.3.1(4)2b) 項で述べた m_b 及び H_{RR} の変化を踏まえると、PMMA だけでなく PC も顕著に燃焼しはじめたためと考えられる。しかしながら、最頻度径における粒子個数濃度は 10 分までの分布では試験 ID:1-5 の方が大きい、15 分以降の分布では試験 ID:1-4 の方が大きい結果となっている。3.3.1(4)2a) 項で述べた通り、8 分を境に試験 ID:1-5 の m_b の方が試験 ID:1-4 よりも大きい状態が継続していることを踏まえると、15 分までの試験 ID:1-4 の場合よりも早い時間に試験 ID:1-5 の PMMA がほとんど燃え尽き、PC が優先的に燃焼している状態に移行したためと推測される。

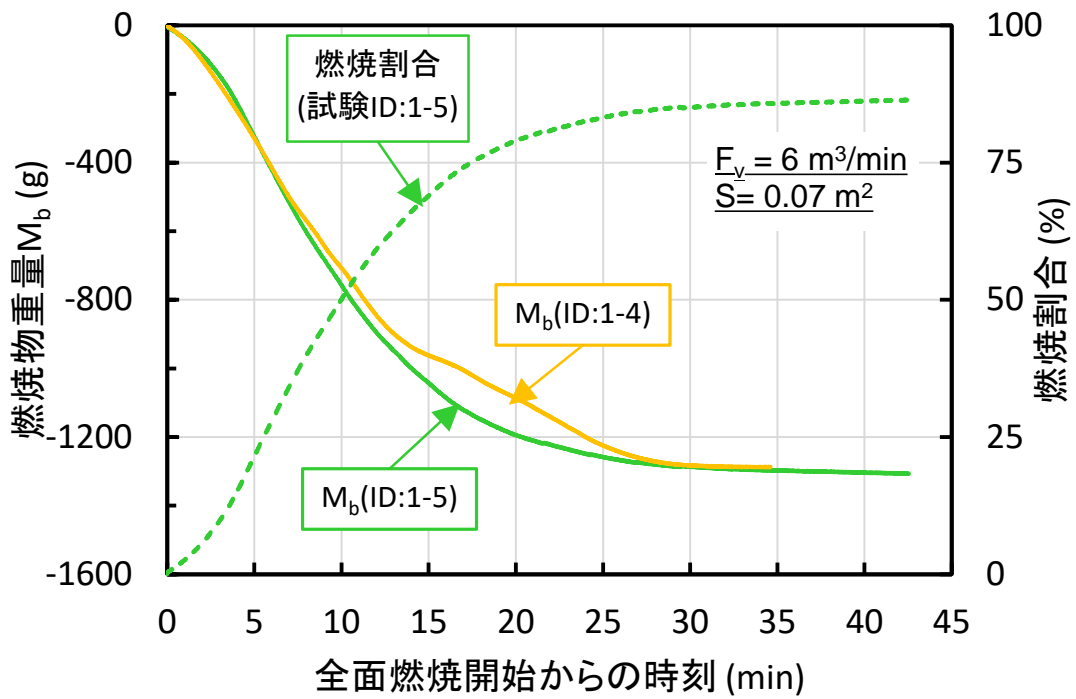


図 3.28 燃焼物重量の経時変化 (試験 ID:1-4, 1-5)

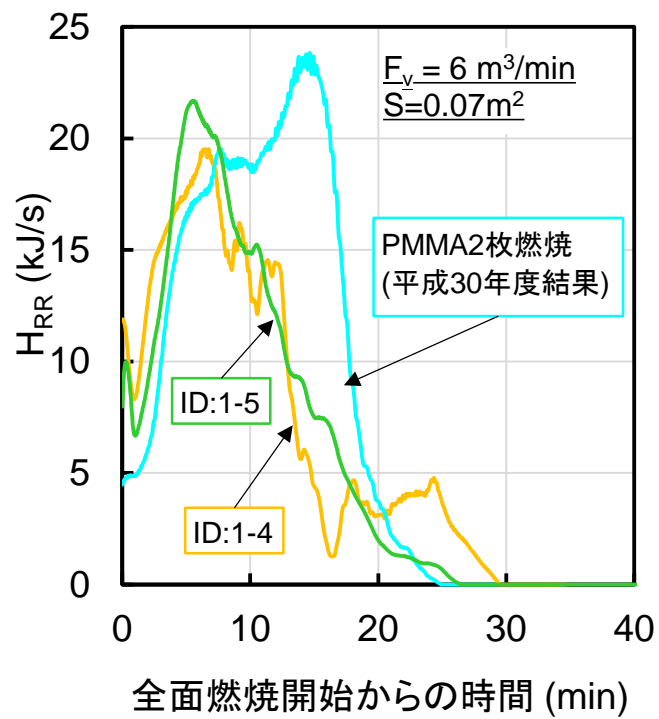


図 3.29 H_{RR} の経時変化 (試験 ID:1-4, 1-5)



PC燃焼特有
の試料の隆
起無し

全面燃焼開始
から約9.0分後

図 3.30 試料の燃焼の様子（試験 ID: 1-5、全面燃焼開始から約 9.0 分後）

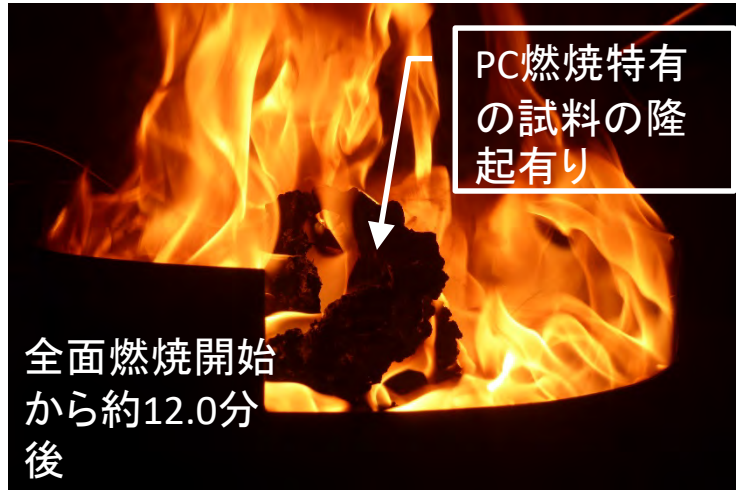


図 3.31 試料の燃焼の様子（試験 ID: 1-5、全面燃焼開始から約 12.0 分後）



図 3.32 試料の燃焼の様子（試験 ID: 1-5、全面燃焼開始から約 16.0 分後）



図 3.33 試験後の試料の様子 (試験 ID: 1-5)

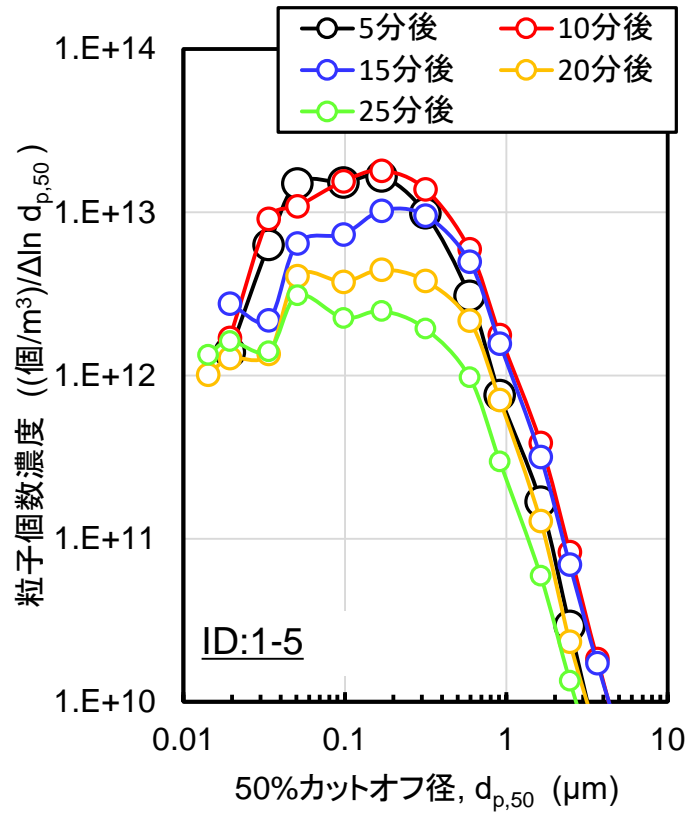


図 3.34 ばい煙の粒径分布の経時変化 (試験 ID:1-5)

3) 粒状試料使用の影響 (試験 ID:1-6~1-8)

粒状試料を用いた試験では、先に述べた通り、3.3.2 項で述べる HEPA フィルタの目詰まり挙動を調べる試験において、PMMA と PC の同時燃焼が継続した場合のばい煙を発生させることを目的としている。さらに、試料の形状 (粒状又は板状) の違いによるばい煙発生特性も観察することを目的としている。そのため本項では主にばい煙発生特性に関する結果を述べる。

a) 重量減少速度 m_b

図 3.35 に、試験 ID:1-7 で得られた試料重量の経時変化を示す。比較のために、S、 F_v 及び試料の初期重量の条件が同じである試験 ID:1-5 (試験試料加熱用ヒーター使用) に加えて、PMMA2 枚燃焼 (試験試料加熱用ヒーター不使用) の結果 (平成 30 年度実施) も示した。図 3.35 より、試験 ID:1-7 の 3 分~20 分後の M_b の傾きから評価した m_b ($=1.1 \times 10^{-3} \text{ kg/s}$) は、全面燃焼開始の比較的初期の段階から試験 ID:1-5 (3~8 分後の $m_b = 1.4 \times 10^{-3} \text{ kg/s}$) や PMMA2 枚燃焼の m_b (3~8 分後の m_b は試験 ID:1-5 とほぼ同じ値) に比べて低い結果となっている。この違いの要因としては、次のことが考えられる。試験 ID:1-5 は、全面燃焼開始から比較的初期の段階において上層の PMMA が優先的に燃焼している (PMMA2 枚燃焼の m_b に近い)。一方、試験 ID:1-7 の場合は着火の段階で粒状の PMMA と PC が露出していることから、全面燃焼開始当初から PMMA と PC の両方の燃焼が生じているためと考えられる。また、 m_b が一定となっている時間が、試験 ID:1-5 の場合 (図 3.35 の 3~8 分後) よりも試験 ID:7 の方 (図 3.35 の 3~20 分後) が長い結果となっている。この結果は、試験 ID:1-7 の燃焼において、PMMA と PC との同時燃焼が定常的に継続していることを示唆している。

図 3.36 に、試験 ID:1-8 で得られた試料重量の経時変化を示す。比較のために、S、 F_v 及び試料の初期重量の条件が同じである PMMA1 枚燃焼の結果 (平成 30 年度結果) も示した。試験 ID:1-8 の M_b の傾きが一定である 3~10 分後までの m_b を評価すると、約 $1.4 \times 10^{-3} \text{ kg/s}$ であった。この m_b は、PMMA1 枚燃焼の場合の m_b (約 $1.1 \times 10^{-3} \text{ kg/s}$) に対して 1.3 倍ほど大きい。両者の m_b の違いは試料形状の違いが影響している可能性がある。この要因としては、板状試料の場合には試料内部で気泡として生じた熱分解ガスが徐々に放出されるのに対して、粒状試料の場合には粒間の空隙が存在するために板状試料に比べて下層の粒状試料から生じた熱分解ガスが速やかに粒間の空隙を通過して燃焼に寄与する可能性が挙げられる。

なお、試験試料加熱用ヒーターを使用しなかった試験 ID:1-6 では、着火操作終了後に速やかに部分燃焼に移行して、燃焼が進行しなかった (図 3.37 及び図 3.38 参照)。試験 ID:1-6 の燃焼が進行しなかった要因としては、試験 ID:1-1~1-4 の場合と異なり、粒状の PMMA と PC が混在しているために粒状の PMMA の燃焼が物理的に阻害されて火炎の成長が難しかったためと考えられる。

b) 試料燃焼の様子

図 3.39～図 3.41 に試験 ID:1-7 の試料の燃焼の様子を示す。また、図 3.42 に試験 ID:1-7 の試験後の試料の様子の写真を示す。図 3.39 (全面燃焼開始後：約 4.2 分) では、試料の一部に PC 燃焼特有の隆起が見られている。このことから、全面燃焼開始から早い段階から PMMA だけでなく PC も燃焼していることが確認できる。このような燃焼が約 20 分近くまで継続した。この結果は、3.3.1(4)3a)項で述べた試験 ID:1-7 の 20 分まで一定の m_b で PMMA と PC が同時燃焼したことに対応しているものと考えられる。図 3.40 (全面燃焼開始後：約 19.9 分) では、隆起した PC の一部に火炎が消失し燻焼に移行した箇所が見られた。図 3.41 (全面燃焼開始後：約 20.3 分) では、隆起した PC が燻焼に移行した箇所が増加している。図 3.40 及び図 3.41 に見られた PC の燃焼の様子の変化は、a)で述べた試験 ID:1-7 の m_b が 20 分以降に低下したことに対応しているものと考えられる。図 3.42 の試験後の残渣は、図 3.12 (試験 ID:1-4) 及び図 3.33 (試験 ID:1-5) に示した上層に PMMA、下層に PC を配置した円板状試料の場合と比べて、膨張が抑制されているように見える。これは、円板状試料の場合には板試料内部で発生した熱分解ガスの気泡が板外部に放出されるまで板状試料が膨張するのに対して、試験 ID:1-7 の粒状 PMMA と PC 混合試料の場合には粒状層内で生じた熱分解ガスが粒間の空隙を通過して試料層外に放出されることにより膨張が抑制された燃焼であったためと推測される。このような燃焼が試験 ID:1-7 において、PMMA と PC との同時燃焼が定常的に継続した要因であると考えられる。また、図 3.42 では、図 3.12 及び図 3.33 と異なり、半透明の未燃 PC の残存は観察されなかった。そこで、(3-3)式を用いて残渣を未燃 PC と見做した場合である未燃 PC の残存率を評価すると、試験 ID:1-7 の L_1 は約 19%であった。この値は、試験 ID:1-1～1-4 の L_1 (約 17～約 23%) 及び試験 ID:1-5 (約 26%) と比べて大きな差ではなかった。ただし、半透明の未燃 PC のみを未燃 PC と見做す場合には試験 ID:1-7 の L_2 はゼロとなり、粒状試料の場合の方が円板状よりも PC が燃焼したことになると考えられる。

図 3.43～図 3.45 に試験 ID:1-8 の試料の燃焼の様子を示す。また、図 3.46 に試験 ID:1-8 の試験後の試料の様子の写真を示す。図 3.43 (全面燃焼開始後：約 2.9 分) では、全面で PMMA が燃焼している様子が観察されている。このような燃焼が約 9 分近くまで継続した。図 3.44 (全面燃焼開始後：約 9.7 分) では、PMMA の燃焼が進んで試料容器の底面の露出が近い箇所の存在が見られる。図 3.45 (全面燃焼開始後：約 11.8 分) では明瞭に試料容器の底面の露出した箇所が確認できる。約 9 分後以降に図 3.44 及び図 3.45 で見られた局所的に試料容器の底面の露出した箇所を伴った燃焼のために、10 分後以降の試験 ID:1-8 の m_b (図 3.36 参照) が低下したものと考えられる。また、図 3.46 において試料容器には残渣が存在しなかったことから、試験 ID:1-8 の PMMA は自然鎮火までに完全に燃焼した。これは、円板状の PMMA 燃焼の場合 (平成 30 年度実施) と同様の結果であった。

c) ばい煙の粒径分布

図 3.47 に、試験 ID:1-7 で得られたばい煙の粒径分布の経時変化を示す。図 3.47 より、5 分後から 20 分後までの粒径分布はほぼ一致していることがわかる。この結果は先に述べた m_b が一定となっている時間の範囲内であり、PMMA と PC との同時燃焼が定常的に継続していることにより、粒径分布が一定のばい煙が放出されていることを示唆している。また、試験 ID:1-7 の試験条件では、全面燃焼開始から自然鎮火までの時間（約 25 分、図 3.35 参照）に対して、約 80% の時間で粒径分布が一定のばい煙が放出されていることから、3.3.2 項の HEPA フィルタの目詰まり挙動の観察試験のばい煙供給条件として採用した。

図 3.48 に試験 ID:1-8 で得られたばい煙の粒径分布を示す。比較のために、図 3.36 中の板状 PMMA1 枚燃焼の試験において測定された粒径分布（平成 30 年度結果）も示した。図中の粒径分布のプロットは、図 3.36 で示したそれぞれの試験において一定の m_b であった時間での平均値で表した。図 3.48 に示すように、試験 ID:1-8 と板状 PMMA1 枚燃焼の分布には大きな差が見られなかった。この結果から、単一 PMMA 燃焼時のばい煙の粒径分布に対する試料形状の影響は小さいものと考えられる。

d) ばい煙化率 G

表 3.3 に試験 ID:1-7、1-8 から評価したばい煙化率を PMMA 単一燃焼及び PC 単一燃焼の燃焼の場合の結果（平成 30 年度結果）とともに示す。試験 ID:1-7 のばい煙化率は、PMMA 単一燃焼及び PC 単一燃焼の場合のほぼ中間の値となった。3.3.1(4)3)a)項及び 3.3.1(4)3)b)項で述べたように、試験 ID:1-7 では PMMA と PC の同時燃焼時が長時間継続したと考えられることから、試験 ID:1-7 のばい煙化率は PMMA と PC の同時燃焼時におけるばい煙化率に近いものと推測される。試験 ID:1-8 のばい煙化率は、板状 PMMA 単一燃焼の場合よりも小さかった。

表 3.3 試験 ID:1-7 及び 1-8 におけるばい煙化率の評価結果

(燃焼セルの給気条件 : $F_v = 6 \text{ m}^3/\text{min}$ (給気回数 : $F_v/V = 5.1 \text{ min}^{-1}$))

燃焼物の種類	試験試料加熱用 ヒーターの使用の有無	ばい煙化率 G (%)
粒状(PMMA+PC) (試験 ID:1-7)	有	3.9
粒状 PMMA (試験 ID:1-8)	無	0.9
板状 PMMA 単一 (平成 30 年度結果)	無	1.4
板状 PC 単一 (平成 30 年度結果)	有	9.1

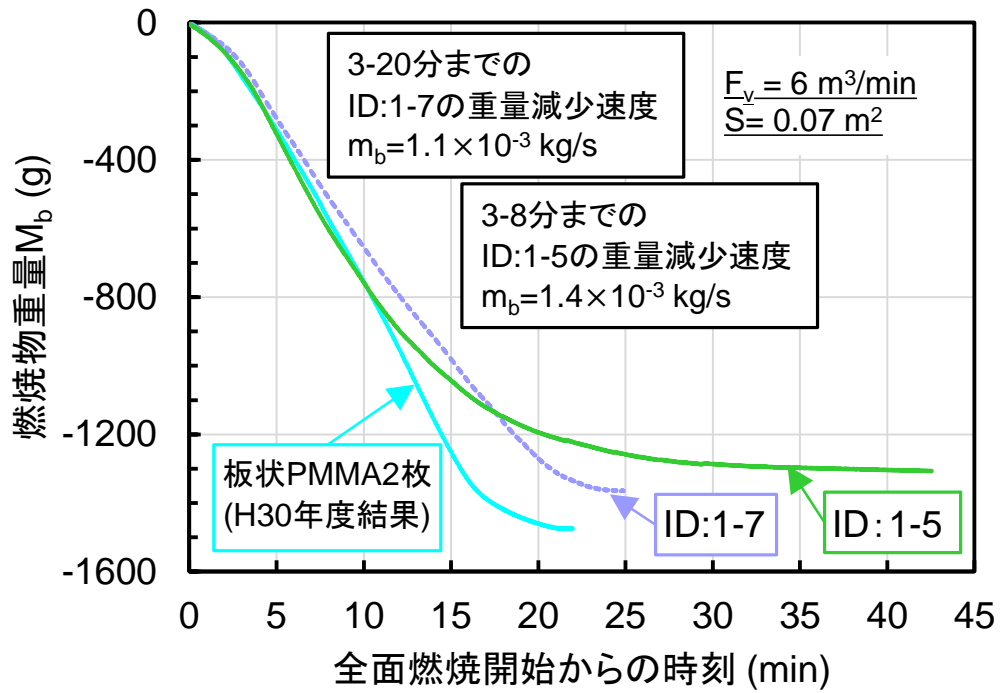


図 3.35 燃烧物重量の経時変化 (試験 ID:1-5, 1-7)

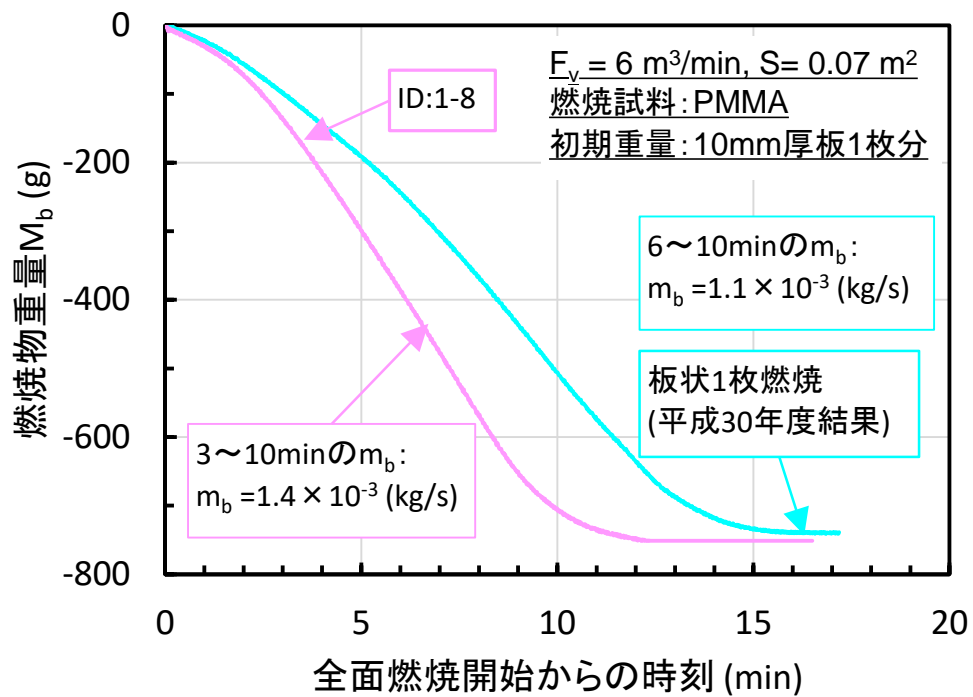


図 3.36 燃烧物重量の経時変化 (試験 ID:1-8)

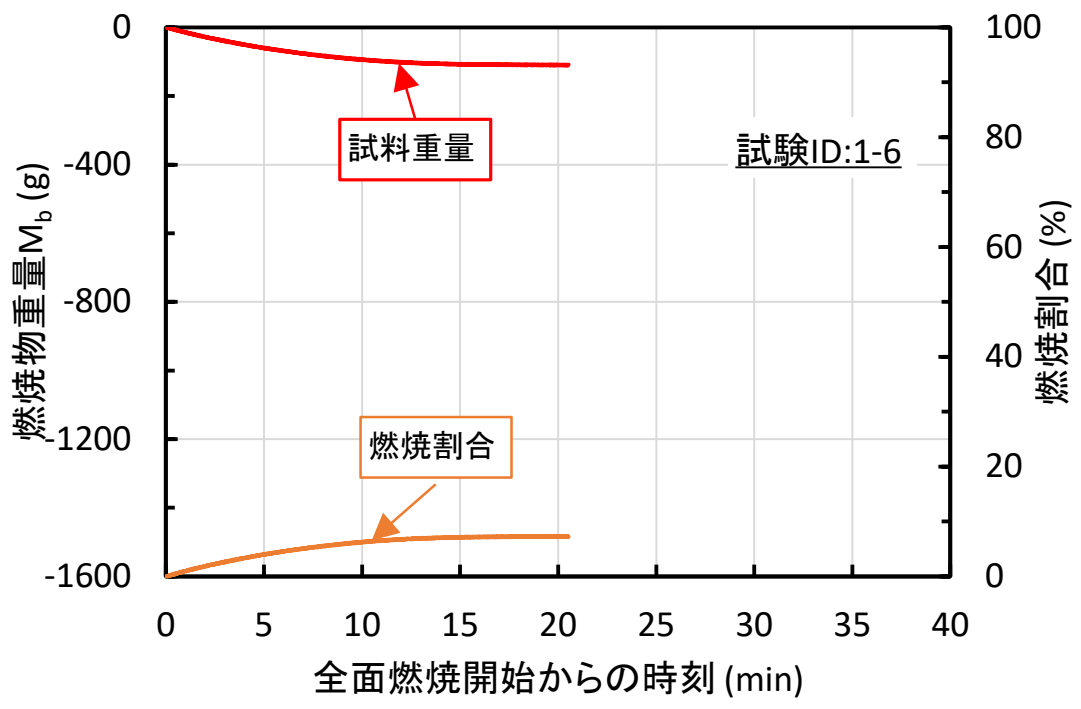


図 3.37 燃焼物重量の経時変化 (試験 ID:1-6)

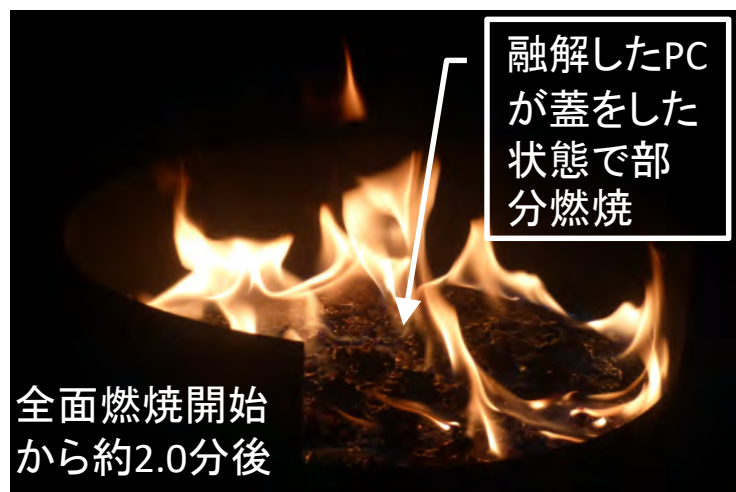


図 3.38 試料の燃焼の様子 (試験 ID: 1-6)



図 3.39 試料の燃焼の様子（試験 ID: 1-7、全面燃焼開始から約 4.2 分後）

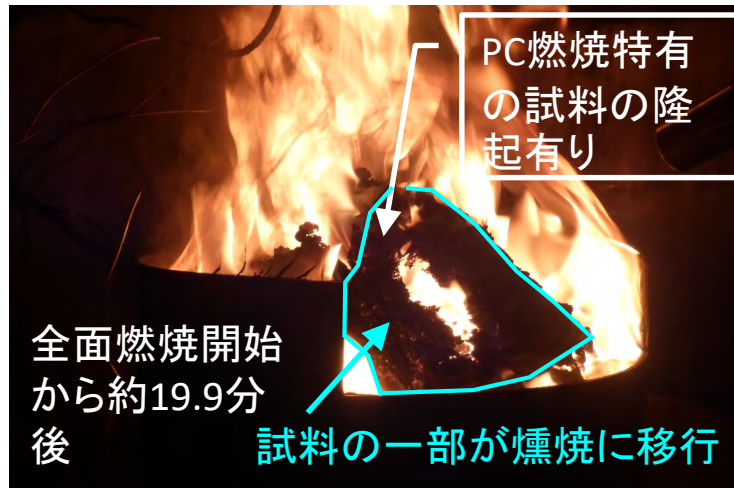


図 3.40 試料の燃焼の様子（試験 ID: 1-7、全面燃焼開始から約 19.9 分後）



図 3.41 試料の燃焼の様子（試験 ID: 1-7、全面燃焼開始から約 20.3 分後）



図 3.42 試験後の試料の様子 (試験 ID: 1-7)



