

再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故時の 化学挙動解析コードSCHERNのRuO₄気液間 移行モデルの高度化

Improvement of the RuO₄ Vapor-liquid Transfer Model in
the Chemical Behavior Analysis Code SCHERN for
Accident of Evaporation to Dryness
by Boiling of Reprocessed High Level Liquid Waste

吉田 一雄 桧山 美奈 玉置 等史

Kazuo YOSHIDA, Mina HIYAMA and Hitoshi TAMAKI

原子力安全・防災研究所

安全研究センター

Nuclear Safety Research Center
Nuclear Safety and Emergency Preparedness Institute

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートの転載等の著作権利用は許可が必要です。本レポートの入手並びに成果の利用(データを含む)
は、下記までお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ウェブサイト (<https://www.jaea.go.jp>)
より発信されています。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究開発推進部 科学技術情報課
〒 319-1112 茨城県那珂郡東海村大字村松 4 番地 49
E-mail: ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.
Reuse and reproduction of this report (including data) is required permission.
Availability and use of the results of this report, please contact
Library, Institutional Repository and INIS Section,
Research and Development Promotion Department,
Japan Atomic Energy Agency.
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1112, Japan
E-mail: ird-support@jaea.go.jp

再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故時の
化学挙動解析コード SCHERN の RuO₄ 気液間移行モデルの高度化

日本原子力研究開発機構 原子力安全・防災研究所 安全研究センター

吉田 一雄、桧山 美奈*、玉置 等史

(2025年9月10日受理)

再処理施設の過酷事故の一つである高レベル放射性廃液貯槽の冷却機能喪失による蒸発乾固事故では、沸騰により廃液貯槽から発生する硝酸-水混合蒸気とともにルテニウムの揮発性の化学種 (RuO₄) が放出される。このためリスク評価の観点からは、Ruの定量的な放出量の評価が重要な課題である。RuO₄は施設内を移行する過程で床面に停留すると想定されるプール水中の亜硝酸 (HNO₂) によって化学吸収が促進されることが想定され、この挙動は実験的に確認されており、Ruの施設内での移行に重要な役割を担う。HNO₂を含む硝酸水溶液へのRuO₄の移行に係る実験から得られた成果をもとに、新たな化学吸収及び物理吸収モデルが提案されている。本報では、SCHERNの解析性能の向上の一環として、これらの吸収モデルを組込み、施設内を移行するRuO₄の気液各相での挙動の解析を試行した。その結果、RuO₄の放出が急激に増加する沸騰晚期では、液相中のHNO₂も急増する傾向が見られ、その濃度変化がその後のRuO₄の移行挙動に大きく影響することを確認した。この結果から硝酸-水混合蒸気の凝縮に伴う気液各相のHNO₂の化学的挙動の解析精度の向上が不可欠である。

原子力科学研究所：〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方2-4

*株式会社フロンティアシステム

Improvement of the RuO₄ Vapor-liquid Transfer Model
in the Chemical Behavior Analysis Code SCHERN for
Accident of Evaporation to Dryness by Boiling of Reprocessed High Level Liquid Waste

Kazuo YOSHIDA, Mina HIYAMA* and Hitoshi TAMAKI

Nuclear Safety Research Center
Nuclear Safety and Emergency Preparedness Institute
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received September 10, 2025)

An accident of evaporation to dryness by boiling of high-level radioactive liquid waste (HLLW) is postulated as one of the severe accidents caused by the loss of cooling function at a fuel reprocessing plant. In this case, volatile radioactive materials, such as ruthenium (RuO₄) are released from the tanks with water and nitric-acid mixed vapor into the atmosphere. Accurate quantitative estimation of released Ru is one of the important issues for risk assessment of those facilities. RuO₄ is expected to be absorbed chemically into water dissolving nitrous acid (HNO₂). This behavior has been experimentally confirmed and plays an important role in the migration of Ru in the facility. A new model has been proposed as a chemical and physical absorption model based on the experimental results of the migration of RuO₄ into nitric acid-water mixtures. In this study, to improve the analytical performance of SCHERN, these new analytical models have been incorporated and attempted to analyze the behavior of RuO₄ in each phase. As a result, it has been observed a tendency that HNO₂ in the liquid phase increases rapidly during the late boiling phase, when RuO₄ release increases rapidly, and confirmed that this HNO₂ concentration change significantly affects the subsequent migration behavior of RuO₄. These results indicate that it is essential to improve the analytical accuracy of the chemical behavior of HNO₂ in each phase.

Keywords: Reprocessing Plant, High-Level Radioactive Liquid Waste, Accident of Evaporation to Dryness by Boiling, Volatized Ruthenium, Chemical Absorbed Behavior, Nitrous Acid, SCHERN Code

* Frontier System Co., Ltd.

目次

1.	はじめに.....	1
2.	実験に基づく RuO ₄ の液相への移行モデル	3
2.1	物理吸収モデル.....	3
2.2	化学吸収モデル.....	3
3.	硝酸水溶液中の RuO ₄ の拡散係数の導出	4
3.1	RuO ₄ の硝酸水溶液中の拡散係数.....	4
3.2	標準沸点分子容.....	4
3.3	硝酸水溶液の粘性係数.....	5
3.4	仮想的な実規模施設での拡散係数の試算.....	5
3.5	RuO ₄ の硝酸水溶液に対するヘンリー定数	5
4.	SCHERN の気液間での物質移行モデル.....	8
4.1	事故時の施設内での熱流動と化学種の気液間の移動.....	8
4.2	凝縮に伴う生成ミストへの気液平衡移行のモデル化（ミスト気液平衡モデル）	8
4.3	分子拡散による移行のモデル化（分子拡散モデル）	9
4.4	Ru の凝縮に伴う移行のモデル化（Ru 凝縮水移行モデル）	9
4.5	化学吸収モデル及び物理吸収モデルの SCHERN への組込み	10
4.6	SCHERN の既存の移行モデルと新移行モデルとの比較	10
5.	SCHERN の廃ガス処理セルでの解析結果.....	12
5.1	気相部での各化学種の変化.....	12
5.2	液相部での各化学種の変化.....	12
5.3	RuO ₄ の施設外への移行の可能性.....	12
6.	まとめ.....	17
	参考文献	18
	付録 A SCHERN の入力.....	19
	付録 B SCHERN で考慮する化学反応.....	24

Contents

1.	Introduction	1
2.	Experimental model for RuO ₄ transition to the liquid phase	3
2.1	Physical transition model	3
2.2	Chemical transition model	3
3.	Derivation of the diffusion coefficient of RuO ₄ in aqueous nitric acid solutions	4
3.1	Diffusion coefficient of RuO ₄ in nitric acid solution	4
3.2	Molecular volume at standard boiling point	4
3.3	Viscosity coefficient of nitric acid aqueous solution	5
3.4	Calculation of diffusion coefficient in a hypothetical facility	5
3.5	Henry's constant for RuO ₄ in nitric acid solution	5
4.	Vapor-liquid mass transfer model for SCHERN	8
4.1	hydraulic behavior and gas-liquid transfer of chemical species during an accident	8
4.2	Modeling of vapor-liquid equilibrium transition with mist formed by condensation (vapor-mist equilibrium model)	8
4.3	Modeling of transport by molecular diffusion (molecular diffusion model)	9
4.4	Modeling of Ru transport to liquid with vapor condensing process (Ru condensed liquid model)	9
4.5	Implement of chemical and physical absorption models into SCHERN	10
4.6	Comparison of the existing and new migration models in SCHERN	10
5.	Analysis results of waste gas disposal cell by SCHERN	12
5.1	Behaviors of each chemical species in the gas phase	12
5.2	Behaviors of each chemical species in the liquid phase	12
5.3	Possibility of RuO ₄ migration outside of facility	12
6.	Summary	17
	References	18
	Appendix A input for SCHERN	19
	Appendix B Chemical reactions with SCHERN	24

1. はじめに

再処理施設で想定される重大事故の一つに高レベル廃液貯槽の蒸発乾固事故がある。高レベル廃液には、再処理で取り除かれた核分裂生成物の硝酸塩が含まれ、それらの崩壊熱による発熱のため常時冷却する必要がある。冷却機能が全喪失した状態が継続した場合、廃液が沸騰し硝酸及び水の混合蒸気が貯槽から流出しそれ乾固する。この過程において廃液中の放射性物質は、沸騰で発生する飛沫の形態、あるいは廃液の温度上昇に伴い発生する揮発性化学種として貯槽外に流出する¹⁾。乾固時には、含有硝酸塩の脱硝反応が進行し NO_x ガスが発生し始めると考えられる。溶液の沸騰及び脱硝反応に伴い発生する気体（蒸気あるいはガス）とともに貯槽から放出される放射性物質は、事故シナリオの一つとして貯槽の圧力上昇を防止する目的で設置される廃ガスシールポットから廃ガス処理セル内に流出することが想定される¹⁾。このシナリオではセルに流出した放射性物質を含む気体は、セル排気系から排気筒放出されるかまたはセルから建屋内へ逆流し建屋排気系から排気筒放出される。この事故シナリオでの蒸気等の流れを図 1.1 に示す。

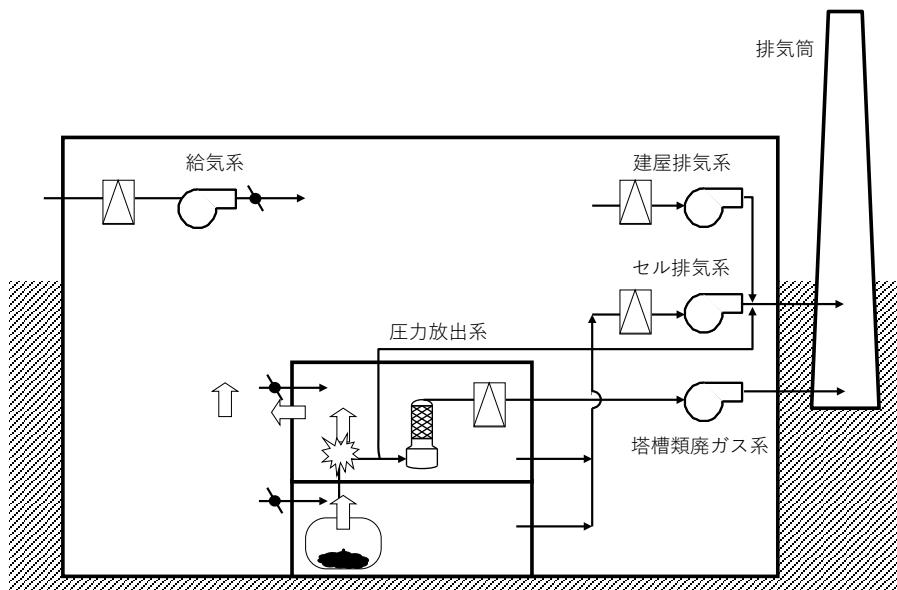


図 1.1 事故時に想定される再処理施設内の放射性物質の移行経路

セル等の施設内の区画に流出した硝酸-水混合蒸気は、区画内の壁面あるいは構造物表面で凝縮し、硝酸を含む凝縮水として停留する。NO_x を含む硝酸-水混合蒸気及び凝縮水中では、化学反応により硝酸、亜硝酸（HNO₂）を含む多様な窒素化合物が生成される。

高レベル廃液貯槽の蒸発乾固事故において、周辺公衆への被ばく影響で重要な化学種の一つとしてルテニウム（Ru）がある。Ru は事故の進展に伴い、揮発性化学種である RuO₄ に変化する²⁾。RuO₄ は混合蒸気あるいは NO_x とともに貯槽から流出するが、施設内を移動する混合蒸気の凝縮に合わせて凝縮水に移行すること、さらに凝縮水中の HNO₂ が Ru の凝縮水への移行を促進することが実験で確認されている³⁾。このことから当該事故での被ばく評価の精度向上には、施設内での混合蒸気の熱流動それに伴う硝酸、NO_xなどの化学挙動解析に基づく Ru の移行挙動の解析が不可欠である。

日本原子力研究開発機構では、再処理施設の高レベル廃液の蒸発乾固事故に特化して、硝酸一水混合蒸気、その凝縮水及び NO_x が存在する気相及び液相で構成される系において想定される化学反応を伴う多様な化学種の濃度変化を、化学反応速度を考慮した連立一次微分方程式の数値解を求める計算プログラム : SCHERN (Simulation of Chemical Reaction of Nitroxide) を作成した。すでに、使用マニュアル⁴⁾ を刊行している。その後、Ru の再処理施設内での移行挙動に係る実験から得られた成果をもとに、RuO₄ の硝酸一水混合水中の化学挙動を駆動源とする気相から液相への移行挙動に係る新たなモデルが化学吸収モデルとして提案⁵⁾ された。本報では、SCHERN の解析性能の向上の一環として、新たな解析モデルを組込み、施設内を移行する RuO₄ の気液各相での挙動の解析を試行した成果を取りまとめている。

なお、SCHERN コードで用いる化学挙動解析モデルには、原子力規制庁の委託成果の一部を含む。

2. 実験に基づく RuO₄ の液相への移行モデル

文献 5) には RuO₄ の液相への吸収を測定する実験結果に基づき、物理吸収モデル及び化学吸収モデルの 2 つのモデルが提案されている。

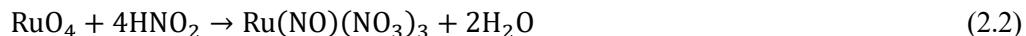
2.1 物理吸収モデル

RuO₄ の吸収液として水を用いた気液接触試験の結果をもとに温度と物質移動係数の関係を直線近似して求めた回帰式より液相物質移動係数を取得し、その値を用いて(2.1)式を導出している。ここでの実験では化学反応を伴わない物理吸収の場合に適用可能なモデルであるとしている。このモデルの適用可能な温度範囲は 5~55 [°C] であるとしている。ここで、 N : 気液単位接触面積当たりの吸収速度 [mol/m²・s]、 P_{RuO_4} : RuO₄ の気相中分圧 [Pa]、 T : 液相温度 [K]、 R : 気体定数 (8.314 [Pa・m³ / K・mol]) である。

$$N = [-1.44 \times 10^{-5}(T - 273.15) + 1.85 \times 10^{-3}] \times (P_{RuO_4}/RT) \quad (2.1)$$

2.2 化学吸収モデル

RuO₄ の HNO₂ を含む硝酸水溶液への吸収を、次に示す 3 つの仮定に基づき(2.2)式に示す化学反応を迅速擬 1 次反応として扱い、二重境膜モデルをもとにした理論的解釈を行っている。



- ・ HNO₂ が関与する化学反応を伴う反応吸収（化学吸収）である。
- ・ 液相には、RuO₄ に対して大過剰の HNO₂ が存在する。
- ・ これまでの実験結果から、反応吸収に関与する化学反応の速度は速い。

迅速擬 1 次反応の場合、気液単位接触面積当たりの吸収速度 : N [mol/m²・s] は、(2.2)式で与えられるとしている。試験では N の実測値を得て、それをもとに(2.2)式中の k_G : 気相物質移動係数、及び反応速度係数 : k_2 を求めている。ここで、 P_{RuO_4} : RuO₄ の気相中分圧 [Pa]、 H_{RuO_4} : ヘンリ一定数 [Pa・m³/mol]、 C_{HNO_2L} : HNO₂ の液相中濃度 [mol/m³]、 D_{RuO_4} : 液相中での RuO₄ の拡散係数 [m²/s]、 k_G : 気相物質移動係数 [mol/m²・s・Pa]、 k_2 : 反応速度定数 [m³/mol・s] である。

$$N = P_{RuO_4} / \left[1/k_G + H_{RuO_4} / (k_2 C_{HNO_2L} D_{RuO_4})^{1/2} \right] \quad (2.3)$$

