再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故における 飛沫同伴による移行率の機構論的相関式の導出

吉田 一雄^{1,*}

Development of Mechanistic Entrainment Correlation in Accident of Evaporation to Dryness by Boiling of Reprocessed High-Level Liquid Waste

Kazuo YOSHIDA^{1,*}

¹Nuclear Safety Research Center, Japan Atomic Energy Agency, 2-4 Shirane, Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1195, Japan

(Received August 7, 2014; accepted in revised form October 29, 2014; published online January 28, 2015)

An accident of evaporation to dryness by boiling of high-level liquid waste (HLLW) is postulated to be one of the severe accidents that may occur as a result of the loss of cooling function at a fuel reprocessing plant. In this case, some amount of nonvolatile fission products (FPs) will be transferred in the form of mist to the vapor phase in the tank, and could be released to the environment. Therefore, the quantitative estimation of the transfer rate is one of the key issues in the assessment of the accident consequences. To resolve this issue, a mechanistic correlation of the entrainment rate with upward vapor flow has been developed based on the data obtained from the experiments using simulated and actual HLLW.

KEYWORDS: reprocessing plant, high-level liquid waste, accident of evaporation to dryness by boiling, droplet, entrainment, transfer rate to vapor phase

I. 緒 言

我が国では、核燃料施設でのリスク情報の活用に向けて、確率論的リスク評価(Probabilistic Risk Assessment: PRA)手法および基礎的データの整備が、個々の施設の安全上の特徴を反映しつつ積極的に進められている¹⁾。PRAでは、事故の発生頻度と、事故による環境中への放射性物質の移行量を精度よく評価する必要がある、そのための手法整備が重要な課題の1つである。

一方、2011年3月11日の「東北地方太平洋沖地震」を起因として発生した福島第一原子力発電所事故の教訓を踏まえて、発電用原子炉施設だけでなく核燃料施設に対しても新たな規制基準(新基準という)が制定された。再処理施設に対する新基準では、設計基準事故を超える条件で発生する蒸発乾固事故、水素爆発、溶媒火災などを「重大事故」と定義し、事業者に対して「重大事故」の発生、拡大防止および影響緩和のための「重大事故等対処策」の整備を要求している。これらの対策の有効性評価には、事故時

の放射性物質の施設外への移行量の評価が不可欠である。このため、これまでの安全審査では評価の対象とはされなかった低頻度の事故の影響を評価するための手法整備の必要性がますます高まっている。

「蒸発乾固事故」は、使用済燃料を再処理する過程で発生する溶液(再処理廃液を含む)に含まれる放射性物質の崩壊熱を除去する機能が喪失することにより発生する。溶液の沸騰に至ることを防止するために冷却水により崩壊熱を除去する対策を施しているが²⁾、万一の全交流電源の喪失等でこの冷却機能が失われた場合、冷却を回復するためのすべての対応に失敗して溶液の沸騰に至ると機器内気相部への放射性物質の移行量が増加し、施設外へ放出される放射性物質の量も平常時より増加する場合があります。

高レベル廃液の沸騰段階での放射性物質(硝酸塩として廃液中に溶解している核分裂生成物(Fission products: FP))の気相部への移行のメカニズムとしては、液面での気泡の破裂によって生成される飛沫のうち比較的小さい粒径の飛沫のエアロゾル化と、揮発性物質の温度上昇に伴う気化による移行が想定される³⁾。前者のエアロゾル化による移行は、沸騰開始から廃液温度が約120℃までの沸騰初期段階で支配的であり、沸騰が進み、廃液温度が120℃以

¹ (独)日本原子力研究開発機構 安全研究センター

* Corresponding author, E-mail: yoshida.kazuo97@jaea.go.jp

上に上昇する沸騰晩期では Ru の気化による移行が顕著となり、環境への影響は後者が桁違いに大きい^{4,5)}。このような事故の特徴を踏まえ、蒸発乾固事故の重大事故等対処策として、廃液貯槽に水を注入し、廃液温度の上昇を抑えることで Ru の気化を抑制し、1 週間後の外部の支援により事故の収束を図る方策が検討されている⁶⁾。このような対処策では、沸騰で生じる飛沫のエアロゾル化による放射性物質の気相への移行が長期化することで移行量が増加する。その有効性を評価するには、放射性物質の移行量を精度よく評価することが重要となる。

核燃料施設の事故時の放射性物質の移行量評価では、五因子法⁷⁾が多用される。この方法は施設外への移行過程を段階的に区分し、移行量を、放射性物質の存在量(MAR: Material at Risk)、MAR のうち事故の影響を受ける割合(DR: Damage Ratio)、気相への移行割合(ARF: Airborne Release Fraction)、放出経路での低減率(LPF: Leak Path Factor)および呼吸により体内へ取り込まれる粒子の割合(RF: Respirable Fraction)の 5 つの因子の積によって算出する簡便な手法である。発電用原子炉施設に比してリスクの小さい核燃料施設の評価では、このような手法でもリスクレベルに応じた適切な精度の手法であるといえる。評価の重要な因子の 1 つである ARF は放射性物質の放出継続時間を考慮できない。しかし、火災あるいは爆発のような短時間で収束する事故では、ARF を用いた評価でも大きな誤差を生じない。しかし蒸発乾固事故のように長期間に亘って推移する事故で、拡大防止策あるいは影響緩和策により、事故が途中で収束するような場合の評価では、事故の継続時間に応じて DR を設定し、ARF もその現象に適した値を用いる必要がある。文献 7) では、このような事象の評価には ARF の代わりに単位時間当たりの移行率(ARR: Airborne Release Rate)を用いることを推奨している。

本報では、蒸発乾固事故での飛沫同伴による放射性物質の気相への移行評価に適した ARR を提案し、飛沫同伴現象のメカニズムに基づく機構論的な ARR に関わる相関式の導出を試みた結果を報告する。

II. 難揮発性物質の移行率と飛沫同伴率

1. 難揮発性物質の移行率の定義

気泡の破裂で生成される飛沫による放射性物質の気相への移行は、液面近傍での現象である。この特徴を考慮して、沸騰初期の飛沫同伴現象による難揮発性物質の移行に関わる ARR を、次に示す単位時間当たりの質量の比で定義する。

$$ARR = \frac{\text{液面で発生し気相を移行する飛沫に含まれる難揮発性物質の質量}}{\text{沸騰で減少する廃液に含まれる難揮発性物質の質量}}$$