図 3.43 試料の燃焼の様子（試験 ID: 1-8、全面燃焼開始から約 2.9 分後）



図 3.44 試料の燃焼の様子（試験 ID: 1-8、全面燃焼開始から約 9.7 分後）

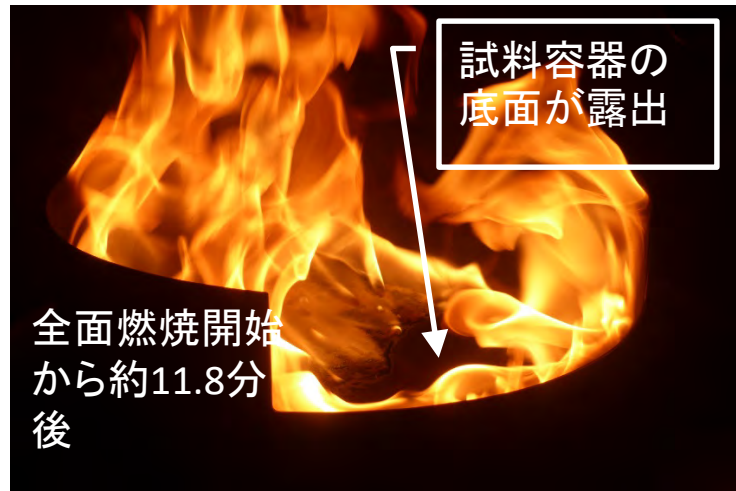


図 3.45 試料の燃焼の様子（試験 ID: 1-8、全面燃焼開始から約 11.8 分後）



図 3.46 試験後の試料の様子 (試験 ID: 1-8)

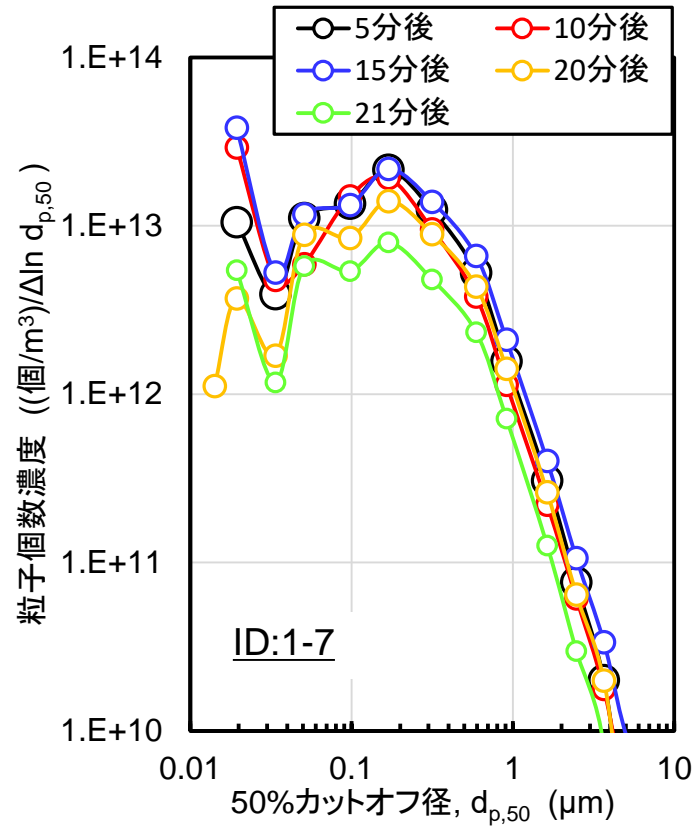


図 3.47 ばい煙の粒径分布の経時変化 (試験 ID:1-7)

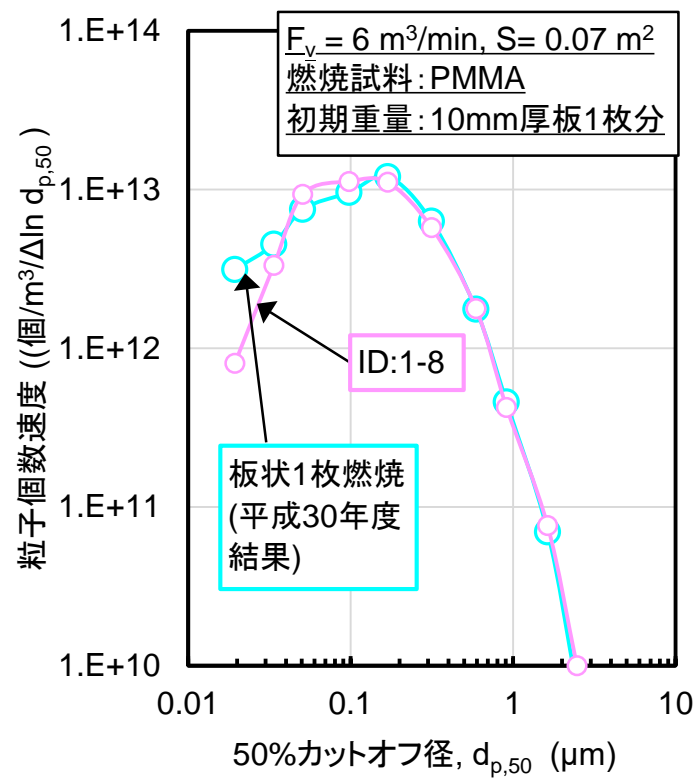


図 3.48 単一 PMMA 燃焼時のばい煙の粒径分布に対する試料形状の影響 (試験 ID:1-8)

4) 下層を難燃 PMMA とした場合(試験 ID:1-9,1-10)

a) 重量減少速度 m_b

図 3.49 に、試験 ID:1-9、1-10 で得られた試料重量の経時変化を示す。比較のために、下層の試料が PC である試験 ID:1-4 の結果も示した。試験 ID:1-4 の結果では、約 10 分よりも若干早い時点から下層の PC の燃焼が始まることから重量減少の割合が徐々に低下していくが、試験 ID:1-9、1-10 の結果では、重量は自然鎮火まで連続的に低下している。試験 ID:1-9、1-10 の傾向は、図 3.7 に示した PMMA2 枚燃焼時の傾向と同じである。これは、難燃 PMMA も主要成分はアクリル樹脂であるためと考えられる。また、試験 ID:1-9、1-10 の m_b (M_b の傾き) の違いはわずかであり、試験試料加熱用ヒーター使用による m_b に対する影響は小さかったものと考えられる。

b) 放熱速度 H_{RR}

図 3.50 に、試験 ID:1-9、1-10 で得られた H_{RR} の経時変化を示す。比較のために、試験 ID:1-4 の結果も示した。試験 ID:1-9、1-10 の H_{RR} の経時変化は、試験 ID:1-4 の H_{RR} が最大に至る時間までは試験 ID:1-4 の結果に近かった。しかしながら、試験 ID:1-10 の H_{RR} は、試験 ID:1-4 において H_{RR} が低下し始める時間以降においても、増加することが確認された。これは、3.3.1(4)1b) 項で述べたように、試験 ID:1-4 では、PC が燃焼開始することにより、 H_{RR} が低下していくのに対し、試験 ID:1-10 ではそれがなかったためと考えられる。また、試験 ID:1-9、1-10 の H_{RR} の最大値を比較すると、試験 ID:1-10 の方が高いことが確認された。これは、試験 ID:1-10 では、試験試料加熱用ヒーターにより下層の難燃 PMMA を加熱しているため、試験 ID:1-9 よりも難燃 PMMA に含まれる添加物の熱分解による可燃性有機ガスの放出とこれらの燃焼が促進されたためと考えられる。

c) ばい煙化率 G

表 3.4 に試験 ID:1-9、1-10 で得られたばい煙化率を示す。ばい煙化率は、試験 ID:1-10 の方が大きかった。これは、試験試料加熱用ヒーターの使用により試料の燃焼が促進されたためと考えられる。

表 3.4 試験 ID:1-9、1-10 におけるばい煙化率の評価結果

(燃焼セルの給気条件 : $F_v = 6 \text{ m}^3/\text{min}$ (給気回数 : $F_v/V = 5.1 \text{ min}^{-1}$))

燃焼物の種類	試験試料加熱用 ヒーターの使用の有無	ばい煙化率 G (%)
(PMMA+難燃 PMMA) (試験 ID:1-9)	無	3.7
(PMMA+難燃 PMMA) (試験 ID:1-10)	有	9.3

d) ばい煙の粒径分布

図 3.51、図 3.52 にそれぞれ、試験 ID:1-9、1-10 で得られたばい煙の粒径分布の経時変化を示す。図 3.51、図 3.52 とともに、上層の PMMA の燃焼が進行していると考えられる全面燃焼開始後から約 6~8 分後に粒径分布はほぼ一定となったが、それ以降、約 11 分後にかけて徐々に最頻度径と最頻度径における粒子個数濃度がともに増大した。この変化は、この時間帯付近から下層の難燃 PMMA の燃焼が開始することに起因すると考えられる。その後、粒径分布は約 11~12 分にかけて再びほぼ一定となり、その後は、最頻度径はほとんど変化なく個数濃度のみが減少した結果となった。約 8 分以降で最頻度径と最頻度径における個数濃度がともに増大した結果は、ばい煙放出速度も増加したことを示唆している。また、約 6~8 分及び約 11~12 分におけるばい煙の粒径分布の最頻度径や最頻度径における粒子個数濃度は、試験 ID:1-9 と試験 ID:1-10 の間でほとんど差は見られなかった。このため、試験試料加熱用ヒーター使用によるばい煙の粒径分布に対する影響は小さかったものと考えられる。

e) 難燃 PMMA の燃焼特性の特徴

a)~c)の結果を踏まえると、下層を難燃 PMMA とした場合 (試験 ID:1-9、1-10) は、下層の燃焼が顕著になり始めると、下層を PC とした場合 (試験 ID:1-4、1-5) と比べて m_b や H_{RR} 、ばい煙化率が大きくなった。難燃 PMMA は、PC と同様に自己消火性を有している材料ではあるが、外部からの入熱を伴いながら火炎に継続して暴露された場合には、PC よりも燃焼しやすいものと推測される結果となった。

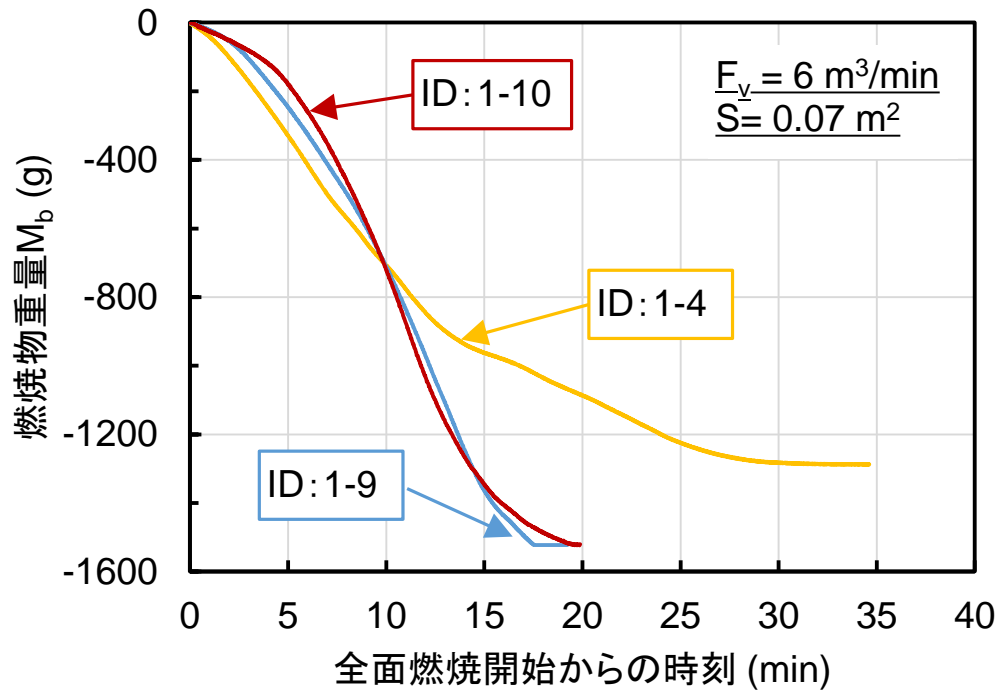


図 3.49 燃焼物重量の経時変化 (試験 ID:1-9、1-10)

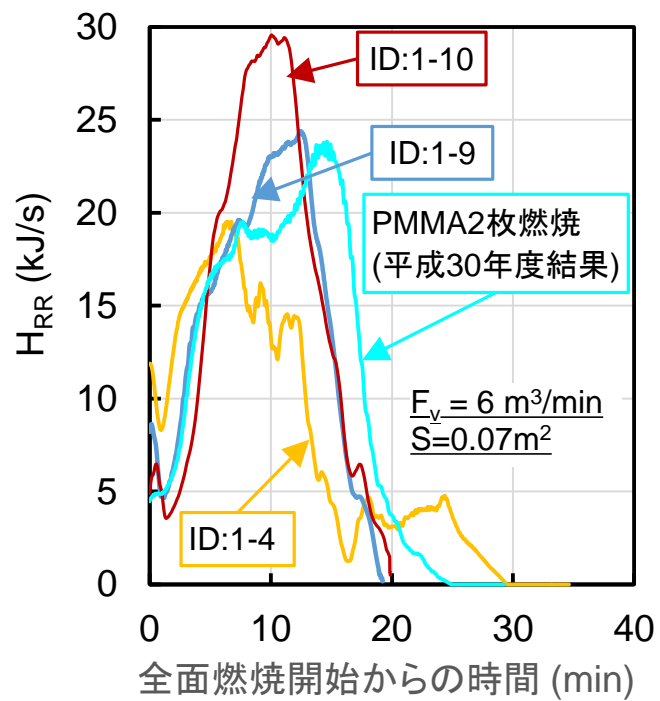


図 3.50 H_{RR} の経時変化 (試験 ID:1-9, 1-10)

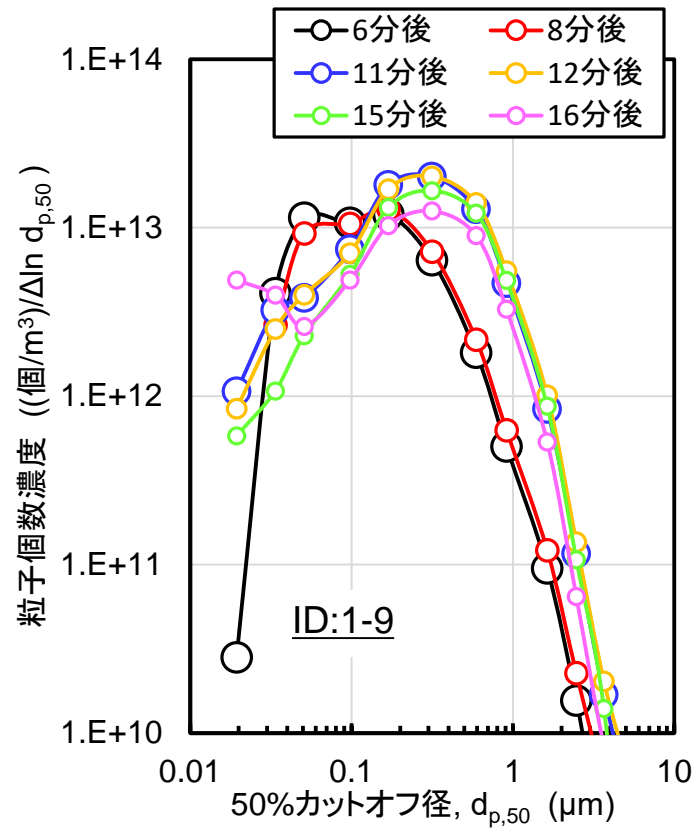


図 3.51 ばい煙の粒径分布の経時変化 (試験 ID:1-9)

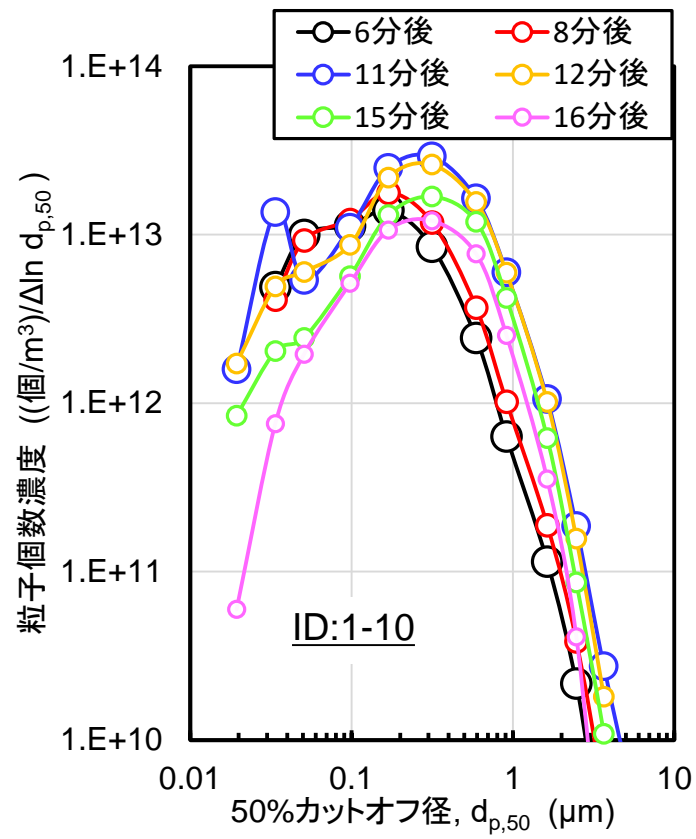


図 3.52 ばい煙の粒径分布の経時変化 (試験 ID:1-10)

3.3.2 GB パネル材料燃焼に伴う HEPA フィルタ目詰まりデータの取得

(1) 概要

PMMA の燃焼により PC が延焼し、これらが同時燃焼する場合のばい煙の負荷による HEPA フィルタの目詰まり挙動を把握するため、PMMA と PC の同時燃焼により放出されたばい煙を HEPA フィルタに負荷させ、HEPA フィルタの単位面積当たりのばい煙負荷量と HEPA フィルタの差圧との関係を観察した。試験に使用した燃焼物は、3.3.1 項で得られた結果を踏まえ、ヒーター加熱を伴う粒状の PMMA と PC の混合試料（表 3.1 の試験 ID:1-7 の条件）とした。また、単一材料の燃焼であっても粒状試料と板状を用いた場合には HEPA フィルタの差圧上昇挙動が異なる可能性があることから、粒状の単体試料（PMMA 及び PC）の燃焼に伴う HEPA フィルタの差圧上昇についても試験を行い比較した。

(2) 試験方法

PMMA と PC の同時燃焼によるばい煙の発生は、3.3.1 項で述べた試験 ID:1-7（条件詳細は表 3.1 参照）での方法により行った。ばい煙を負荷させている間の HEPA フィルタの透過流量は、使用した HEPA フィルタの定格風量とした。燃焼試験を複数回繰り返すことで HEPA フィルタに対するばい煙の負荷重量を増加させ HEPA フィルタの差圧上昇を生じさせた。

また SEM（Scanning electron microscope）を用いて、目詰まりが生じている HEPA フィルタろ紙の表面及び断面（深さ方向）の写真を撮影し、目詰まりの進行とばい煙の捕集状況との関係を観察した。

(3) 試験条件

表 3.5 に試験条件を示す。試験 ID:2-1 は、PMMA と PC が同時燃焼する場合のばい煙負荷に伴う HEPA フィルタの目詰まり挙動を調べるための試験である。HEPA フィルタの単位面積当たりのばい煙負荷量 (M (kg/m^2)) と HEPA フィルタの差圧 (ΔP (kPa)) の関係を、単一の PMMA 燃焼及び PC 燃焼の場合の結果（平成 30 年度実施）と比較できるように、HEPA フィルタの差圧を約 2 kPa まで上昇させた。 M は、着火開始から自然鎮火までの間にフィルタホルダで捕集したばい煙重量に流量比 4608 倍（=HEPA フィルタの透過流量 / フィルタホルダの吸引流量）を乗じ、HEPA フィルタの初期のろ過面積（=30 m^2 ）で除することで算出される。また、SEM による目詰まりの進行とばい煙の捕集状況との関係を観察するために、試験 ID:2-1 と同じ操作を行って ΔP が約 0.5 kPa（初期段階）、 ΔP が約 1.2 kPa（中期段階）まで HEPA フィルタの差圧を上昇させた試験を行って SEM 撮影用の HEPA フィルタ試料を作製した。試験 ID:2-2 及び ID:2-3 は、それぞれ、単一の PMMA 燃焼及び PC の燃焼において、燃焼物の形状の違いによる HEPA フィルタの目詰まり挙動への影響を確認するための試験である。試験 ID:2-2 及び ID:2-3 は、板状の燃焼物（PMMA 及び PC：平成 30 年度実施）の HEPA フィルタの差圧の増加割合との差異が確認できる程度まで差圧を上昇させた。

表 3.5 GB パネル材料燃焼に伴う HEPA フィルタ目詰まりデータの取得のための試験条件

試験 ID	GB パネル 種類	試験試料加熱用ヒーター使用有無 (燃焼物加熱温度)	燃焼セルへの給気流量 (m ³ /min)	HEPA フィルタの透過流量 (m ³ /min)
2-1	粒状 PMMA 及び PC の混合試料	有	6	50
2-2	粒状 PMMA	無		
2-3	粒状 PC	有		

(4) 試験結果

図 3.53 に各試験で得られた $M-\Delta P$ の関係を示す。比較のために、 F_v の条件が同じである、板状の単一 PMMA 燃焼及び PC 燃焼の場合の結果（平成 30 年度結果）も併せて示した。試験 ID: 2-1 の ΔP の増加割合は、単一の PMMA 燃焼及び PC 燃焼の場合よりも大きい結果となった。また、試験 ID: 2-2 と板状の単一 PMMA 燃焼との比較、及び試験 ID: 2-3 と板状の単一 PC 燃焼との比較から、 ΔP の増加割合に対する燃焼物の形状（粒状と板状）については、PMMA 燃焼の場合はほとんど影響がなく、PC 燃焼の場合は板状燃焼の方が大きい結果となった。燃焼物形状の異なる単一 PMMA 燃焼の場合の ΔP の増加割合にほとんど影響がなかった点については、3.3.1(4)3項において試験 ID: 1-8 と板状 PMMA 1 枚燃焼（平成 30 年度結果）の図 3.36 の自然鎮火時の M_b 及び図 3.48 のばい煙の粒径分布の結果がほぼ同じであったことから、図 3.53 に示した試験 ID: 2-2 と板状の単一 PMMA 燃焼においては、粒径及び M がほぼ同じばい煙が HEPA フィルタに負荷されたためと推測される。

図 3.53 に示した試験 ID: 2-1~2-3 と他試験との ΔP の増加割合の違いについては、HEPA フィルタに負荷されたばい煙の粒子体積の違いが影響している可能性が考えられる。図 3.54 に、 M で規格化した HEPA フィルタに負荷されたばい煙粒子の積算体積 (V_s/M (m³/(kg/m²))) の変化を評価した結果を示す。 V_s/M は、以下の方法で算出した。まず、各試験において ELPI を用いて得られた個数濃度基準のばい煙の粒径分布において、各粒子分級段で分級されたばい煙の粒径が各段のカットオフ径（ELPI の粒子分級段における分離効率が 50% の空気力学径基準の粒径）と同じ粒径の球形粒子であることを仮定することにより、個数濃度基準から体積濃度基準の粒径分布への変換を次式を用いて行った。

$$v_i = \frac{\pi}{6} (d_{p,50,i})^3 \times n_i \quad (3-5)$$

ここで、 v_i は i 段目の粒子分級段で分級されたばい煙粒子の体積濃度 (m³-粒子/m³-空気)、 $d_{p,50,i}$ は i 段目の粒子分級段のカットオフ径 (m)、 n_i は i 段目の粒子分級段で分級されたばい煙粒子の個数濃度 (個/m³-空気) である。また、下付き文字の i は ELPI の n 段目の粒子分級数 ($n=1\sim 14$) である。ELPI では流量一定の下で、連続的(毎秒計測)に粒径別の個数濃度を測定していることから、変換した各段の v_i を全段にわたって積算して ELPI で捕集されたばい煙粒子の全体積濃度を

算出し、さらに HEPA フィルタの吸引流量 (50 m³/min) を乗じた次式を用いて、秒毎に HEPA フィルタに負荷されるばい煙の体積量 V (t) (m³) を算出した。

$$V(t) = \frac{50}{60} \times \sum_{i=1}^{14} v_i(t) \quad (3-6)$$

ここで、t は時間(s)である。算出した V (t) をばい煙負荷開始時刻 t_s から終了時刻 t_e まで積算した次式により、ばい煙粒子の積算体積 V_s (m³) を算出した。

$$V_s = \int_{t_s}^{t_e} V_i(t) dt = \sum_{j=1}^l V_j \quad (3-7)$$

ここで、下付き文字 j は測定で得られた V の番号である。

このように求めた V_s を燃焼試験 1 回毎の M で除することにより V_s/M を計算した。図 3.54 の各試験の V_s/M の大小の順は、図 3.53 の ΔP の増加割合の大小の傾向と一致している。これは、同じ M に対するばい煙粒子の積算体積が大きくなるほど、負荷されたばい煙粒子による HEPA フィルタのろ紙の空気透過の流路の閉塞が増大することとなり、その結果として HEPA フィルタの空気透過に対する抵抗が増大して ΔP の増加割合がより大きくなるためと考えられる。

図 3.55～図 3.60 に、試験 ID:2-1 における HEPA フィルタのろ紙断面及び表面の SEM 観察結果を示す。図 3.55 及び図 3.56 は ΔP が約 0.5 kPa (初期段階)、図 3.57 及び図 3.58 は ΔP が約 1.2 kPa (中期段階)、図 3.59 及び図 3.60 は ΔP が約 2.1 kPa (後期段階) となった時点での結果である。SEM 撮影を行った HEPA フィルタろ紙の位置は、いずれも図 3.3 に示したメディアの中央付近の位置であり、そのプリーツ (HEPA フィルタケーシングに折り畳んだ状態で収納されているろ紙の折り畳み) を構成しているろ紙上での位置に対しては、HEPA フィルタへのガス流入側の開口面に近い位置 (以下「山側」という) である。図 3.55 から、ばい煙負荷の初期段階において、ばい煙の堆積がろ紙表面においても生じており、ろ紙の表面でのろ過に移行していたことが分かる。図 3.56 では、ばい煙がろ紙表面において凹凸状に負荷されている様子が観察される。これは、ばい煙がろ紙表面の流路を一様に閉塞させるのではなく、ろ紙表面に付着したばい煙に負荷されてデンドライト状になっているためである。このように形成されたばい煙によるデンドライトは HEPA フィルタの空気透過の抵抗が大きくなる要因となり、ΔP の増加割合がばい煙負荷の初期段階から増大した一因となっている可能性が考えられる。また、図 3.59 では、ばい煙負荷の後期段階において、HEPA フィルタろ紙との境界近くの粒子堆積層の圧縮が生じていることが観察される。粒子堆積層の圧縮が生じると、堆積層内の空隙率が低下することとなるため、図 3.53 の ΔP の増加割合のさらなる増大の一因になるものと推測される。