3. 硝酸水溶液中の RuO₄ の拡散係数の導出

2章に示す RuO₄ のプール水への化学吸収モデルでは、気相から液相への移行は気液界面で(2.2)式で表される物質移動係数 : N により規定される。 N を求めるには、硝酸水溶液中の RuO₄ の拡散係数 : D_l [cm²/s] を必要とする。さらに D_l を求めるには、RuO₄ の標準沸点分子容 [cm³/mol]、プール水を形成する硝酸水溶液の粘性係数 : η_2 [cP または mPa·s] が必要である。本章では、これらの物性値の算定手順について記す。

3.1 RuO₄ の硝酸水溶液中の拡散係数

無限希釈における 2 成分溶液系の拡散係数 : D_{12} [cm²/s] を求めるには、Wilke-Chang の式があるが、推算には硝酸水溶液の会合係数を必要とする。これに対して会合係数を必要としない (3.1) 式に示す Scheibel の式がある⁶⁾。 η_2 は第 2 成分 (硝酸水溶液) の粘性係数、 T は絶対温度 [K]、 V_1 及び V_2 は、それぞれ第 1 成分(RuO₄) 及び第 2 成分の標準沸点分子容 [cm³/mol] である。

$$D_{12} = KT / \eta_2 V_1^{1/3} \quad (3.1)$$

K は(3.2)式による。

$$K = 8.2 \times 10^{-8} [1 + (3V_2/V_1)^{2/3}] \quad (3.2)$$

3.2 標準沸点分子容

a) 水及び硝酸の標準沸点分子容

標準沸点分子容とは 1 気圧の沸点での分子容をいう。標準沸点分子容 : V_b 、臨界分子容 : V_c (臨界点での分子容) とすれば(3.3)式の関係がある⁶⁾。

$$V_b = 0.285 V_c^{1.04} \quad (3.3)$$

文献 7) によれば水の臨界点でのモル密度は、17.9 [mol/L] であり、臨界分子容 : 55.93 [cm³/mol] が求まる。さらに、(3.3)式より水の標準沸点分子容 : 18.72 [cm³/mol] が求まる。文献 7) では、硝酸の臨界分子容 : 145 [cm³/mol] が示されている。この値をもとに(3.4)式より硝酸の標準沸点分子容 : 50.43 [cm³/mol] が求まる。

b) 硝酸水溶液の標準沸点分子容

文献 6) では、アマガ (Amagat) の法則により “混合物を構成する分子の性質の相違があまり大きくない場合は、モル平均値によってもかまわない” としている。本報でも硝酸水溶液の分子容は、それぞれの分子容のモル分率による平均値で表すことができるとして(3.4)式で求める。 V_{HNO_3} 及び V_{H_2O} は、それぞれ硝酸及び水の標準沸点分子容、 F_m は硝酸モル分率である。

$$V_2 = V_{b-HNO_3} \times F_m + V_{b-H_2O} (1 - F_m) \quad (3.4)$$

c) RuO₄ の標準沸点分子容

RuO₄ の物性値のうち、融点 : 25.4 [°C]、沸点 : 40.0 [°C]、密度 : 3.29 [g/cm³] (温度条件は不明) が

既知である。密度の値が沸点でも同様と仮定すれば、分子量:165.1 [g/mol]として標準沸点分子容は、50.18 [cm³/mol]となる。

3.3 硝酸水溶液の粘性係数

硝酸水溶液の粘性係数は、溶液の硝酸濃度及び温度により変化する。高レベル放射性廃液の蒸発乾固事故では、施設内に漏洩した硝酸一水混合蒸気は、施設内の移行経路となる各区画内において壁面等で凝縮しプール水を形成する。廃液から RuO₄ が多く発生する廃液温度が 120 [°C]を超えるような沸騰晚期では、プール水の温度は、100 [°C]近傍、硝酸濃度は 5.8~9.5 [mol/L]となる。このような沸騰晚期でのプール水への RuO₄ の移行を化学吸収モデルで解析するには、硝酸水溶液の濃度及び温度に依存した粘性係数が必要となる。

文献 8) には、硝酸重量分率が、60%及び 95%の硝酸水溶液の温度依存の粘性係数が示されている。一方、文献 9) には、図 3.1 に示す 15 [°C]での硝酸重量分率依存の粘性係数が記載されている。単位の表示がないが[mPa·s]と推察される。同文献には“0 [°C] における水の粘性係数は 1 とみなされる。”との記述があるので、文献 9) に示された粘性係数の値は、0 [°C] の水の粘性係数を 1.0 [mPa·s]として各計測値から求めた値と推察される。0 [°C]の水の粘性係数は約 1.8 [mPa·s]であることを踏まえて、図 3.1 中に各文献値を 1.8 倍した値を文献補正値として示す。図中に参考値として×印で示す文献 8) に記載の値を内挿して求めた 15 [°C]での硝酸重量分率 : 0.6 での硝酸水溶液の値及び 15 [°C]での水の粘性係数値¹⁰⁾ からはズレがみられる。そこで文献補正値に対してさらに倍率補正を施し、近年の文献値を再現するような推算値を求めた。

図 3.2 には、図 3.1 の推算値を基準に、文献 8) 記載の重量分率 : 0.6 の硝酸水溶液の温度依存の粘性係数値から求めた倍率を乗じて求めた複数の水溶液温度での重量分率依存の粘性係数を示す。

3.4 仮想的な実規模施設での拡散係数の試算

本章で示した RuO₄ の拡散係数の算出の過程を SCHERN の仮想的な実規模施設での蒸発乾固事故の解析結果¹¹⁾ をもとに廃ガス処理セル (CV003) 及び配管分岐セル区画 A (CV051) を対象に算出を試行する。

図 3.3 に SCHERN 解析の境界条件であるプール水温度 [°C] 及び SCHERN で解析した液相 (プール水) 硝酸濃度 [kmol/m³] を示す。粘性係数及び拡散係数の算出に必要な硝酸重量分率及び硝酸モル分率は、硝酸濃度からプール水温度、プール水体積及びプール水密度をもとに算出する。図 3.4 に廃ガス処理セル及び配管分岐セル区画 A の粘性係数及び拡散係数を示す。図 3.2 に示すように粘性係数は、硝酸濃度が高いほど値は大きくなるが、温度が高くなると値は小さくなる傾向がある。事故時での RuO₄ が多く発生する沸騰晚期では、プール水温度は、100 [°C] 近傍で推移し、温度が低い場合に比べて硝酸濃度は大きくは影響しないと推察される。

3.5 RuO₄ の硝酸水溶液に対するヘンリイ一定数

文献 12) には、濃度の異なる硝酸水溶液に対する RuO₄ のヘンリイ一定数の実測値が示されている。それをもとに(3.5)式に示す溶液温度 : T [K] 及び硝酸濃度 : C_{HNO_3} [kmol/m³] に対する RuO₄ のヘンリイ一定数 : H_{RuO_4} [kmol/m³/kPa] の相関式を導出した。

$$H_{RuO_4} = 2.53 \times 10^{-3} \exp[6420(1/T - 1/298) + 0.158(C_{HNO_3} - 1.0)] \quad (3.5)$$