この定義に対応して MAR は廃液中の着目する難揮発性

物質の総量、DR は単位時間に減少する廃液の質量割合となる。

沸騰により減少する廃液の体積は蒸発した硝酸および水の体積(凝縮時の密度: $\rho_{fc}[\text{kg}/\text{m}^3]$)に等しいと仮定すると、時刻: $T[\text{sec}]$ での溶液の密度: $\rho_f[\text{kg}/\text{m}^3]$ 、蒸気密度: $\rho_g[\text{kg}/\text{m}^3]$ 、飛沫の体積流量: $J_{fe}[\text{m}^3/\text{sec}]$ 、蒸気体積流量: $J_g[\text{m}^3/\text{sec}]$ 、貯槽の断面積: $A[\text{m}^2]$ および着目する物質の廃液中の質量分率: x として、 $ARR(T)$ は(1)式で表される。(1)式において、飛沫の流速: $j_{fe}[\text{m}/\text{sec}] (=J_{fe}/A)$ 、蒸気流速: $j_g[\text{m}/\text{sec}] (=J_g/A)$ である。(1)式の中辺の分母のカッコ内は単位時間に減少する廃液質量を表し、分子の $\rho_f J_{fe}$ は単位時間に発生する飛沫の質量を表す。凝縮液の密度: ρ_{fc} は、常温での値であるため減少する廃液の体積と凝縮液の体積は厳密には等しくない。しかし、沸騰時の廃液の密度: ρ_f は実測不能であるため常温での測定値を使うことになるので、結果として ρ_f/ρ_{fc} の値の誤差は無視し得ると考えられる。

$$ARR(T) = \frac{x \rho_f J_{fe}}{x \left(\rho_f J_{fe} + \frac{\rho_f}{\rho_{fc}} \rho_g J_g \right)} = \frac{\rho_f j_{fe}}{\left(\rho_f j_{fe} + \frac{\rho_f}{\rho_{fc}} \rho_g j_g \right)} \quad (1)$$

ここで、ARR と飛沫同伴率: E_{fg} の関係について考える。 E_{fg} は、(2)式で定義される。

$$E_{fg} = \frac{\rho_f j_{fe}}{\rho_g j_g} \quad (2)$$

(1)式は、 $\rho_f j_{fe} \ll \rho_g j_g$ すなわち E_{fg} が 1.0 に対して十分に小さければ(3)式のように近似でき、ARR は飛沫同伴率から求められる。

$$\begin{aligned} ARR(T) &= \frac{x \rho_f j_{fe}}{x \left(\rho_f j_{fe} + \frac{\rho_f}{\rho_{fc}} \rho_g j_g \right)} = \frac{\rho_f j_{fe}}{\rho_g j_g + \frac{\rho_f}{\rho_{fc}} \rho_g j_g} \\ &= \frac{E_{fg}}{E_{fg} + \frac{\rho_f}{\rho_{fc}}} \cong \frac{E_{fg}}{\rho_f} E_{fg} \quad (3) \end{aligned}$$

2. 蒸気流速と飛沫同伴率相関式

(1) 既往の相関式

Kataoka らは、軽水炉の冷却材喪失事故解析等への適用を念頭にした飛沫の生成メカニズムを考慮した飛沫同伴率相関式を提案している⁸⁾。上向蒸気流中の飛沫の運動のメカニズムに着目し、解析的に相関式の基本となる式を求め、それをもとにこれまでに実施された多くの実験データの整理を通して基本となる式に含まれる係数等を決定し相関式(Kataoka-Ishii 式という)を導出している。文献 8) に拠れば、Kataoka-Ishii 式の導出過程において、上向蒸気流中を運動する飛沫が受ける抗力の抵抗係数が飛沫のレイノルズ(Reynolds)数(Re_D)の 0.5 乗に反比例すると仮定している。この仮定は、Reynolds 数が $Re_D = 5 \sim 1,000$ となる蒸気流の領域に適用される。この理由から、Kataoka-

Ishii 式は、このような蒸気流の領域を対象とした式であるといえる。

再処理施設の高レベル濃縮廃液貯槽での発熱は、約 5 W/L である²⁾。貯槽の直径を 7 m と仮定し、貯蔵量を例えば 120 m³ と仮定⁹⁾すれば、大気圧下での廃液表面での蒸気流速は、約 0.012 m/sec となる。終端速度がこれに等しくなる飛沫の最大径(D_c : 臨界粒径という)は約 17 μ m であり、 Re_D は約 0.01 となる¹¹⁾。蒸発乾固事故における飛沫同伴現象は、いわゆる Stokes 領域($Re_D \ll 1.0$)の現象であり、 $Re_D = 5 \sim 1,000$ の領域を対象に導出された Kataoka-Ishii 式の適用範囲外と判断される。

一方、文献 10) では、沸騰水型原子炉での活用を想定し、加圧条件下での実験データ、実験あるいは解析的に導出された飛沫同伴現象に関わる研究成果を取りまとめているが、大気圧条件下での Stokes 領域での飛沫同伴率に関する記述はない。

上記のような現状を踏まえ、文献 11) では、文献 8) における機構論的な飛沫同伴率相関式の導出過程を参考に、Stokes 領域に適用可能な相関式の導出を試みている。

(2) 極低蒸気流速の相関式

文献 11) では、まず文献 8) で提案される飛沫同伴率の基本式を示し、 D_c より径が大きい飛沫の同伴率と、それ以下の粒径の飛沫の同伴率とに分けて取り扱うことができることを示した。次に、粒径が D_c より大きい飛沫は液面近傍に留まり落下に転じることから、それらの同伴率は実質的に考慮する必要がないことを示し、最後に径が D_c 以下の飛沫の同伴率を表す相関式を導出した。以下にその概要を示す。

(a) 基本式

文献 8) では、以下のパラメータおよび関数を導入している。

$\dot{e}(j_g)$: 蒸気流速 j_g [m/sec] のときの気液界面での飛沫の質量流束 [kg/m²/sec]

$f(D, j_g)$: 蒸気流速 j_g のときの飛沫径 D [m] の分布関数

$g(v_i, D, j_g)$: 蒸気流速 j_g のときの径が D の飛沫の初速度 v_i [m/sec] の分布関数

関数 f および g は、それぞれ D および v_i の全区間での積分値が、1 に等しくなる関数である。

上記の関数を用いて気液界面からの高さ h [m] での同伴率: $E_{fg}(h, j_g)$ は、次式で表される。

$$E_{fg}(h, j_g) = \frac{\dot{e}(j_g)}{\rho_g j_g} \int_0^\infty \int_{v_h(D, j_g, h)}^\infty g(v_i, D, j_g) f(D, j_g) dv_i dD \quad (4)$$