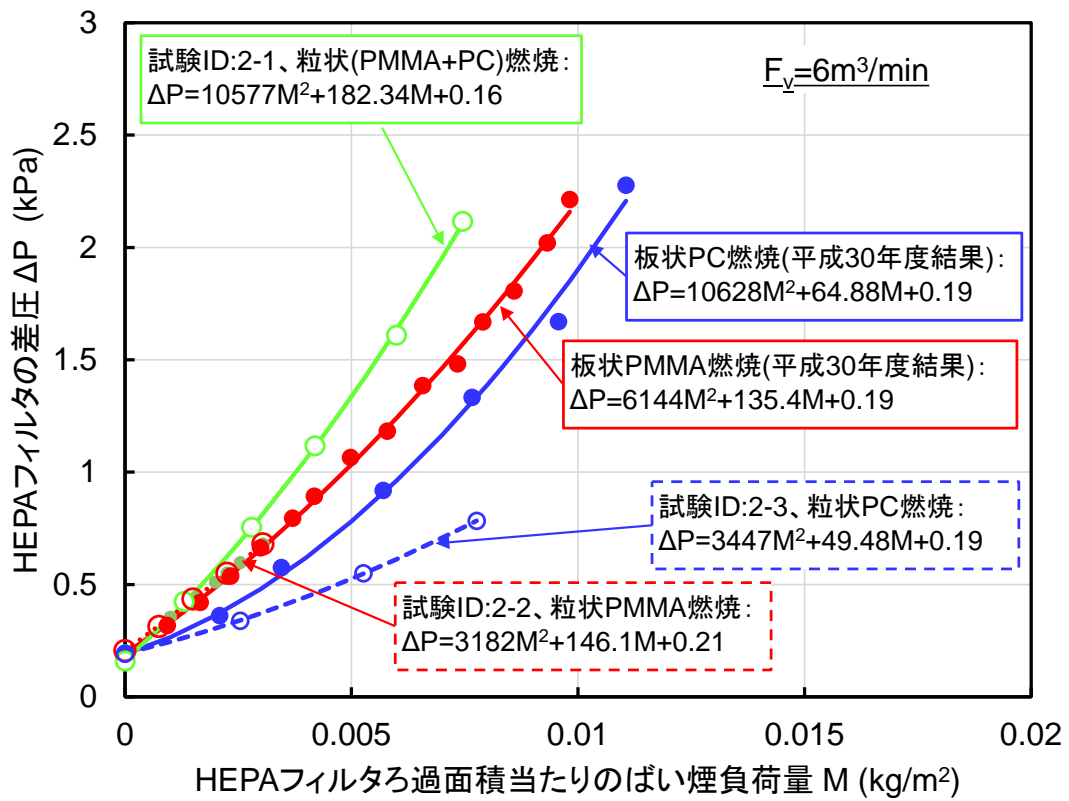


図 3.53 HEPA フィルタの単位面積当たりのばい煙負荷量と HEPA フィルタの差圧の関係
 (試験 ID:2-1~2-3)

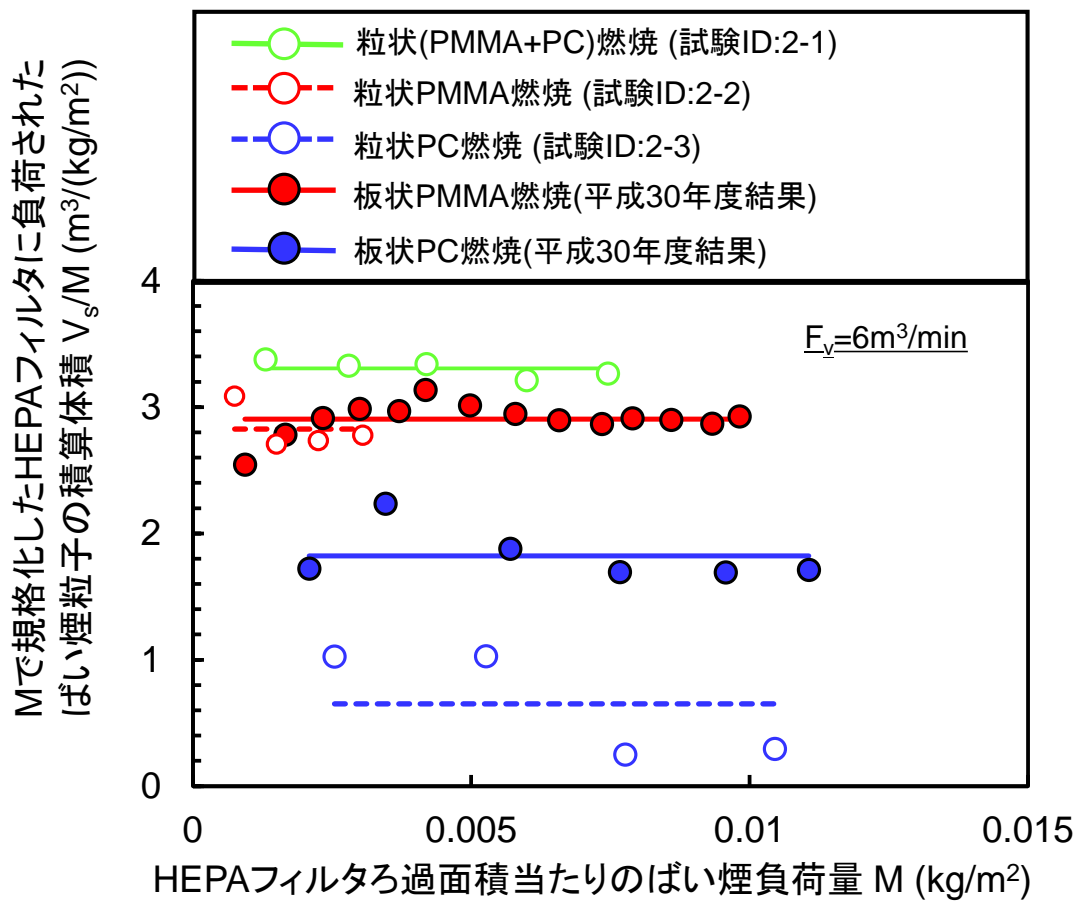


図 3.54 M で規格化した HEPA フィルタに負荷されたばい煙粒子の積算体積の変化

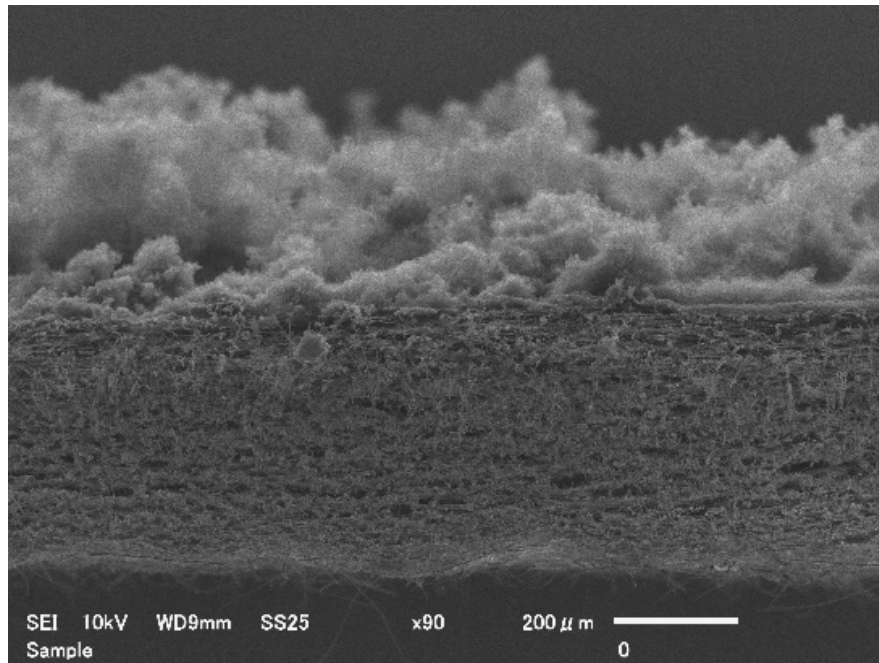


図 3.55 HEPA フィルタろ紙断面の SEM 撮影結果
(試験 ID:2-1 のばい煙負荷の初期段階)
(ばい煙負荷終了時の ΔP =約 0.5 kPa、撮影位置：プリーツの中央付近の山側)

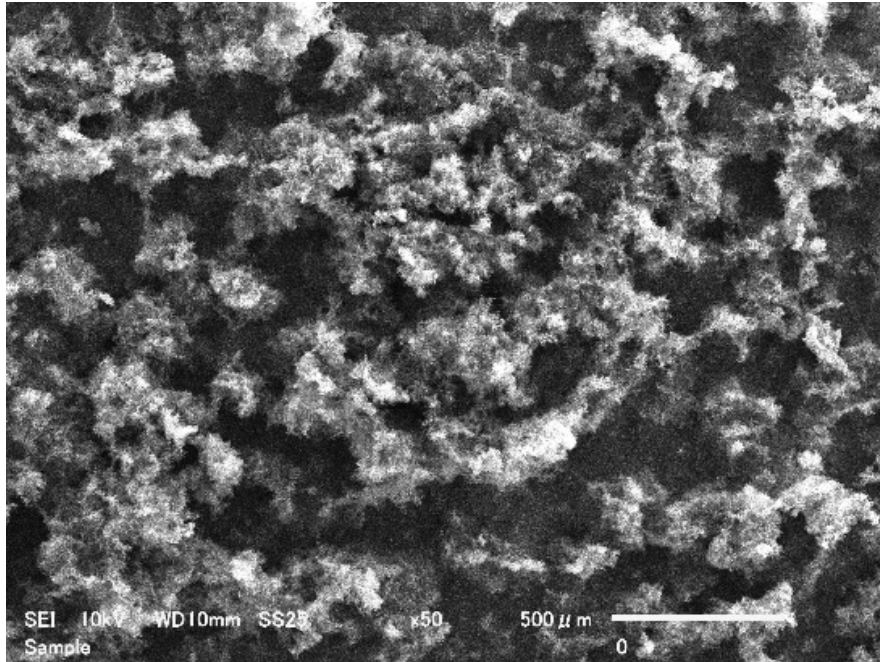


図 3.56 HEPA フィルタろ紙表面の SEM 撮影結果

(試験 ID:2-1 のばい煙負荷の初期段階)

(ばい煙負荷終了時の ΔP =約 0.5 kPa、撮影位置：プリーツの中央付近の山側)

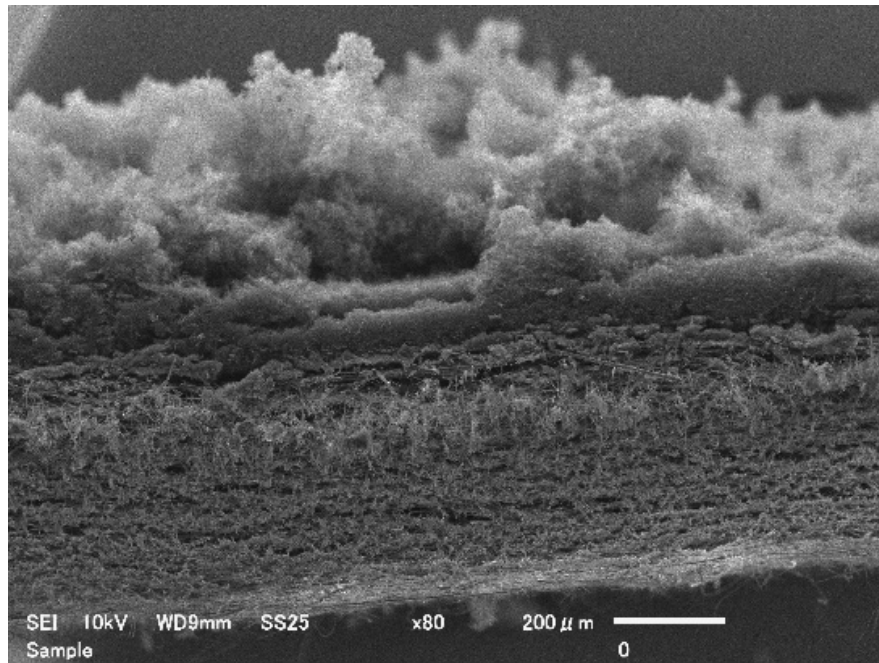


図 3.57 HEPA フィルタろ紙断面の SEM 撮影結果

(試験 ID:2-1 のばい煙負荷の中期段階)

(ばい煙負荷終了時の ΔP =約 1.2 kPa、撮影位置：プリーツの中央付近の山側)

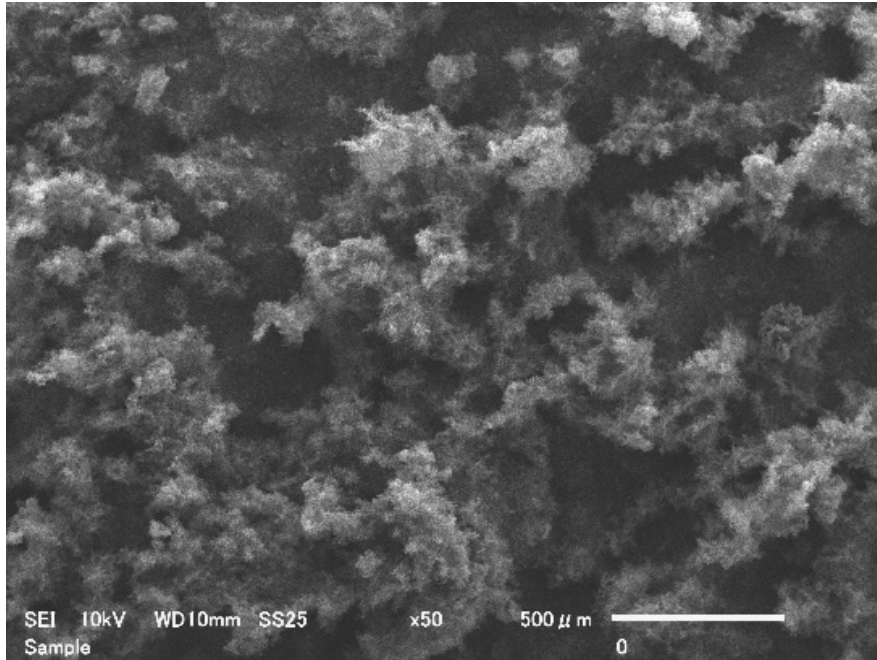


図 3.58 HEPA フィルタろ紙表面の SEM 撮影結果

(試験 ID:2-1 のばい煙負荷の中期段階)

(ばい煙負荷終了時の ΔP =約 1.2 kPa、撮影位置：プリーツの中央付近の山側)

粒子堆積
層の圧縮

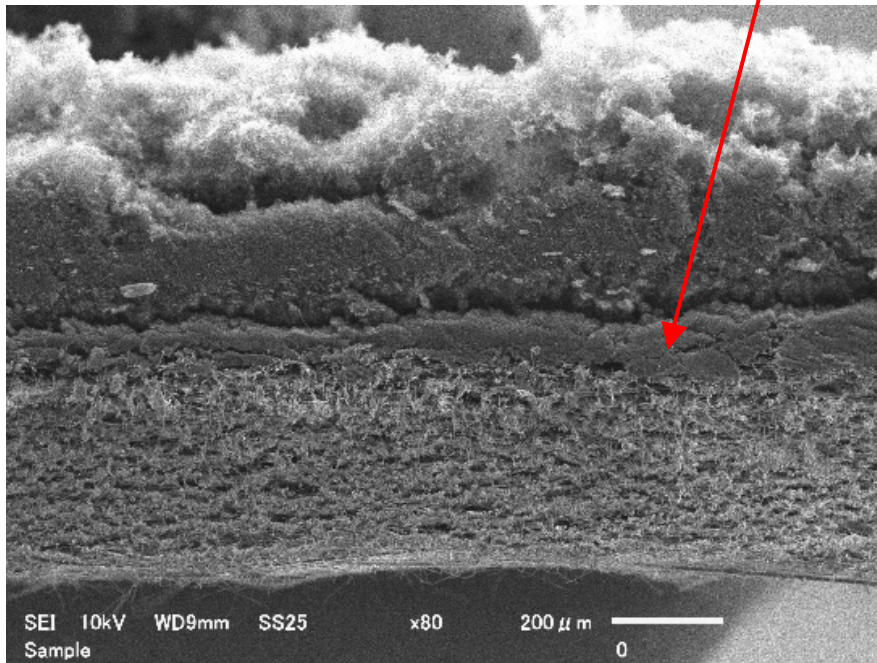


図 3.59 HEPA フィルタろ紙断面の SEM 撮影結果

(試験 ID:2-1 のばい煙負荷の後期段階)

(ばい煙負荷終了時の ΔP =約 2.1 kPa、撮影位置：プリーツの中央付近の山側)

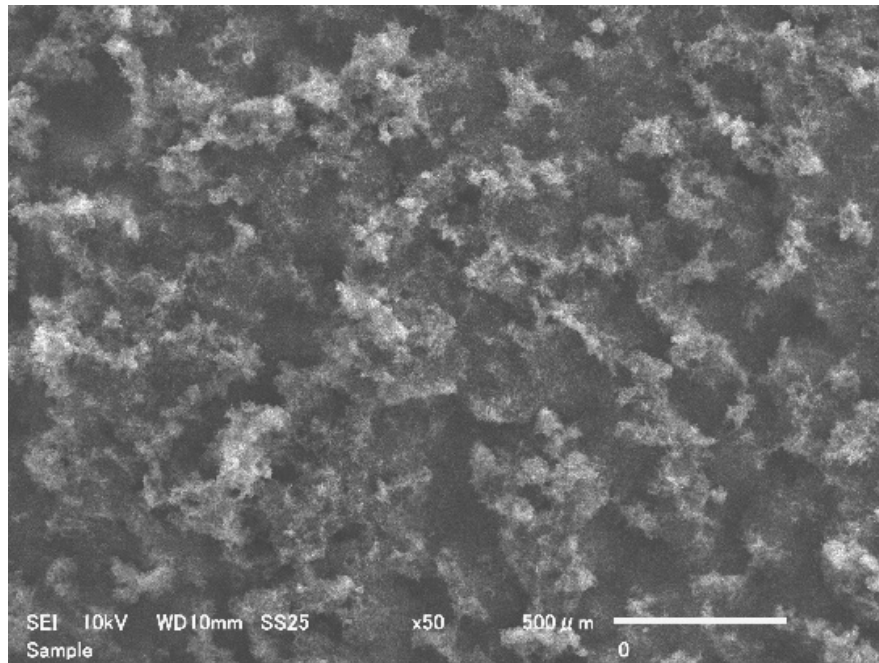


図 3.60 HEPA フィルタろ紙表面の SEM 撮影結果

(試験 ID:2-1 のばい煙負荷の後期段階)

(ばい煙負荷終了時の ΔP =約 2.1 kPa、撮影位置：プリーツの中央付近の山側)

3.3.3 GB パネル材の形状の変化の観察

(1) 概要

PC は自己消炎性を有していることから実施における GB パネル材として広く採用されている。一方、可燃性である PMMA は、PC 同様 GB パネル材として使用されることに加え、ガンマ線遮蔽のために GB パネル材としての PC 板の外側に設置（この場合は含鉛 PMMA）される場合がある。また、PMMA の外側を PC で覆うことも PMMA の耐火性を向上させるために有効であると考えられる。そこで本試験では、可燃性の PMMA 板が燃焼した場合を想定し、PC 板への延焼の有無や形状の変化を観察した。この試験における PC 板への影響は PMMA と PC の板間の距離の影響を受けることが想定されることから、PMMA と PC の板間の距離をパラメータとした。なお、PMMA と同様に中性子の遮蔽目的で可燃性の PE 板も GB に配置される可能性があることから、縦置きした PE 板の燃焼に伴う形状変化についても観察した。

(2) 試験方法及び試験条件

図 3.61 に試験装置のセットアップの概略図、図 3.62、図 3.63 にセットアップの例（表 3.6 の試験 ID:3-3）の写真を示す。本試験では、安全を考慮したうえで可能な限り大きなサイズの PMMA 板と PC 板を ACUA の燃焼セル内に正対するように縦置きした。PMMA 板の内側（PC 側）をガスバーナーにより着火した。両板間の距離（表 3.6 参照）をパラメータとして、燃焼している PMMA 板からの加熱による PC の内外表面の温度分布（放射温度計（日本アビオニクス（株）製、R300BP-TF）及び熱電対（取付け位置：図 3.64 参照）を使用）を測定するとともに、試験後の PC 板の形状変化を観察した。燃焼セル下部からの給気ダクトの弁を閉止し燃焼セルの開口部から給気するようにした。なお、PMMA 板と PC 板は、燃焼セル内の開口部近くに生じる水平方向の給気流れに対して平行になるように配置した。PMMA 板及び PC 板は、横幅約 250 mm×高さ約 500 mm×厚み 10 mm の形状のものを用いた。また、PE については、融点は約 150°C であり、ロウソクのような燃焼であることが知られている。このことから、PMMA の代わりに縦置きした PE 板に着火した場合には火炎からの入熱により、PE 板が速やかに融解して、PC 板への延焼についての観察が行えない可能性が想定された。そこで、縦置きした PE 板単独の燃焼試験（ガスバーナーによる着火）を実施して、PE 板の燃え広がり方、PE 板の形状の変化の様子を観察することとした。図 3.65 に試験装置のセットアップの例（試験 ID: 3-6）を示す。使用した PE 板については、中性子遮蔽強化の目的としたボロン含有による影響を確認するためにボロン無とボロン含有の場合について実施した。PE 板は、横幅約 250 mm×高さ約 300 mm×厚み 10 mm の形状のものを用いた。表 3.6 に試験条件を示す。

表 3.6 GB パネル材の形状の変化の観察のための試験条件

試験 ID	GB パネル材 種類	GB パネル 板間の距離	GB パネル材 サイズ※1	ガスバーナーによる着火の有無	伝熱ヒーターの使用の有無
3-1	正対するように縦置きした PMMA と PC	5 cm	約 250 mmW× 約 500 mmH×10 mmt	有 (PMMA に着火)	無
3-2		10 cm			
3-3		15 cm			
3-4		25 cm			
3-5		40 cm			
3-6	縦置きした PE(ボロン無)	—	約 250 mmW× 約 300 mmH×10 mmt	有 (PE に着火)	
3-7	縦置きした PE (ボロン10%含有)	—			

(4) 試験結果

1) 試験 ID : 3-1～3-5

図 3.66～図 3.79 に、試験 ID:3-1～3-5 の試験中の試料の様子及び試験後の PC 板の様子を示す。図 3.80～図 3.89 に、放射温度計を用いて各試験で得られた PC 板の火炎暴露表面の温度分布及びヒストグラムを示す。図 3.80～図 3.89 は、放射温度計の計測ソフトを用いて出力した。出力方法の概要は次の通りである。

- ・PC 試料の表面温度を観察する範囲を選定するために、各図では熱画像（温度測定）と可視画像（放射温度計で撮影した画像）を合成した画像（ソフトの機能を使用）を使用している。
- ・ヒストグラムの出力について述べる。上記の合成した画像に対して PC 試料の範囲をソフトの BOX 機能を用いて選定（各図中の白色の長方形）し、選定した範囲内の全てのピクセルデータ（位置座標、温度）から温度毎のピクセル数データ（温度、ピクセル数）を算出し、横軸を温度、縦軸をピクセル数としてヒストグラム化した。ただし、選定した範囲内には、試料固定のためのメッシュ（SUS 製）も含まれていることから、ヒストグラム中の相対的に高温の箇所には PC 試料の火炎暴露表面の温度だけでなく、メッシュの温度も含まれている。
- ・図 3.66～図 3.79 には、PC の火炎暴露側表面において下部、中部、上部として設定した温度計測のための代表点を示し、それぞれの点における温度も図示した。代表点は、PC 試料の水平方向に対してほぼ中心の位置とし、さらにメッシュの位置を避けるようにして高さ方向の位置を変えた 3 点（各図で図示した位置）に選定した。

表 3.7 に、図 3.66～図 3.79 の写真から各試験において目視観察された PC 板の観察結果をまとめた。試験 ID:3-1 のみで生じた PC への延焼時の火炎暴露表面での PC 試料温度のピーク値は、図 3.82 及び図 3.83 に示すように PC 試料上部への延焼開始（約 720℃）から PC の全面燃焼時（約 720～約 850℃）に上昇した。

表 3.8 に、図 3.66～図 3.79 の目視観察結果及び図 3.80～図 3.89 の温度測定結果から PC 板の気泡の形成、融解及び PMMA から PC への延焼の有無をまとめた。表 3.7 及び表 3.8 から、

あくまでも本試験条件下での結果ではあるが、燃焼している PMMA の影響を受けない PMMA と PC の板間距離は少なくとも 40 cm 以上の結果となった。また逆に両者の板間距離が 5 cm の条件では、燃焼した PMMA の火炎が PC 表面に接触した結果、PC への延焼が生じた。板間距離が 10 cm 以上の場合には、PMMA の火炎は PC に直接接触することはなかった。

なお、本試験で用いた PMMA 板及び PC 板のサイズは GB でよく用いられるパネル板 1 枚のサイズ (1 m×1 m) の 1/4 である。パネル板周りの流速の条件の影響も考慮する必要があるが、よりサイズが大きい可燃性のパネル材が燃焼する際には火炎も大きくなり、難燃性のパネル材が火炎から受ける入熱量も大きくなると考えられる、あるいは板間の距離によっては難燃性のパネル材が火炎に暴露される場合も想定される。このことから、本試験で用いたサイズよりもさらに大きなパネル板に対する PC の形状変化を定量的に検討する場合には、本試験で得られた結果を踏まえて実証的な観点から検討を行う必要があるものと考えられる。

PC への延焼が生じた試験 ID:3-1 を除き、試験 ID:3-2~3-5 の PC 試料の背面側表面には、気泡の生成、融解は生じなかった。図 3.90~図 3.94 に、PC 板の火炎暴露の背面側の温度の測定結果を示す。ただし各図において、試験中に脱離が生じた熱電対については記載していない。図 3.90 の延焼前 (試験 ID:3-1、着火開始から約 19 分後まで) 及び図 3.91~図 3.94 (試験 ID:3-2~3-5) の温度は約 300°C 以下であった。試験 ID:3-2~3-5 の PC 試料の背面側表面に気泡生成や融解の影響がみられなかった要因としては、PC の熱伝導率 (カタログ値 : 0.19 W / (m · K)) が比較的低いこと、PMMA の火炎からの PC 火炎暴露面への輻射により入熱した熱量は PC 火炎暴露面での気泡生成や融解に消費されたことが考えられる。

表 3.7 試験 ID : 3-1~3-5 の PC 板の観察結果のまとめ

試験 ID	GB パネル板間の距離	PC への影響
3-1	5 cm	PC の火炎暴露側表面の広い範囲で多数の気泡形成及び融解が見られた後に PC に延焼し (PMMA への着火から約 19 分後)、激しい燃焼が見られた。
3-2	10 cm	PC への延焼無し。PC の火炎暴露側表面の広い範囲で多数の気泡形成、膨張及び融解が見られた。
3-3	15 cm	
3-4	25 cm	PC への延焼無し。PC の火炎暴露側表面の顕著な融解は生じなかったが、広い範囲でまばらな気泡形成並びに PC 上部にたわみが見られた。
3-5	40 cm	PC への延焼無し。わずかな気泡形成しか見られなかった。

表 3.8 試験 ID : 3-1~3-5 の PC 板の気泡の形成、融解及び延焼挙動のまとめ

試験 ID	GB パネル板間の距離 (cm)	気泡形成開始			融解開始			延焼開始		
		PMMA 着火開始からの時間	火炎暴露側表面の形成位置	形成位置近くの火炎暴露側表面の試験料温度	PMMA 着火開始からの時間	火炎暴露側表面の形成位置	融解開始位置近くの火炎暴露側表面の試験料温度	PMMA 着火開始からの時間	火炎暴露側表面の延焼開始位置	延焼開始位置近くの火炎暴露側表面の延焼直前の試験料温度
3-1	5	約 4 分	PC 下部	約 270℃	約 13 分	PC 下部	約 380℃	約 19 分	PC 上部	約 620℃
3-2	10	約 9 分	PC 下部	約 270℃	約 20 分	PC 全体	約 390℃	延焼は生じなかった		
3-3	15	約 13 分	PC 中部	約 270℃	約 23 分	PC 全体	約 400℃			
3-4	25	約 20 分	PC 全体	約 270℃	融解は見られなかった					
3-5	40	約 23 分	PC 下部	約 270℃						