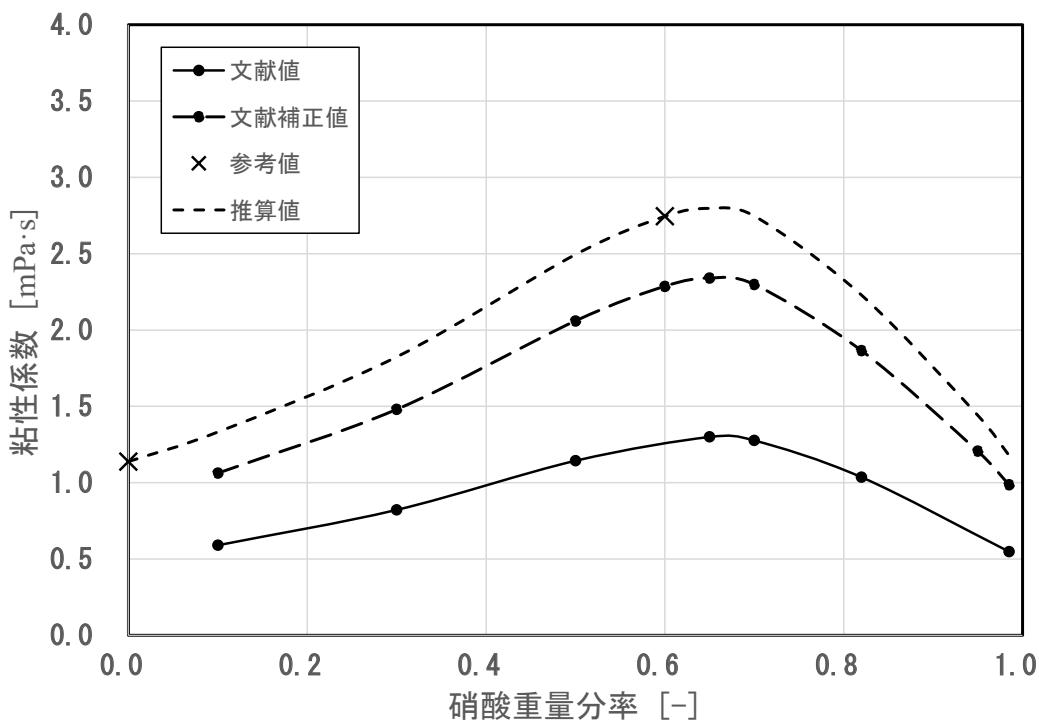


図 3.1 溫度 15°C の硝酸重量分率依存の硝酸水溶液の粘性係数

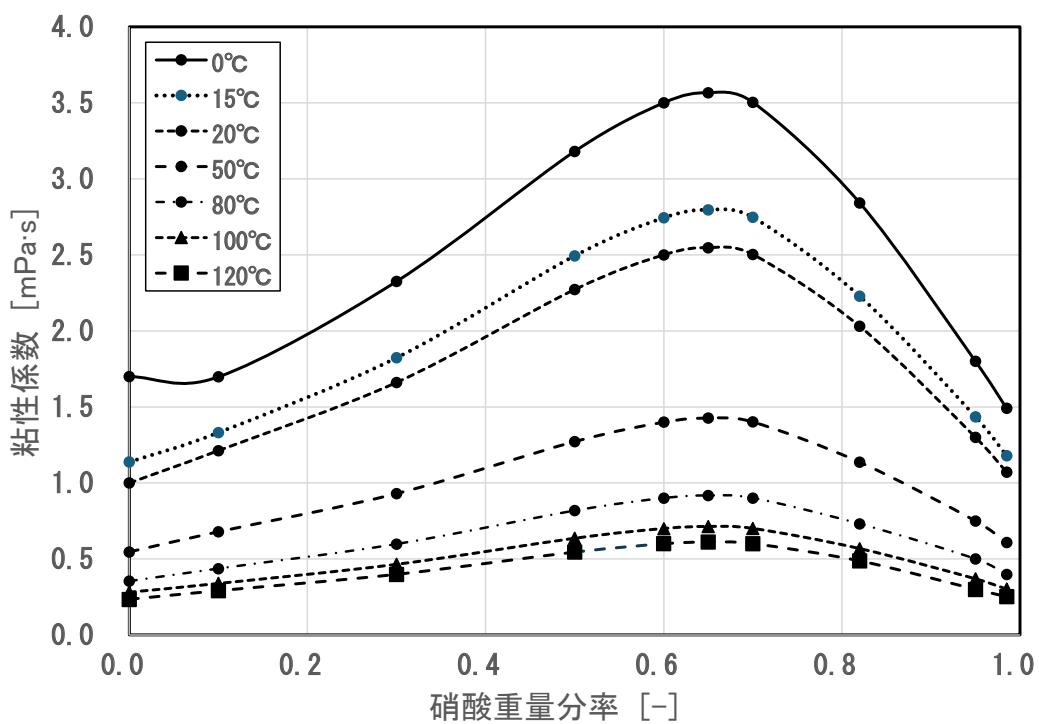


図 3.2 溫度及び硝酸重量分率依存の硝酸水溶液の粘性係数

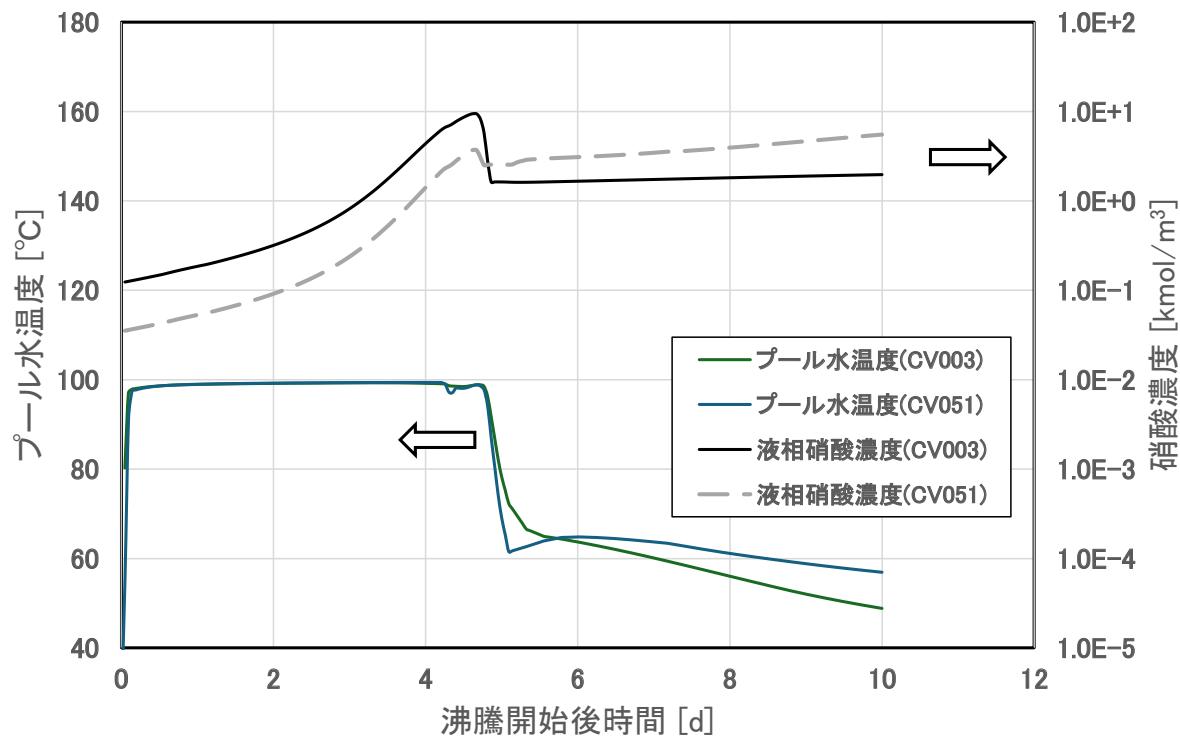


図 3.3 廃ガス処理セル及び配管分岐セル区画 A のプール水温度及び液相硝酸濃度

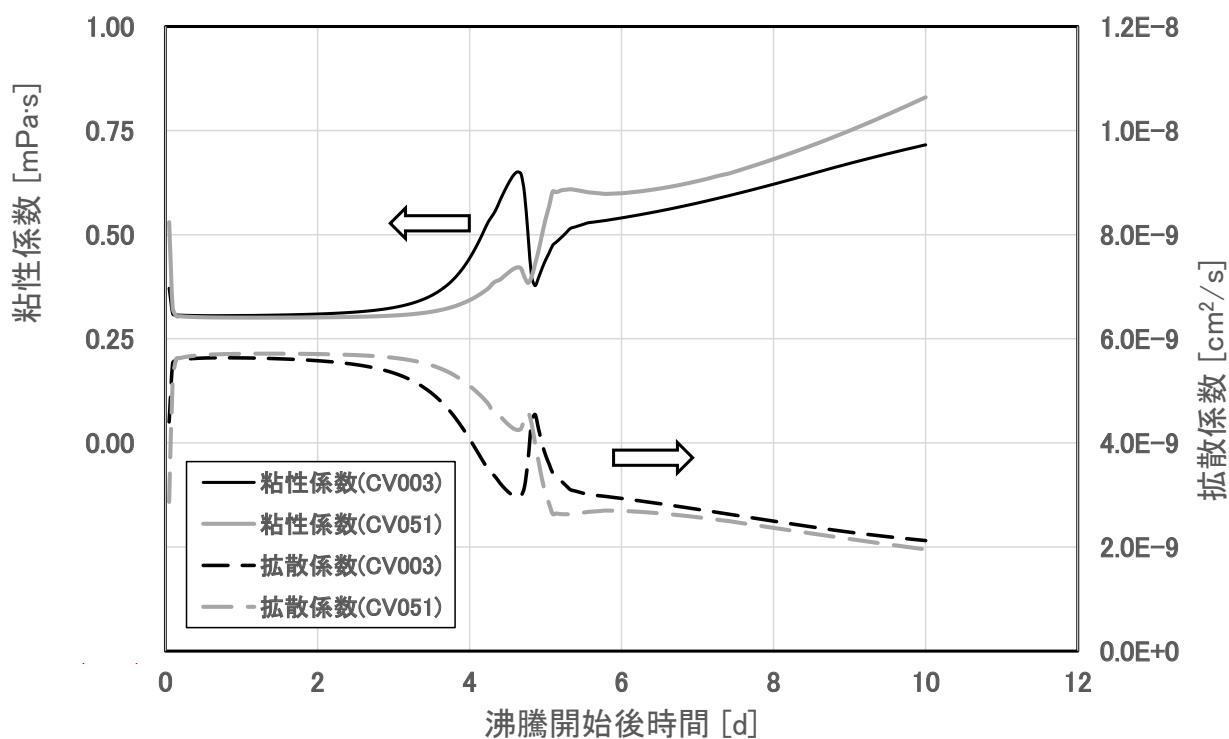


図 3.4 廃ガス処理セル及び配管分岐セル区画 A の粘性係数及び拡散係数

4. SCHERN の気液間での物質移行モデル

蒸発乾固事故は、事象の進展に応じて廃液の沸騰で発生する硝酸一水混合蒸気が、施設内の移行経路で凝縮しプール水を形成する沸騰期と、廃液が乾固し、蒸気発生がなくなり替わって NO_x ガスが発生する乾固期に分かれる。SCHERN では、RuO₄ 以外の化学種の気液間での物質の移行メカニズムとして、“蒸気の凝縮に伴い形成されるミストへのヘンリーの法則に基づく平衡状態での移動”、及び “気液界面での化学種の物理的な移行” をモデル化している⁴⁾。RuO₄ の液相への移行については、硝酸一水混合蒸気の凝縮に伴う液相への移行量を測定した実験に基づく相関式を提案している¹³⁾。

4.1 事故時の施設内での熱流動と化学種の気液間の移動

本章の冒頭で述べたように沸騰時の実規模施設では、セル等の建屋の区画に流出した蒸気は、蒸気の飽和温度が 100 [°C] 未満の場合、コンクリート壁面等の区画内の構造物表面で除熱され凝縮し液膜を形成し、構造物近傍の気相部にはミストが発生する。液膜は徐々に床面に移動しプール水として停留すると想定される。気相部に浮遊できるミストには上限があり、これを超えるとプール水として床面に停留すると考えられる。この期間において SCHERN では、単位時間当たりに蒸気が凝縮し、これにより形成されるミスト及び壁面液膜の液相において瞬時に平衡状態となる化学種の溶解を仮定し、気相から液相に移行すると仮定しモデル化している。さらに、壁面の液膜及びプール水液面では、化学種の気液間の濃度差に応じて分子拡散に基づく移行もある。

一方、乾固時には、気相中のミスト及び壁面液膜は発生しない。この場合の気液間の物質の移動はプール水の気液界面を介しての分子拡散での移行が考えられる。物質の拡散に関する基本法則である Fick の法則では、溶解速度（液相濃度の増加速度）は境界膜厚さ、溶媒中の溶質の拡散係数等で表される。以上の移行メカニズムの変化に対応した移行モデルを表 4.1 のように整理できる。

表 4.1 事故事象の進展と化学種の気液間の移動メカニズムの変化

	沸騰期	乾固期
壁面近傍の気相	ミスト気液平衡モデル	移行無し
壁面	分子拡散移行モデル	移行無し
プール水液面	分子拡散移行モデル	分子拡散移行モデル

4.2 凝縮に伴う生成ミストへの気液平衡移行のモデル化⁴⁾（ミスト気液平衡モデル）

凝縮液量は、ミスト及びプール水の和であると仮定し、その体積を V_{cond} [m³] とする。SCHERN で提案する RuO₄ 以外の化学種の液相への溶解のモデルでは、壁面近傍で発生するミストにおいて瞬時に平衡状態となる溶解を仮定し、各化学種が平衡状態で溶解したミストが壁面液膜水及びプール水へ追加されることとする。このため単位時間当たりの各化学種の気相から液相水への移行量は、液相水 : V_{cond} の単位時間当たりの増加分に溶解する量としている。化学種 X のヘンリイ一定数 : h_X [kmol/m³/kPa] に、分圧 : p_X [kPa] を乗ずれば液相中の平衡状態での化学種 X の濃度が求まるが、気液各相の濃度の経時変化を解析するためには、単位時間当たりの気液間の移行量が必要となる。蒸気凝縮に伴い単位時間に発生する液相水に溶解する化学種 X の移行速度 : S_X [kmol/s] は、(4.1)式で

表される。

$$S_X = h_X p_X \frac{d}{dt} V_{\text{cond}} = h_X \frac{[X(g)]}{M_{\text{tot}}} p_{\text{tot}} \frac{d}{dt} V_{\text{cond}} \quad (4.1)$$

ここで、気相部全圧： p_{tot} [kPa]、気相部全モル濃度： M_{tot} [kmol/m³]及び化学種 X の濃度： $X(g)$ [kmol/m³]である。(4.1)式で得られる値は、気相から液相への単位時間当たりの移動量 [kmol/s]である。一方、SCHERN では気液各相での各化学種の存在量は、濃度[kmol/m³]で表すため、気相から液相への移動に伴う気相部の濃度減少及び液相部（凝縮液）の濃度増加に換算するには、それぞれの体積で除する必要がある。

4.3 分子拡散による移行のモデル化⁴⁾（分子拡散モデル）

乾固後に蒸気の凝縮が生じない状態では、RuO₄以外の化学種についてプール水の気液界面を介した化学種の移動が主体と考えられる。SCHERN では、このような現象を Whitman の薄膜理論¹⁴⁾による気液界面での物質の移動を仮定してモデル化している。気液界面における化学物質の移動を分子拡散と考えると、化学種の移動量束： N [kmol/m²·s] は Fick の第一法則に基づき (4.2)式で表される。

$$N = (C_{aq} - C_g K_{gaaq}) / (1/k_{aq} + K_{gaaq}/k_g) \quad (4.2)$$

ここで、 C_g は気相中の化学種の濃度 [kmol/m³]、 C_{aq} は液相中の化学種の濃度 [kmol/m³]、 k_g は気相中の化学種の質量移動係数 [m/s]、 k_{aq} は液相中の化学種の質量移動係数 [m/s]である。ここで、 K_{gaaq} は(4.3)式で表される気液分配係数であり、 H ：ヘンリイ一定数 [kmol/m³·kPa] から(4.4)式で求まる値である。ここで、 T ：両相温度 [K]、 R ：気体定数 (8.314 [Pa·m³ / K·mol]) である。

$$C_{saq} = K_{gaaq} C_{sg} \quad (4.3)$$

$$K_{gaaq} = H \times RT \quad (4.4)$$

文献 6) では気相及び液相中の物質の拡散係数は、それぞれ概ね 10⁻⁵ [m²/s]、10⁻⁹ [m²/s]程度の値が示されている。本解析では、気相境界層及び液相境界層厚さを、それぞれ 10⁻² [m]、10⁻⁵ [m]と仮定（根拠はない）し、SCHERN で扱うすべて化学種の k_g 及び k_{aq} を、それぞれ 10⁻³ [m/s]、10⁻⁴ [m/s]としている。

4.4 Ru の凝縮に伴う移行のモデル化（Ru 凝縮水移行モデル）

文献 13) には、ガラス管内で RuO₄ を含む硝酸-水混合蒸気の凝縮に伴う凝縮液への移行量を調べる実験¹⁵⁾で取得したデータの分析結果に基づき、(4.5)式に示す RuO₄ の物質移行係数に係る相関式が提案され、実規模施設への適用可能性についても考察されている。相関式では、Ru O₄ の物質移行係数： Mtc_{Ru} [m/s] は、単位面積当たりの蒸気凝縮速度： $Vd_{\text{cond-pa}}$ [m³/s·m²] 及び単位体積当たり

の供給蒸気体積流量 : Fv_{stm-pa} [m³/s・m³] を用いて表される。 Mtc_{Ru} は、実験の測定値から求めた凝縮水への Ru 移行速度 [mol/s] を気相部での Ru 濃度 [kmol/m³] 及び気液界面の面積 [m²] で除した値で定義している。 Mtc_{Ru} に気相部での Ru 濃度及び気液界面の面積を乗じて Ru 移行速度 [kmol/s] に換算できる。

$$Mtc_{Ru} = 7.333 \times 10^9 \times (Vd_{cond-pa})^{1.788} \times (Fv_{stm-pa}/2.154 \times 10^{-3})^{-3.233} \quad (4.5)$$

(4.5)式のもとにしている実験では、RuO₄ の搬送気体は気化した硝酸一水混合蒸気と空気であり、NO_x を含まないため、亜硝酸の発生はないと推察される。よって同実験での RuO₄ の液相水への移行は凝縮に伴う移行及び分子拡散による物理的な吸収を含むが、化学吸収の寄与はないと考える。

4.5 化学吸収モデル及び物理吸収モデルの SCHERN への組込み

新たな移行モデルの組込みは、4.4 節に示す Ru の気相から液相への移行を扱うプログラム部分の拡張で実装した。付録 A に示す化学吸収が顕在する閾値 (液相中の HNO₂ 濃度及び液相温度) の and 条件で化学吸収か物理的な移行を判定し、物理的な移行は、入力でのオプション選択により決定するようにプログラムした。液相中での(2.2)式に示す化学反応の反応速度定数は、同じく 2 章で示す k_2 に等しいとした。

4.6 SCHERN の既存の移行モデルと新移行モデルとの比較

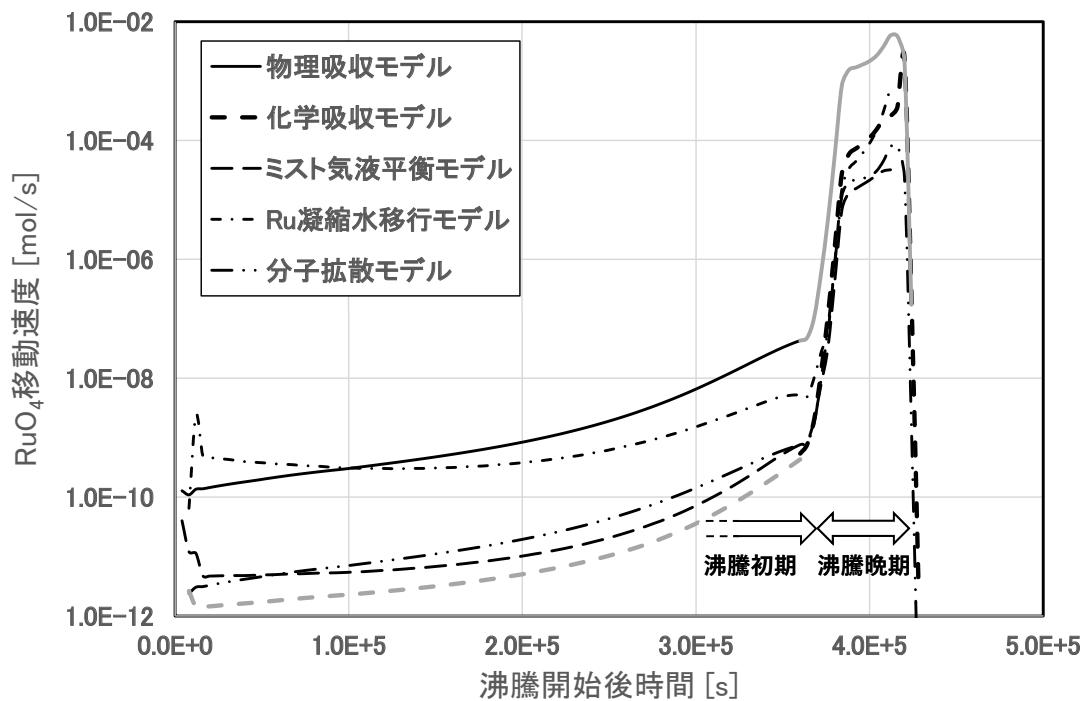
図 4.1 には、適用条件を考慮せずに上述の 3 つの既存の移行モデル及び、第 2 章に示す 2 つの新移行モデルにより、廃ガス処理セルの事故時条件¹¹⁾ で計算した気液界面での RuO₄ の移行速度の結果の比較を示す。新たな移行モデルを用いた SCHERN の解析結果は 5 章で示す。

図 4.1 に示す RuO₄ の移行速度は、オーダー的には 2 つのグループに分かれる。Ru 凝縮水移行モデル及び物理吸収モデルのグループとそれ以外のグループに分かれる。それぞれのグループでは、ほぼ同程度の移行速度である。

Ru 凝縮水移行モデル及び物理吸収モデルは、異なる実験体系での Ru の気相への移行量を測定する実験結果から導出したモデル^{5), 13)} であり、沸騰初期の事故条件でほぼ同等の値になることは両モデルの妥当性を互いに傍証する結果となっていると思料される。

化学吸収モデル及び分子拡散モデルは、気液界面での物質の移動をモデル化している。前者は、液相中での HNO₂ により RuO₄ が Ru(NO)(NO₃)₃ に急速に変化する化学反応が駆動源となり液相への移行が促進される現象をモデル化している。一方、分子拡散モデルは、気液界面と通して、ヘンリイの法則に従い濃度の高い相から低い相への物質の移動が起こるとの考えに基づくモデルである。沸騰初期段階で両者の値がオーダーで同程度あるのは、偶然であり、前者は適用条件外である（このため灰色の破線で示す）こと、後者は、物質移行速度を決定する気液界面での境膜厚さを根拠のない仮定値を用いていることに起因していると考えられる。