ここで $v_h(D, j_g, h)$ は、高さ h に到達するための初速である。

終端速度が蒸気流速: j_g に等しくなる飛沫径を D_c [m] とすれば、径がこれ以下の飛沫は、壁面への沈着を無視すれば、初速度 v_i に関係なく無限高さまで同伴される。し

たがって (5) 式が成り立つ。

$$\lim_{h \rightarrow \infty} E_{fg}(h, j_g) \equiv E_{fg\infty}(j_g) = \frac{\dot{e}(j_g)}{\rho_g j_g} \int_0^{D_c} f(D, j_g) dD \quad (5)$$

(5) 式を用いて (4) 式は、(6) 式のように書ける。

$$E_{fg}(h, j_g) = \frac{\dot{e}(j_g)}{\rho_g j_g} \int_{D_c}^\infty \int_{v_h(D, j_g, h)}^\infty g(v_i, D, j_g) f(D, j_g) dv_i dD + E_{fg\infty}(j_g) \quad (6)$$

(6) 式の右辺第 1 項は、径が D_c より大きい飛沫の同伴率、第 2 項は、径が D_c より小さい飛沫の同伴率を表す。極低速蒸気流での飛沫同伴現象では、径が D_c より大きい飛沫は、液面近傍で落下に転ずると考えられるので、径が D_c 以下の飛沫の同伴率のみを考慮すればよいことになる。文献 11) では、粒径が D_c より大きい飛沫の上昇高さを試算し、そのような飛沫を考慮する必要がないことを解析的に示している。

(b) 上向蒸気流中の飛沫速度

上向蒸気流中での飛沫の運動を考える。飛沫の絶対速度および蒸気流に対する相対速度をそれぞれ v [m/sec] および v_r [m/sec] とし、上向きを正とすると

$$v_r = v - j_g \quad (7)$$

$$\frac{dv_r}{dt} = \frac{\Delta\rho}{\rho_f} g - \frac{3}{4} C_D \frac{1}{D} \frac{\rho_f}{\rho_g} |v_r| v_r \quad (8)$$

となる。ここで、飛沫密度: ρ_f [kg/m³]、飛沫と蒸気の密度差: $\Delta\rho$ [kg/m³]、飛沫径: D [m] および重力加速度: g [m/sec²] である。Stokes 領域 ($Re_D \ll 1.0$) での抵抗係数は、一般的に以下が用いられる。

$$C_D = \frac{24}{Re_D} \quad (9)$$

直径が D の飛沫の Reynolds 数は、蒸気の粘性係数: μ_g [Pa · sec] として以下で表される。

$$Re_D = \frac{\rho_g |v_r| D}{\mu_g} \quad (10)$$

(8) 式に (9) および (10) 式を代入して (11) 式を得る。

$$\frac{dv_r}{dt} = -\frac{\Delta\rho}{\rho_f} g - 18 \frac{\mu_g}{D^2 \rho_f} v_r \quad (11)$$

直径 D の飛沫の終端速度: $v_{r\infty}$ [m/sec] は、(11) 式の左辺をゼロとおいて

$$v_{r\infty} = -\frac{\Delta\rho D^2 g}{18\mu_g} \quad (12)$$

と求まる。臨界粒径: D_c は $v_{r\infty}$ が j_g に等しくなる粒径であるから、(13) 式で表される。

$$D_c = \sqrt{\frac{18\mu_g j_g}{\Delta\rho g}} \quad (13)$$

(c) 臨界粒径以下の飛沫同伴率

ここでは、粒径が D_c 以下の飛沫の同伴率を表す相関式を導出する。文献 8) では気液界面での飛沫径分布と同伴率は、任意の高さ h での同伴率を決定する重要因子であるが、解析的にあるいは直接測定することは困難であるとしている。そこで、気液界面で粒径が D 以下の飛沫の同

伴率(14)式を導入する。

$$E_0(D, j_g) = \frac{\dot{e}(j_g)}{\rho_g j_g} \int_0^D f(D, j_g) dD \quad (14)$$

例えば(5)式から、

$$E_0(D_c, j_g) = E_{fg\infty}(j_g) \quad (15)$$

である。

ここで、(4)式をもとに高さ h での粒径 D 以下の同伴率として以下を考える。

$$E_{fg}(h, j_g, D) = \frac{\dot{e}(j_g)}{\rho_g j_g} \int_0^D \int_{v_h(D, j_g, h)}^\infty g(v_i, D, j_g) f(D, j_g) dv_i dD \quad (16)$$

ここで、 $v_h(D, j_g, h)$ は、定義に基づけば「高さ h に到達するための初速」であるので、径が D_c 以下の飛沫は、初速ゼロで無限高さまで到達する。よって

$$v_h(D, j_g, h) = 0 \quad (D \leq D_c) \quad (17)$$

となる。これより(16)式は

$$E_{fg}(h, j_g, D) = \frac{\dot{e}(j_g)}{\rho_g j_g} \int_0^D f(D, j_g) dD \quad (D \leq D_c) \quad (18)$$

となり、(14)式および(18)式の右辺同士が等しいので

$$E_0(D, j_g) = E_{fg}(h, j_g, D) \quad (D \leq D_c) \quad (19)$$

となる。

次に $E_0(D, j_g)$ と D および j_g の関係を導出する。文献8)に拠れば $E_0(D, j_g)$ は、飛沫同伴のメカニズムを考慮すると(20)式のように関係付けられるとしている。

$$E_0(D, j_g) \propto N f_D p F_D \quad (20)$$

N : 飛沫密度(droplet size density)

f_D : 平均頻度(mean frequency)

p : のがれ確率(escape probability)

F_D : 流動抵抗

F_D は(21)式で表される。

$$F_D = -\frac{1}{2} C_D \rho_g v_r |v_r| A_d \quad (21)$$

C_D : 抵抗係数

v_r : 飛沫の相対速度

A_d : 飛沫の投影面積

ここで文献8)において、(20)式で表される単純モデルでは、以下の近似式が使えるであろうとしている。

$$v_r |v_r| \propto j_g^2 \quad A_d \propto D^2 \quad (22)$$

(9)、(10)、(21)および(22)式を(20)式に代入すると次式が得られる。

$$E_0(D, j_g) = E_{fg}(h, j_g, D) \propto j_g D \quad (D \leq D_c) \quad (23)$$

(23)式で $D = D_c$ とすれば j_g に対して D_c は一定であるから D_c 以下の粒径の飛沫同伴率は j_g に比例することになる。文献8)によれば、 $E_{fg}(h, j_g, D)$ は測定可能でその結果は次に示す(24)および(25)式で定義される D_c^* および j_g^* の積について整理できるとしている。後述のIII章で示す実験は、 $E_{fg}(h, j_g, D_c)$ (以下、 E_{fg} と表す)を測定しているとみなすことができ、測定結果から $D_c^* j_g^*$ との相関を求めることができる。

$$D_c^* \equiv \sqrt{\frac{g \Delta \rho}{\sigma}} D_c = \sqrt{\frac{g \Delta \rho}{\sigma}} \sqrt{\frac{18 \mu_g j_g}{g \Delta \rho}} = \sqrt{\frac{18 \mu_g j_g}{\sigma}} \quad (24)$$

$$j_g^* \equiv \left(\frac{\rho_g^2}{\sigma g \Delta \rho} \right)^{\frac{1}{4}} j_g \quad (25)$$