2) 試験 ID:3-6、3-7

図 3.95～図 3.97 に、試験 ID:3-6 の PE (ボロン含有無) の燃焼の様子、図 3.98～図 3.100 に試験 ID:3-7 の PE (ボロン含有) の燃焼の様子の写真を示す。いずれの場合も、着火後に液化してプール燃焼を伴うことから、正対するように縦置きした PE 試料と PC 試料との距離をパラメータとして PC 試料への延焼性を調べる試験の実施は困難であると判断し、PE と PC の板間の距離をパラメータとした PC 板の形状変化を調べる試験は実施しないこととした。

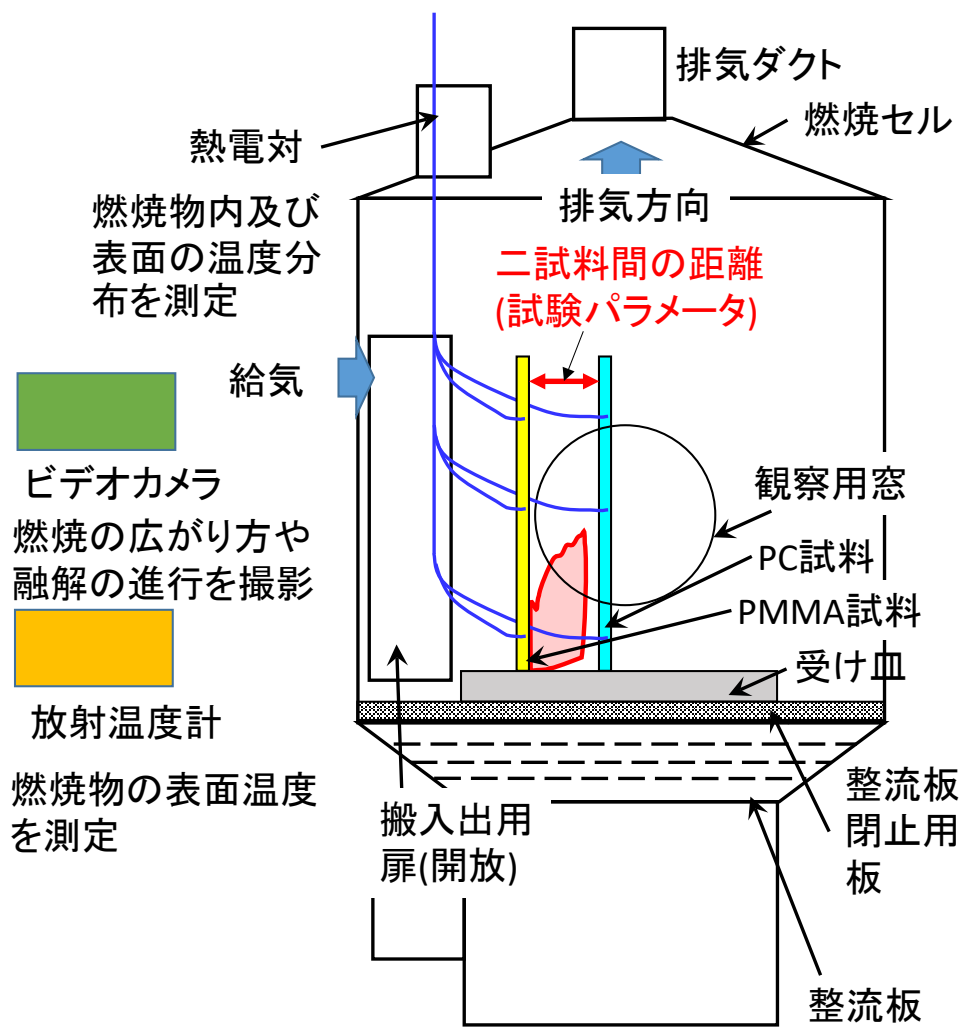


図 3.61 試験装置のセットアップの概略図

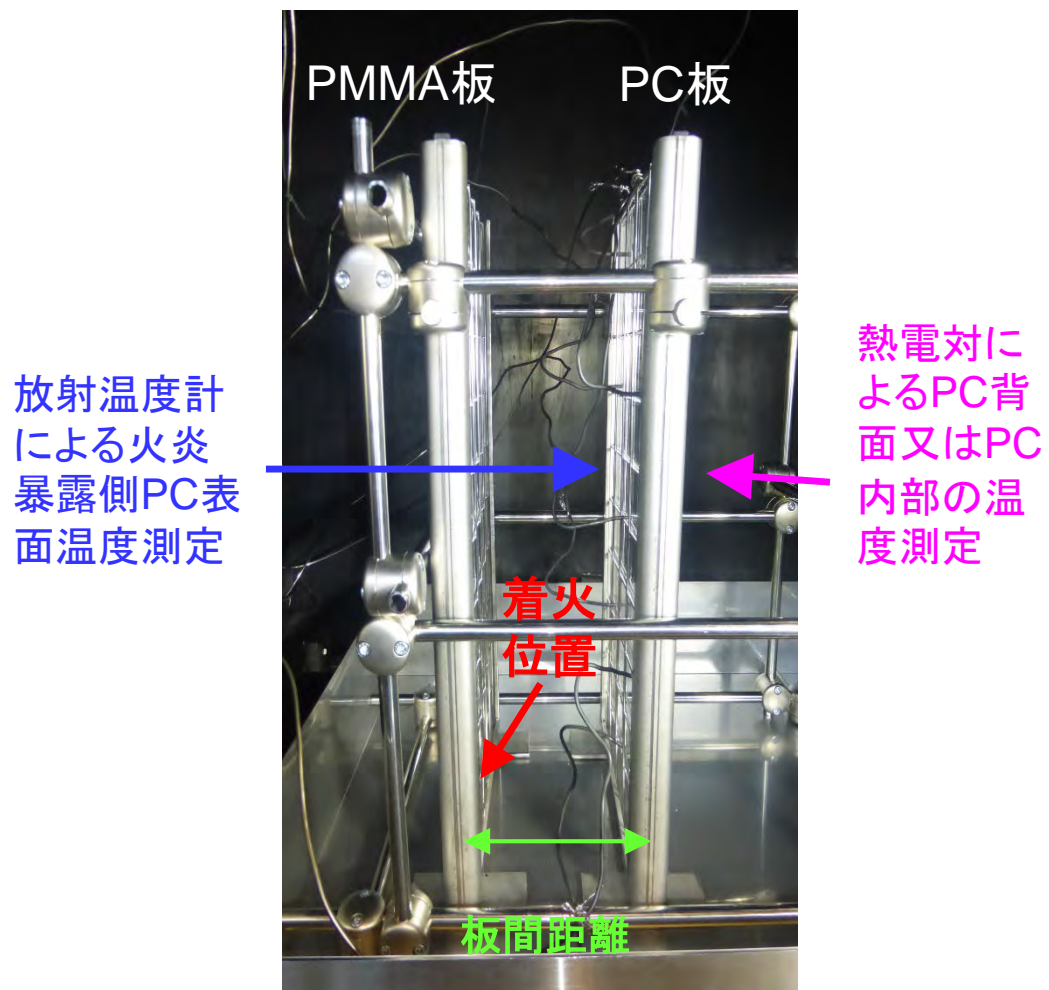


図 3.62 試験装置のセットアップ (試験 ID: 3-3)

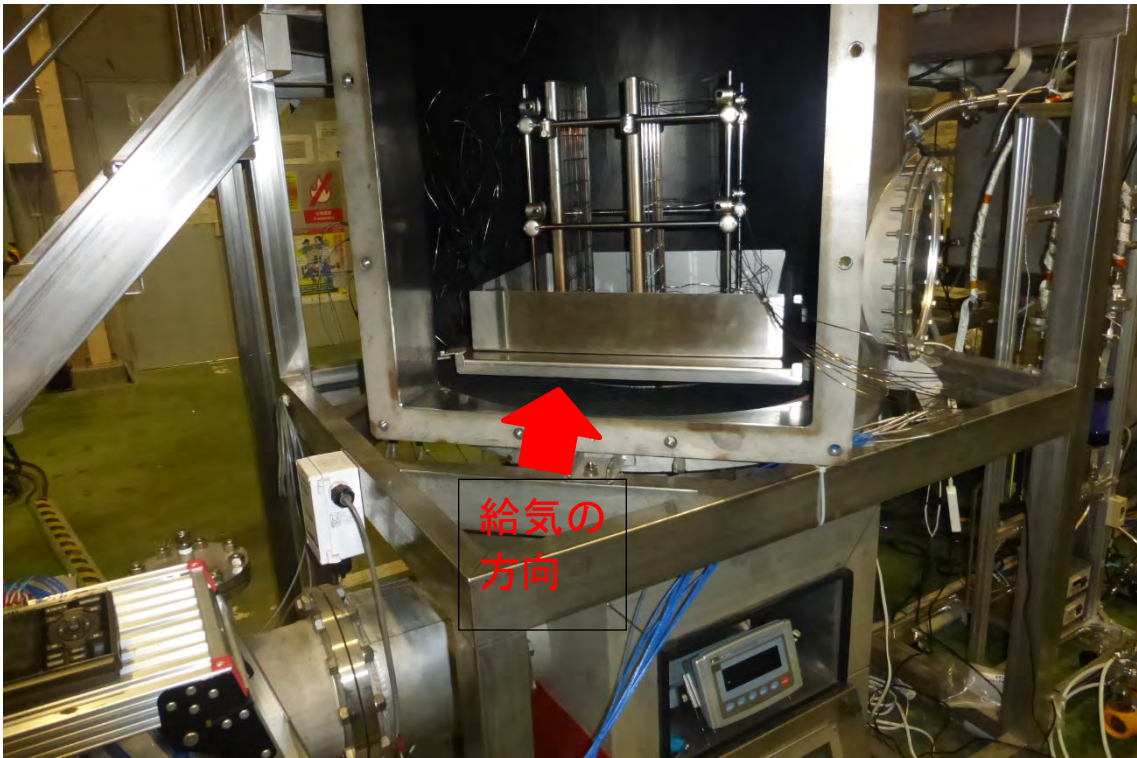


図 3.63 試験装置のセットアップ (試験 ID: 3-3)

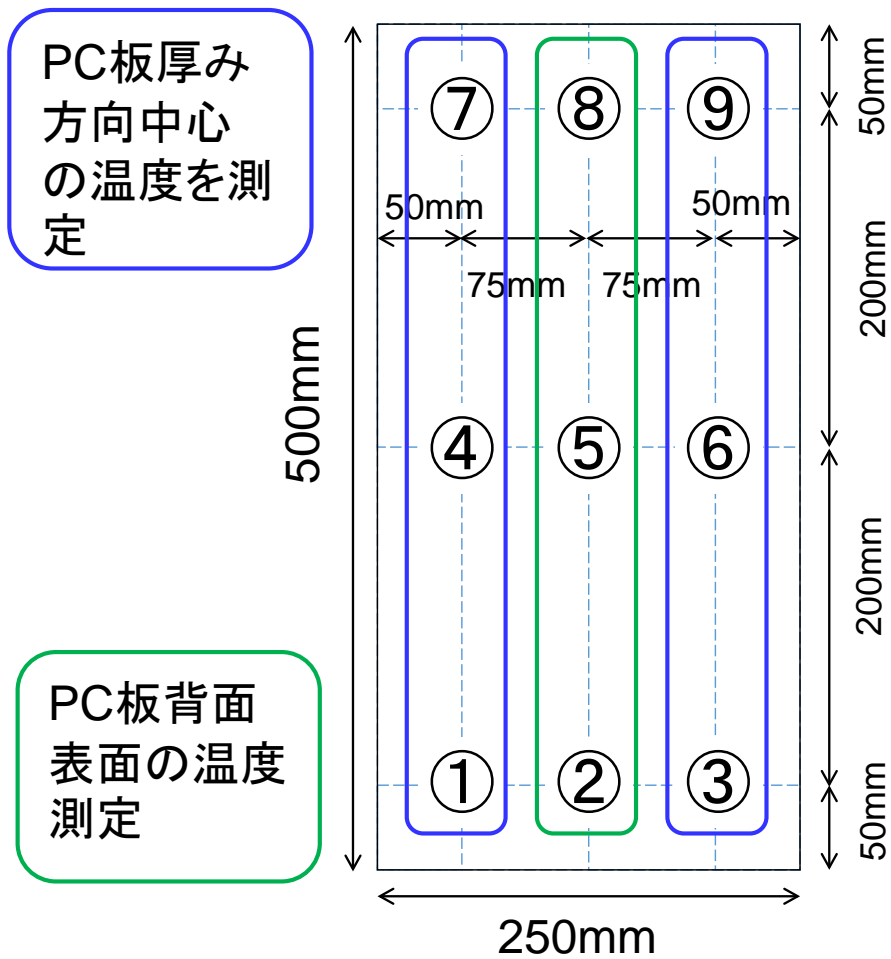


図 3.64 PC 背面側の熱電対の取付け位置

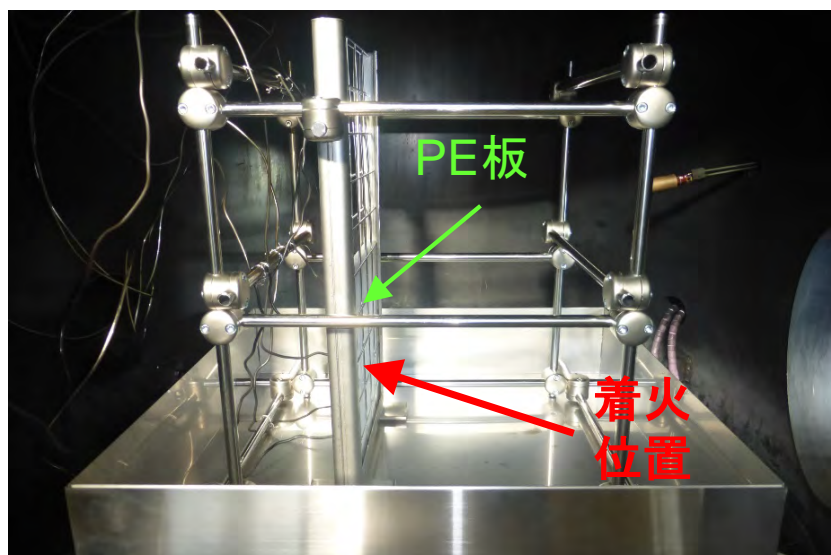


図 3.65 PE 板を用いた試験装置のセットアップ例 (試験 ID: 3-6)



図 3.66 試験中の試料の様子 (試験 ID:3-1、板間距離 : 5 cm)
(PMMA への着火開始後約 22 分 ;
PC 上部への延焼(約 19 分)が PC 全体に拡大(約 20 分)した後の様子)



図 3.67 試験後の PC 板の様子 (試験 ID:3-1、板間距離 : 5 cm)



図 3.68 試験中の試料の様子 (試験 ID:3-2、板間距離 : 10 cm)
(PMMA への着火開始後約 22 分 ;
PC の融解開始 (約 21 分)より後の様子)



図 3.69 試験後の PC 板の様子 (試験 ID:3-2、板間距離 : 10 cm)
(火炎暴露側表面)



図 3.70 試験後の PC 板の様子 (試験 ID:3-2、板間距離 : 10 cm)
(背面)



図 3.71 試験中の試料の様子（試験 ID:3-3、板間距離：15 cm）
（PMMA への着火開始後約 19 分；
PC の気泡形成開始(約 13 分)より後の様子）

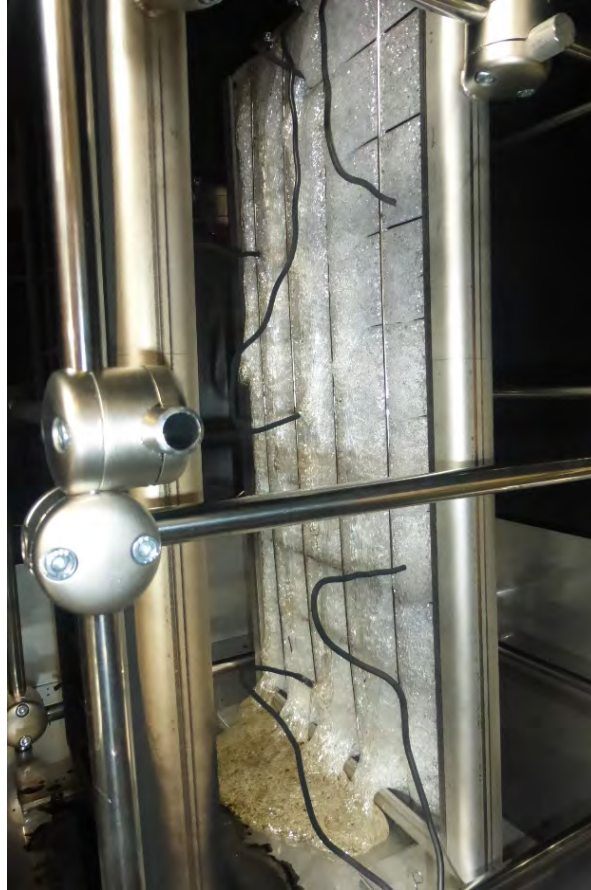


図 3.72 試験後の PC 板の様子 (試験 ID: 3-3、板間距離 : 15 cm)
(火炎暴露側表面)



図 3.73 試験後の PC 板の様子 (試験 ID:3-3、板間距離 : 15 cm)
(背面)



図 3.74 試験中の試料の様子 (試験 ID:3-4、板間距離 : 25 cm)
(PMMA への着火開始後約 20 分 ;
PC の気泡形成開始辺りの様子)

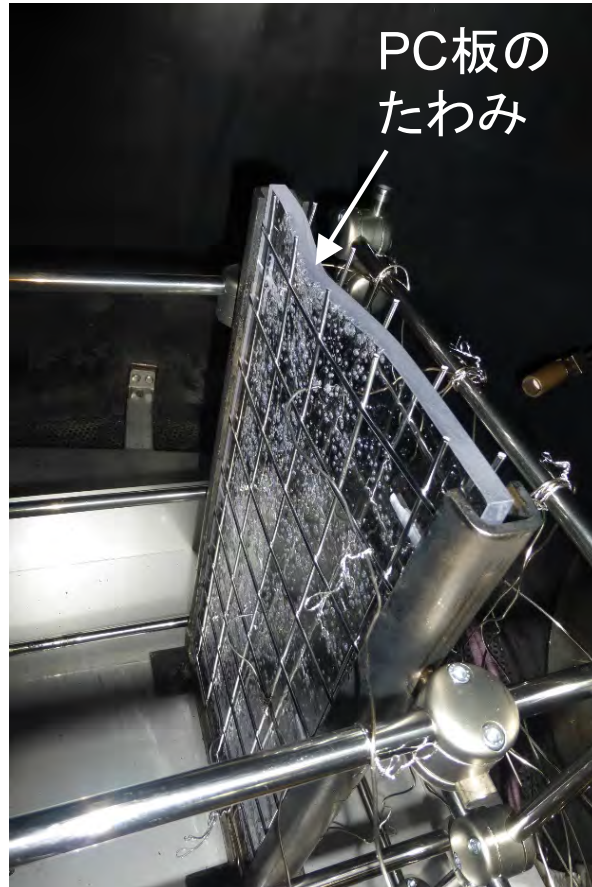


図 3.75 試験後の PC 板の様子 (試験 ID:3-4、板間距離 : 25 cm)
(火炎暴露側表面)

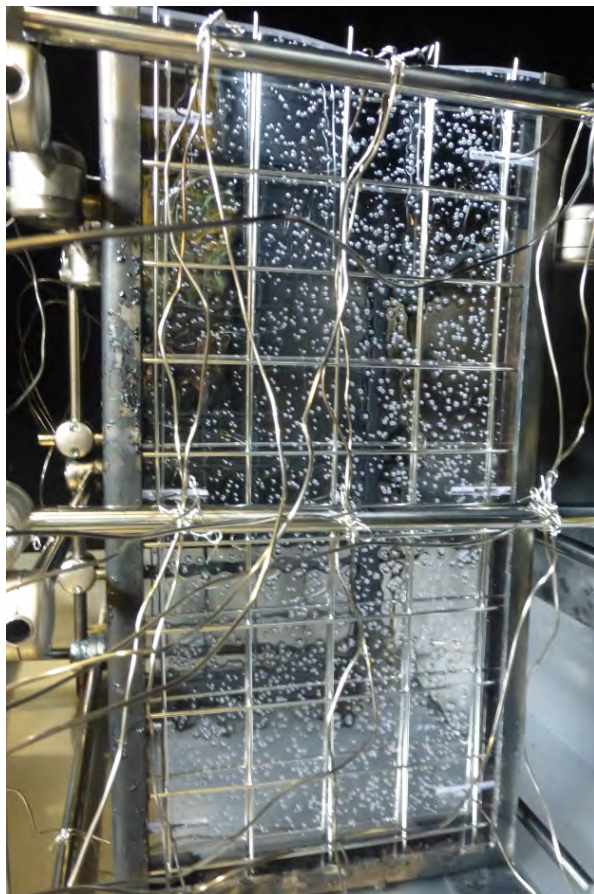


図 3.76 試験後の PC 板の様子 (試験 ID: 3-4、板間距離 : 25 cm)
(背面)



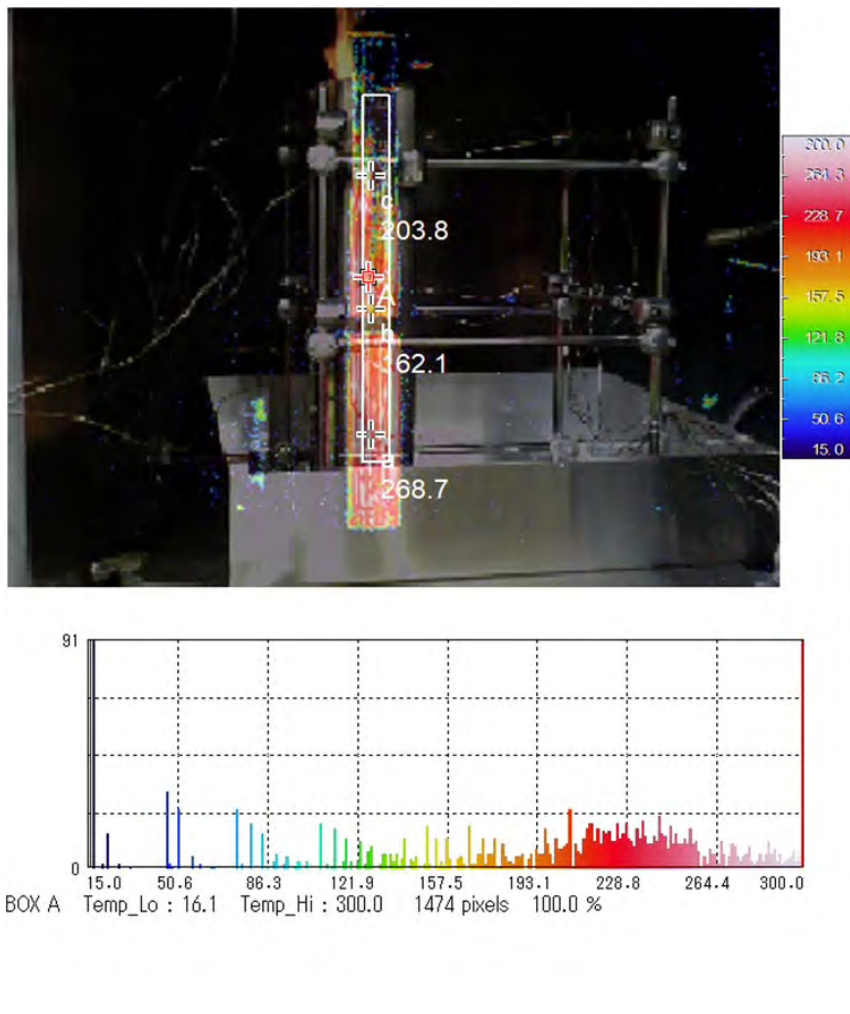
図 3.77 試験中の試料の様子 (試験 ID:3-5、板間距離 : 40 cm)
(PMMA への着火開始後約 24 分 ;
PC の気泡形成開始(約 23 分)より後の様子)



図 3.78 試験後の PC 板の様子 (試験 ID:3-5、板間距離 : 40 cm)
(火炎暴露側表面,青線囲み内に気泡有り)

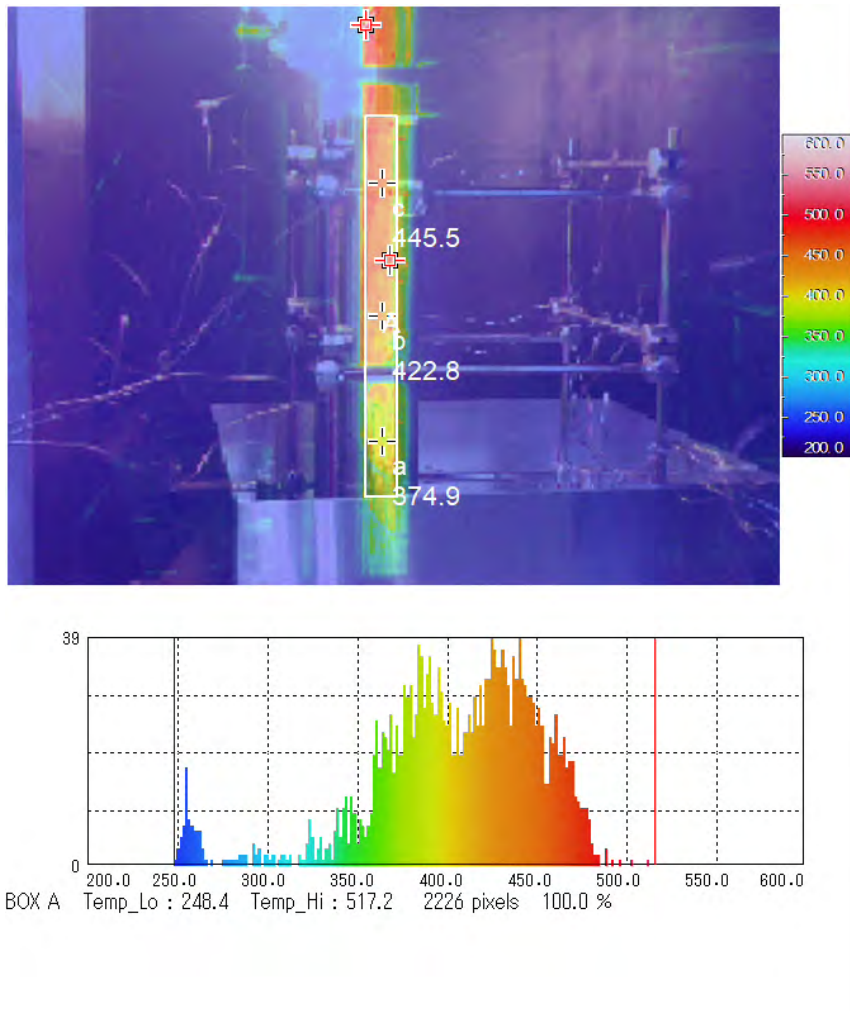


図 3.79 試験後の PC 板の様子 (試験 ID:3-5、板間距離 : 40 cm)
(火炎暴露側表面,図 3.62 の青線囲み辺りの拡大 : 気泡有り)