沸騰晚期では、RuO₄ の発生が顕著となり、硝酸一水混合凝縮水が停留するプール水中には HNO₂ 濃度が上昇する。この期間では、物理吸収モデル（灰色の実線）は最も大きな値となるが適用条件外であるので比較のための参考値として示す。一方、化学吸収モデルは沸騰晚期において適用条件を満たす可能性があり、大きな移行速度を示す。

図 4.1 廃ガス処理セルの事故時条件での各モデルの RuO_4 の気液界面での移行速度

5. SCHERN の廃ガス処理セルでの解析結果

本章では、2.2 節に示した“化学吸収モデル”と 4.4 節で示した SCHERN にすでに組み込まれている“Ru 凝縮水移行モデル”を組み合わせたケース（付録で示すオプション 1）及び化学吸収モデル”と 2.1 節で示した新たに組み込んだ“物理吸収モデル”を組み合わせたケース（付録で示すオプション 2）の 2 ケースの解析結果を示す。解析では、化学吸収が発生する液相中の HNO_2 濃度の下限値を $1.0 \times 10^{-5} \text{ kmol/m}^3$ に設定している。

5.1 気相部での各化学種の変化

オプションの異なる 2 つの解析結果を比較すると、図 5.1、図 5.3 及び図 5.5 に示すように気相部の各化学種の濃度にはほとんど差がない。両オプションの解析結果の差異は、液相中の HNO_2 濃度が低く化学吸収が発生しない沸騰初期段階での物理的な RuO_4 の液相への移行量の差に起因する。図 5.6 に示すようにオプション 2 の物理吸収モデルによる液相への移行量が、オプション 1 の Ru 凝縮水移行モデルに比べて多いことにより、気相中の濃度は僅かに少ない。化学吸収の発生により、気相中の RuO_4 は急激に減少しほぼゼロになる。

乾固後の HNO_2 濃度の差異は、図 5.6 に示すようにオプション 2 のケースのほうが液相中の RuO_4 が多いことに因る。液相中の RuO_4 は HNO_2 と反応して $\text{Ru}(\text{NO})(\text{NO}_3)_3$ に変化するためより多くの HNO_2 が消費される。

5.2 液相部での各化学種の変化

液相部の各化学種の濃度の変化を、図 5.2、図 5.4 及び図 5.6 に示す。図 5.2 及び図 5.4 を比較すると RuO_4 及び $\text{Ru}(\text{NO})(\text{NO}_3)_3$ の変化は異なるが、他の化学種は同様の変化を示す。図 5.6 には、両オプションの解析結果のうち、 RuO_4 、 $\text{Ru}(\text{NO})(\text{NO}_3)_3$ 、 HNO_2 及び NO の変化を比較している。前節で述べたように沸騰期間では、オプション 2 の物理吸収のほうが液相中の RuO_4 が多い。沸騰晚期には液相中の HNO_2 濃度の増加に伴いほぼ乾固と同時に RuO_4 の化学吸収が始まり、液相中の RuO_4 と HNO_2 の反応により $\text{Ru}(\text{NO})(\text{NO}_3)_3$ が発生する。このタイミングで気相中の RuO_4 は急減するので液相中の RuO_4 は、乾固直前までの Ru 凝縮水移行あるいは物理吸収による移行である。乾固後では、オプション 2 のほうが液相中の RuO_4 が多いためこれと反応する HNO_2 が、オプション 1 に比べて減少の度合いが大きくなる。

5.3 RuO_4 の施設外への移行の可能性

前節で示したように RuO_4 の液相への移行は、液相中の HNO_2 の増加が乾固前後のタイミングで生じるため物理的な移行が支配的であり、化学吸収による液相移行への寄与はほぼない。図 4.1 に示すように沸騰晚期での気相中の RuO_4 の濃度での物理吸収及び化学吸収の速度を比較すると前者が 10 倍以上大きな値となる。沸騰晚期での気相中の RuO_4 が増大する期間における液相への移行量が下流区画へ移行する RuO_4 の量を左右する。図 5.6 に示すように現状での SCHERN の解析では、 HNO_2 の上昇は乾固前後で発生するが、化学吸収が顕在化する $1.0 \times 10^{-3} \text{ kmol/m}^3$ までは上昇しない。 HNO_2 に関する化学反応に係るモデルの改良、精緻化により、 RuO_4 が増大する沸騰晚期において

液相中の HNO_2 濃度が、化学吸収が顕在化する濃度まで上昇する結果になれば、下流区画への RuO_4 の移行が増加する結果となることが想定される。

上述のように RuO_4 の移行挙動には、液相中の HNO_2 濃度が重要な役割を果たす。SCHERN に組み込まれている化学反応を付録 B に示す。その中で液相中の HNO_2 の濃度の低下に影響する化学反応を(5.1) 式¹⁶⁾ に示す。 HNO_2 は HNO_3 に変化し、 NO が気相に瞬時に移行する反応により、 HNO_2 が減少する。プール水は水位が深くないのでこの反応は成立すると考える。



沸騰段階での温度上昇、気相中の HNO_3 の濃度の上昇に伴い、 NO_2 濃度が増加、液相中の HNO_2 から生成される気相に移行した NO が NO_2 変化し、再び液相に移行して HNO_2 に変化する循環によって液相中の HNO_2 の濃度が上昇すると考えられる。

付録 B に示す SCHERN で考慮するすべての反応が有機的に作用して液相中の HNO_2 の濃度が決まるため、考慮すべき化学反応の充足性、そこで用いる反応速度及び平衡定数の妥当性の検証が必要である。また、気液間の各化学種の移動をヘンリーの法則に基づく気液平衡状態の凝縮水（硝酸水溶液のミスト）への移行と仮定することの妥当性、そこで用いる水に対するヘンリイー定数の硝酸水溶液に用いることの有効性の確認も今後の課題である。