上式において、溶液の表面張力： σ [N/m]である。

III. 廃液を用いた蒸発乾固実験での飛沫同伴率

1. 模擬廃液を用いた実験

(1) 実験装置の概要と実験方法⁵⁾

実験は、再処理施設での蒸発乾固事故で廃液から気相部に移行する放射性物質の挙動を評価するのに必要な基礎的データを取得することを目的として実施した。実験では、沸騰初期段階での飛沫のエアロゾル化による移行および沸騰晩期での Ru の揮発性物質の温度上昇に伴う気化に着目した。本報で参照する実験は、不揮発性物質を含む飛沫のエアロゾル化による移行が支配的である沸騰開始から廃液温度が 120℃ に達するまでの時間帯(沸騰初期段階という)に着目した実験である。

実験装置の概念図を Fig. 1 に示す。実験で用いた廃液の組成を Table 1 に示す。100 mL の模擬廃液を入れた容量が 1 L 程度のガラス製の容器(加熱容器と呼ぶ)を、電気ヒータで底面および側面から加熱し、模擬廃液温度が 120℃ になるまで加熱した。模擬廃液温度は熱電対を挿入して測定した。加熱容器内気相温度は、実験装置の制約から本報で参照する実験では測定していないが、同種の実験での気相部温度および気相部容器外壁面温度の関係を参考に外壁温度をモニターしながら、気相部温度が 130℃ 程度で推移するように制御した。加熱容器の底面を加熱するヒータの出力を 4 とおりに変化させ、平均蒸気流速が異なる 4 ケース(蒸気流速の遅い方から順にケース A, B, C および D とする)の実験を実施した。気相への移行量を調べるため加熱容器から流出する蒸気は冷却管に導いて凝縮させる。それを一定時間間隔で三角フラスコを交換しながら

Fig. 1 Test apparatus for boiling to dryness of simulated FP concentrate¹²⁾

Table 1 Simulated composition of liquid waste solution

Element	Conc. [mol/L]	Element	Conc. [mol/L]	Element	Conc. [mol/L]
RbNO ₃	1.55×10^{-2}	H ₃ PO ₄	3.89×10^{-3}	Fe(NO ₃) ₃	2.59×10^{-2}
ZrO(NO ₃) ₂	1.66×10^{-1}	Sr(NO ₃) ₂	3.40×10^{-2}	Y(NO ₃) ₃	1.78×10^{-2}
RuNO(NO ₃) ₃	8.81×10^{-2}	MoO ₂ (NO ₃) ₂	1.08×10^{-1}	Rh(NO ₃) ₃	1.45×10^{-2}
Cd(NO ₃) ₂	3.50×10^{-3}	Pd(NO ₃) ₂	4.74×10^{-2}	AgNO ₃	2.09×10^{-3}
Te ₂ O ₃ (OH)NO ₃	1.45×10^{-2}	Sn(NO ₃) ₂	2.40×10^{-3}	Sb(NO ₃) ₃	7.10×10^{-4}
La(NO ₃) ₃	2.96×10^{-2}	CsNO ₃	6.85×10^{-2}	Ba(NO ₃) ₂	3.23×10^{-2}
Nd(NO ₃) ₃	9.43×10^{-2}	Ce(NO ₃) ₃	1.00×10^{-1}	Pr(NO ₃) ₃	3.00×10^{-2}
Gd(NO ₃) ₃	9.15×10^{-2}	Sm(NO ₃) ₃	1.76×10^{-2}	Eu(NO ₃) ₃	3.38×10^{-3}
Ni(NO ₃) ₂	2.09×10^{-3}	Cr(NO ₃) ₃	7.34×10^{-3}	Mn(NO ₃) ₂	5.00×10^{-2}

Nitric acid concentration : 1.97 mol/L, Density : 1.30 g/mL³, Total mol concentration of nitrate salts : 3.63 mol/L, Total mass concentration of nitrate salts : 285 g/L.

ら廃液温度が 120℃ に達するまで捕集した。その下流においてエアフィルタを用いて粒子状物質を捕集し、さらに 1 mol/L NaOH 水溶液の入ったガス吸収瓶を用いて凝縮しないガス成分を捕集した。加熱容器上部出口からガス冷却管までの間の配管(移行経路という)はテフロン配管を用いて 120℃ に加温した。加熱容器のガス掃気流量は 1 L/min に制御した。廃液温度が 120℃ に到達後は、Fig. 1 には示していないが発生する蒸気を別系統の冷却捕集系に導くことで、沸騰初期段階での蒸発蒸気および移行経路内の積算の沈着質量を切り分けて測定した。

三角フラスコで捕集した凝縮液は、体積、質量、酸濃度を測定するとともに凝縮液中の元素量を ICP-MS 分析により定量した。試験後に移行経路配管内を 1 mol/L HNO₃ 溶液で洗浄し、経路洗浄液として回収し、ICP-MS 分析により定量した。また、エアフィルタについては、硝酸溶液、ペルオキシ二硫酸カリウム・水酸化カリウム溶液に浸漬してエアフィルタに付着した物質を溶解させて回収し、それぞれを ICP-MS 分析により定量した。実験の詳細は、文献 5) を参照されたい。

実際の高レベル放射性廃液では、廃液全体にほぼ均一に溶解している FP の崩壊熱により均一に加熱されると考えられる。電気ヒータにより外部から加熱する小規模な実験と実貯槽の液面での飛沫生成の差異など今後解明する必要がある。