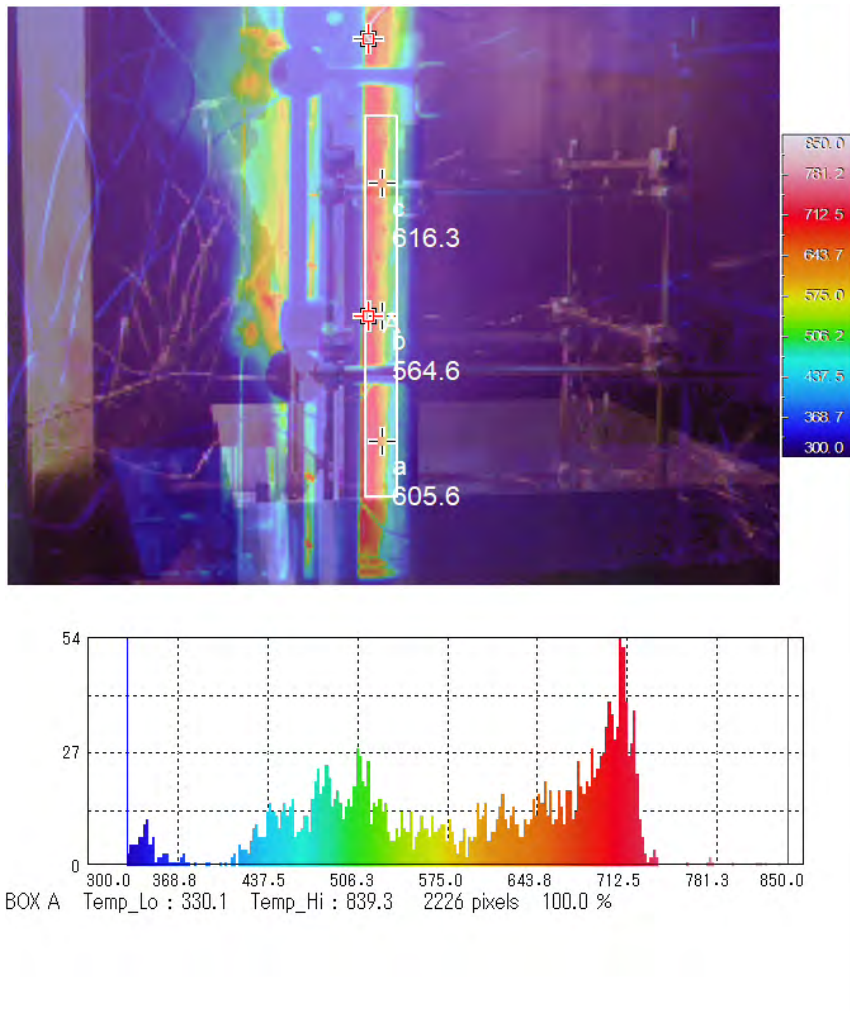
図中の温度分布の単位は℃、ヒストグラムの横軸：温度（℃）、縦軸：温度分布の PC 表面で色分けされた温度のピクセル数を示す。

図 3.80 PC 試料の火炎暴露表面の温度分布及びヒストグラム
 (試験 ID:3-1、板間距離：5 cm)
 (PMMA への着火開始後約 4 分； 気泡形成開始)



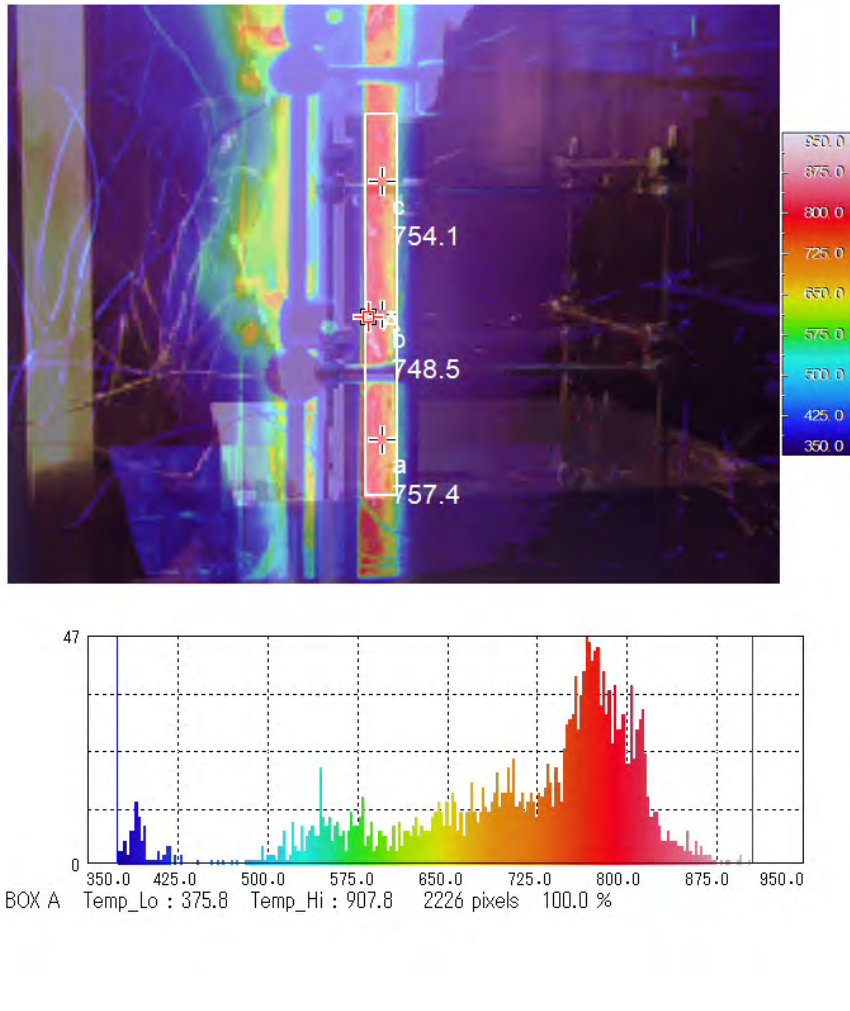
図中の温度分布の単位は°C、ヒストグラムの横軸：温度（°C）、縦軸：温度分布の PC 表面で色分けされた温度のピクセル数を示す。

図 3.81 PC 試料の火炎暴露表面の温度分布及びヒストグラム
 (試験 ID:3-1、板間距離：5 cm)
 (PMMA への着火開始後約 13 分； PC 下部の融解開始)



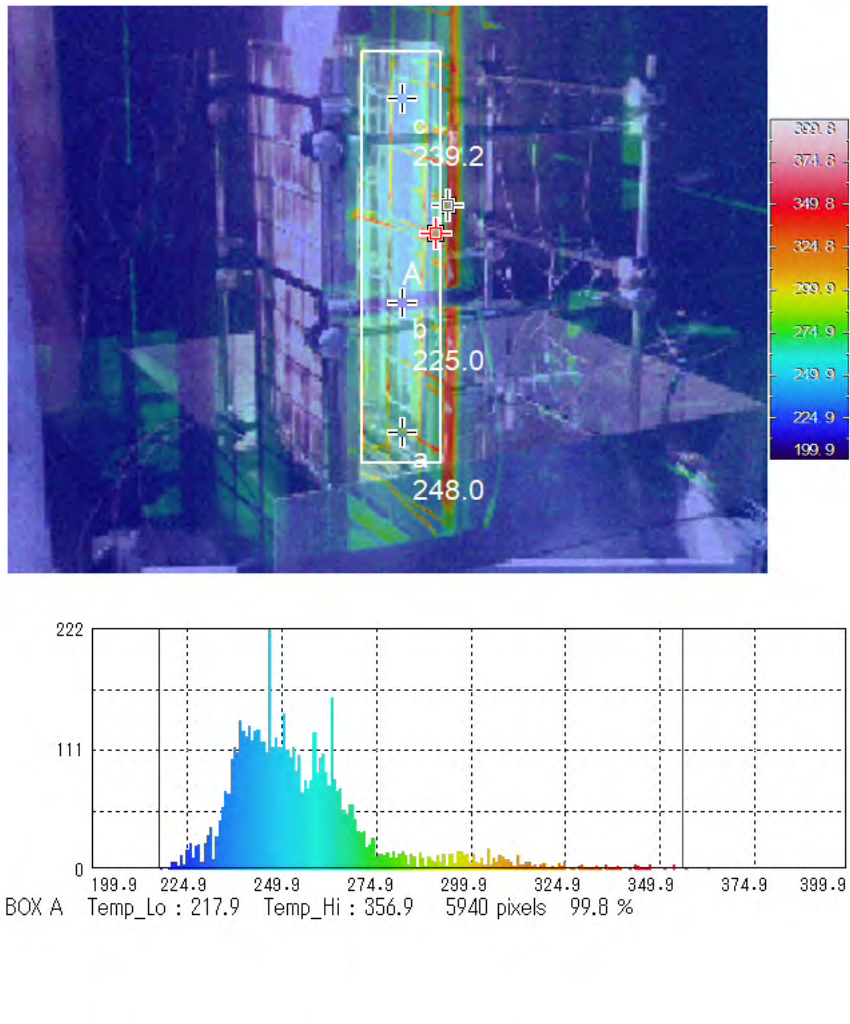
図中の温度分布の単位は℃、ヒストグラムの横軸：温度（℃）、縦軸：温度分布の PC 表面で色分けされた温度のピクセル数を示す。

図 3.82 PC 試料の火炎暴露表面の温度分布及びヒストグラム
 (試験 ID:3-1、板間距離：5 cm)
 (PMMA への着火開始後約 19 分； PC 上部への延焼直前)



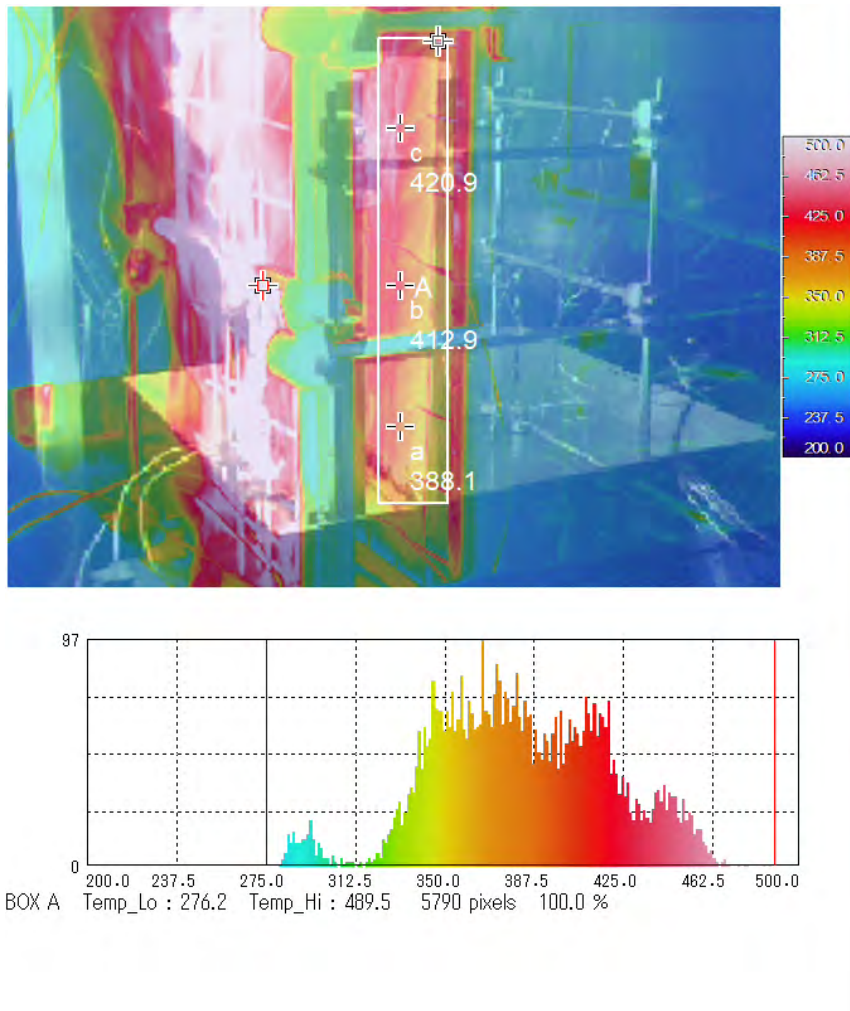
図中の温度分布の単位は℃、ヒストグラムの横軸：温度（℃）、縦軸：温度分布の PC 表面で色分けされた温度のピクセル数を示す。

図 3.83 PC 試料の火炎暴露表面の温度分布及びヒストグラム
 (試験 ID:3-1、板間距離：5 cm)
 (PMMA への着火開始後約 21 分； PC 全体への延焼)



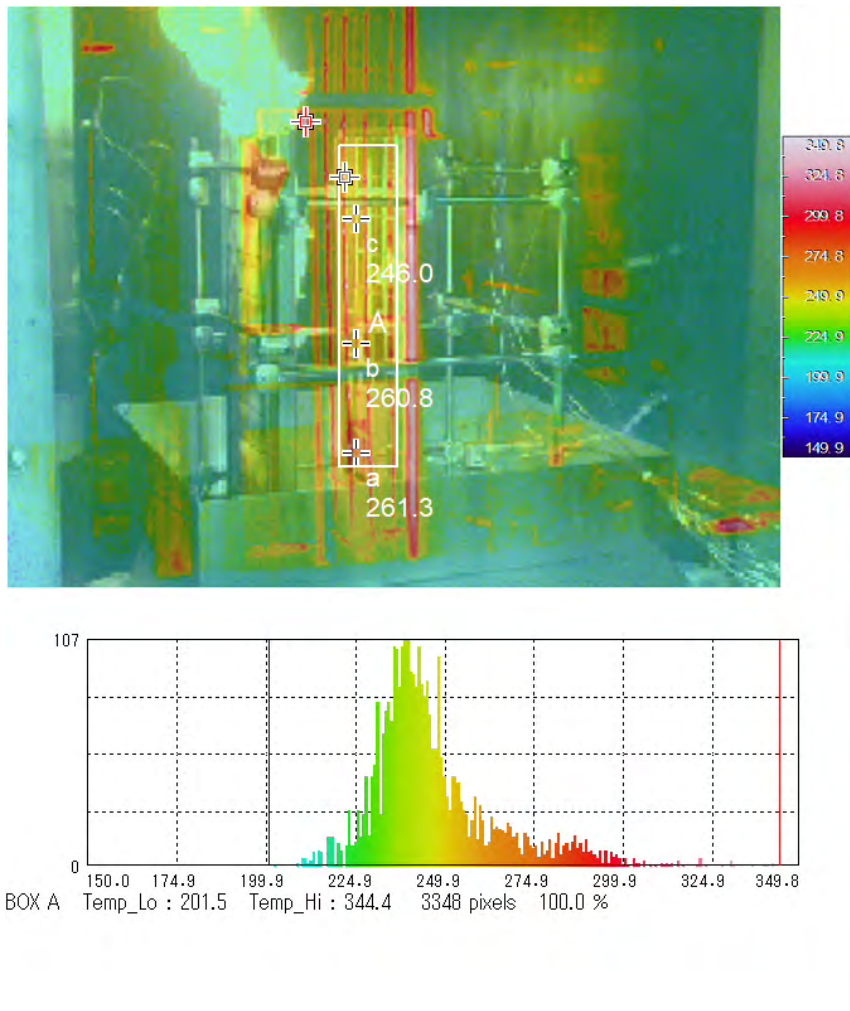
図中の温度分布の単位は°C、ヒストグラムの横軸：温度（°C）、縦軸：温度分布の PC 表面で色分けされた温度のピクセル数を示す。

図 3.84 PC 試料の火炎暴露表面の温度分布及びヒストグラム
 (試験 ID:3-2、板間距離：10 cm)
 (PMMA への着火開始後約 9 分；気泡形成開始)



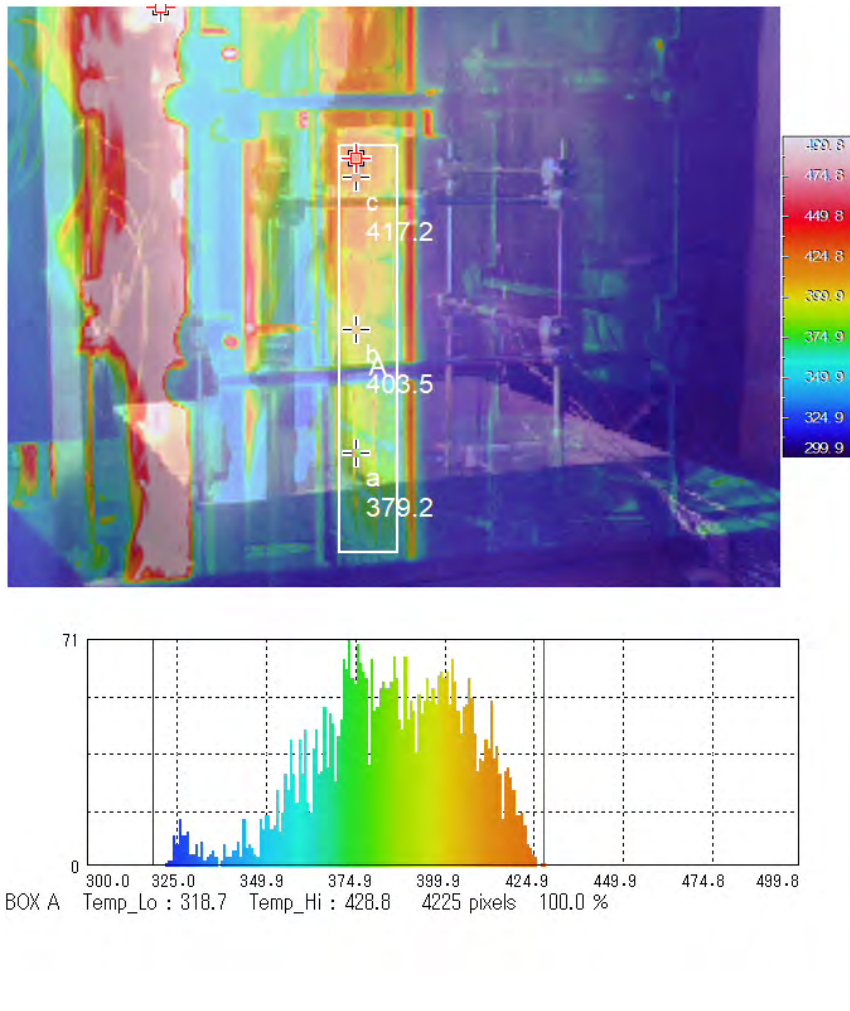
図中の温度分布の単位は℃、ヒストグラムの横軸：温度（℃）、縦軸：温度分布の PC 表面で色分けされた温度のピクセル数を示す。

図 3.85 PC 試料の火炎暴露表面の温度分布及びヒストグラム
 (試験 ID:3-2、板間距離：10 cm)
 (PMMA への着火開始後約 20 分； PC 下部の融解開始)



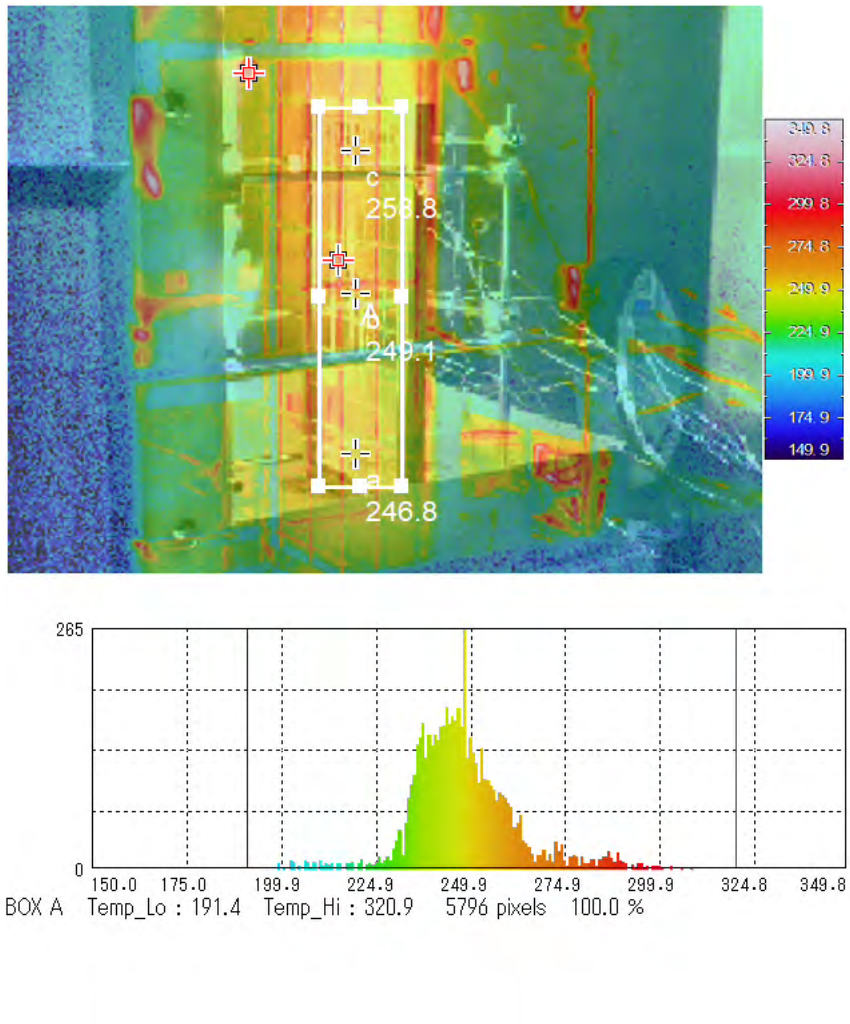
図中の温度分布の単位は℃、ヒストグラムの横軸：温度（℃）、縦軸：温度分布の PC 表面で色分けされた温度のピクセル数を示す。

図 3.86 PC 試料の火炎暴露表面の温度分布及びヒストグラム
 (試験 ID:3-3、板間距離：15 cm)
 (PMMA への着火開始後約 13 分；気泡形成開始)



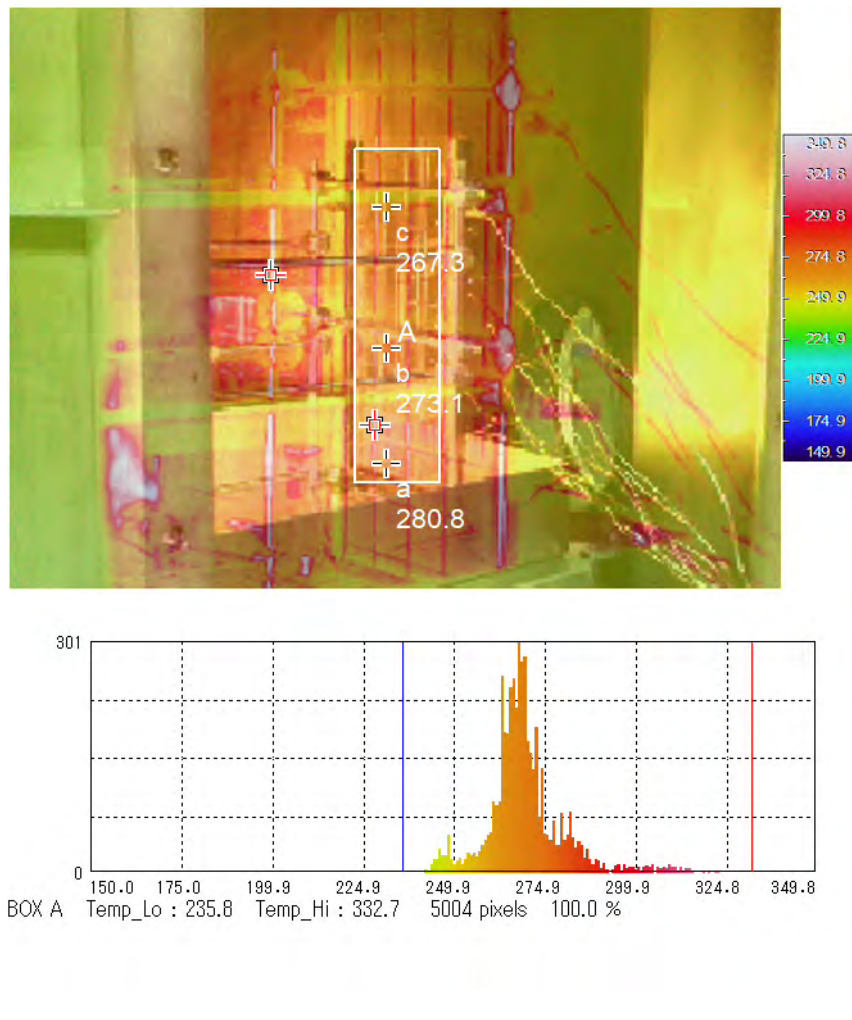
図中の温度分布の単位は℃、ヒストグラムの横軸：温度（℃）、縦軸：温度分布の PC 表面で色分けされた温度のピクセル数を示す。

図 3.87 PC 試料の火炎暴露表面の温度分布及びヒストグラム
 (試験 ID:3-3、板間距離：15 cm)
 (PMMA への着火開始後約 21 分； PC 下部の融解開始)



図中の温度分布の単位は°C、ヒストグラムの横軸：温度（°C）、縦軸：温度分布の PC 表面で色分けされた温度のピクセル数を示す。

図 3.88 PC 試料の火炎暴露表面の温度分布及びヒストグラム
 (試験 ID:3-4、板間距離：25 cm)
 (PMMA への着火開始後約 20 分； PC 全体にまばらな気泡形成開始)



図中の温度分布の単位は℃、ヒストグラムの横軸：温度（℃）、縦軸：温度分布の PC 表面で色分けされた温度のピクセル数を示す。

図 3.89 PC 試料の火炎暴露表面の温度分布及びヒストグラム

(試験 ID:3-5、板間距離：40 cm)

(PMMA への着火開始後約 23 分； PC 試料火炎暴露表面下部で疎らな気泡生成を目視観察)

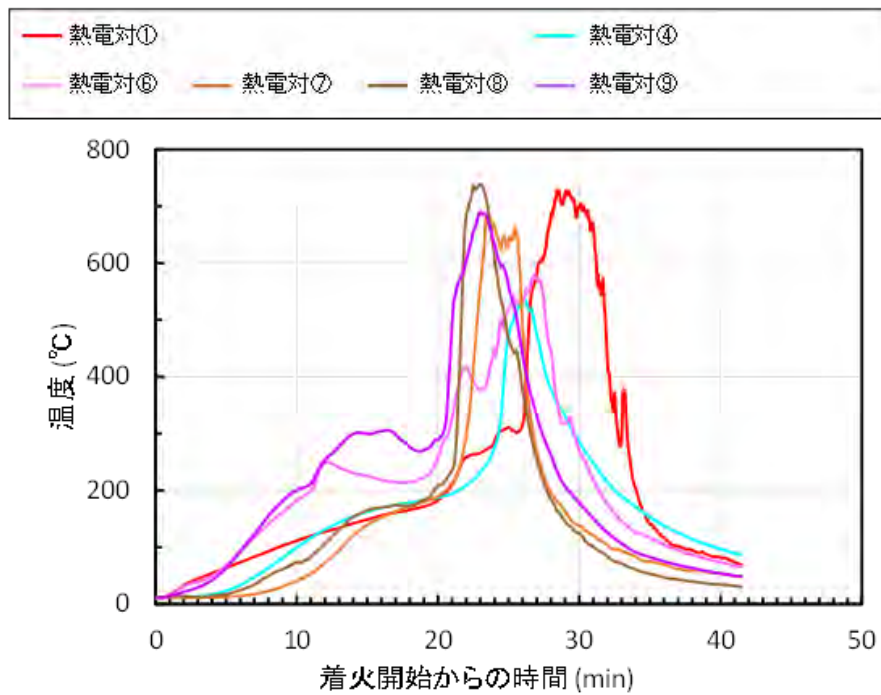


図 3.90 PC 板の火炎暴露の背面側の温度分布 (試験 ID:3-1、パネル間距離 5 cm)
 (熱電対②、③、⑤ : 燃焼中に試料から脱離のため記載なし)