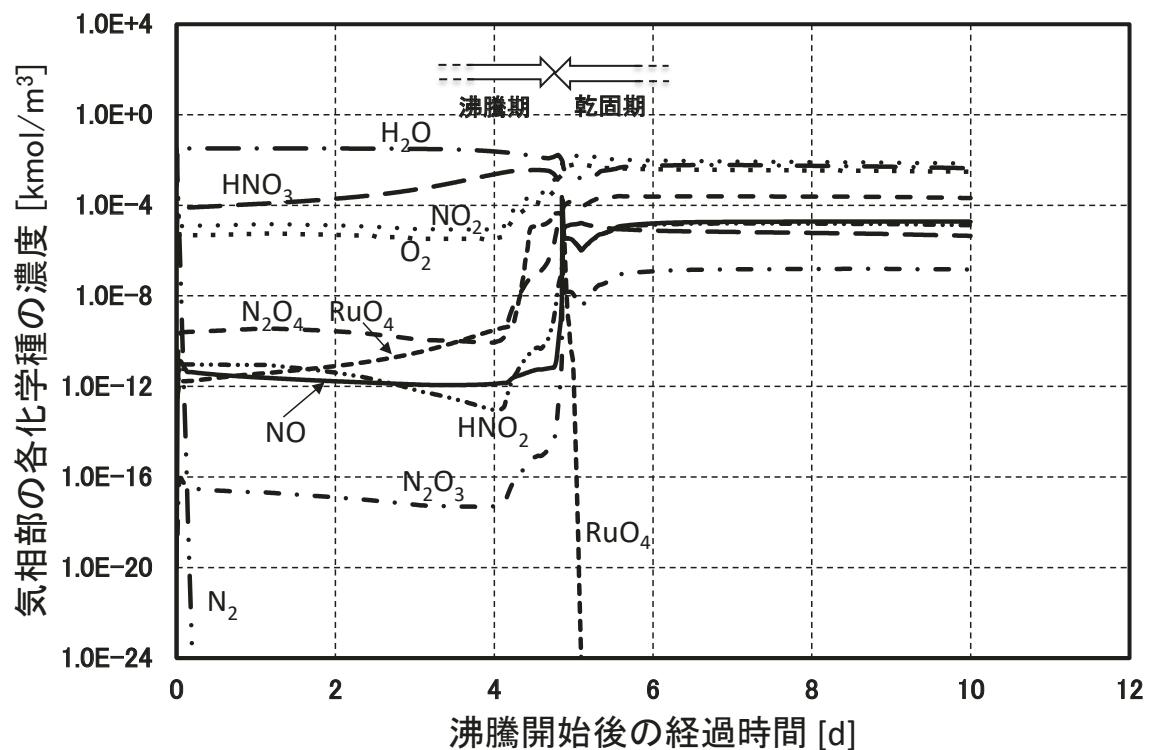


図 5.1 化学吸収モデル+Ru 凝縮水移行モデルでの廃ガス処理セル気相部の各化学種の濃度

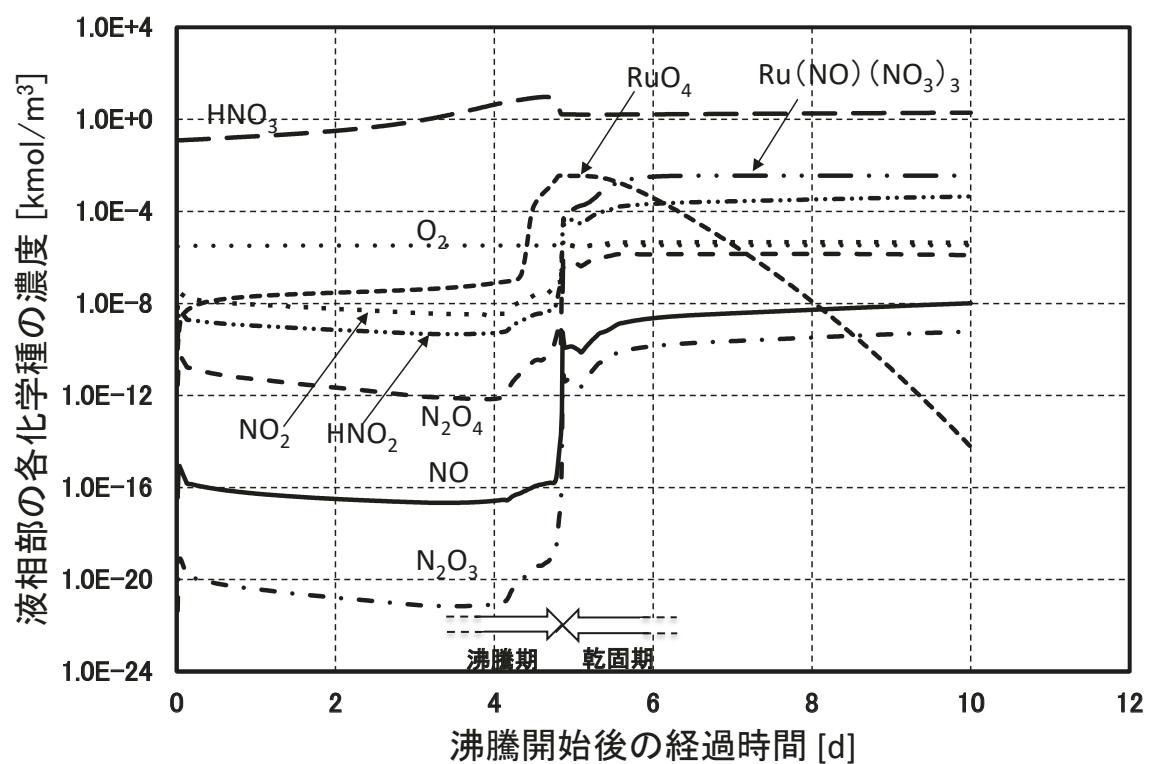


図 5.2 化学吸収モデル+Ru 凝縮水移行モデルでの廃ガス処理セル液相部の各化学種の濃度

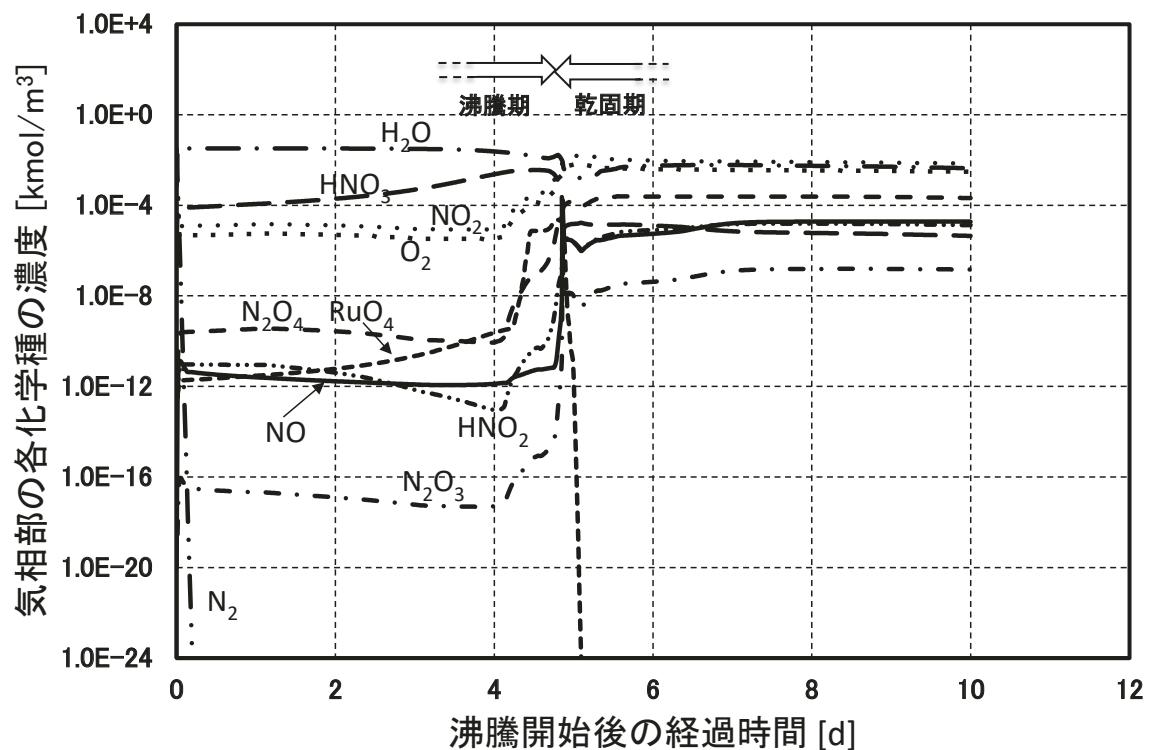


図 5.3 化学吸収モデル+物理吸収モデルでの廃ガス処理セル気相部の各化学種の濃度

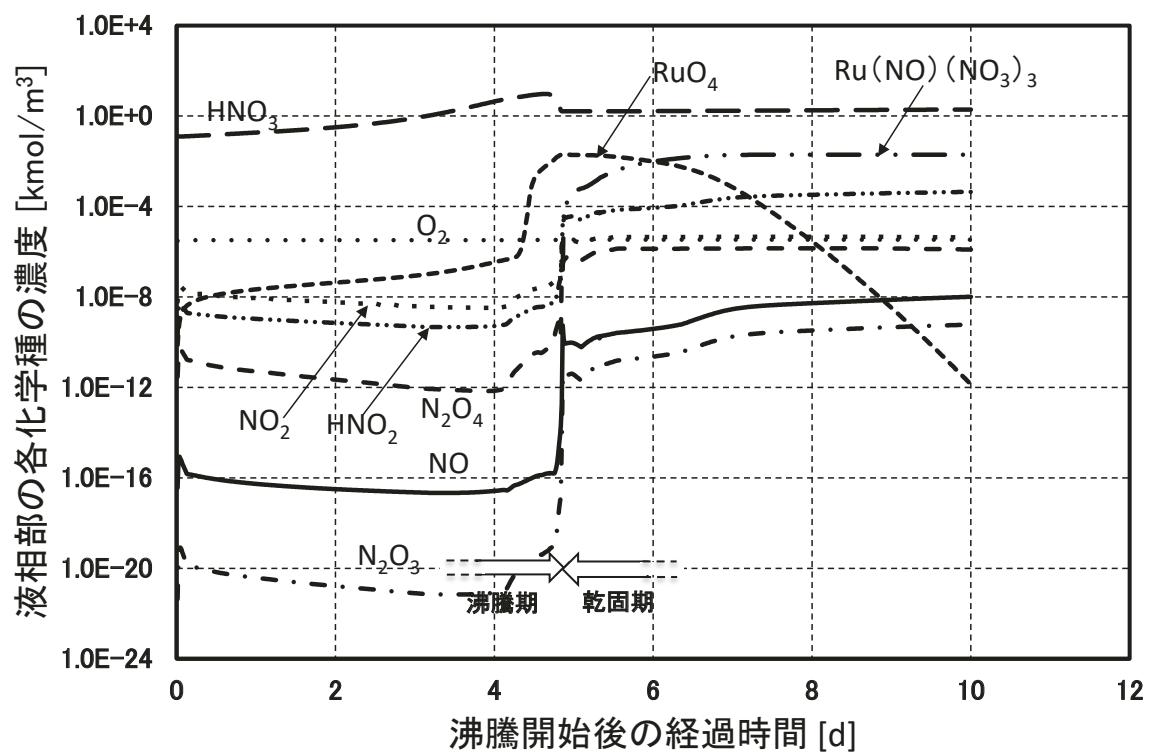


図 5.4 化学吸収モデル+物理吸収モデルでの廃ガス処理セル液相部の各化学種の濃度

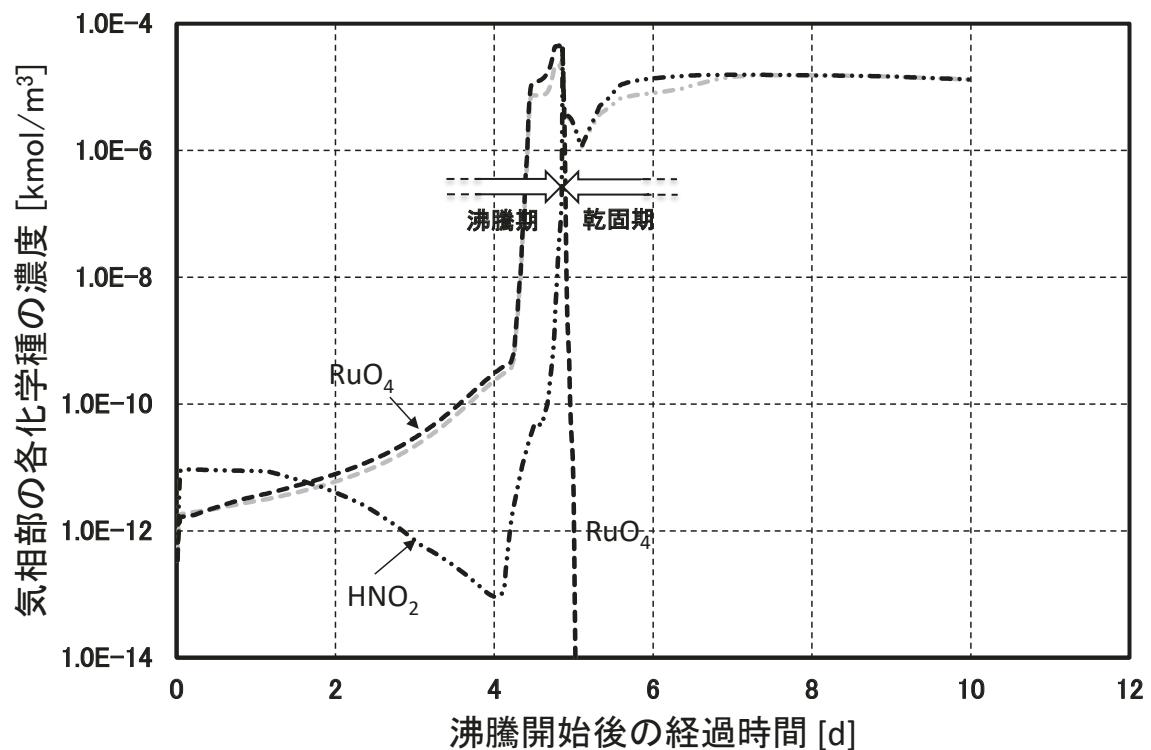


図 5.5 廃ガス処理セル気相中の RuO_4 及び HNO_2 の濃度の比較
(黒線: オプション 1、灰色線: オプション 2)

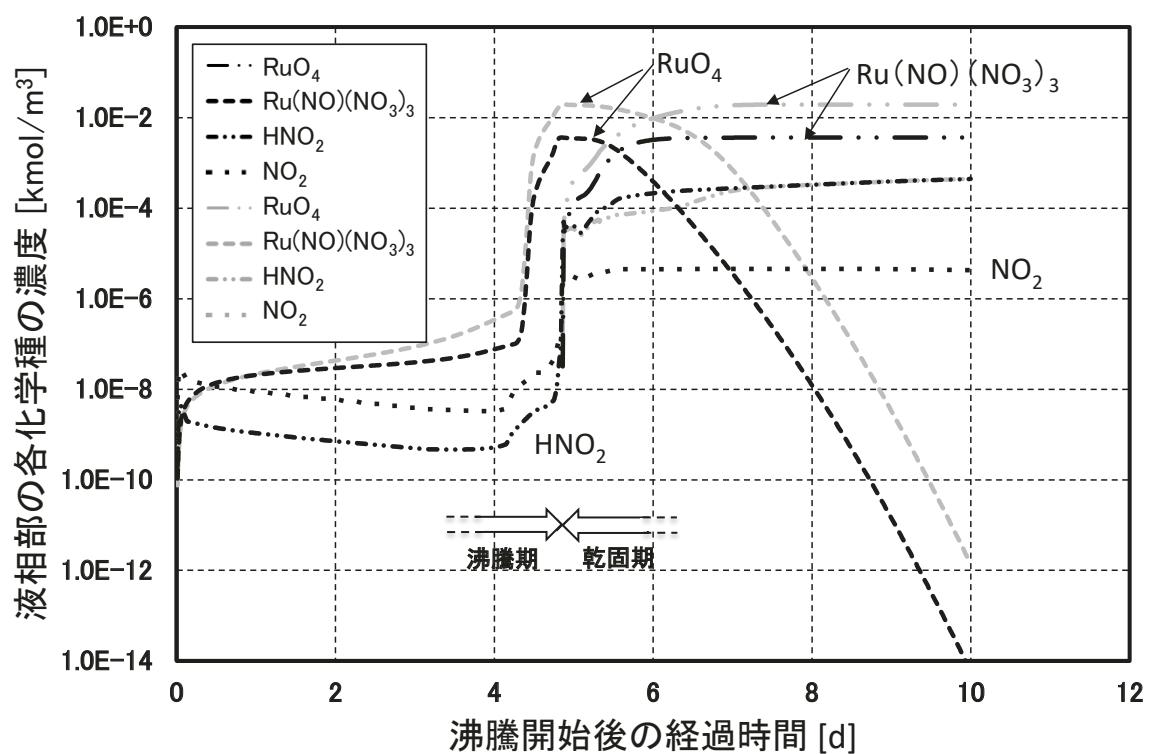


図 5.6 廃ガス処理セル液相中の RuO_4 、 $\text{Ru}(\text{NO})(\text{NO}_3)_3$ 及び HNO_2 の濃度の比較
(黒線: オプション 1、灰色線: オプション 2)

6. まとめ

再処理施設の過酷事故の一つである高レベル放射性廃液貯槽の冷却機能喪失による蒸発乾固事故において発生するルテニウムの揮発性の化学種 (RuO_4) が施設内を移行する過程で移行経路に停留する凝縮水への移行により施設外への移行の抑制が期待される。この現象の解析的な模擬に供するための実験に基づく新たな化学吸収及び物理吸収モデルが提案されている。本報では、SCHERNの解析性能の向上の一環として、これらの吸収モデルを組込み、施設内を移行する RuO_4 の気液各相での挙動の解析を試行した。その結果、次の結論を得た。

- ・ 現状のSCHERNで考慮する化学反応により模擬される液相中の HNO_2 濃度は、化学吸収が顕在化する濃度まで増加しない結果となり、化学反応が顕在化する閾値を $1.0 \times 10^{-5} \text{ kmol/m}^3$ に設定して解析した。
- ・ 解析結果では、 RuO_4 の放出が急激に増加する沸騰晚期では、液相中の HNO_2 も急増する傾向が見られ、その濃度変化がその後の RuO_4 の移行挙動に大きく影響することを確認した。
- ・ この結果から硝酸一水混合蒸気の凝縮に伴う気液各相の HNO_2 の化学的挙動の解析精度の向上が課題の一つである。
- ・ SCHERN で考慮するすべての反応が有機的に作用して液相中の HNO_2 の濃度が決まるため、考慮すべき化学反応の充足性、そこで用いる反応速度及び平衡定数の妥当性の検証が必要である。
- ・ 気液間の各化学種の移動をヘンリーの法則に基づく気液平衡状態の凝縮水(硝酸水溶液のミスト)への移行と仮定することの妥当性、そこで用いる水に対するヘンリイ一定数の硝酸水溶液に用いることの有効性の確認も今後の課題である。

参考文献

- 1) 「再処理施設における放射性物質移行挙動に係る研究」運営管理グループ, "再処理施設における放射性物質移行挙動に係る研究報告書," 2014.
- 2) T. Kato et al., "Study on volatilization mechanism of ruthenium tetroxide from nitrosyl ruthenium nitrate by using mass spectrometer," J. Nucl. Mater., 479, pp. 123-129, 2016.
- 3) 日本原子力研究開発機構, "平成 29 年度原子力規制庁委託成果報告書 再処理施設内の放射性物質の移行挙動に係る試験等," 平成 30 年 3 月, 2018, <https://www.nsr.go.jp/data/000256373.pdf>, (閲覧 : 2019/02/07) .
- 4) 吉田 一雄, 玉置 等史, 桜山 美奈, "SCHERN-V2 : 再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故での化学的挙動解析プログラム解説書," JAEA-Data/Code 2021-008, 2021, 35p.
- 5) 日本原子力研究開発機構, "令和 5 年度原子力規制庁委託成果報告書 再処理施設内の蒸発乾固事象に関する試験等," 令和 6 年 3 月, 2024, <https://www.nsr.go.jp/data/000473695.pdf>, (閲覧 : 2025/03/19) .
- 6) 大江 修造, 「物性推算法」, データブック出版社, 2011.
- 7) NIST Chemistry WebBook, SRD 69, <https://webbook.nist.gov/cgi/cbook.cgi?ID=C7732185&Mask=4> (閲覧 : 2025/03/19) .
- 8) Anton Paar, Viscosity of Nitric Acid, <https://wikianton-paar.com/en/nitric-acid/> (閲覧 : 2025/03/19) .
- 9) Physical Properties of Nitric Acid, https://nitrogen.atomistry.com/physical_properties_nitric_acid.html (閲覧 : 2025/03/19) .
- 10) Lab BRAINS, 純水の粘度, 動粘度および密度, <https://lab-brains.as-1.co.jp/for-biz/2021/07/38081/> (閲覧 : 2025/03/19) .
- 11) 吉田 一雄, 桜山 美奈, 玉置 等史, "再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故の MELCOR を用いた施設内の熱流動解析モデルの検証," JAEA-Research 2025-003, 2025, 24p.
- 12) A. Sasahira, et al. "Formation Rate and Gas-Liquid Equilibrium of RuO₄," J. Nucl. Sci. Technol., 25(5), pp. 472-478 ,1988.
- 13) 吉田 一雄, 玉置 等史, 桜山 美奈, "再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故での NO_x の化学挙動を考慮した Ru の移行挙動解析," JAEA-Research 2021-005, 2021, 25p.
- 14) W.G. Whitman, "A preliminary experimental confirmation of the two-film theory of gas adsorption," Chem. Metall. Eng. 29, pp. 146-148, 1923.
- 15) 日本原子力研究開発機構, "平成 31 年度原子力規制庁委託成果報告書 再処理施設内の放射性物質の移行挙動に係る試験等," 令和 2 年 3 月, 2020, <https://www.nsr.go.jp/data/000319224.pdf>, (閲覧 : 2025/03/31) .
- 16) M.M. Wendel and R.L. Pigford, "Kinetics of Nitrogen Tetroxide Absorption in Water," AIChE J. Vol.4, No.3, pp. 249-256, 1958.
- 17) J.A. Patwardhan, J. B. Joshi, "Unified Model for NO_x Absorption in Aqueous Alkaline and Dilute Acidic Solutions," AIChE J., Vol. 49, No. 11, pp.2728-2748, 2003.
- 18) K.G. Loutet et al., "Experimental Measurements and Mass Transfer/Reaction Modeling for an Industrial NO_x Absorption Process," Ind. Eng. Chem. Res., Vol.50, No.4, pp.2192-2203, 2011.