(2) 実験結果

(a) 平均的な移行速度

Figure 2 に平均蒸気流速と難揮発性物質の代表として Cs の経路内洗浄液中および凝縮液中への平均移行速度の関係を示す。エアフィルタおよびガス吸収瓶への Cs の移行は認められなかった。平均移行速度は、洗浄液中の Cs 質量および複数の凝縮液サンプル中の Cs 質量の総和を、それぞれ、沸騰初期段階の継続時間で除して求めた。また、凝縮液の積算値が時間とともに直線的に増加することから、凝縮液がゼロである時刻を推定し沸騰開始時刻とした。上向蒸気流速： j_g は、(26) 式で求めた。蒸気の体積は、各凝縮液サンプルの質量および酸濃度から推定した凝

Fig. 2 Average transfer rate of Cs deposited inner wall of piping and into condensate liquid

縮液中の硝酸および水のモル量を用いて廃液温度と同温の 1 気圧の理想気体を仮定して求めた。蒸気密度： ρ_g は、凝縮水質量： M_i [kg] を蒸気の体積で除して求めた。加熱容器の断面積は A である。

$$j_g = \frac{M_i}{\Delta t \rho_g A} \quad (26)$$

加熱容器内の蒸気を掃気するための 1 L/min の空気は、飛沫同伴には影響ないと判断した。理由は次の 2 点である。掃気はガス吸収ビン下流での吸引排気であるので、掃気の加熱容器内気相部の流れへの影響は容器上部に限定される。また、文献 11) での初速度と飛沫径をパラメータにした臨界粒径以上の飛沫の到達高さに関する解析結果によれば、その高さは約 2 cm が上限であり、これ以上の高さへは上昇することはないと判断した。

Figure 2 からわかるように経路洗浄液中への移行速度は、蒸気平均流速にほぼ比例して増加するのに対して、凝縮液中の移行速度に明瞭な比例関係がみられない。これは、各凝縮液サンプルは、冷却器から流れ落ちる水滴を回収することで得るため、凝縮液質量および Cs 質量のバラ

Fig. 3 Relationship between reduction rate of simulated liquid waste mass and mass fraction of Cs condensate liquid

ツキが経路洗浄液中のCs質量のバラツキに比べて大きくなるためと考えられる。

(b) 廃液の濃縮に伴う凝縮液中Csの質量分率の変化

Figure 3に廃液の濃縮に伴う凝縮液中Csの質量分率の変化を示す。濃縮の尺度として、(27)式で定義する質量減少率： R_r を用いた。 R_{ri} は、凝縮液サンプル質量： M_k ($k=1\sim i$)の積算値を廃液の初期質量： M_0 [kg]で除した値である。

$$R_{ri} = \frac{\sum_{k=1}^i M_k}{M_0} \quad (27)$$

またCsの質量分率は、各凝縮液サンプル中のCsの質量を凝縮液質量で除した値とした。若干のデータのバラツキはあるものの、両者の関係は、蒸気流速への顕著な依存性はみられない。Csの質量分率は濃縮が進むにつれて徐々に増加し、質量減少率が0.5以上では急激な増加に転ずる。増加の原因として、濃縮に伴い廃液の粘性および密度が増加したことによる気液界面近傍での飛沫の個数密度、質量密度(単位気相体積中の飛沫の質量)の増加、あるいは粒径個数分布の変化などが考えられる。

実験では廃液温度が、120℃に達した時点で凝縮液の回収を終了している。多成分硝酸塩水溶液である廃液の沸騰は、蒸発により減少する硝酸および水の質量(凝縮液質量に等しい)から廃液の沸点が決まるため、蒸気の発生速度に関係なく120℃での凝縮液質量は一定であり¹³⁾、実験の各ケースの最終的な質量減少率(グラフ中の各ケースの一番右端のデータ点)は同じでなければならない。ところが、Fig. 3に示すように最終的な質量減少率は蒸気流速が大きくなるほど小さくなっている。このことから、蒸気発生速度が大きい実験ほど多くの凝縮液の回収漏れがあることを示唆している。この理由として、蒸気流速が速いケースでは昇温が速いため、廃液温度が120℃に達した時点で凝縮液の回収を中断することにより120℃未満で発生した

蒸気が回収されなかったためと考えられる。凝縮液の回収漏れが大きくなることで、ケースAに比べて、それ以外のケースではFig. 3の白矢印で示す分だけCsの回収漏れがあることがわかる。次項で回収漏れの補正について述べる。

(3) 経路洗浄液中の回収質量の補正と E_{fg} の算出

(a) 経路洗浄液中の回収質量の補正

III-1-(2)-(b)目で述べたように蒸気流速が速いケースでは昇温が速いために、廃液温度が120℃に達した時点で凝縮液の回収を中断すると回収漏れが生じると考えられる。経路内沈着質量も同様に減少すると考えられ、凝縮液中での回収漏れを以下の考え方で補正した。さらに、Fig. 2に示すように、実験ケースによりバラツキはあるが凝縮液中および経路沈着したCsの最終的な積算質量はおおむね比例していることから、この比例関係をもとに経路洗浄液中の回収質量を補正した。

沸騰中の廃液温度は、蒸発した水および硝酸の量で決まるので、初期廃液質量は同じで、かつ、溶液温度が同じであれば、そのときの蒸発積算質量は同じである¹³⁾。最も蒸気流速が遅いケースAでは回収漏れがなかったと仮定し、他のケースの真の最終凝縮液質量： M_{MAX} はケースAのそれに等しいとし、各ケースの最終積算凝縮液との差が回収漏れ質量であるとする。Fig. 3に示す平均値を関数 $F(R_r)$ とし、(28)式を用いて凝縮液中Csの実際の回収質量と回収漏れを補正した質量との比： Q を求めた。この比が経路沈着質量にも適用できるとして経路洗浄液中のCs質量： M_w を補正した。 n は全データ点数である。

$$Q = \frac{M_{corr}}{\sum_{i=1}^n M_i (F(R_{ri}) + F(R_{ri-1})) / 2}$$

$$M_{corr} = \sum_{i=1}^n M_i (F(R_{ri}) + F(R_{ri-1})) / 2 + \left(M_{MAX} - \sum_{i=1}^n M_i \right) (F(R_{rMAX}) + F(R_{rn})) / 2 \quad (28)$$

補正後の経路沈着Cs質量： M_{wc} は、 $M_w \times Q$ となる。

(b) E_{fg} の算出

沸騰初期段階において一定時間間隔で採取した凝縮液サンプルの質量、それに含まれるCs質量および経路洗浄液中のCs質量をデータ整理の対象とした。

各実験ケースにおいて、ある時間幅($T_i - \Delta t \sim T_i$)で回収する凝縮液質量： M_i [kg]、凝縮液に含まれるCs質量： m_{ai} [kg]、およびこの間の経路内沈着質量： M_{wi} [kg]より

$$x(T_i) \rho_f j_{fe} = (m_i + M_{wi}) / \Delta t$$

$$\rho_g j_g = M_i / \Delta t \quad (29)$$

が求まり、 $E_{fg}(T_i)$ は実験の測定値を用いて以下のように表すことができる。

$$E_{fg}(T_i) \equiv \frac{\rho_f j_{fe}}{\rho_g j_g} = \frac{\rho_f j_{fe} / A}{\rho_g j_g / A} = \frac{(m_i + M_{wi}) / \Delta t}{x(T_i) M_i / \Delta t} = \frac{m_i + M_{wi}}{x(T_i) M_i} \quad (30)$$