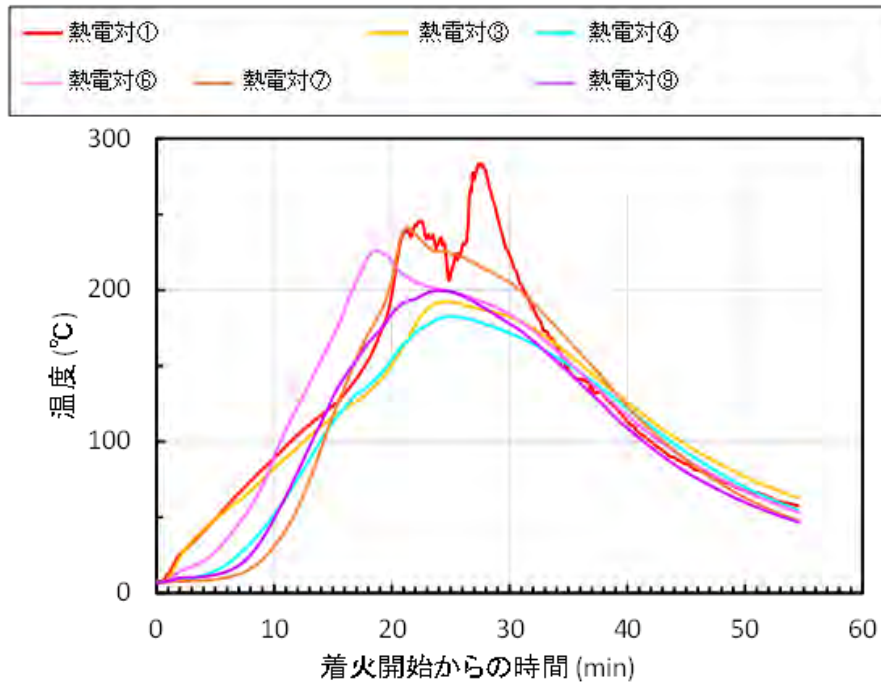


図 3.91 PC 試料の温度分布 (試験 ID:3-2、パネル間距離 10 cm)
 (熱電対②、⑤、⑧ : 燃焼中に試料から脱離のため記載なし)

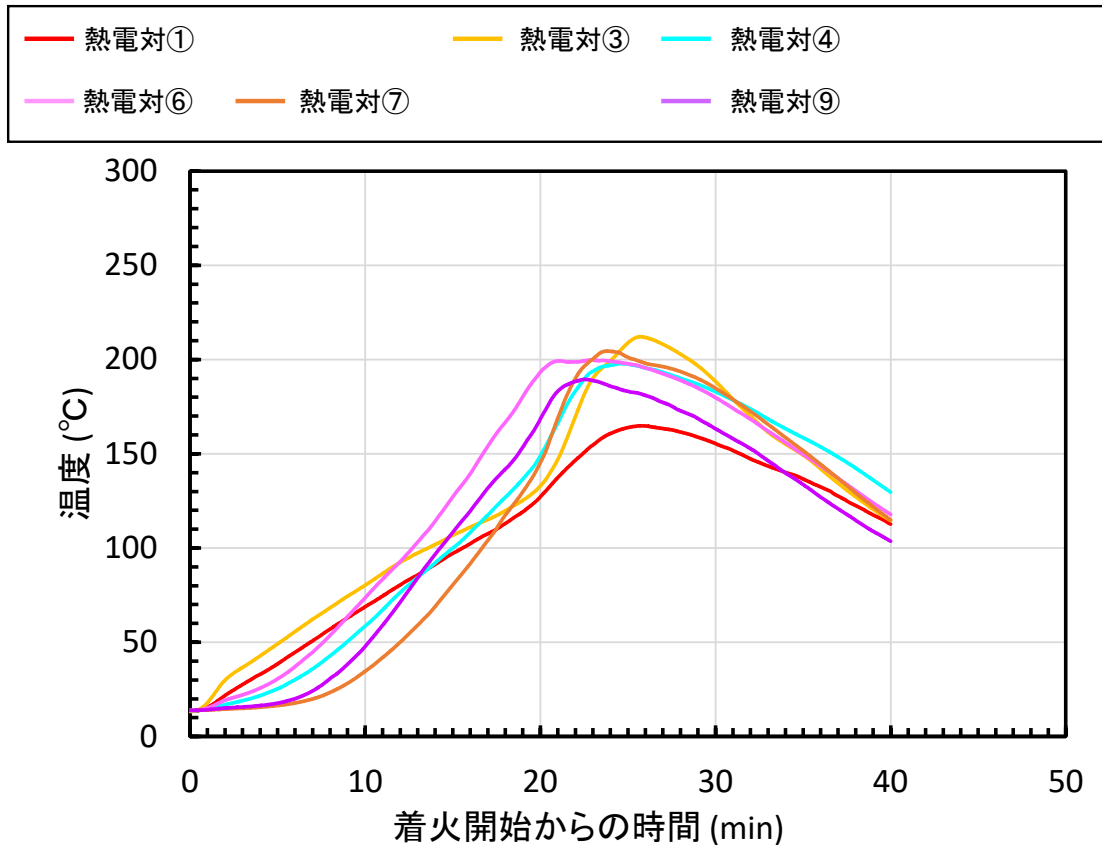


図 3.92 PC 試料の温度分布 (試験 ID:3-3、パネル間距離 15 cm)
 (熱電対②、⑤、⑧ : 燃焼中に試料から脱離のため記載なし)

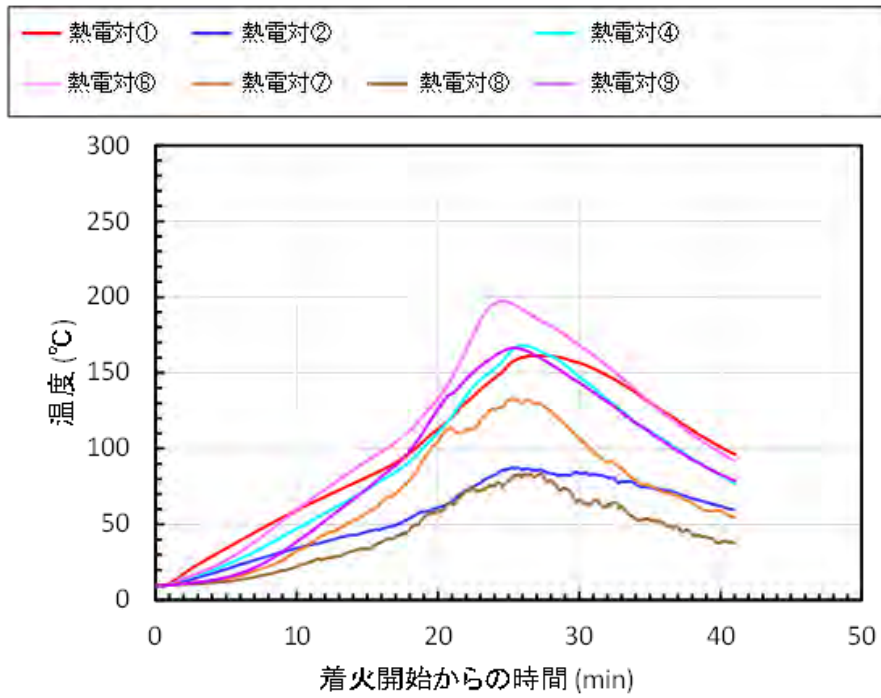


図 3.93 PC 試料の温度分布 (試験 ID:3-4、パネル間距離 25 cm)
 (熱電対③、⑤：燃焼中に試料から脱離のため記載なし)

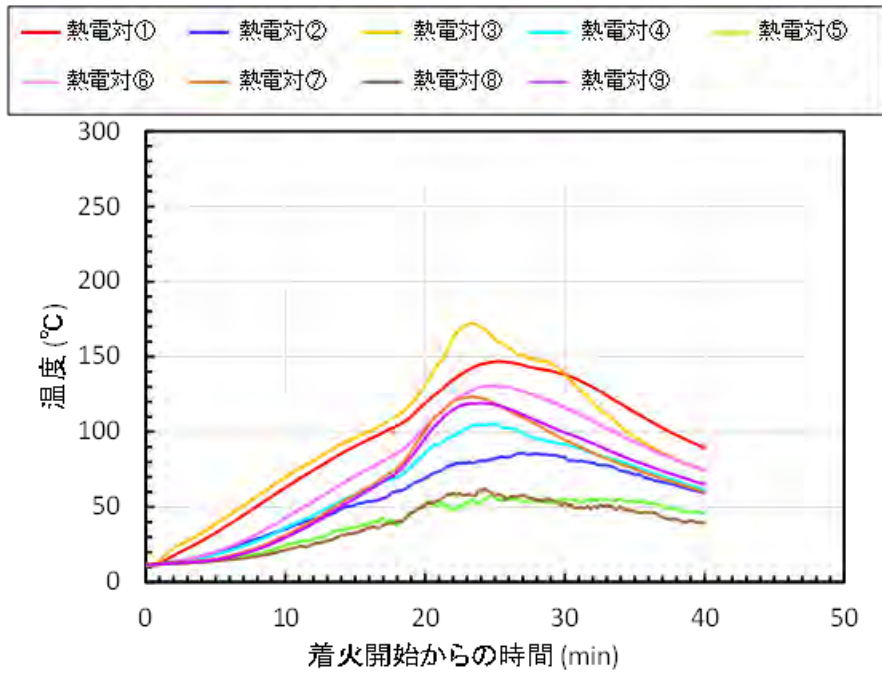


図 3.94 PC 試料の温度分布 (試験 ID:3-5、パネル間距離 40 cm)



図 3.95 試験 ID:3-6 の PE の着火操作時の様子



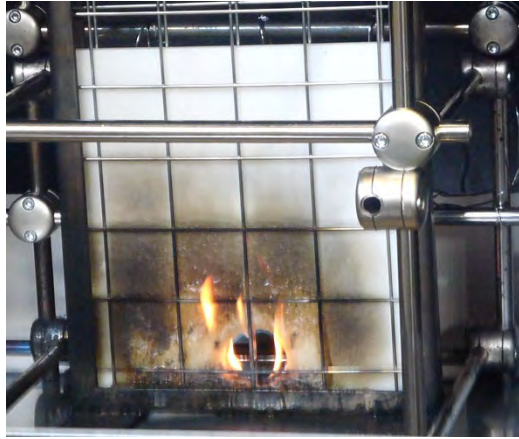
液状化しな
がら燃焼

図 3.96 試験 ID:3-6 の PE の着火操作終了直後の様子



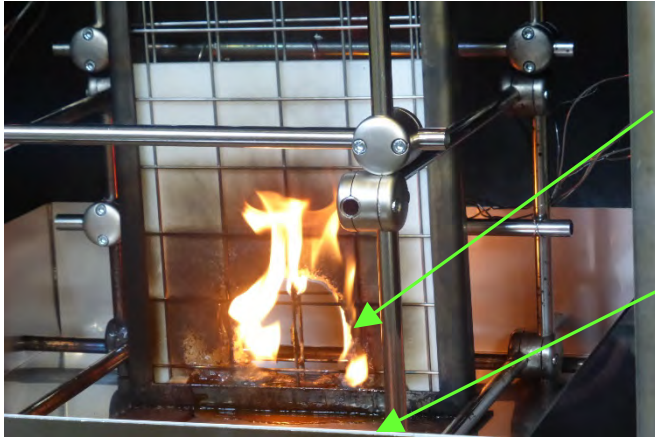
床面に液状
プールを形
成しながら燃
焼

図 3.97 試験 ID:3-6 の PE の燃焼中の様子



溶融を開始し
てから燃焼
継続

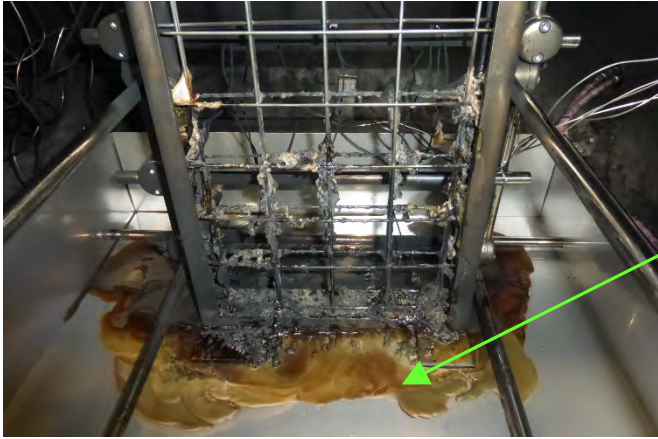
図 3.98 試験 ID:3-7 の PE の着火操作終了直後の様子



液状化して孔
が拡大しながら
燃焼

床面に液状プ
ールを形成

図 3.99 試験 ID:3-7 の PE の燃焼中の様子



液状プール痕

図 3.100 試験 ID:3-7 の燃焼後の PE の様子

3.4 本章のまとめ

大型の燃焼セルを備え、実機サイズの HEPA フィルタを取付けた ACUA を用いて、複数種類の GB パネル材 (PMMA、PC、難燃 PMMA) (複合系) の燃焼試験を行い、平成 30 年度試験と同じ燃焼時の影響評価上重要な複合系の燃焼特性データ及び HEPA フィルタの目詰まりへの影響評価データを取得・整理した。さらに、PMMA と PC を組み合わせた複合系の燃焼特性データの取得においては、PMMA の燃焼による PC への延焼の可能性を検討した。

①燃焼に対する燃焼面積と給気流量の効果の把握

・重量減少速度 m_b :

PMMA と PC を横置きかつ上下に設置し、上部の PMMA に着火した試験では、上層の PMMA が優先的に燃焼している間の m_b は上下ともに PMMA を横置きした単一の PMMA 燃焼 (平成 30 年度実施) の m_b に近い値をとるが、上層の PMMA の重量に相当する燃焼割合となる時刻から、徐々に下層の PC の延焼が顕著になり始めると m_b は低下してゆくことがわかった。また、本試験条件では、PC の初期重量に対して約 80% の PC が焼失することがわかった。

粒状試料を燃焼物とした試験は、ばい煙化率やばい煙の粒径分布データの取得並びに②の HEPA フィルタの目詰まりデータ取得の際のばい煙発生方法の検討を行うために行った。粒状の PMMA と PC をそれぞれ同重量混合させた燃焼物 (以下「粒状 PMMA/PC」という。) を用いた試験では、試験試料加熱用ヒーターによる粒状 PMMA/PC の加熱を継続させた場合に燃焼が継続した。燃焼継続時の粒状 PMMA/PC の m_b は、上下ともに PMMA を横置きした単一の PMMA 燃焼 (平成 30 年度実施) の m_b に比べて低くなることがわかった。粒状 PMMA/PC の場合には着火の段階で粒状の PMMA と PC が露出していることから、全面燃焼開始当初から PMMA と PC の両方の燃焼が生じているためと考えられる。さらに、粒状 PMMA/PC の m_b が一定となっている時間は、PMMA と PC を横置きかつ上下に設置して PMMA に着火した試験の場合よりも長かった。この結果は、粒状 PMMA/PC の燃焼においては、PMMA と PC との同時燃焼が定常的に継続していることを示唆している。

・放熱速度 H_{RR} :

PMMA と PC を横置きかつ上下に設置し上部の PMMA に着火した試験では、 m_b の場合と同じく、上層の PMMA が優先的に燃焼している間の H_{RR} は、上下ともに PMMA を横置きした単一の PMMA 燃焼 (平成 30 年度実施) の H_{RR} に近い結果となった。上層の PMMA の重量に相当する燃焼割合となる時刻以降において、徐々に下層の PC の延焼が顕著になり始めると H_{RR} は低下してゆくことがわかった。

・ばい煙化率

上述のように、PMMA と PC を横置きかつ上下に設置し上部の PMMA に着火する試験では、燃焼している物質の組成が経時変化していく。一方、試験試料加熱用ヒーターによる試料加熱を継続させた粒状 PMMA/PC を燃焼物とした試験では、PMMA と PC の同時燃焼が継続したことを示唆する m_b の結果を得たことから、ばい煙化率を評価した。粒状 PMMA/PC の燃焼に伴うばい煙化率は 3.9% となり、平成 30 年度に同じ換気・燃焼面積条件下で実施した単一の PMMA 及び PC の燃焼に伴う試験結果 (PMMA : 1.4%、PC : 9.1%) の中間の値となった。

・ばい煙の粒径分布

PMMA と PC を横置きかつ上下に設置し上部の PMMA に着火した試験では、 m_b や H_{RR} の場合と同じく、上層の PMMA が優先的に燃焼している間のばい煙の粒径分布は、単一の PMMA 燃焼の場合の結果に近かった。上層の PMMA の重量に相当する燃焼割合となる時刻から、徐々に下層の PC の延焼が顕著になり始めると、最頻度径における個数濃度が減少することがわかった。

試験試料加熱用ヒーターによる試料加熱を継続させた粒状 PMMA/PC を燃焼物とした試験では、全面燃焼開始から自然鎮火までの時間に対して約 80% の時間でばい煙の粒径分布はほぼ一定となることがわかった。粒径分布はほぼ一定となった時間は、粒状 PMMA/PC 燃焼の m_b が比較的一定である時間と同じであり、PMMA と PC との同時燃焼が定常的に継続していることによりばい煙の放出も安定していることを示唆している。このことから、この試験方法を②の HEPA フィルタの目詰まりデータ取得の際のばい煙発生方法として採用した。なお、燃焼物の形状(板状/粒状)の相違によるばい煙の粒径分布への影響を調べるために、粒状 PMMA/PC で用いた粒状 PMMA のみの燃焼物を用いた試験(試料加熱用ヒーター不使用)の場合においてもばい煙の粒径分布データを取得した。この燃焼において m_b が一定となっている時間の粒径分布は、板状 PMMA1 枚燃焼の分布(平成 30 年度結果)と大きな差が見られなかった。この結果から、単一 PMMA 燃焼時のばい煙の粒径分布に対する試料形状の影響は小さいものと考えられる。

②GB パネル材燃焼に伴う HEPA フィルタ目詰まりデータの取得

HEPA フィルタの単位面積当たりのばい煙負荷量 M と HEPA フィルタの差圧 ΔP の関係については、粒状 PMMA/PC の場合において、板状の PMMA 及び PC の単一燃焼並びに粒状の PMMA 及び PC の単一燃焼の場合よりも早く ΔP の上昇が生じた。HEPA フィルタに負荷するばい煙の M 当たりの積算体積が HEPA フィルタの目詰まり挙動に影響する可能性を考え、それぞれの試験で得られたばい煙粒子径分布からこの値を算出し比較した。その結果、 M 当たりの積算体積の大小関係と ΔP の上昇割合の大小関係が一致することを見出した。ただし、この考察については他の試験データを用いた検証が必要である。また、仮にこの関係が成り立つ

場合でも、燃焼物の違いによってなぜ ΔP の上昇割合が異なるのかを詳細に検討する必要もあると考えている。

③GB パネル材の形状の変化の観察

PMMA と PC を縦置きに正対させ、PMMA に着火し PC への影響を観察する試験では、あくまでも本試験条件下での結果ではあるが、燃焼 PMMA の影響を受けない PMMA と PC の板間距離は少なくとも 40 cm 以上の結果となった。また逆に両者の板間距離が 5 cm の条件では、燃焼 PMMA の火炎が PC 表面に接触した結果、PC への延焼が生じた。なお、板間距離が 10 cm 以上の場合には、燃焼 PMMA の火炎は PC に直接接触することはなかった。板間距離条件が 40 cm までの場合、燃焼 PMMA からの入熱により、PMMA に面した側の PC 表面において気泡発生や融解、変形が生じることがわかった。自己消炎性を有し難燃性材料として認識されている PC についても、条件によっては、燃焼するかあるいは形状の変形を生じる可能性があることがわかった。

参考文献

- (3-1) Ch. Hueglin, L. Scherrer and H. Burtscher, “An Accurate Continuously Adjustable Dilution System (1:10 to 1:104) for Submicron Aerosols”, *J. Aerosol Sci.*, **28**, 1049-1055 (1997).
- (3-2) A. Järvinen, M. Aitomaa, A. Rostedt, J. Keskinen and J. Yli-Ojanperä, “Calibration of the New Electrical Low Pressure Impactor (ELPI+)”, *J. Aerosol Sci.*, **69**, 150-159 (2014).
- (3-3) C. Van Gulijk J. C. M. Marijnissen, M. Makkee and J. A. Moulijn, “Oil-soaked Sintered Impactors for the ELPI in Diesel Particulate Measurements”, *J. Aerosol Sci.*, **34**, 635-640 (2003).
- (3-4) タキロンシーアイ(株), “ポリカーボネートプレート —総合技術資料— 2017年6月改訂版” (2017).
- (3-5) 三菱ケミカル(株), “難燃アクリル樹脂板 アクリライト TM FR シリーズ” カタログ.
- (3-6) 日本原燃(株), “MOX 燃料加工施設における新規制基準への適合性について”, 第 271 回核燃料施設等の新規制基準適合性に係る審査会合 資料 7(2)【公開版】(2019).
- (3-7) 阿部仁, 鹿島陽夫, 内山軍蔵, “核燃料サイクル施設におけるグローブボックスパネル材及びケーブル被覆材燃焼時の閉じ込め効果評価試験(受託研究)”, *JAEA-Research 2011-015* (2011).
- (3-8) L. Audouin, J. L. Torero, O. Mangs, L. Rigollet, “An Example of the Use of Standard Flammability Criteria for Performance Analysis of Materials: Polycarbonate and PMMA”, *Fire Safety Sci.*, **8**, 493-504 (2005).
- (3-9) U.S. NRC, “Fire Dynamics Tools (FDTs): Quantitative Fire Hazard Analysis Methods for the U.S. Nuclear Regulatory Commission Fire Protection Inspection Program Final Report”, *NUREG 1805* (2004).
- (3-10) ASTM International, “Standard Test Method for Heat and Visible Smoke Release Rates for Materials and Products Using an Oxygen Consumption Calorimeter”, *ASTM E1354-04a* (2004).
- (3-11) 化学工学協会(編), “現代の化学工学 I”, 朝倉書店 (1988).

4. 外部専門家のレビュー

本事業における研究計画、試験方法及び取得したデータの透明性及び客観性を高めるために、再処理及び加工の事業者並びに再処理施設及び加工施設の主たる設計・製造業者とは独立している外部有識者から構成される再処理施設等火災事故時影響評価研究専門部会を設置し、外部有識者の意見を参考にするとともに技術的側面からのレビューを受けた。

表 4.1 に専門部会の委員構成を示す。

表 4.1 再処理施設等火災事故時影響評価研究専門部会の委員構成

(敬称略)

氏名		所属	専門分野
奥山 喜久夫	主査	広島大学 大学院工学研究科 物質化学工学部門 研究員	微粒子工学、空気清浄/集塵/フィルタ
並木 則和		工学院大学 教授 先進工学部 環境化学科	微粒子工学、エアロゾル計測、揮発性有機化合物除去
本間 俊司		埼玉大学 准教授 大学院理工学研究科 物質科学部門	プロセス反応工学、移動現象数値シミュレーション
松田 昭博		筑波大学 准教授 大学院システム情報工学研究科 構造エネルギー工学専攻	高分子材料工学、ゴム系材料物性

平成 31 年度は同専門部会を 3 回開催し、主にそれぞれ以下のような講評を得た。

① 第 7 回再処理施設等火災事故時影響評価研究専門部会

- ・開催日時：2019 年 7 月 1 日（月）10:00～12:00
- ・場所：国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 東京事務所 第 7 会議室
- ・主な講評：
 - ・ポリカーボネートの燃焼が開始した時点で温度及び重量のグラフの挙動が変化しているように見える。また、上部のパネル材が上から順に燃えることに加えて、火炎からの輻射によりポリカーボネートの燃焼が促進された可能性も考えられる。
 - ・各熱分解ガス成分の燃焼特性を把握し、積算することで実材料での燃焼について議論することであるが、経験上、難しい場合もある。少なくとも、各ガス成分だけでなく実材料に

対しても試験データを取得しておいたほうがよいのではないかと。

② 第8回再処理施設等火災事故時影響評価研究専門部会

・開催日時：2019年11月15日（金）10:00～12:00

・場所：国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 東京事務所 第3会議室

・主な講評：

- ・複数の試験方法で取得したデータを断熱火炎温度によって関連付ける検討を行っているが、実際の試験では温度分布や酸素濃度分布などの「広がり」が存在する。その点についても考慮する必要があるのではないかと。
- ・複数の試験方法で取得した燃焼特性データを、ある一つの指標に理論的に統一することを試みているとのことであるが、現状ではなかなか難しいように思う。まずは、各データの取得方法についてきちんと整理してまとめることが肝要ではないかと。

③ 第9回再処理施設等火災事故時影響評価研究専門部会

・開催日時：2020年2月17日（月）10:00～12:00

・場所：国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 東京事務所 第3会議室

・主な講評：

- ・粒状PMMAと粒状PCの混合試料の燃焼におけるHEPAフィルタ差圧の上昇挙動について検討するためには、粒状PCのみを燃焼させる試験も比較のために実施する必要があるのではないかと。
- ・FDS解析で用いているメッシュモデルが全体的に粗いように思われる。メッシュを細かくした場合の解析も行っておくべきではないかと。
- ・FDS解析の検討課題については資料中にもいくつか挙げられていたので、今後も検討を続けてみてほしい。

5. 全体のまとめ

5.1 概要

本事業は、MOX 加工施設及び再処理施設での特徴的な火災の一つである GB 火災に着目し、事故進展評価や事故時の放射性物質の移行挙動・閉じ込め評価に必要なデータ等を取得することにより、火災解析評価に関する手法の整備に資することを目的とした。図 5.1 に GB 火災において考慮される事故事象の例を示す。GB 火災事故時の放射性物質の施設内への閉じ込め機能としては、GB パネル材等の構成材料が担う静的なバリアとしての閉じ込め機能（以下「静的閉じ込め機能」という（図中の緑色の円に相当）。）と GB や工程室に接続している排気系が担う閉じ込め機能（以下「動的閉じ込め機能」という（図中の青色の円に相当）。）に大別できる。GB 構成材料の多くの部分は樹脂製材料から構成されている。したがって、火災時には昇温によって熱分解が生じ、それによって静的閉じ込め機能の劣化が引き起こされる可能性がある。さらに、熱分解によって放出される可燃性熱分解ガスの燃焼が、GB 自体の燃焼と GB 構成材料の熱分解を促進する要因となることも考えられる。また、GB 構成材料の燃焼に伴って大量のばい煙が発生し、換気系に設置されている HEPA フィルタに負荷される。これによって HEPA フィルタの目詰まりと差圧上昇が引き起こされ、差圧が HEPA フィルタの耐圧性能を超えると HEPA フィルタの破損が生じる恐れがある。GB 火災時には GB 内部に存在する放射性物質がばい煙とともに放出されるため、このような HEPA フィルタの破損が生じた場合には、放射性物質の施設外への放出が生じることになる。これらの観点を踏まえ、本事業では、以下の 2 つの研究項目について研究を行うこととした。

①GB 構成材料熱分解特性試験

GB 構成材料の燃焼の起因となると考えられる同材料の熱分解現象に着目し、昇温に伴う熱分解の進行を評価するためのデータ（熱分解ガス放出速度、熱分解ガスの組成・燃焼性）を相互に関連付けながら取得した。