付録 A SCHERN の入力

本研究での新たな気液界面での RuO₄の移行モデルの RCHERN への組込みに伴い、入力データの追加及び、計算性能の向上のための入力を変更した。付図 A.1 及び付図 A.2 にそれぞれ、入力ファイルの INIT.dat 及び INFLOW.dat のサンプルを示すとともに、INIT.dat において追加、変更した入力を説明する。

付 1 入力ファイルの INIT.dat の変更項目

a) タイムステップ制御に係る入力の変更

付図 A.1 の 17 及び 20~28 行がタイムステップ制御に係る入力である。計算開始直後のタイムステップは、17 行の “DTLN0” である。その後のタイムステップの制御は、20~28 行の例で示すように制御できる。付図 A.1 の例は、8 つの区切りでタイムステップを制御する例である。各データは、次の通りである。

第 1 入力：任意の 10 文字の識別符

第 2 入力：新たなタイムステップの始まりの時：TIMES [sec]

第 3 入力：新たなタイムステップ：DLT [sec]

第 4 入力：前 DLT から現 DLT への移行期間：DTRN [sec]

DTRN が正の値の場合、タイムステップの変化に伴う解析結果の計算上の不連続を回避するために前 DLT から現 DLT に DTRN の時間をかけて徐々に変化する。DTRN がゼロの場合は、前 DLT から現 DLT に即座に移行する。

b) RuO₄の気液間の移行モデルに係る入力の追加

付図 A.1 の 47~56 行に標記に係る入力を示す。最初に化学吸収モデルの次の 2 つのパラメータ（49 行）を入力する。

k_G : 気相物質移動係数 [mol/m²·s·Pa]

k_2 : 反応速度定数 [m³/mol·s]

次に物理的な移行モデル及び化学吸収モデルを組み合わせた 2 つのオプション（54 行）を選択する。

オプション 1 : 化学吸収モデル+Ru 凝縮水移行モデル

オプション 2 : 化学吸収モデル+物理吸収モデル

オプション 2 を選択した場合は、物理吸収モデルの kL1 及び kL2 のパラメータを（56 行）入力する。

```

1 /XIN-TYPE↓          10 . . . . . 120 . . . . . 30 . . . . . 40 . . . . . 50 . . . . . 60 . . . . . 70 . . . . . 80 . . . . . 90 . . . . . 100 . . . . . 110 . . . . .
2 IXTYP   2           /1:Gas phase inflow 下で指定 2:ファイルよりタイムステップ毎に読み込む↓
3 ↓
4 /DB2SUB INPUT DATA↓
5 ITASK   1↓
6 ISTATE  1↓
7 IOPT    0↓
8 ITOL   2↓
9 T      0.000D+00↓
10 TINI   1.660D-03↓
11 TOUT   0.000D+00↓
12 RTOL   1.0000D-7↓
13 ATOL   1.0000D-16↓
14 ↓
15 /TIME STEP SETTING2↓
16 TEND   8.6400d+5           /計算終了時刻 ↓
17 DTLNO  1.00000d-1           /計算時間幅DTL指定 ↓
18 TSTEP   1.00000d+3           /出力間隔 ↓
19 WSTEP   1.00000E+3           /FLOWout出力間隔 ↓
20 NTINT   8↓
21 TINT1  4.000d+5           /TIMES DLT DTRN↓
22 TINT2  4.100d+5           /TIMES: time stepの区切りの始まりの時刻[sec]↓
23 TINT3  4.180d+5           /DLT :time step [sec]↓
24 TINT4  4.200d+5           /DTRN :DTL transition period [sec]↓
25 TINT5  4.300d+5           ↓
26 TINT6  5.000d+5           ↓
27 TINT7  6.000d+5           ↓
28 TINT8  7.000d+5           ↓
29 ↓
30 /HENRY↓
31 HENNO   HEN02     HEN02       HEN203     HEN204     HENH02     HENHN03     HENRU04     HENRU02↓
32 1.84d-5  1.30d-5  1.18d-4  5.98d-3  1.38d-2  4.80d-1  2.10d+3  2.53d-3  0.00d+0↓
33 EXPNO   EXP02     EXPN02     EXPN203   EXPN204   EXPHNO2   EXPHN03   EXPRU04   EXPRU02↓
34 1500.0   1700.0  2500.0  0.000  0.000  4800.0  8700.0  6420.0  0000.0↓
35 ↓
36 /FEX-JEX Initial value setting↓
37 TEMP    333.15           /初期温度[K] ↓
38 rgasgen 8.314472          /気体定数 ↓
39 vtube   1.406D+2          /VOL体積[m^3] ↓
40 AFlow   1.435D+1          /流路面積 ↓
41 Surface 1.777D+2          /表面積[M^2] ↓
42 SurfA   1.435D+1          /表面積[M^2] ↓
43 PRESSER 101.3255          /圧力 [kPa] ↓
44 DVconF  0.01↓
45 RC11F   1.0↓
46 ↓
47 /Ru04 Chemical Absorption Model↓
48 kG      K2↓
49 1.10E-6  2.14E-1↓
50 BDHN02(kmol/m3) BDTMP(K) /適用条件↓
51 1.0E-5   308.15↓
52 ↓
53 /Ru04 Absorb OPTION      /Ru04移行モデル選択OP(=1:Ru凝縮水移行モデル,=2:物理吸収モデル)↓
54 NOPRu  2                  /=1のとき、次の2行は不要 ↓
55 KL1    KL2↓
56 -1.44E-5  1.85E-3↓
57 ↓
58 /initial values (初期濃度) ↓
59 Y(GAS)No  O2      NO2      N2O4      N2O3      H2O      HNO2      HNO3      N2      RU04      RU02↓
60 1.000E-20 7.682E-03 0.000E+00 0.000E+00 0.000E+00 0.000E+00 0.000E+00 0.000E+00 3.073E-02 0.000E-02 0.000E-02↓
61 Y(lia)adN02 adN204 adN204 adN203 adHNO2 adHNO3 adO2 adH2O adRU04 adRU02↓
62 0.000E+00 0.000E+00↓
63 ↓
64 /Gas phase inflow XIN(1-8) ↓
65 NO      O2      NO2      N2O4      N2O3      H2O      HNO3      HNO2      N2      RU04      RU02↓
66 0.000d-00 2.760d-06 1.710d-07 0.000d+00 0.000d+00 1.710d-05 4.210d-05 0.000d+00 9.670d-06 0.000d+00 0.000d+00↓
67 ↓
68 /TIME      AQFLOW      VCOND      Vdcond      TEMP      Vstn      TMPLIQ      VELVAPCV      VAPOR↓
69 data No  97↓
70 0.0000E+00 0.0000E+00 0.0000E+00 0.0000E+00 3.0000E+02 1.4060E+02 3.0000E+02 0.0000E+00 1.7931E+00↓
71 1.0625E+00 0.0000E+00 3.5000E-01 6.0000E-05 3.7545E+02 1.3931E+02 3.7094E+02 2.9688E-02 8.2639E+01↓
72 1.0625E+04 0.0000E+00 1.2798E+00 2.7613E-05 3.7545E+02 1.3931E+02 3.7094E+02 2.9688E-02 8.2639E+01↓
73 1.5825E+04 0.0000E+00 1.4234E+00 2.7613E-05 3.7545E+02 1.3917E+02 3.7116E+02 2.9788E-02 8.2555E+01↓
74 2.1025E+04 0.0000E+00 1.5584E+00 2.5937E-05 3.7547E+02 1.3904E+02 3.7133E+02 2.9861E-02 8.2472E+01↓
75 2.6225E+04 0.0000E+00 1.6861E+00 2.4560E-05 3.7548E+02 1.3891E+02 3.7146E+02 2.9955E-02 8.2393E+01↓
76 3.1425E+04 0.0000E+00 1.8074E+00 2.3317E-05 3.7549E+02 1.3879E+02 3.7158E+02 2.9998E-02 8.2319E+01↓
77 3.6625E+04 0.0000E+00 1.9229E+00 2.2210E-05 3.7550E+02 1.3867E+02 3.7167E+02 3.0068E-02 8.2248E+01↓
78 4.1825E+04 0.0000E+00 2.0332E+00 2.1221E-05 3.7552E+02 1.3856E+02 3.7175E+02 3.0094E-02 8.2180E+01↓
79 4.7025E+04 0.0000E+00 2.1389E+00 2.0323E-05 3.7553E+02 1.3846E+02 3.7182E+02 3.0134E-02 8.2115E+01↓
80 5.2225E+04 0.0000E+00 2.2404E+00 1.9513E-05 3.7555E+02 1.3835E+02 3.7188E+02 3.0166E-02 8.2050E+01↓
81 5.7425E+04 0.0000E+00 2.3380E+00 1.8765E-05 3.7557E+02 1.3826E+02 3.7193E+02 3.0232E-02 8.1987E+01↓
82 6.2625E+04 0.0000E+00 2.4320E+00 1.8081E-05 3.7560E+02 1.3816E+02 3.7197E+02 3.0266E-02 8.1924E+01↓
83 6.7825E+04 0.0000E+00 2.5227E+00 1.7440E-05 3.7562E+02 1.3807E+02 3.7200E+02 3.0278E-02 8.1862E+01↓
84 7.3025E+04 0.0000E+00 2.6103E+00 1.6856E-05 3.7565E+02 1.3798E+02 3.7203E+02 3.0335E-02 8.1802E+01↓
85 7.8225E+04 0.0000E+00 2.6952E+00 1.6315E-05 3.7568E+02 1.3790E+02 3.7206E+02 3.0348E-02 8.1743E+01↓
86 8.3425E+04 0.0000E+00 2.7774E+00 1.5806E-05 3.7571E+02 1.3782E+02 3.7208E+02 3.0389E-02 8.1686E+01↓
87 8.8625E+04 0.0000E+00 2.8571E+00 1.5331E-05 3.7574E+02 1.3774E+02 3.7211E+02 3.0424E-02 8.1630E+01↓
88 9.3825E+04 0.0000E+00 2.9345E+00 1.4985E-05 3.7577E+02 1.3766E+02 3.7213E+02 3.0425E-02 8.1576E+01↓
89 9.9025E+04 0.0000E+00 3.0097E+00 1.4467E-05 3.7580E+02 1.3759E+02 3.7215E+02 3.0472E-02 8.1524E+01↓
90 1.0423E+05 0.0000E+00 3.0829E+00 1.4072E-05 3.7584E+02 1.3751E+02 3.7217E+02 3.0484E-02 8.1472E+01↓

```

付図 A.1 サンプル入力 (INIT.dat) (1/2)