ここで、経路内沈着質量： M_{wi} は、凝縮液中の平均的 Cs 質量の比で配分する考え方より (31) 式で求める。

$$M_{wi} = \frac{1}{Q} M_{wc} \quad (31)$$

沸騰初期段階では模擬液初期質量： M_0 に対して m_{ai} が十分に小さいことから Cs の廃液中質量分率： x は、 M_0 および模擬廃液中の Cs の初期質量分率： X_0 をもとに、(32) 式で求められる。

$$x(T_i) = \frac{X_0 M_0}{\left(M_0 - \sum_{k=1}^i M_k\right)} \quad (32)$$

これより、 $E_{fg}(T_i)$ は、(33)式で求められる。

$$E_{fg}(T_i) = \frac{\left(M_0 - \sum_{k=1}^i M_k\right)}{X_0 M_0} \times \frac{m_i + M_{wi}}{M_i} \quad (33)$$

文献 8) に従い $D_c^* \times j_g^*$ に対して E_{fg} を整理する。 D_c^* および j_g^* は、それぞれ、無次元化した臨界飛沫径および上向蒸気流速である。これらの値は、(24) および (25) 式で求めた。 j_g は (26) 式で求めた。模擬廃液の密度： ρ_f 、表面張

力： σ は、それぞれ Fig. 4 および Fig. 5 に示す実測値⁵⁾を近似した式を用いて求めた。近似式は、廃液体積減少率 (模擬廃液初期体積から凝縮液体積の積算値を差し引いた値を模擬廃液初期体積で除した値) の多項式である。蒸気は硝酸と水蒸気の混合気体である。文献 14) には、硝酸蒸気の粘性係数の 100℃ での推定値として $1.37 \times 10^{-5} \text{ Pa} \cdot \text{sec}$ が示されている。水蒸気の 100℃ での値は $1.23 \times 10^{-5} \text{ Pa} \cdot \text{sec}$ である¹⁵⁾。文献 14) に示されている粘性係数の温度依存性 (線形性) を考慮し、Wilke の方法¹⁶⁾を用いて両者のモル分率をもとに混合気体の粘性係数を算出した。Fig. 3 に示すように質量減少率が 0.5 以上では、凝縮液中に移行した Cs が急激に増加することから、ここでのデータ整理から除外した。Fig. 6 に E_{fg} と $D_c^* j_g^*$ および j_g の関係を、データ整理の対象とした複数のデータ点の平均値および正規分布を仮定したときの $\pm 2\sigma$ のバラツキ幅とともに示す。

2. 実廃液を用いた実験

文献 4) には実廃液 (400 mL, 硝酸濃度: 1.8 mol/L) を

Fig. 4 Relationship between density of liquid waste and reduction rate of simulated liquid waste volume

Fig. 5 Relationship between surface tension of liquid waste and reduction rate of simulated liquid waste volume

(a)

(b)

Fig. 6 Relationship between E_{fg} and dimensionless critical droplet diameter multiplied by dimensionless vapor velocity; $D_c^* j_g^*$ and vapor velocity; j_g

用いた沸騰実験(CEA 実験という)での Ru および Cs の移行割合を実測した結果が示されている。実験装置の基本的な構成は Fig. 1 と同様である。Fig. 7 に文献 4) に掲載された図から読み取った Cs および Ru の凝縮液中の積算移行割合の経時変化を示す。Fig. 8 に凝縮液および凝縮液中の硝酸モル量の経時変化を示す。模擬廃液を用いた実験と同様に CEA 実験でも廃液体積が半分程度に減少すると Cs 等の凝縮液への移行が急激に増大する傾向がある。したがってこの実験のデータ整理の対象も廃液の減少率が 0.5 未満の時間帯を対象とする。

(1) Cs 移行質量

文献 4) によれば、最終的な Cs の移行割合は、凝縮液に 1.12×10^{-5} 、経路洗浄液等に 0.33×10^{-5} 、合計で 1.45×10^{-5} であったとしている。そこで III-1-(3)-(a) で仮定した「凝縮液中および経路沈着した Cs の最終的な積算質量は比例する」という仮定をもとに Fig. 7 に示す値を 1.29 倍 ($= 1.45/1.12$) した値を Cs の移行質量とした。

Fig. 7 Rate of distilled activities in boiling experiment with actual liquid waste⁴⁾

(2) 蒸気流速

Figure 8 に示す凝縮液体積および硝酸モル量と硝酸水溶液密度 (20℃を仮定)¹⁷⁾ から水質量を推定した。蒸気速度は、III-1-(2)-(a) で示した方法で求めた。平均蒸気流速は、 1.48×10^{-4} m/sec である。

(3) 廃液密度および表面張力

文献 4) には廃液密度の情報はなく、廃液の組成に関する情報も十分でないため廃液の初期密度は、模擬廃液の密度に等しいと仮定した。その理由は、CEA 実験で用いた実廃液と模擬廃液の沸騰での塩効果が同程度である¹⁸⁾ ことから、廃液中の硝酸に対する硝酸塩量が同程度であると推定されることに拠る。表面張力も同様の理由で模擬廃液のデータを援用した。廃液の沸騰に伴う密度の変化は、廃液体積が初期体積から凝縮液積算体積を差し引いた値に等しいと仮定して求めた。温度上昇による体積膨張は無視した。

Fig. 8 Volume of condensate liquid and amount of distilled HNO_3 in boiling experiment with actual liquid waste⁴⁾

Fig. 9 Relationship between dimensionless critical droplet diameter multiplied by vapor velocity D_{c,j_g}^{*} and E_{fg}

3. $D_c^* j_g^*$ と E_{fg} の関係

Figure 9 に $D_c^* j_g^*$ と E_{fg} の関係を模擬廃液の結果とあわせて示す。文献 8) では、飛沫同伴率は、蒸気流速の累乗に比例するとしているので、Fig. 9 に累乗近似した線分を示す。Fig. 9(b) の線型軸のグラフから、模擬廃液のデータ点の近似として累乗近似がおおむね妥当であると判断される。