②GB パネル材料燃焼特性試験

GB パネル材の燃焼時の閉じ込め評価に必要な燃焼特性データ及び HEPA フィルタ目詰まり挙動評価データを取得した。

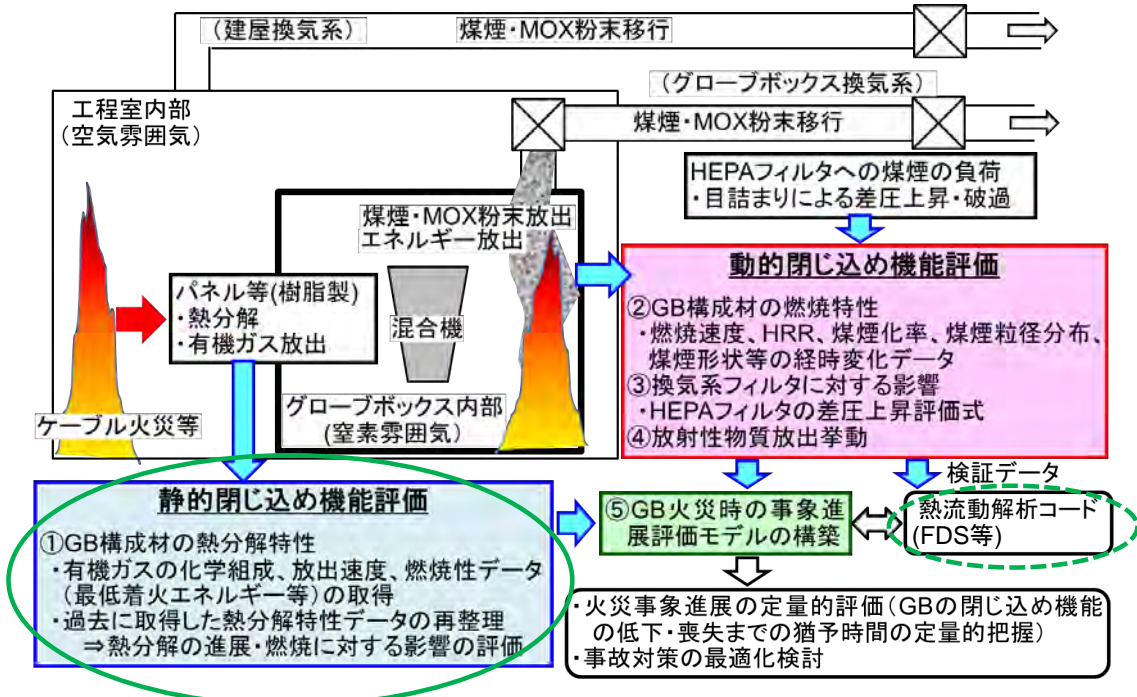


図 5.1 GB 火災において考慮される事故事象の例

5.2 GB 構成材料熱分解特性試験

5.2.1 年度展開

図 5.2 に GB 構成材料熱分解特性試験の研究展開の概要を示す。GB 構成材料熱分解特性試験は、平成 29 年度から平成 31 年度までの 3 年間に於いて、GB 構成材料（アクリル、難燃アクリル、ポリカーボネート及びクロロプレンゴム）の熱分解特性データ（昇温に伴う重量減少速度、熱分解ガス放出速度・組成及び熱分解ガスの燃焼性）を相互に関連付けながら取得した。このうち、昇温に伴う重量減少速度及び熱分解ガス放出速度・組成に関するデータについては、アレニウス型の反応速度式を基に温度条件から各ガス成分の放出速度が一貫して計算されるように整理した。また、熱分解ガスの燃焼性に関するデータについては、放出された各ガス成分が燃焼するか否かの判断基準を見いだすことを目的とした検討の結果を整理した。

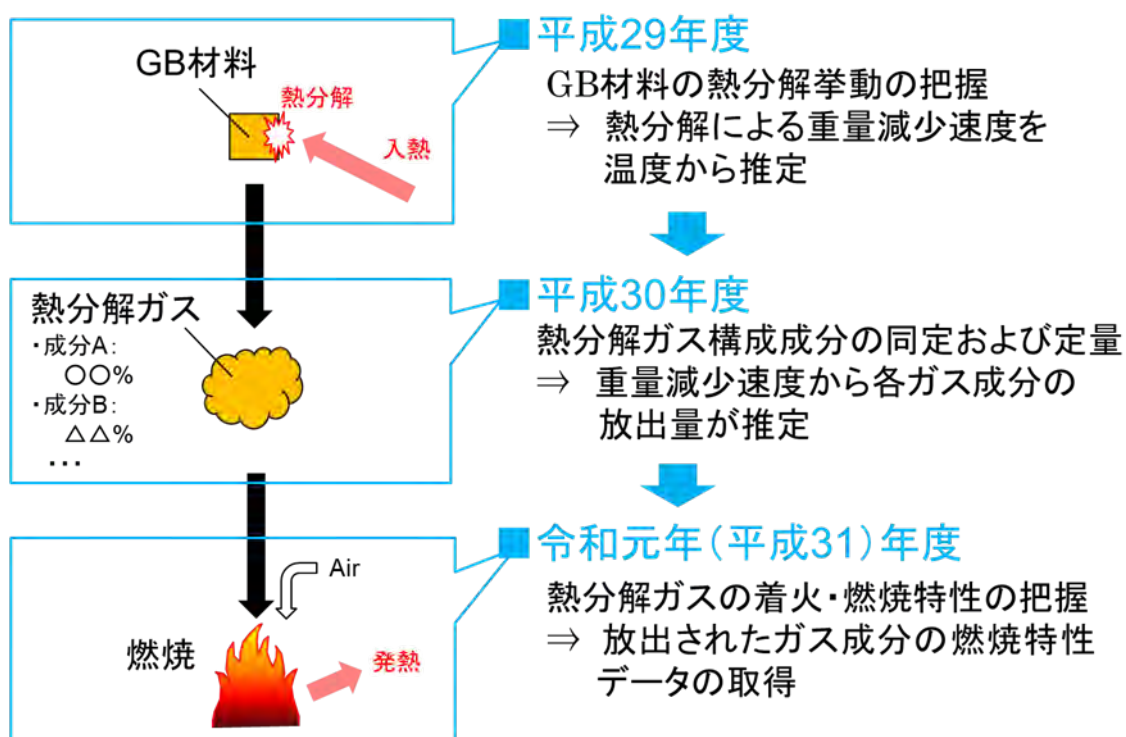


図 5.2 GB 構成材料熱分解特性試験の年度展開の概要

5.2.2 昇温に伴う重量減少速度（平成 29 年度の成果）

平成 29 年度に行った知見の整備では、GB 材料の昇温に伴う重量減少速度を記述するアレニウス型方程式として次式を見いだした。

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

ここで、TG は材料の初期重量に対する重量比(g/g)、t は時間(s)、A は熱分解反応の頻度因子(1/s)、 E_a は熱分解反応の活性化エネルギー(J/mol)、R は気体定数 J/(K・mol)、T は温度(K)である。このうち A と E_a は反応に固有のパラメータであり、これらのパラメータを決定できれば、温度 T の値から左辺の重量減少速度 dTG/dt を計算することができる。

平成 29 年度試験では、A と E_a を決定するための TG-DTA-MS 分析を実施した。分析結果に基づき、各 GB 材料の熱分解反応をいくつかのステージに区分し、各ステージについて固有の A と E_a の値を決定した。具体的な A と E_a の値については同年度報告書内の窒素雰囲気下での試験結果を参照されたい（平成 29 年度報告書 表 3.3～表 3.6）。窒素雰囲気下での試験では、発生した熱分解ガスと給気ガスが接触しても燃焼反応が生じないため、熱分解反応のみが生じている状態での試験結果を得られたものと考えられる。これらの A と E_a の値により、各 GB 材料について温度 T をもとにして重量減少速度 dTG/dt を推定できるようになった。

5.2.3 熱分解ガス放出速度・組成（平成 30 年度の成果）

平成 29 年度の成果によって計算できるようになった重量減少速度(g/s)の値は、そのまま熱分解ガス放出速度(g/s)と見なしてよいと考えられる。よって、放出される熱分解ガスの組成比(g/g)が把握できれば、各熱分解ガス成分の放出速度を計算できることになる。

以上を踏まえて、平成 30 年度試験では各 GB 材料に対する Py-GC-MS 分析を実施した（熱分解ガス定量分析試験）。これにより、各 GB 材料から放出される主な熱分解ガス成分について、その組成比を得た。その具体的な分析結果については、同年度の報告書を参照されたい（平成 30 年度報告書 表 2.6～表 2.9）。

また、同年度には、GB 材料を密封容器に入れた状態で加熱し、容器内の内圧の上昇挙動から熱分解ガスの総発生量を気体分子の物質質量として把握するという試験（密封容器による熱分解ガス圧力測定試験）も実施した。このうち、アクリルを対象とした試験では、内圧の測定値から推定される熱分解ガス発生量と、試験中の温度変化をもとに前項のアレニウス型方程式及び Py-GC-MS による組成データより推定した熱分解ガス発生量がほぼ一致し、それまでの議論の正当性を支持するデータが得られた（平成 30 年度報告書 図 2.16～図 2.21）。

5.2.4 熱分解ガスの燃焼性（平成 31 年度の成果）

前項までの議論により、GB 材料の温度変化を入力値として、GB 材料から生じる各熱分

解ガス成分の放出速度を推定できるようになったと考えられる。これらの熱分解ガス成分のほとんどは可燃性であり、酸素と接触することで燃焼する可能性がある。熱分解ガスの燃焼が生ずると熱量が発生し、その一部は GB 材料に伝達され、材料の温度をさらに上昇させる。以上のように、GB 材料の温度には、熱分解ガスの燃焼を通して自らに正のフィードバックを与えるという因果関係のサイクルが存在する。火災事象はこのようなサイクルを通じて進展していくものと考えられるため、その評価は重要である。その評価のためには、サイクルが継続する方向へ向かうか否かの分岐条件について議論を深める必要があると考えられ、そうした分岐条件の一つとして放出された各ガス成分が燃焼するか否かという要素が位置付けられると思われる。

以上を踏まえ、平成 31 年度には、放出された各ガス成分が燃焼するか否かの判断基準を見いだすことを目的とした検討を行った。具体的には、各ガス成分が燃焼に至るための酸素濃度条件を調べるための試験として、①限界酸素濃度測定試験、②酸素指数測定試験及び③消炎酸素濃度測定試験の 3 種類の試験を実施した。これらの試験結果では、難燃剤由来の成分が燃焼に至るためには高い酸素濃度が必要である等、これまでに得られた知見と調和的な測定値が得られている（平成 31 年度報告書 表 2.2～表 2.4）。また、これらの試験結果を関連付けるための検討を、断熱火炎温度を用いた近似的な手法と、FDS コードを用いた熱流動解析的な手法から行った。考察ではいくつかの課題（試料の吸光係数及び発火点に関する調査、メッシュサイズが計算結果に及ぼす影響に関する検討、小規模な燃焼現象への FDS の適用可能性に関する検討）が見いだされたが、全体としては②試験及び③試験の結果から限界酸素濃度の値を推定できる可能性を示唆するものであったと考えられる。こうした検討により、すべての熱分解ガス成分の限界酸素濃度の値が得られれば、熱分解ガス全体が酸素と接触した際に燃焼が生じるか否かの判断を行うことができると思われる。限界酸素濃度についてある加成性が成り立つことについては、例えば Zlochower⁽⁵⁻¹⁾らによって実験的な支持が与えられている。

5.3 GB パネル材料燃焼特性試験

5.3.1 年度展開

表 5.1 に GB パネル材料燃焼特性試験の研究展開の概要を示す。GB パネル材料燃焼特性試験では、平成 30 年度及び平成 31 年度の 2 年間において、ACUA を用いて、燃焼セルへ給気条件や燃焼面積をパラメータとして、GB パネル材（PMMA、PC 及び難燃 PMMA）の燃焼に伴う重量減少速度 m_b 、放熱速度 H_{RR} 、ばい煙放出速度 m_{smoke} 、ばい煙化率等のソースタームデータを取得・整理した。また、GB パネル材の燃焼に伴い放出されるばい煙の負荷による HEPA フィルタの目詰まり挙動を観察した。なお、本試験では、実施設で使用されている多風量タイプの HEPA フィルタを試験対象としている。PC は自己消炎性を有していることから、実施設における GB パネル材として広く採用されている。一方、可燃性である PMMA（実際には含鉛 PMMA）は、生体遮蔽のために GB パネル材の外側に設置さ

れる場合がある。また、この PMMA の外側を PC 等の難燃材で覆うことも PMMA の耐火性を向上されるために有効であると考えられる。そこで平成 30 年度にそれぞれの GB パネル材単独系の燃焼特性データの取得を行った後、平成 31 年度には PMMA と PC を組み合わせた複合系の燃焼特性データを取得し、単独系と複合系試験結果の比較を行うとともに、PMMA の燃焼による PC への延焼の可能性を検討した。

表 5.1 GB パネル材料燃焼特性試験の研究展開の概要

GB パネル材の設置条件		燃焼特性データ (※1) 取得	HEPA フィルタ閉じ込め評価	PC への延焼性評価
単独系	横置き (PMMA、難燃 PMMA、PC)	・基礎的な燃焼特性データ取得 (S、F ※2 の影響) ・ヒーター加熱により自己消炎性を有する PC が燃焼することを確認	ばい煙負荷重量と差圧の関係を観察、燃焼物の違いの影響を観察	—
	縦置き (PMMA、PC、(PE ※3))	燃え広がり方、温度分布、融解状況の観察	—	
複合系	横置き ・ (PMMA (上層) / PC (下層)) ・ (PMMA (上層) / 難燃 PMMA (下層))	燃焼特性データ取得 (PMMA 単独燃焼から PC との複合燃焼への遷移状況の考察)	ばい煙負荷重量と差圧の関係を観察、単独系横置き試験結果との比較検討	単独系での燃焼特性データとの違いより PC への延焼を観察
	縦置き (PMMA と PC を正対)	PC の燃え広がり方 (延焼した場合)、温度分布、融解状況の観察	—	板間距離をパラメータとし、延焼が生じる、また、影響が無視しうる離隔距離を評価

※1：燃焼特性データ：燃焼速度（重量減少速度 (mb)、放熱速度 (HRR)、ばい煙発生挙動 (ばい煙発生速度 (msmoke)、ばい煙化率、粒子径分布)

※2：S：試料の燃焼面積、F：燃焼セルへの質量基準の給気流量（標準状態を仮定して体積基準の給気流量から換算）

※3：複合系縦置き試験の実施の有無を検討するため、燃焼による形状変化を観察

5.3.2 GB パネル材単独系燃焼特性試験（平成 30 年度の成果）

ACUA を用いて、表面積律速条件のもと、GB パネル材（PMMA 又は PC 単独系）燃焼

に伴う重量減少速度 m_b 、放熱速度 H_{RR} 、ばい煙放出速度 m_{smoke} 、ばい煙化率等の燃焼特性データを取得・整理した。火災解析では、発生する燃焼ガスや熱エネルギーの放出速度が重要なソースタームとなる。これらを決定するためには、 m_b が必要不可欠となる。PMMA 燃焼について、 m_b を S (= 燃焼面積) の関数とした簡易的な評価式を得た (平成 30 年度報告書 図 3.9)。また、 $H_{RR,av}$ (= 全面燃焼時間での時間平均で評価した H_{RR}) についても、 m_b と同様に F (= 燃焼セルへの質量基準の給気流量) / S によらず S の増加に伴って増加する結果を取得し、その結果、 m_b と $H_{RR,av}$ の関係を線形の関係で整理することができた (平成 30 年度報告書 図 3.19、図 3.20)。本試験における換気条件 (F/S) の範囲内ではあるが、これらの簡易評価式を用いることで、 m_b 及び $H_{RR,av}$ を S から直接計算し評価できることになる。この手法は、解析コード等での熱流動解析のための入力項の評価・設定に対して活用できる可能性がある。

PMMA 燃焼と PC 燃焼で発生したばい煙の粒径分布を比較した結果、同じ S 及び F_v (= 燃焼セルへの体積基準の給気流量) 条件の下では、PC の燃焼に伴って発生するばい煙の最頻度径は大きく、また、粒子個数濃度は高いことがわかった (平成 30 年度報告書 図 3.32 ~ 図 3.35)。ばい煙化率は、燃焼セルの出口において捕集したばい煙量から評価した燃焼物の燃焼重量当たりのばい煙放出量である (平成 30 年度報告書では、燃焼物から発生する正味のばい煙化率と区別するため、このように評価した値を見かけのばい煙化率と表現した)。見かけのばい煙化率と燃焼セルに対する換気回数 N の逆数 (V (= 燃焼セル体積) / F_v) 間の相関を観察したところ、 S によらず両者の間に負の指数関数的な相関があり、その相関式の傾きは PMMA と PC でほぼ同じ値となることがわかった (平成 30 年度報告書 図 3.21)。したがって、換気回数が無限大、すなわち、燃焼セル内の滞留の効果を完全に除去した場合のばい煙化率としては、相関式の定数項から、PMMA について 1.72 (-)、PC について 12.3 (-) という値を得ることができた。この値からわかるように、PC の燃焼に伴うばい煙化率は、PMMA と比べて約 7 倍大きな値となっている。この傾向は、過去に原子力機構が中規模火災試験装置 (FSEA) を用いて実施した試験結果⁽⁵⁻²⁾と定性的に一致している。

PMMA と PC 燃焼における HEPA フィルタの単位面積当たりのばい煙負荷量 M と HEPA フィルタの差圧 ΔP の関係を得ることができた (平成 30 年度報告書 図 3.43)。いずれの試験結果においても、 ΔP は M の増加に伴い増加した。PMMA と PC 燃焼で得られた M - ΔP 曲線を比べると、PMMA の方が PC よりも M における ΔP が大きかった。また、 F_v 条件を変えた PMMA 燃焼同士及び PC 燃焼同士の結果においても M - ΔP 曲線に違いが生じている。

縦置きした PMMA あるいは PC に対して、燃焼物の高さ方向の燃焼の広がり方及び融解の進行 (開口部の形成等) を観察した。板の底辺部から着火した場合には、PMMA は最終的に全面で燃焼 (平成 30 年度報告書 図 3.61、図 3.66) したのに対して、PC は部分的な燃焼となった (平成 30 年度報告書 図 3.77、図 3.84、図 3.85)。また、PMMA、PC ともに板の上部に、熱分解ガスによる二次燃焼に起因する可能性がある不連続に延焼した時間帯

が存在することがわかった（平成 30 年度報告書 図 3.60、図 3.76）。

5.3.3 GB パネル材複合系燃焼特性試験（平成 31 年度の成果）

複数種類の GB パネル材（PMMA、PC、難燃 PMMA）（複合系）の燃焼試験を行い、平成 30 年度試験と同じ燃焼時の影響評価上重要なソースタームデータを取得・整理した。試験では、PMMA と PC を組み合わせた複合系の燃焼特性データを取得し、PMMA の燃焼による PC への延焼の可能性を検討した。

PMMA と PC を横置きかつ上下に設置し上部の PMMA に着火した試験では、上層の PMMA の重量に相当する燃焼割合となる時刻から、徐々に下層の PC の延焼が生じ、最終的には、初期重量に対して約 80%の PC が焼失することがわかった（平成 31 年度報告書 3.3.1(4)1 d)）。また、PMMA と PC を縦置きに正対させ PMMA に着火し PC への影響を観察する試験でも、PMMA と PC 間の板間距離が短い場合（試験では 5 cm）には PC は延焼することがわかった（平成 31 年度報告書 図 3.50）。なお板間距離が 10 cm 以上の場合には板間距離が 40 cm までは、燃焼している PMMA からの入熱により、PMMA に面した側の表面において気泡発生や融解が生じた。このように、自己消炎性を有し難燃性材料として認識されている PC についても、条件によっては、延焼するかあるいは形状の変形を生じる可能性があることがわかった。

上述のように、PMMA と PC を横置きかつ上下に設置し上部の PMMA に着火する試験では、燃焼している物質の組成が経時変化していくことがわかった。このことを踏まえ、PMMA と PC が定常的に同時燃焼した場合のばい煙化率やばい煙の負荷による HEPA フィルタの目詰まりに対する影響を観察するため、粒状の PMMA と PC を混合させた燃焼物（以下「粒状 PMMA/PC」という。）を用いた燃焼試験を行った。試験の結果、粒状 PMMA/PC の燃焼に伴うばい煙化率は 3.9%となり、平成 30 年度に同じ換気・燃焼面積条件下で実施した PMMA 及び PC 単独の燃焼に伴う試験結果（PMMA：1.4%、PC：9.1%）の中間の値となった（平成 30 年度報告書 図 3.21）。

一方、HEPA フィルタの単位面積当たりのばい煙負荷量 M と HEPA フィルタの差圧 ΔP との関係については、粒状 PMMA/PC の燃焼によって生じたばい煙の負荷の場合が、PMMA 及び PC 単独及び粒状 PC 単独の燃焼の場合よりも早く ΔP の上昇が生じた。HEPA フィルタに負荷するばい煙の M 当たりの積算体積が HEPA フィルタの目詰まり挙動に影響する可能性を考え、それぞれの試験で得られたばい煙の粒径分布からこの値を算出し比較した。その結果、 M 当たりの積算体積の大小関係と ΔP の上昇割合の大小関係が一致することを見出した。ただし、この考察については他の試験データを用いた検証が必要である。また、仮にこの関係が成り立つ場合でも、燃焼物の違いによってなぜこの値が異なるのかを詳細に検討する必要もあると考えている。

参考文献

- (5-1) I. A. Zlochower, G. M. Green, “The limiting oxygen concentration and flammability limits of gases and gas mixtures”, *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, **22**, 4, 499-505 (2009).
- (5-2) 阿部、鹿島、内山、”核燃料サイクル施設におけるグローブボックスパネル材及びケーブル被覆材燃焼時の閉じ込め効果評価試験”、*JAEA-Research 2011-015* (2011.6).