	10	20	30	40	50	60	70	80	90	100	110
1	1.0943E+05	0.0000E+00	3.1541E+00	1.3698E-05	3.7588E+02	1.3744E+02	3.7218E+02	3.0487E-02	8.1421E+01		
2	1.1463E+05	0.0000E+00	3.2235E+00	1.3346E-05	3.7592E+02	1.3737E+02	3.7220E+02	3.0522E-02	8.1371E+01		
3	1.1983E+05	0.0000E+00	3.2911E+00	1.3006E-05	3.7596E+02	1.3730E+02	3.7221E+02	3.0510E-02	8.1323E+01		
4	1.2503E+05	0.0000E+00	3.3571E+00	1.2688E-05	3.7600E+02	1.3724E+02	3.7223E+02	3.0579E-02	8.1275E+01		
5	1.3023E+05	0.0000E+00	3.4215E+00	1.2388E-05	3.7603E+02	1.3717E+02	3.7224E+02	3.0596E-02	8.1228E+01		
6	1.3543E+05	0.0000E+00	3.4845E+00	1.2106E-05	3.7607E+02	1.3711E+02	3.7225E+02	3.0580E-02	8.1183E+01		
7	1.4063E+05	0.0000E+00	3.5460E+00	1.1833E-05	3.7612E+02	1.3705E+02	3.7227E+02	3.0615E-02	8.1136E+01		
8	1.4583E+05	0.0000E+00	3.6062E+00	1.1579E-05	3.7616E+02	1.3699E+02	3.7228E+02	3.0639E-02	8.1091E+01		
9	1.5103E+05	0.0000E+00	3.6652E+00	1.1331E-05	3.7621E+02	1.3693E+02	3.7229E+02	3.0653E-02	8.1046E+01		
10	1.5623E+05	0.0000E+00	3.7229E+00	1.1100E-05	3.7625E+02	1.3687E+02	3.7230E+02	3.0634E-02	8.1002E+01		
11	1.6143E+05	0.0000E+00	3.7794E+00	1.0875E-05	3.7631E+02	1.3682E+02	3.7231E+02	3.0651E-02	8.0955E+01		
12	1.6663E+05	0.0000E+00	3.8348E+00	1.0658E-05	3.7638E+02	1.3676E+02	3.7232E+02	3.0668E-02	8.0907E+01		
13	1.7183E+05	0.0000E+00	3.8892E+00	1.0450E-05	3.7645E+02	1.3671E+02	3.7233E+02	3.0713E-02	8.0860E+01		
14	1.7703E+05	0.0000E+00	3.9425E+00	1.0250E-05	3.7652E+02	1.3665E+02	3.7234E+02	3.0721E-02	8.0812E+01		
15	1.8223E+05	0.0000E+00	3.9948E+00	1.0062E-05	3.7659E+02	1.3660E+02	3.7235E+02	3.0709E-02	8.0767E+01		
16	1.8743E+05	0.0000E+00	4.0462E+00	9.8769E-06	3.7666E+02	1.3655E+02	3.7236E+02	3.0741E-02	8.0721E+01		
17	1.9263E+05	0.0000E+00	4.0966E+00	9.7000E-06	3.7672E+02	1.3650E+02	3.7237E+02	3.0738E-02	8.0677E+01		
18	1.9783E+05	0.0000E+00	4.1461E+00	9.5269E-06	3.7680E+02	1.3645E+02	3.7238E+02	3.0768E-02	8.0631E+01		
19	2.0303E+05	0.0000E+00	4.1948E+00	9.3635E-06	3.7688E+02	1.3640E+02	3.7239E+02	3.0789E-02	8.0583E+01		
20	2.0823E+05	0.0000E+00	4.2427E+00	9.2038E-06	3.7700E+02	1.3635E+02	3.7239E+02	3.0774E-02	8.0530E+01		
21	2.1343E+05	0.0000E+00	4.2897E+00	9.0481E-06	3.7711E+02	1.3631E+02	3.7239E+02	3.0809E-02	8.0478E+01		
22	2.1863E+05	0.0000E+00	4.3360E+00	8.8904E-06	3.7722E+02	1.3626E+02	3.7240E+02	3.0841E-02	8.0427E+01		
23	2.2383E+05	0.0000E+00	4.3814E+00	8.7442E-06	3.7733E+02	1.3621E+02	3.7241E+02	3.0852E-02	8.0375E+01		
24	2.2903E+05	0.0000E+00	4.4262E+00	8.6000E-06	3.7744E+02	1.3617E+02	3.7242E+02	3.0845E-02	8.0325E+01		
25	2.3423E+05	0.0000E+00	4.4701E+00	8.4577E-06	3.7756E+02	1.3613E+02	3.7242E+02	3.0869E-02	8.0272E+01		
26	2.3943E+05	0.0000E+00	4.5134E+00	8.3250E-06	3.7769E+02	1.3608E+02	3.7243E+02	3.0883E-02	8.0218E+01		
27	2.4463E+05	0.0000E+00	4.5561E+00	8.1962E-06	3.7783E+02	1.3604E+02	3.7243E+02	3.0878E-02	8.0165E+01		
28	2.4983E+05	0.0000E+00	4.5980E+00	8.0692E-06	3.7795E+02	1.3600E+02	3.7244E+02	3.0917E-02	8.0112E+01		
29	2.5503E+05	0.0000E+00	4.6394E+00	7.9519E-06	3.7811E+02	1.3596E+02	3.7244E+02	3.0902E-02	8.0054E+01		
30	2.6023E+05	0.0000E+00	4.6801E+00	7.8423E-06	3.7826E+02	1.3592E+02	3.7245E+02	3.0925E-02	7.9996E+01		
31	2.6543E+05	0.0000E+00	4.7203E+00	7.7173E-06	3.7849E+02	1.3588E+02	3.7245E+02	3.0970E-02	7.9922E+01		
32	2.7063E+05	0.0000E+00	4.7597E+00	7.5885E-06	3.7869E+02	1.3584E+02	3.7246E+02	3.0990E-02	7.9852E+01		
33	2.7583E+05	0.0000E+00	4.7988E+00	7.4654E-06	3.7892E+02	1.3580E+02	3.7246E+02	3.1032E-02	7.9777E+01		
34	2.8103E+05	0.0000E+00	4.8367E+00	7.3423E-06	3.7917E+02	1.3576E+02	3.7246E+02	3.1007E-02	7.9698E+01		
35	2.8623E+05	0.0000E+00	4.8744E+00	7.2423E-06	3.7944E+02	1.3572E+02	3.7246E+02	3.1069E-02	7.9615E+01		
36	2.9143E+05	0.0000E+00	4.9114E+00	7.1231E-06	3.7973E+02	1.3568E+02	3.7246E+02	3.1115E-02	7.9530E+01		
37	2.9663E+05	0.0000E+00	4.9480E+00	7.0346E-06	3.8003E+02	1.3565E+02	3.7246E+02	3.1138E-02	7.9440E+01		
38	3.0183E+05	0.0000E+00	4.9841E+00	6.9423E-06	3.8037E+02	1.3561E+02	3.7246E+02	3.1185E-02	7.9344E+01		
39	3.0703E+05	0.0000E+00	5.0197E+00	6.8462E-06	3.8078E+02	1.3558E+02	3.7245E+02	3.1241E-02	7.9231E+01		
40	3.1223E+05	0.0000E+00	5.0548E+00	6.7423E-06	3.8123E+02	1.3554E+02	3.7244E+02	3.1262E-02	7.9111E+01		
41	3.1743E+05	0.0000E+00	5.0894E+00	6.6500E-06	3.8171E+02	1.3551E+02	3.7244E+02	3.1332E-02	7.8993E+01		
42	3.2263E+05	0.0000E+00	5.1235E+00	6.5654E-06	3.8226E+02	1.3547E+02	3.7243E+02	3.1396E-02	7.8843E+01		
43	3.2783E+05	0.0000E+00	5.1573E+00	6.4942E-06	3.8284E+02	1.3544E+02	3.7241E+02	3.1490E-02	7.8696E+01		
44	3.3303E+05	0.0000E+00	5.1907E+00	6.4308E-06	3.8346E+02	1.3541E+02	3.7240E+02	3.1555E-02	7.8541E+01		
45	3.3823E+05	0.0000E+00	5.2239E+00	6.3808E-06	3.8412E+02	1.3537E+02	3.7238E+02	3.1642E-02	7.8378E+01		
46	3.4343E+05	0.0000E+00	5.2569E+00	6.3481E-06	3.8490E+02	1.3534E+02	3.7235E+02	3.1776E-02	7.8189E+01		
47	3.4863E+05	0.0000E+00	5.2897E+00	6.3000E-06	3.8569E+02	1.3531E+02	3.7233E+02	3.1908E-02	7.7995E+01		
48	3.5383E+05	0.0000E+00	5.3217E+00	6.1596E-06	3.8643E+02	1.3527E+02	3.7230E+02	3.2126E-02	7.7814E+01		
49	3.5903E+05	0.0000E+00	5.3527E+00	5.9673E-06	3.8725E+02	1.3524E+02	3.7228E+02	3.2342E-02	7.7569E+01		
50	3.7014E+05	0.0000E+00	5.4130E+00	5.4284E-06	3.8907E+02	1.3518E+02	3.7215E+02	3.3000E-02	7.6888E+01		
51	4.1504E+05	0.0000E+00	5.4952E+00	1.8308E-06	3.8034E+02	1.3511E+02	3.7021E+02	1.7848E-02	5.1377E+01		
52	4.2004E+05	0.0000E+00	5.3964E+00	-1.0000E-06	3.8632E+02	1.3520E+02	3.6489E+02	2.0905E-02	2.0309E+01		
53	4.3004E+05	0.0000E+00	5.1500E+00	-2.4640E-05	3.9924E+02	1.3545E+02	3.5287E+02	2.9657E-02	6.5866E+00		
54	4.4004E+05	0.0000E+00	4.8536E+00	-2.9639E-05	4.1322E+02	1.3575E+02	3.4545E+02	3.6130E-02	5.3209E+00		
55	4.6004E+05	0.0000E+00	4.6195E+00	-1.1706E-05	3.8069E+02	1.3598E+02	3.3973E+02	6.3348E-03	1.1847E+01		
56	4.8004E+05	0.0000E+00	4.5257E+00	-4.6910E-06	3.6938E+02	1.3607E+02	3.3811E+02	1.7373E-03	1.4936E+01		
57	5.0004E+05	0.0000E+00	4.4883E+00	-1.8680E-06	3.6729E+02	1.3611E+02	3.3752E+02	1.3055E-03	1.5060E+01		
58	5.2004E+05	0.0000E+00	4.4589E+00	-1.4680E-06	3.6590E+02	1.3614E+02	3.3680E+02	1.0911E-03	1.4688E+01		
59	5.4004E+05	0.0000E+00	4.4357E+00	-1.1615E-06	3.6455E+02	1.3616E+02	3.3604E+02	9.0973E-04	1.4208E+01		
60	5.6004E+05	0.0000E+00	4.4176E+00	-9.0550E-07	3.6330E+02	1.3618E+02	3.3523E+02	7.5313E-04	1.3680E+01		
61	5.8004E+05	0.0000E+00	4.4025E+00	-7.5300E-07	3.6252E+02	1.3620E+02	3.3438E+02	6.9582E-04	1.2998E+01		
62	6.0004E+05	0.0000E+00	4.3895E+00	-6.5250E-07	3.6174E+02	1.3621E+02	3.3350E+02	6.3639E-04	1.2315E+01		
63	6.2004E+05	0.0000E+00	4.3780E+00	-5.7350E-07	3.6121E+02	1.3622E+02	3.3258E+02	6.1535E-04	1.1588E+01		
64	6.4004E+05	0.0000E+00	4.3676E+00	-5.1950E-07	3.6072E+02	1.3623E+02	3.3164E+02	5.9555E-04	1.0864E+01		
65	6.6004E+05	0.0000E+00	4.3582E+00	-4.6900E-07	3.6028E+02	1.3624E+02	3.3069E+02	5.7536E-04	1.0155E+01		
66	6.8004E+05	0.0000E+00	4.3498E+00	-4.2250E-07	3.5985E+02	1.3625E+02	3.2974E+02	5.5480E-04	9.4629E+00		
67	7.0004E+05	0.0000E+00	4.3422E+00	-3.8000E-07	3.5943E+02	1.3626E+02	3.2878E+02	5.3363E-04	8.7963E+00		
68	7.2004E+05	0.0000E+00	4.3354E+00	-3.4050E-07	3.5901E+02	1.3627E+02	3.2783E+02	5.1202E-04	8.1523E+00		
69	7.4004E+05	0.0000E+00	4.3292E+00	-3.0700E-07	3.5867E+02	1.3627E+02	3.2688E+02	5.0237E-04	7.5381E+00		
70	7.6004E+05	0.0000E+00	4.3236E+00	-2.8200E-07	3.5837E+02	1.3628E+02	3.2595E+02	4.9945E-04	6.9714E+00		
71	7.8004E+05	0.0000E+00	4.3185E+00	-2.5350E-07	3.5803E+02	1.3628E+02	3.2510E+02	5.0542E-04	6.4214E+00		
72	8.0004E+05	0.0000E+00	4.3139E+00	-2.3100E-07	3.5764E+02	1.3629E+02	3.2429E+02	5.1196E-04	5.9249E+00		
73	8.2004E+05	0.0000E+00	4.3097E+00	-2.1050E-07	3.5744E+02	1.3629E+02	3.2353E+02	5.1121E-04	5.4665E+00		
74	8.4004E+05	0.0000E+00	4.3059E+00	-1.9200E-07	3.5711E+02	1.3629E+02	3.2282E+02	5.1472E-04	5.0468E+00		
75	8.6004E+05	0.0000E+00	4.3024E+00	-1.7550E-07	3.5682E+02	1.3630E+02	3.2214E+02	5.1967E-04	4.6542E+00		
76	8.6404E+05	0.0000E+00	4.3017E+00	-1.6500E-07	3.5682E+02	1.3630E+02	3.2200E+02	5.1582E-04	4.5808E+00		

付図 A.1 サンプル入力 (INIT.dat) (2/2)

	t_0	t_{10}	t_{20}	t_{30}	t_{40}	t_{50}	t_{60}	t_{70}	t_{80}	t_{90}	t_{100}	t_{110}	t_{120}
1	0.000E+00												
2	3.602E+03	0.000E+00	6.231E-05	2.341E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.648E-01	0.000E+00	2.159E-03	0.000E+00	1.920E-10	0.000E+00	0.000E+00
3	7.203E+03	0.000E+00	6.299E-05	2.366E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.642E-01	0.000E+00	2.189E-03	0.000E+00	1.956E-10	0.000E+00	0.000E+00
4	1.080E+04	0.000E+00	6.354E-05	2.387E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.642E-01	0.000E+00	2.225E-03	0.000E+00	1.993E-10	0.000E+00	0.000E+00
5	1.440E+04	0.000E+00	6.411E-05	2.408E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.642E-01	0.000E+00	2.261E-03	0.000E+00	2.031E-10	0.000E+00	0.000E+00
6	1.800E+04	0.000E+00	6.467E-05	2.429E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.642E-01	0.000E+00	2.298E-03	0.000E+00	2.070E-10	0.000E+00	0.000E+00
7	2.160E+04	0.000E+00	6.523E-05	2.450E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.641E-01	0.000E+00	2.336E-03	0.000E+00	2.110E-10	0.000E+00	0.000E+00
8	2.520E+04	0.000E+00	6.579E-05	2.471E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.641E-01	0.000E+00	2.375E-03	0.000E+00	2.152E-10	0.000E+00	0.000E+00
9	2.880E+04	0.000E+00	6.636E-05	2.492E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.641E-01	0.000E+00	2.414E-03	0.000E+00	2.194E-10	0.000E+00	0.000E+00
10	3.240E+04	0.000E+00	6.692E-05	2.514E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.641E-01	0.000E+00	2.455E-03	0.000E+00	2.238E-10	0.000E+00	0.000E+00
11	3.600E+04	0.000E+00	6.748E-05	2.535E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.640E-01	0.000E+00	2.497E-03	0.000E+00	2.284E-10	0.000E+00	0.000E+00
12	3.960E+04	0.000E+00	6.804E-05	2.556E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.640E-01	0.000E+00	2.539E-03	0.000E+00	2.330E-10	0.000E+00	0.000E+00
13	4.320E+04	0.000E+00	6.860E-05	2.577E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.640E-01	0.000E+00	2.583E-03	0.000E+00	2.379E-10	0.000E+00	0.000E+00
14	4.680E+04	0.000E+00	6.917E-05	2.598E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.640E-01	0.000E+00	2.628E-03	0.000E+00	2.428E-10	0.000E+00	0.000E+00
15	5.720E+04	0.000E+00	7.865E-05	2.954E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.635E-01	0.000E+00	3.401E-03	0.000E+00	3.343E-10	0.000E+00	0.000E+00
16	1.003E+05	0.000E+00	7.840E-05	2.945E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.634E-01	0.000E+00	3.469E-03	0.000E+00	3.429E-10	0.000E+00	0.000E+00
17	1.044E+05	0.000E+00	7.800E-05	2.930E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.634E-01	0.000E+00	3.540E-03	0.000E+00	3.518E-10	0.000E+00	0.000E+00
18	1.080E+05	0.000E+00	7.761E-05	2.915E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.634E-01	0.000E+00	3.613E-03	0.000E+00	3.612E-10	0.000E+00	0.000E+00
19	1.116E+05	0.000E+00	7.721E-05	2.900E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.633E-01	0.000E+00	3.689E-03	0.000E+00	3.709E-10	0.000E+00	0.000E+00
20	1.152E+05	0.000E+00	7.681E-05	2.885E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.633E-01	0.000E+00	3.768E-03	0.000E+00	3.811E-10	0.000E+00	0.000E+00
21	1.188E+05	0.000E+00	7.641E-05	2.870E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.633E-01	0.000E+00	3.849E-03	0.000E+00	3.918E-10	0.000E+00	0.000E+00
22	1.224E+05	0.000E+00	7.601E-05	2.855E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.632E-01	0.000E+00	3.933E-03	0.000E+00	4.029E-10	0.000E+00	0.000E+00
23	1.260E+05	0.000E+00	7.561E-05	2.840E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.632E-01	0.000E+00	4.020E-03	0.000E+00	4.145E-10	0.000E+00	0.000E+00
24	1.296E+05	0.000E+00	7.521E-05	2.825E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.631E-01	0.000E+00	4.111E-03	0.000E+00	4.267E-10	0.000E+00	0.000E+00
25	1.332E+05	0.000E+00	7.481E-05	2.810E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.631E-01	0.000E+00	4.205E-03	0.000E+00	4.395E-10	0.000E+00	0.000E+00
26	1.368E+05	0.000E+00	7.441E-05	2.795E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.630E-01	0.000E+00	4.303E-03	0.000E+00	4.530E-10	0.000E+00	0.000E+00
27	1.404E+05	0.000E+00	7.402E-05	2.780E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.630E-01	0.000E+00	4.405E-03	0.000E+00	4.672E-10	0.000E+00	0.000E+00
28	1.440E+05	0.000E+00	7.362E-05	2.765E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.629E-01	0.000E+00	4.511E-03	0.000E+00	4.821E-10	0.000E+00	0.000E+00
29	1.476E+05	0.000E+00	7.322E-05	2.750E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.629E-01	0.000E+00	4.622E-03	0.000E+00	4.978E-10	0.000E+00	0.000E+00
30	1.512E+05	0.000E+00	7.282E-05	2.735E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.628E-01	0.000E+00	4.738E-03	0.000E+00	5.144E-10	0.000E+00	0.000E+00
31	1.548E+05	0.000E+00	7.242E-05	2.720E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.628E-01	0.000E+00	4.859E-03	0.000E+00	5.318E-10	0.000E+00	0.000E+00
32	1.584E+05	0.000E+00	7.200E-05	2.704E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.627E-01	0.000E+00	4.985E-03	0.000E+00	5.503E-10	0.000E+00	0.000E+00
33	1.620E+05	0.000E+00	7.137E-05	2.681E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.626E-01	0.000E+00	5.118E-03	0.000E+00	5.699E-10	0.000E+00	0.000E+00
34	1.656E+05	0.000E+00	7.071E-05	2.656E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.625E-01	0.000E+00	5.257E-03	0.000E+00	5.907E-10	0.000E+00	0.000E+00
35	1.692E+05	0.000E+00	7.005E-05	2.631E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.625E-01	0.000E+00	5.403E-03	0.000E+00	6.127E-10	0.000E+00	0.000E+00
36	1.728E+05	0.000E+00	6.939E-05	2.607E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.624E-01	0.000E+00	5.556E-03	0.000E+00	6.361E-10	0.000E+00	0.000E+00
37	1.764E+05	0.000E+00	6.873E-05	2.582E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.623E-01	0.000E+00	5.717E-03	0.000E+00	6.611E-10	0.000E+00	0.000E+00
38	1.800E+05	0.000E+00	6.807E-05	2.557E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.622E-01	0.000E+00	5.887E-03	0.000E+00	6.876E-10	0.000E+00	0.000E+00
39	1.836E+05	0.000E+00	6.742E-05	2.532E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.622E-01	0.000E+00	6.067E-03	0.000E+00	7.160E-10	0.000E+00	0.000E+00
40	1.872E+05	0.000E+00	6.676E-05	2.508E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.621E-01	0.000E+00	6.256E-03	0.000E+00	7.463E-10	0.000E+00	0.000E+00
41	1.908E+05	0.000E+00	6.610E-05	2.483E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.620E-01	0.000E+00	6.456E-03	0.000E+00	7.786E-10	0.000E+00	0.000E+00
42	1.944E+05	0.000E+00	6.544E-05	2.458E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.619E-01	0.000E+00	6.668E-03	0.000E+00	8.134E-10	0.000E+00	0.000E+00
43	1.980E+05	0.000E+00	6.478E-05	2.433E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.618E-01	0.000E+00	6.892E-03	0.000E+00	8.507E-10	0.000E+00	0.000E+00
44	2.016E+05	0.000E+00	6.410E-05	2.408E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.617E-01	0.000E+00	7.131E-03	0.000E+00	8.908E-10	0.000E+00	0.000E+00
45	2.052E+05	0.000E+00	6.316E-05	2.372E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.616E-01	0.000E+00	7.384E-03	0.000E+00	9.340E-10	0.000E+00	0.000E+00
46	2.088E+05	0.000E+00	6.219E-05	2.336E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.614E-01	0.000E+00	7.654E-03	0.000E+00	9.807E-10	0.000E+00	0.000E+00
47	2.124E+05	0.000E+00	6.122E-05	2.300E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.613E-01	0.000E+00	7.942E-03	0.000E+00	1.031E-09	0.000E+00	0.000E+00
48	2.160E+05	0.000E+00	6.026E-05	2.263E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.612E-01	0.000E+00	8.249E-03	0.000E+00	1.088E-09	0.000E+00	0.000E+00
49	2.196E+05	0.000E+00	5.929E-05	2.227E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.610E-01	0.000E+00	8.577E-03	0.000E+00	1.145E-09	0.000E+00	0.000E+00
50	2.232E+05	0.000E+00	5.832E-05	2.191E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.609E-01	0.000E+00	8.928E-03	0.000E+00	1.209E-09	0.000E+00	0.000E+00
51	2.268E+05	0.000E+00	5.735E-05	2.154E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.607E-01	0.000E+00	9.305E-03	0.000E+00	1.279E-09	0.000E+00	0.000E+00
52	2.304E+05	0.000E+00	5.639E-05	2.118E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.605E-01	0.000E+00	9.709E-03	0.000E+00	1.356E-09	0.000E+00	0.000E+00
53	2.340E+05	0.000E+00	5.542E-05	2.082E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.604E-01	0.000E+00	1.014E-02	0.000E+00	1.439E-09	0.000E+00	0.000E+00
54	2.376E+05	0.000E+00	5.445E-05	2.045E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.602E-01	0.000E+00	1.061E-02	0.000E+00	1.531E-09	0.000E+00	0.000E+00
55	2.412E+05	0.000E+00	5.348E-05	2.009E-04	0.000E+00	0.000E+00	2.600E-01	0.000E+00	1.112E-02	0.000E+00	1.631E-09		