IV. 相関式の導出

Figure 9 に示す近似式のべき乗は 0.672 であるが 0.667 (=2/3) とすれば、近似式は、飛沫同伴率が蒸気流速に比例することを示唆する (23) 式と等価になり、 $D \leq D_c$ について (34) 式が得られる。べき乗を 0.667 としたときの近似式の係数：0.0695 は 0.0658 になる。

$$E_{fg}(h, j_g, D_c) = E_0(D_c, j_g) = 0.0658 (D_c^* j_g^*)^{2/3} \quad (34)$$

(34) 式に (24) および (25) 式を代入すると粒径が D_c 以下の飛沫の同伴率として (35) 式が得られる。

$$\begin{aligned} E_{fg}(h, j_g, D_c) &= 0.0658 (D_c^* j_g^*)^{2/3} \\ &= 0.0658 \left(\sqrt{\frac{g \Delta \rho}{\sigma}} \right)^{2/3} \left(\frac{\rho_g^2}{\sigma g \Delta \rho} \right)^{1/6} (D_c j_g)^{2/3} \\ &= 0.172 \left(\frac{1}{\sigma} \right)^{1/2} (\mu_g \rho_g)^{1/3} \left(\frac{1}{g \Delta \rho} \right)^{1/6} j_g \quad (35) \end{aligned}$$

上式は飛沫同伴率が蒸気流速に比例することを表す。Fig. 2 に示す廃液の質量減少率に対する Cs の凝縮液での質量分率が直線的に変化する 0.0~0.4 の中間を平均的な状態と仮定し、廃液の質量減少率を 0.2 とした場合の (35) 式の係数を求めると、 2.16×10^{-3} となり、Fig. 6(b) の近似式の傾き： 2.31×10^{-3} とほぼ同じ値になり、(35) 式の妥当性が確認できる。(35) 式は、廃液質量減少率が 0.5 未満の間の飛沫同伴率の平均値に対して求めた式である。Fig. 3 からわかるように、飛沫同伴率は蒸気流速が一定でも徐々に増加する傾向がある。このため廃液質量減少率の増加に伴い係数の 0.169 が変化することに注意を要する。

V. 飛沫同伴率および ARR の概算

廃液質量減少率： R_r を用いると (33) 式は、Fig. 3 に示す関数 $F(R_r)$ を用いて (36) 式のように表すことができる。 $F(R_r)$ は凝縮液中の Cs の質量分率であるから経路沈着分および両者の回収漏れを補正する必要があり、 K はそのための補正係数である。

$$E_{fg}(R_r) = \frac{K}{X_0} (1 - R_r) F(R_r) \quad (36)$$

ARR は、(3) 式に (36) 式を代入して (37) 式で表すことができる。

$$ARR(R_r) = \frac{\rho_{fc}}{\rho_f} \frac{K}{X_0} (1 - R_r) F(R_r) \quad (37)$$

次に補正係数： K は、蒸気流速： j_g に比例することを示す。Fig. 3 に示すデータ点は、同じ時間間隔で採取した凝縮液サンプルでの Cs の質量分率であるから、その値は凝

縮液への移行速度に比例する。それらの平均値を近似する関数 $F(R_r)$ は、Fig. 2 に示す凝縮液への移行速度の平均値に比例する。Fig. 2 に示す凝縮液への移行速度の平均値は 2.15×10^{-9} g/sec である。一方、回収漏れを補正した総移行速度は、 $1.82 \times 10^{-6} \times j_g$ g/sec で表される。これより、補正係数： K は j_g に比例する値として (38) 式で表すことができる。

$$K = \frac{1.82 \times 10^{-6}}{2.15 \times 10^{-9}} j_g = 8.47 \times 10^2 j_g \quad (38)$$

(36) および (38) 式は沸騰の進展に伴う廃液の濃縮による廃液密度、液面近傍での飛沫生成量などの E_{fg} を決定する因子を関数 $F(R_r)$ として表し、 j_g と E_{fg} の関係を示す式である。一方 (35) 式は (36) 式で R_r が約 0.2 としたときの限定的な E_{fg} と j_g との関係を表しているといえる。

ここで (36)、(37) および (38) 式を用いて飛沫同伴率： E_{fg} および ARR を概算する。概算では、実施設の廃液貯槽での沸騰時の典型的な蒸気速度 (0.012 m/sec, II-2-(1) 項参照) を想定する。(38) 式から K は約 10 である。 ρ_{fc} は、実験での測定結果から約 1.0×10^3 kg/m³ である。 ρ_f は、Fig. 4 の近似式を用いて求めた。近似式に用いる廃液体積減少率： R_v は、(39) 式で求めた。式の根拠は後述する。 X_0 は Table 1 から求めた。概算の結果を Fig. 10 に示す。飛沫同伴率の R_r が 0.5 未満の範囲での変化の平均値と Fig. 6(b) に示す蒸気流速が 0.012 m/sec での推定値はおおむね一致する。また ARR は沸騰初期段階ではおおむね一定であり、その平均値は約 1.7×10^{-5} である。

廃液体積減少率： R_v を表す (39) 式の考え方は、廃液の質量減少量： $M_0 R_r$ が凝縮液積算質量に等しく、それを凝縮液密度： ρ_{fc} で除して求まる体積が廃液体積減少量に等しいとの仮定に基づく。廃液初期体積： V_0 [m³] である。

$$R_v = \frac{M_0}{V_0 \rho_{fc}} R_r = \frac{\rho_0}{\rho_{fc}} R_r \quad (39)$$

Fig. 10 Relationship between reduction rate of simulated liquid waste mass and E_{fg} and ARR in case of vapor velocity at 0.012 m/sec

VI. 相関式の利用方法

核燃料施設の放射性物質放出量評価で使われる五因子法での ARF は、事故時に影響を受ける放射性物質の総量に対する気相に移行する放射性物質の総量の割合として定義される。ここでは ARR との関係を考察する。

上述の(37)式が適用可能な期間を T_B とすれば、 ARR の定義から、時刻 t での難揮発性物質 a の移行速度 $m_a(t)$ [kg/sec] は次式で求められる。(40)式中の A は貯槽の液面積である。

$$m_a(t) = \frac{M_0 X_{a0}}{M_0 - \rho_g j_g A t} \times j_g \rho_g A \times ARR(\Delta p(t), \sigma(t)) \quad (t \leq T_B) \quad (40)$$

m_a をエアロゾル発生項として、貯槽内およびその後の移行経路での沈着(LPFの評価)を評価することになる。また、五因子法の定義に準じた沸騰開始から時刻 T までの期間の $ARF(T)$ との関係は、 ARR および $j_g \rho_g$ が沸騰初期段階ではおおむね一定であるので(41)式で表される。これより、 ARF は、沸騰で蒸発した質量に見合った分だけ大きくなる関係にあると解釈できる。

$$\begin{aligned} ARF(T) &= \frac{1}{M_0 X_{a0}} \int_0^T m_a(t) dt \\ &= ARR \times \ln \left(\frac{M_0}{M_0 - \rho_g j_g A T} \right) \quad (T \leq T_B) \quad (41) \end{aligned}$$