Appendix

A.1 ①限界酸素濃度測定試験の結果

図 A.1～図 A.8 に限界酸素濃度測定試験で作成した三角ダイアグラムを示す。

①限界酸素濃度測定試験

試験No.1

メタクリル酸メチル

試験温度: 60°C

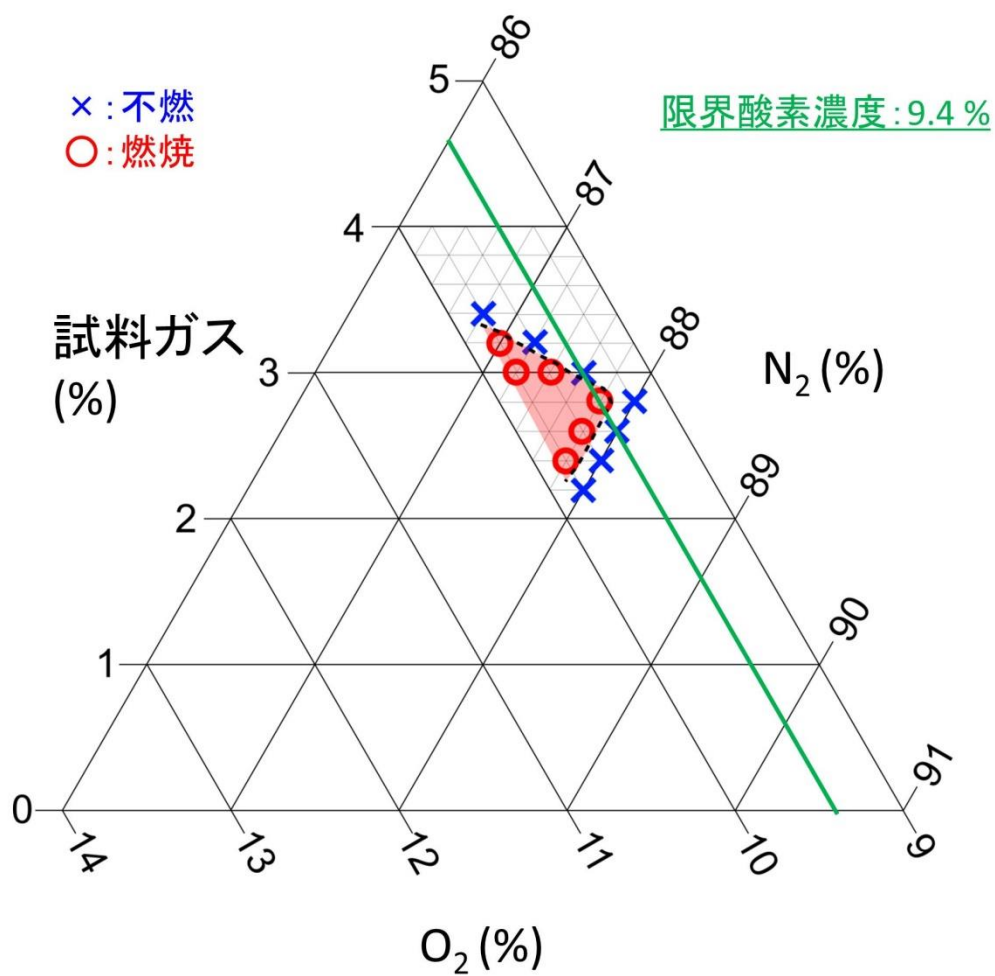


図 A.1 メタクリル酸メチル (60°C) の限界酸素濃度測定結果

①限界酸素濃度測定試験

試験No.2

メタクリル酸メチル

試験温度: 80°C

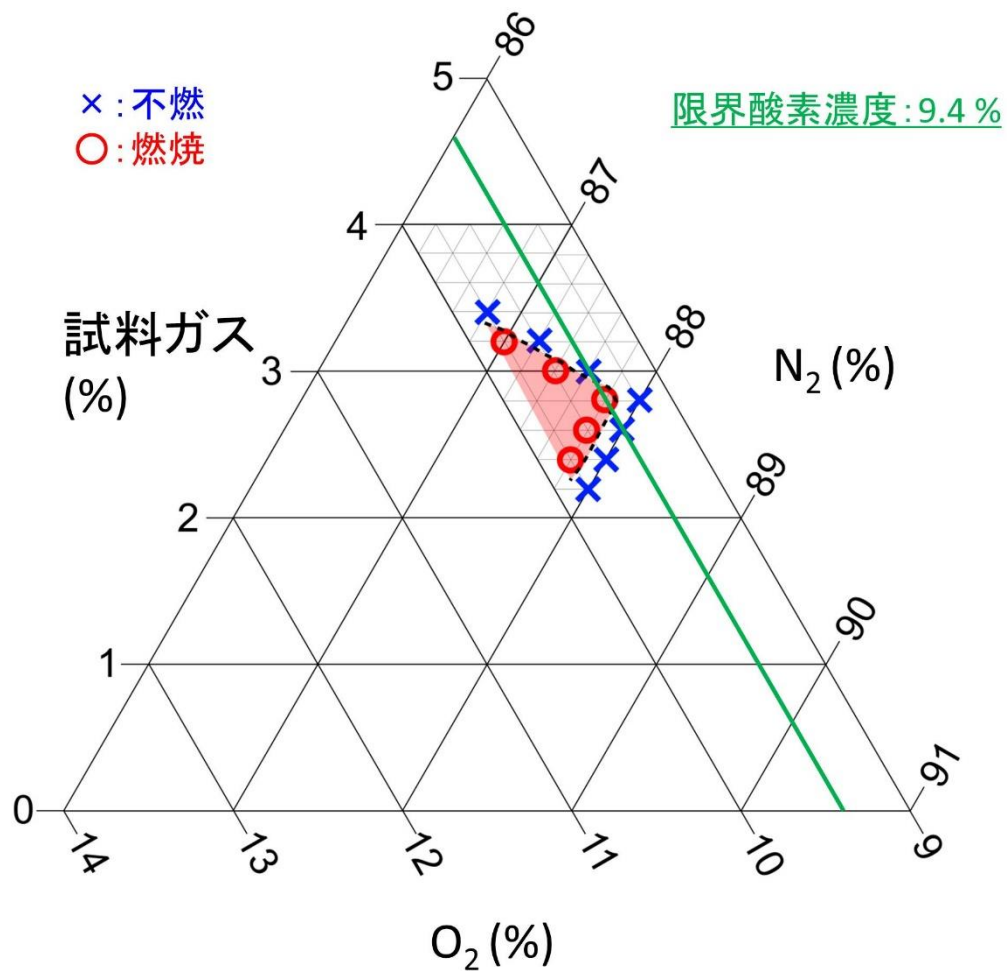


図 A.2 メタクリル酸メチル (80°C) の限界酸素濃度測定結果

①限界酸素濃度測定試験

試験No.4

2,3-ジヒドロベンゾフラン

試験温度: 110°C

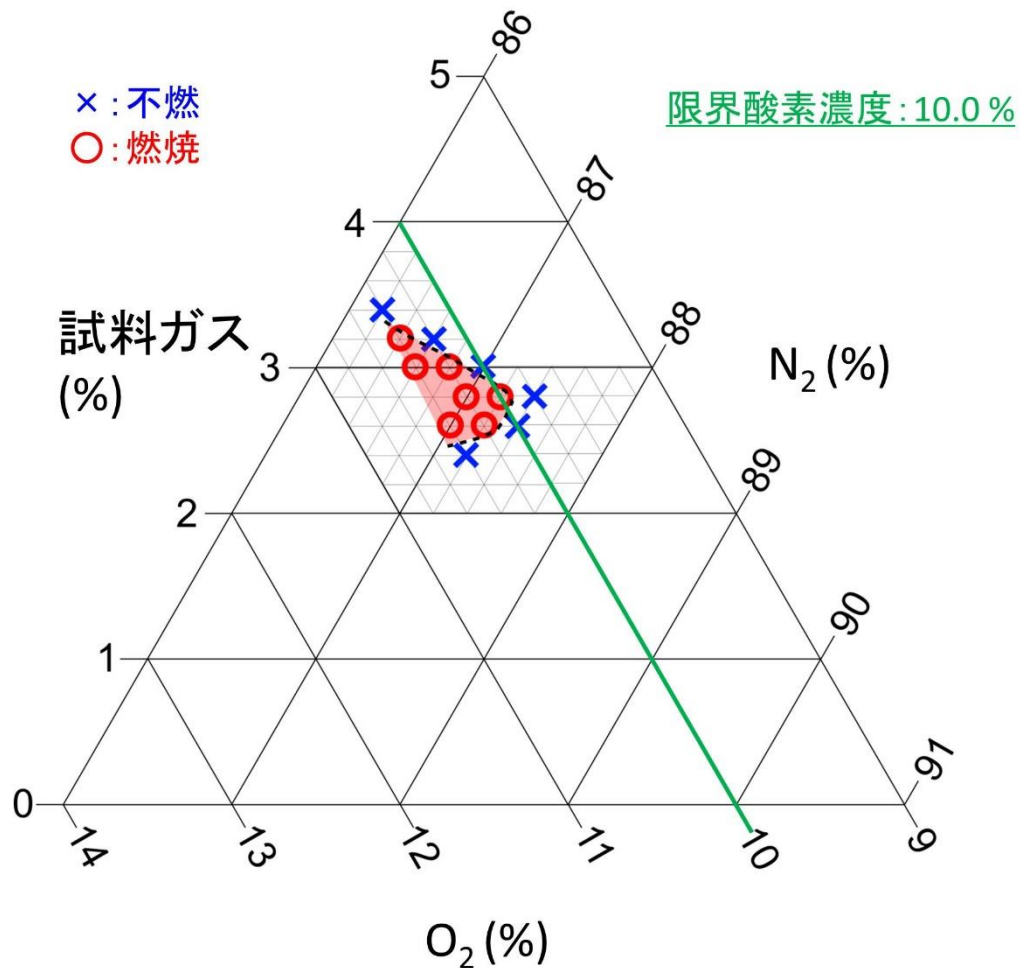


図 A.4 2,3-ジヒドロベンゾフランの限界酸素濃度測定結果

①限界酸素濃度測定試験

試験No.5

キシレン

試験温度: 150°C

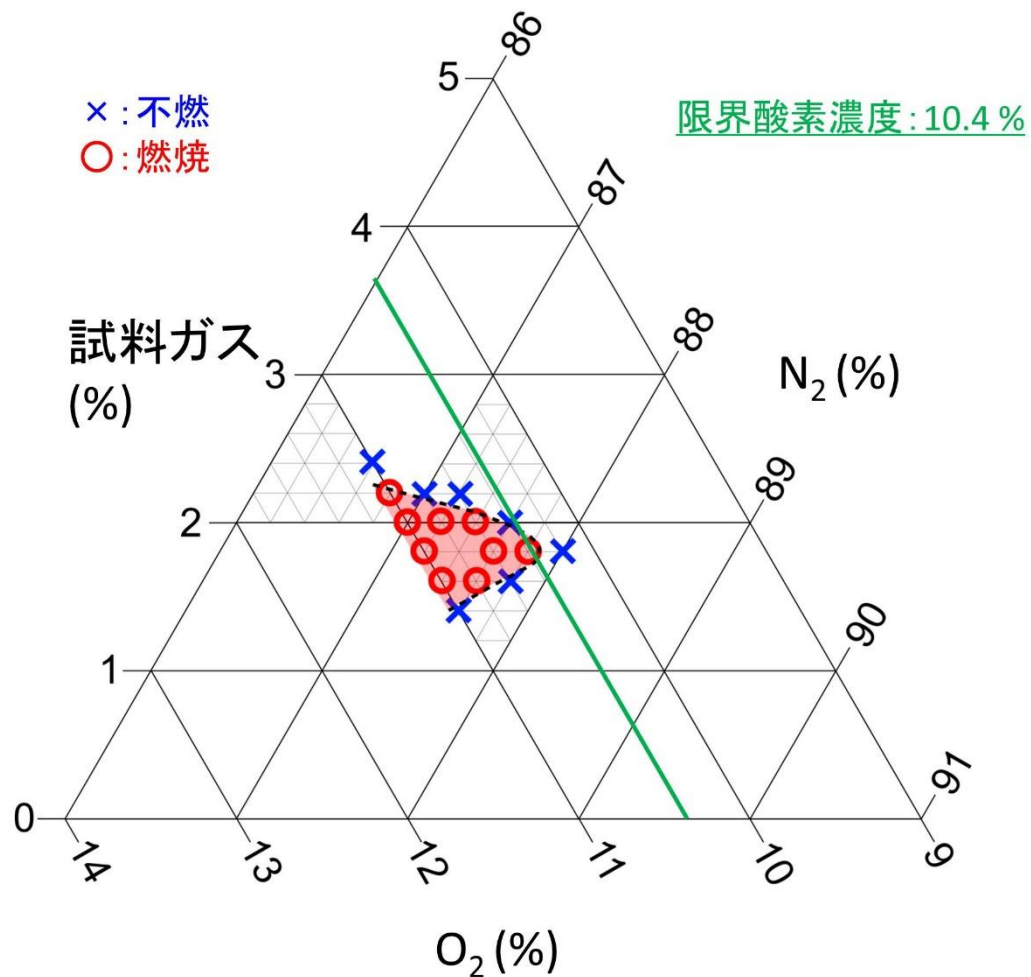


図 A.5 キシレンの限界酸素濃度測定結果

①限界酸素濃度測定試験

試験No.7

リモネン

試験温度: 80°C

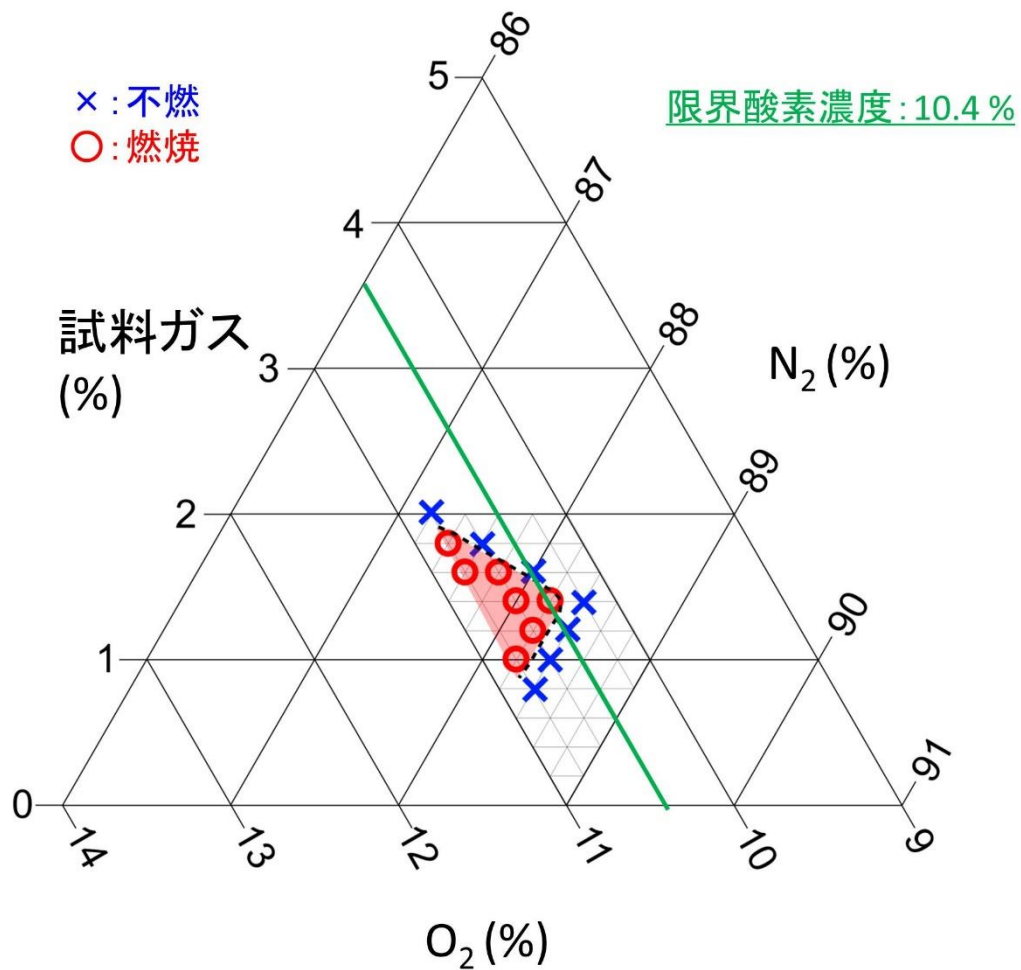


図 A.7 リモネンの限界酸素濃度測定結果

①限界酸素濃度測定試験

試験No.8

スチレン

試験温度: 80°C

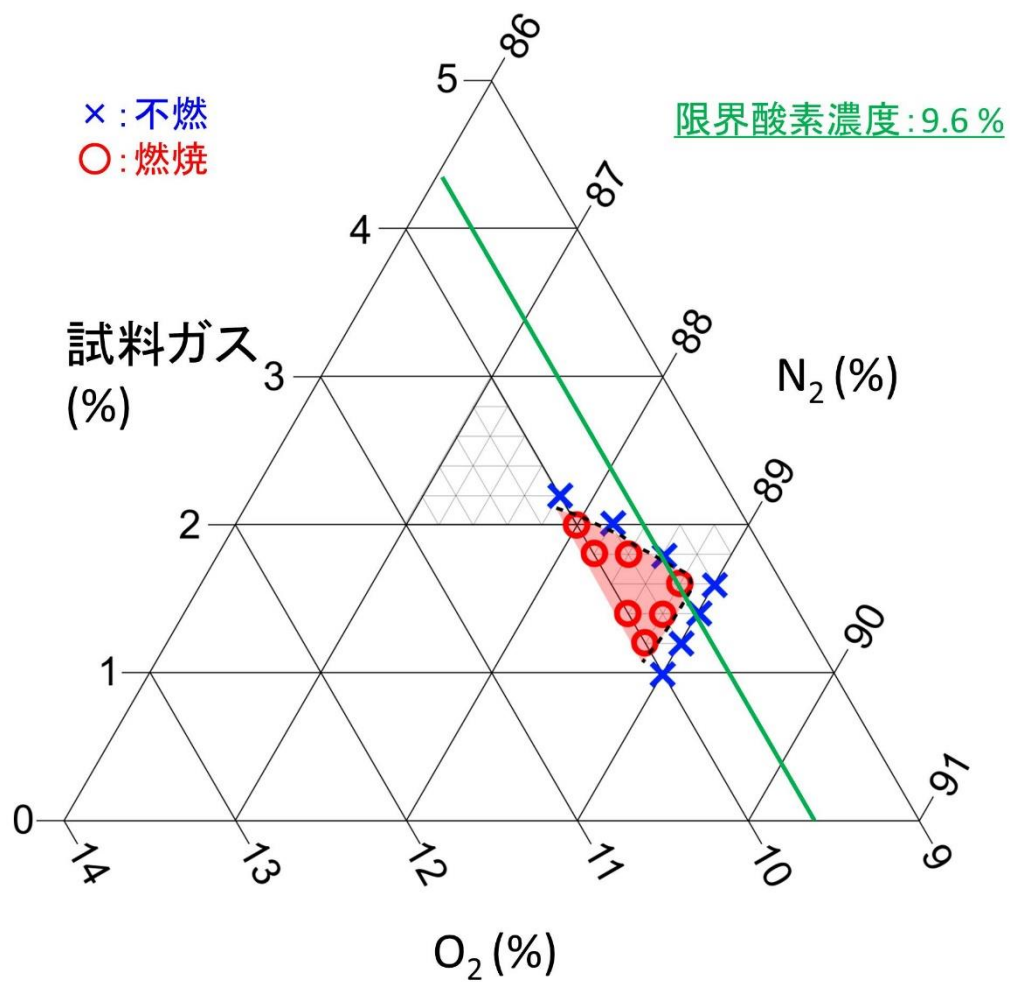


図 A.8 スチレンの限界酸素濃度測定結果

A.2 ②酸素指数測定試験の結果

図 A.9～図 A.13 に酸素指数測定試験で作成したプロットを示す。換算燃焼率の定義については 2.2.2 項を参照されたい。

②酸素指数測定試験 試験No.1 ビスフェノールA

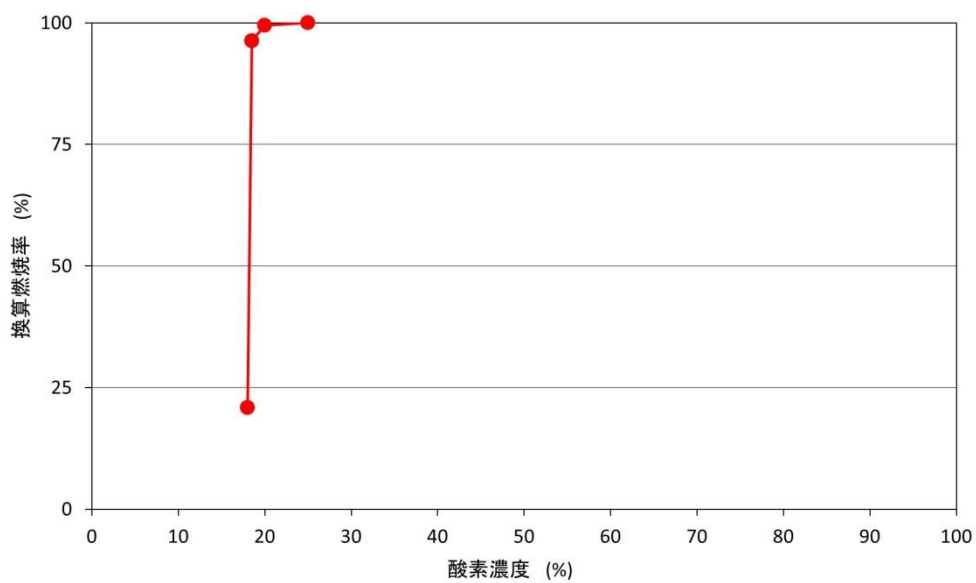


図 A.9 ビスフェノール A の酸素指数測定結果

②酸素指数測定試験
試験No.2
アクリル

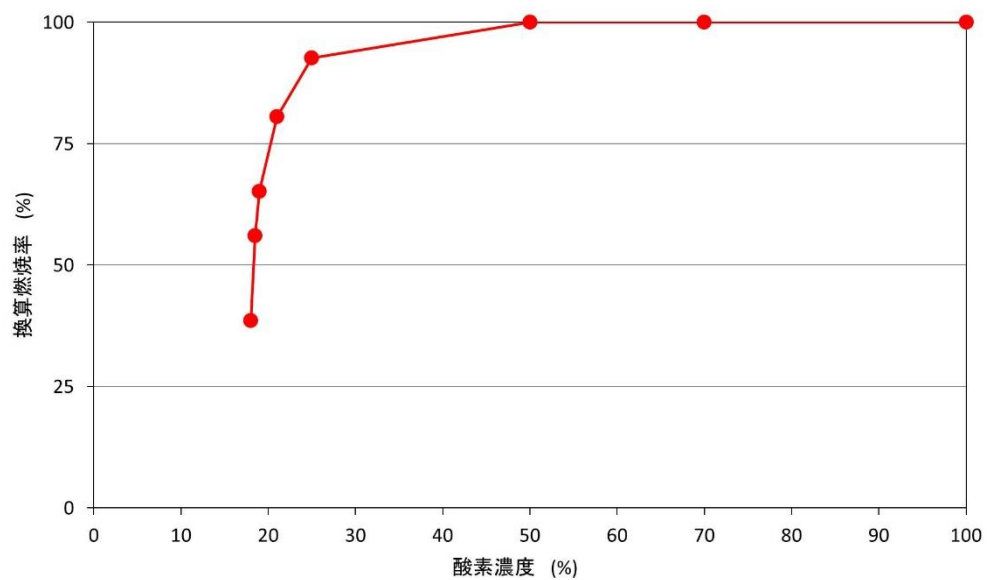


図 A.10 アクリルの酸素指数測定結果

②酸素指数測定試験
試験No.3
難燃アクリル

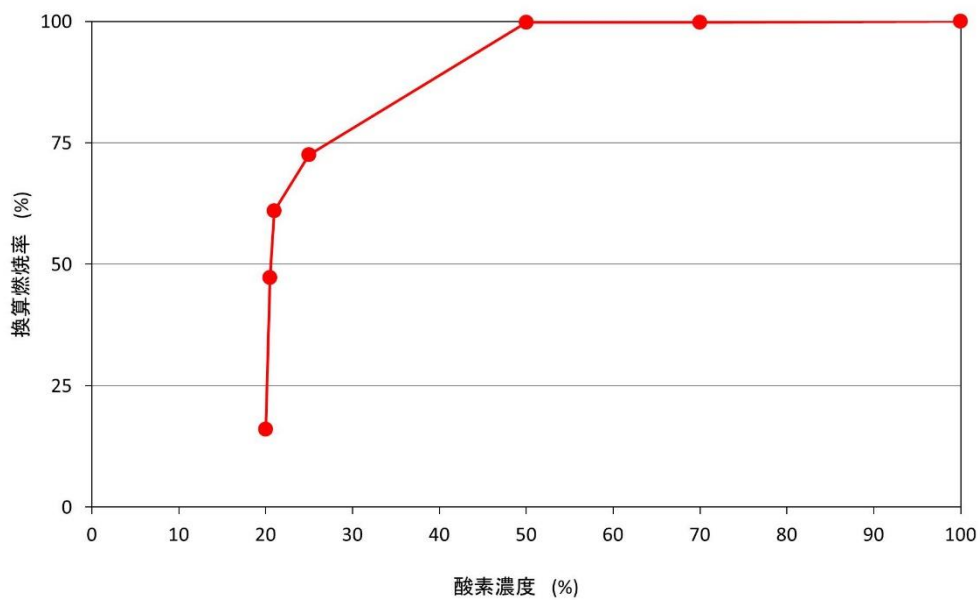


図 A.11 難燃アクリルの酸素指数測定結果

②酸素指数測定試験

試験No.4

ポリカーボネート

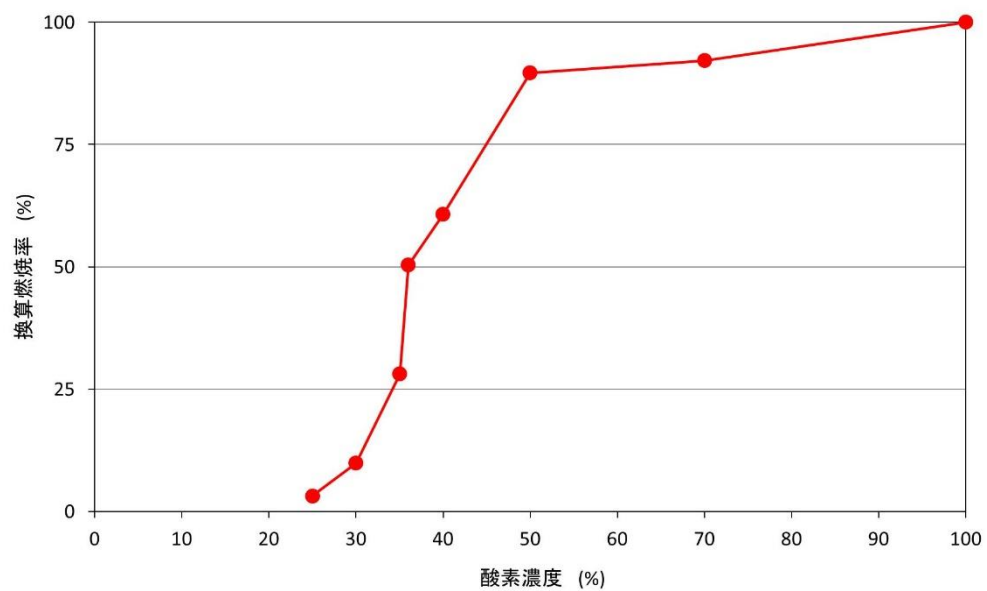


図 A.12 ポリカーボネートの酸素指数測定結果

②酸素指数測定試験
試験No.5
クロロプレングム

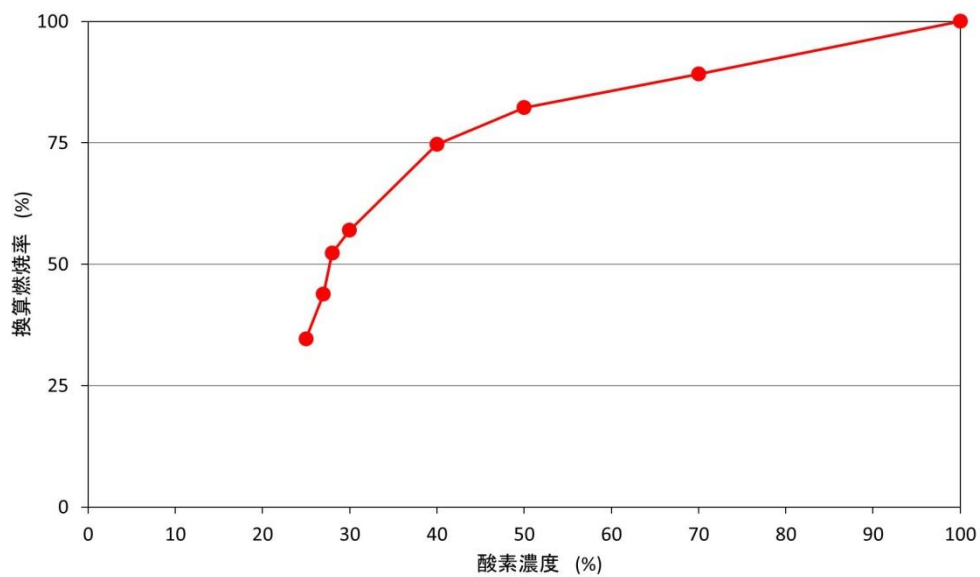


図 A.13 クロロプレングムの酸素指数測定結果

A.3 ③消炎酸素濃度測定試験の結果

表 A.1～A.13 に消炎酸素濃度測定試験の結果を示す。

表 A.1 メタクリル酸メチルの消炎酸素濃度測定結果

測定回数	試験結果（消炎した酸素濃度）
1 回目	15.0 %
2 回目	16.0 %
3 回目	16.0 %
（平均値）	15.7 %

表 A.2 リン酸トリス(1-クロロ-2-プロピル)の消炎酸素濃度測定結果

測定回数	試験結果（消炎した酸素濃度）
1 回目	33.0 %
2 回目	32.0 %
3 回目	31.0 %
（平均値）	32.0 %

表 A.3 カンフェンの消炎酸素濃度測定結果

測定回数	試験結果（消炎した酸素濃度）
1 回目	16.0 %
2 回目	16.0 %
3 回目	16.0 %
（平均値）	16.0 %

表 A.4 フェノールの消炎酸素濃度測定結果

測定回数	試験結果（消炎した酸素濃度）
1回目	17.0 %
2回目	16.0 %
3回目	17.0 %
（平均値）	16.7 %

表 A.5 メチルフェノールの消炎酸素濃度測定結果

測定回数	試験結果（消炎した酸素濃度）
1回目	17.0 %
2回目	17.0 %
3回目	17.0 %
（平均値）	17.0 %

表 A.6 エチルフェノールの消炎酸素濃度測定結果

測定回数	試験結果（消炎した酸素濃度）
1回目	17.0 %
2回目	17.0 %
3回目	17.0 %
（平均値）	17.0 %

表 A.7 4-tert-ブチルフェノールの消炎酸素濃度測定結果

測定回数	試験結果（消炎した酸素濃度）
1回目	17.0 %
2回目	16.0 %
3回目	17.0 %
（平均値）	16.7 %

表 A.8 4- α -クミルフェノールの消炎酸素濃度測定結果

測定回数	試験結果（消炎した酸素濃度）
1回目	18.0 %
2回目	18.0 %
3回目	19.0 %
（平均値）	18.3 %

表 A.9 キシレンの消炎酸素濃度測定結果

測定回数	試験結果（消炎した酸素濃度）
1回目	17.0 %
2回目	17.0 %
3回目	17.0 %
（平均値）	17.0 %

表 A.10 N-(1,3-ジメチルブチル)-N'-フェニル-p-フェニレンジアミンの
消炎酸素濃度測定結果

測定回数	試験結果（消炎した酸素濃度）
1回目	20.0 %
2回目	20.0 %
3回目	20.0 %
（平均値）	20.0 %

表 A.11 スチレンの消炎酸素濃度測定結果

測定回数	試験結果（消炎した酸素濃度）
1回目	15.0 %
2回目	15.0 %
3回目	15.0 %
（平均値）	15.0 %

表 A.12 1,4-ペンタジエンの消炎酸素濃度測定結果

測定回数	試験結果（消炎した酸素濃度）
1回目	15.0 %
2回目	15.0 %
3回目	15.0 %
（平均値）	15.0 %

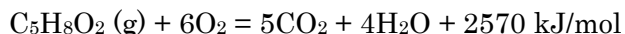
表 A.13 アクリルの消炎酸素濃度測定結果

測定回数	試験結果（消炎した酸素濃度）
1回目	18.0 %
2回目	18.0 %
3回目	18.0 %
（平均値）	18.0 %

A.4 断熱火炎温度の計算例

例として、メタクリル酸メチルの③消炎酸素濃度測定試験の結果から断熱火炎温度を計算する。試験結果として得られた消炎酸素濃度は 15.7%であった。なお、測定値は室温 (25°C) 条件で得られたものである。

メタクリル酸メチル (気体) の燃焼反応式は以下のように記述される。



また、メタクリル酸メチルの蒸発による吸熱量は 40 kJ/mol (A-1)である。これを記述すると次式ようになる。



上の 2 式より、③試験の系において生じている燃焼反応は次式にまとめられる。



上の燃焼反応式より、メタクリル酸メチル (気体) が 1 mol 燃焼すると O₂ 6 mol が消費される。③試験の系において、O₂ は N₂ との混合ガスとして供給される。酸素濃度 15.7% 条件において O₂ 6 mol に同伴する N₂ の物質質量(mol)は次のように計算される。

$$6 (\text{mol}) \times \frac{100 (\%) - 15.7 (\%)}{15.7 (\%)} = 32.2 (\text{mol})$$

この N₂ は燃焼反応には関与しないが、燃焼で生じた熱を吸収する。すなわち、燃焼反応によって生じた熱量は、CO₂ 5 mol、H₂O 4 mol、N₂ 32.2 mol から成る排ガスの温度上昇に消費される。初期温度 25°C の排ガスに 2530 kJ 入熱し、定圧変化で昇温したとすると、その排ガス温度は 1722.3°C と計算される。この排ガス温度が断熱火炎温度である。なお、この計算においては各排ガス成分の定圧比熱を温度の関数として与えた。定圧比熱に関するデータは NIST (A-1) より引用したものである。

参考文献

(A-1) NIST, "NIST Chemistry WebBook", NIST Standard Reference Database Number 69, DOI: <https://doi.org/10.18434/T4D303>, Last update to data: (2018)