	1	10	20	30	40	50	60	70	80	90	100	110
91	3.708E+05	0.000E+00	5.255E-04	1.974E-03	0.000E+00	0.000E+00	2.274E-01	0.000E+00	1.387E-01	0.000E+00	2.240E-07	0.000E+00
92	3.744E+05	0.000E+00	6.771E-04	2.543E-03	0.000E+00	0.000E+00	2.235E-01	0.000E+00	1.433E-01	0.000E+00	9.568E-07	0.000E+00
93	3.780E+05	0.000E+00	8.395E-04	3.153E-03	0.000E+00	0.000E+00	2.158E-01	0.000E+00	1.496E-01	0.000E+00	6.776E-06	0.000E+00
94	3.816E+05	0.000E+00	1.015E-03	3.813E-03	0.000E+00	0.000E+00	2.090E-01	0.000E+00	1.567E-01	0.000E+00	6.712E-05	0.000E+00
95	3.852E+05	0.000E+00	1.199E-03	4.504E-03	0.000E+00	0.000E+00	2.036E-01	0.000E+00	1.632E-01	0.000E+00	7.077E-04	0.000E+00
96	3.888E+05	0.000E+00	1.363E-03	5.119E-03	0.000E+00	0.000E+00	1.969E-01	0.000E+00	1.687E-01	0.000E+00	6.978E-04	0.000E+00
97	3.924E+05	0.000E+00	1.361E-03	5.111E-03	0.000E+00	0.000E+00	1.894E-01	0.000E+00	1.725E-01	0.000E+00	6.876E-04	0.000E+00
98	3.960E+05	0.000E+00	1.184E-03	4.446E-03	0.000E+00	0.000E+00	1.804E-01	0.000E+00	1.733E-01	0.000E+00	6.823E-04	0.000E+00
99	3.996E+05	0.000E+00	1.330E-03	4.996E-03	0.000E+00	0.000E+00	1.692E-01	0.000E+00	1.681E-01	0.000E+00	6.949E-04	0.000E+00
100	4.032E+05	0.000E+00	1.496E-03	5.619E-03	0.000E+00	0.000E+00	1.543E-01	0.000E+00	1.527E-01	0.000E+00	7.598E-04	0.000E+00
101	4.059E+05	0.000E+00	1.975E-03	7.419E-03	0.000E+00	0.000E+00	1.377E-01	0.000E+00	1.270E-01	0.000E+00	8.970E-04	0.000E+00
102	4.068E+05	0.000E+00	2.135E-03	8.018E-03	0.000E+00	0.000E+00	1.254E-01	0.000E+00	1.068E-01	0.000E+00	9.764E-04	0.000E+00
103	4.077E+05	0.000E+00	2.320E-03	8.713E-03	0.000E+00	0.000E+00	1.189E-01	0.000E+00	9.514E-02	0.000E+00	1.082E-03	0.000E+00
104	4.086E+05	0.000E+00	2.512E-03	9.436E-03	0.000E+00	0.000E+00	1.122E-01	0.000E+00	8.310E-02	0.000E+00	1.224E-03	0.000E+00
105	4.095E+05	0.000E+00	2.705E-03	1.016E-02	0.000E+00	0.000E+00	1.048E-01	0.000E+00	7.082E-02	0.000E+00	1.415E-03	0.000E+00
106	4.104E+05	0.000E+00	3.198E-03	1.201E-02	0.000E+00	0.000E+00	9.664E-02	0.000E+00	5.855E-02	0.000E+00	1.669E-03	0.000E+00
107	4.113E+05	0.000E+00	4.075E-03	1.531E-02	0.000E+00	0.000E+00	8.8355E-02	0.000E+00	4.722E-02	0.000E+00	1.693E-03	0.000E+00
108	4.122E+05	0.000E+00	4.949E-03	1.859E-02	0.000E+00	0.000E+00	8.061E-02	0.000E+00	3.711E-02	0.000E+00	1.651E-03	0.000E+00
109	4.131E+05	0.000E+00	5.824E-03	2.188E-02	0.000E+00	0.000E+00	7.260E-02	0.000E+00	2.828E-02	0.000E+00	1.619E-03	0.000E+00
110	4.140E+05	0.000E+00	6.899E-03	2.516E-02	0.000E+00	0.000E+00	6.518E-02	0.000E+00	2.106E-02	0.000E+00	1.596E-03	0.000E+00
111	4.149E+05	0.000E+00	8.545E-03	3.210E-02	0.000E+00	0.000E+00	5.891E-02	0.000E+00	1.539E-02	0.000E+00	1.578E-03	0.000E+00
112	4.160E+05	0.000E+00	1.088E-02	4.086E-02	0.000E+00	0.000E+00	5.383E-02	0.000E+00	1.108E-02	0.000E+00	1.566E-03	0.000E+00
113	4.170E+05	0.000E+00	1.293E-02	4.357E-02	0.000E+00	0.000E+00	4.967E-02	0.000E+00	7.963E-02	0.000E+00	1.557E-03	0.000E+00
114	4.180E+05	0.000E+00	1.523E-02	5.720E-02	0.000E+00	0.000E+00	4.627E-02	0.000E+00	5.677E-03	0.000E+00	1.550E-03	0.000E+00
115	4.190E+05	0.000E+00	2.431E-02	9.130E-02	0.000E+00	0.000E+00	4.524E-02	0.000E+00	4.144E-03	0.000E+00	1.546E-03	0.000E+00
116	4.200E+05	0.000E+00	3.338E-02	1.254E-01	0.000E+00	0.000E+00	2.180E-02	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	1.634E-03	0.000E+00
117	4.203E+05	0.000E+00	3.437E-02	1.310E-01	0.000E+00	0.000E+00	2.167E-02	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	3.267E-04	0.000E+00
118	4.221E+05	0.000E+00	4.383E-02	1.646E-01	0.000E+00	0.000E+00	2.086E-02	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	1.634E-07	0.000E+00
119	4.277E+05	0.000E+00	7.170E-02	2.693E-01	0.000E+00	0.000E+00	1.834E-02	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	3.267E-09	0.000E+00
120	4.300E+05	0.000E+00	8.314E-02	3.123E-01	0.000E+00	0.000E+00	1.731E-02	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	1.634E-09	0.000E+00
121	4.320E+05	0.000E+00	8.597E-02	3.229E-01	0.000E+00	0.000E+00	1.667E-02	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00
122	4.389E+05	0.000E+00	9.572E-02	3.596E-01	0.000E+00	0.000E+00	1.444E-02	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00
123	4.400E+05	0.000E+00	9.727E-02	3.654E-01	0.000E+00	0.000E+00	1.409E-02	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00
124	4.600E+05	0.000E+00	1.280E-02	4.808E-02	0.000E+00	0.000E+00	5.442E-03	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00
125	4.800E+05	0.000E+00	3.387E-03	1.272E-02	0.000E+00	0.000E+00	2.287E-03	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00
126	5.000E+05	0.000E+00	2.418E-03	9.081E-03	0.000E+00	0.000E+00	1.880E-03	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00
127	5.200E+05	0.000E+00	1.962E-03	7.368E-03	0.000E+00	0.000E+00	1.617E-03	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00
128	5.400E+05	0.000E+00	1.607E-03	6.035E-03	0.000E+00	0.000E+00	1.389E-03	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00
129	5.600E+05	0.000E+00	1.310E-03	4.920E-03	0.000E+00	0.000E+00	1.180E-03	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00
130	5.800E+05	0.000E+00	1.196E-03	4.492E-03	0.000E+00	0.000E+00	1.088E-03	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00
131	6.000E+05	0.000E+00	1.081E-03	4.060E-03	0.000E+00	0.000E+00	9.858E-04	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00
132	6.200E+05	0.000E+00	1.036E-03	3.892E-03	0.000E+00	0.000E+00	9.354E-04	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00
133	6.400E+05	0.000E+00	9.946E-04	3.736E-03	0.000E+00	0.000E+00	8.876E-04	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00
134	6.600E+05	0.000E+00	9.529E-04	3.579E-03	0.000E+00	0.000E+00	8.391E-04	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00
135	6.800E+05	0.000E+00	9.110E-04	3.422E-03	0.000E+00	0.000E+00	7.914E-04	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00
136	7.000E+05	0.000E+00	8.688E-04	3.264E-03	0.000E+00	0.000E+00	7.468E-04	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00
137	7.200E+05	0.000E+00	8.285E-04	3.104E-03	0.000E+00	0.000E+00	7.018E-04	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00
138	7.400E+05	0.000E+00	8.044E-04	3.021E-03	0.000E+00	0.000E+00	6.745E-04	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00
139	7.600E+05	0.000E+00	7.928E-04	2.978E-03	0.000E+00	0.000E+00	6.541E-04	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00
140	7.800E+05	0.000E+00	7.812E-04	2.934E-03	0.000E+00	0.000E+00	6.351E-04	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00
141	8.000E+05	0.000E+00	7.696E-04	2.891E-03	0.000E+00	0.000E+00	6.171E-04	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00
142	8.200E+05	0.000E+00	7.580E-04	2.847E-03	0.000E+00	0.000E+00	5.990E-04	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00
143	8.400E+05	0.000E+00	7.464E-04	2.803E-03	0.000E+00	0.000E+00	5.827E-04	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00
144	8.600E+05	0.000E+00	7.347E-04	2.760E-03	0.000E+00	0.000E+00	5.673E-04	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00
145	8.650E+05	0.000E+00	7.329E-04	2.753E-03	0.000E+00	0.000E+00	5.645E-04	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00
146	[EOF]											

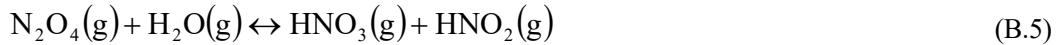
付図 A.2 サンプル入力 (INFLOW.dat) (2/2)

付録 B SCHERN で考慮する化学反応

SCHERN では文献 17) 及び 18) に記載の NO_x に係る気液各相での化学反応をモデル化している。反応に関わる化学種は NO 、 NO_2 、 N_2O_3 、 N_2O_4 、 HNO_2 、 HNO_3 、 H_2O 、 O_2 である。付表 B.1 及び付表 B.2 に示す両文献に記載の各化学反応の平衡定数及び反応速度定数は、プログラム内に組み込まれている。

(1) 気相部での化学反応

気相部でモデル化している化学反応式を(B.1)～(B.5)式に示す。文献 17) 及び 18) とも同様の反応式及び反応速度定数が示されている。



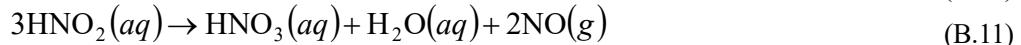
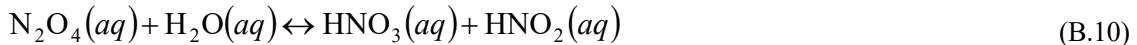
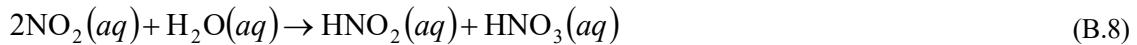
付表 B.1 気相部での化学反応の平衡定数、正方向及び逆方向の反応速度定数

反応式番号	正方向反応速度定数 : k_{iF}	平衡定数 : K_i	逆方向反応速度定数 : k_{iB}
B.1	$10^{(652.1/T - 0.7356)} \times (RT/101.325)^2$ a)	—	—
B.2	10^9 b)	$10^{(2993/T - 9.226)} \times (RT/101.325)$ c)	k_{2F}/K_2
B.3	10^9 b)	$10^{(2072/T - 7.234)} \times (RT/101.325)$ c)	k_{3F}/K_3
B.4	4.1×10^4 b)	$10^{(-20.83/T - 0.5012)}$ d)	k_{4F}/K_4
B.5	250 b)	$10^{(-965.5/T - 1.481)}$ d)	k_{5F}/K_5

a): [(m^3/kmol)²/s], b): [$\text{m}^3/\text{kmol/s}$], c): [m^3/kmol], d): [−], T: Gas phase temp. [K], R = 8.31446 [J/mol/K]

(2) 液相部での化学反応

液相部の化学反応式を(B.6)～(B.11)式に示す。文献 17) では(B.9)及び(B.10)式の反応は平衡反応としているのに対して文献 18) では、不可逆反応としている。SCHERN では平衡反応を仮定している。また、(B.6)及び(B.7)式は文献 17) のみに、(B.8)及び(B.11)式は文献 18) のみに示されている。



付表 B.2 液相部での化学反応の平衡定数、正方向及び逆方向の反応速度定数

反応式番号	正方向反応速度定数 : k_{iF}	平衡定数 : K_i	逆方向反応速度定数 : k_{iB}
B.6	$\approx k_{7F}$ a)	6.54×10^4 c)	k_{6F}/K_6
B.7	1.37×10^6 a)	1.37×10^4 c)	k_{7F}/K_7
B.8	$10^{4.67209}$ a)	—	—
B.9	868 b)	330 d)	k_{9F}/K_9
B.10	0.1572 b)	5.81×10^4 d)	k_{10F}/K_{10}
B.11	$10^{(-6200/T+20.1979)}$ e)	—	—

a): [m³/kmol/s], b): [m³/kmol/s], c): [m³/kmol], d): [-], e): [atm²m¹²/kmol⁴/s], T : Liquid phase temp [K]

This is a blank page.