VII. ま と め

再処理施設での高レベル廃液の沸騰時において、難揮発性物質が気泡の破裂により生じた飛沫に含まれて蒸発蒸気に伴って気相へ移行すると仮定し、気相への移行率に関わる機構論的な相関式を導出した。

不揮発性物質の気相への移行率を、単位時間当たりに減少する廃液中に含まれる不揮発性物質の量に対する気相へ移行する量の比と定義すると、その値は、飛沫同伴率から求めることができることを示した。データ整理の結果より、飛沫同伴率は蒸気流速におおむね比例し、廃液の濃縮に伴い増大することを示した。

高レベル廃液の沸騰時のような極めて蒸気流速の遅いケースの飛沫同伴率を機構論的に導出する過程に実測データを適用し、高レベル廃液の蒸発乾固事故の沸騰初期段階に適用可能な移行率の相関式を導出した。また、そこでの移行率は、おおむね一定であることがわかった。

[記 号]

A [m ²]	: 流路断面積
$ARR(T)$ [-]	: 移行率((1)式で定義)
D [m]	: 飛沫粒径
D_c [m]	: 飛沫の臨界粒径((13)式で表される)
D_c^* [-]	: 飛沫の無次元臨界粒径((24)式で定義)

E_{fg} [-]	: 飛沫同伴率((2)式で定義)
$E_{fg}(h, j_g)$ [-]	: 気液界面からの高さ h での飛沫同伴率
$E_{fg}(h, j_g, D)$ [-]	: 気液界面からの高さ h での粒径 D 以下の飛沫同伴率
$E_0(D, j_g)$ [-]	: 気液界面での粒径 D 以下の飛沫同伴率
$\dot{\epsilon}(j_g)$ [kg/m ² /sec]	: 蒸気流速 j_g のときの気液界面での飛沫の質量流束
$F(R_r)$ [-]	: 廃液質量減少率に対する凝縮液中 Cs の質量分率の相関(時間とともに増加)
$f(D, j_g)$ [-]	: 蒸気流速 j_g のときの飛沫径 D の分布関数
$g(v_i, D, j_g)$ [-]	: 蒸気流速 j_g のときの飛沫径 D の飛沫の初期速度 v_i の分布関数
g [m/sec ²]	: 重力加速度
h [m]	: 気液界面からの高さ
J_{fe} [m ³ /sec]	: 液滴の体積流量
J_g [m ³ /sec]	: 蒸気体積流量
j_{fe} [m/sec]	: 液滴の流速(= J_{fe}/A)
j_g [m/sec]	: 蒸気流速(= J_g/A)
J_g^* [-]	: 無次元蒸気流速((24)式で定義)
M_i [kg]	: 凝縮液サンプル i の質量
m_i [g]	: 凝縮液サンプル i に含まれる Cs 質量
M_{MAX} [kg]	: 廃液温度が 120℃ の時点での真の最終凝縮液質量
M_0 [kg]	: 廃液の初期質量
M_w [kg]	: 経路洗浄液中の Cs 質量
M_{wc} [kg]	: 補正後の経路沈着した Cs 質量
M_{wi} [g]	: 凝縮液サンプル i 捕集時の経路内沈着した Cs 質量
μ_g [Pa · sec]	: 蒸気の粘性係数
Q [-]	: 凝縮液中 Cs の実際の回収量と回収漏れを補正した量との比
Re_D [-]	: 粒径が D の飛沫のレイノルズ数((10)式で定義)
R_r [-]	: 廃液質量減少率((27)式で定義, 時間とともに増加)
R_{ri} [-]	: 凝縮液サンプル i 採取時の廃液質量減少率
R_v [-]	: 廃液体積減少率(時間とともに増加)
ρ_f [kg/m ³]	: 廃液密度, 飛沫の密度(時間とともに増加)
ρ_0 [kg/m ³]	: 廃液密度の初期値
ρ_{fc} [kg/m ³]	: 硝酸および水蒸気の凝縮時体積
ρ_g [kg/m ³]	: 蒸気密度
$\Delta\rho$ [kg/m ³]	: 飛沫と蒸気の密度差

σ [N/m]	: 溶液の表面張力
T [sec]	: 時刻
Δt [sec]	: 凝縮液のサンプリング時間幅
V_0 [m ³]	: 廃液の初期体積
v [m/sec]	: 飛沫の絶対速度
v_r [m/sec]	: 飛沫の蒸気に対する相対速度
v_{∞} [m/sec]	: 飛沫の終端速度 ((12) 式で表される)
$v_h(D, j_g, h)$ [m/sec]	: 粒径 D の飛沫が高さ h に到達するための初速
v_i [m/sec]	: 飛沫の初速
X_0 [—]	: 廃液中の Cs の初期質量分率
x [—]	: 廃液中の着目物質の質量分率 (時間とともに増加)

— 参考文献 —

- 1) *Proc. Workshop on Risk-informed Activities for Nuclear Fuel Cycle Facilities*, (2008), [in Japanese].
- 2) K. Miyata, K. Takebe, Y. Tamauchi *et al.*, “Application of probabilistic safety assessment to Rokkasho Reprocessing Plant, (II) The occurrence frequency of boiling accident of highly active liquid waste,” *Trans. At. Energy Soc. Jpn.*, **7**[2], 85–98 (2008), [in Japanese].
- 3) K. Yoshida, K. Hayashi, “Research on consequence analysis method for probabilistic safety assessment of nuclear fuel cycle facilities (II)—Basic experimental data aerosol release fraction and trial analysis in boiling event of radioactive solution—,” *Trans. At. Energy Soc. Jpn.*, **9**[1], 60–70 (2010), [in Japanese].
- 4) M. Philippe, J. P. Mercier, J. P. Gue, “Behavior of ruthenium in the case of shutdown of the cooling system of HLLW storage tanks,” *Proc. of 21th DOE/NRC Nucl. Air Cleaning Conf.*, San Diego, CA, Aug., 1990, NUREG/CP-0116, **2**, 831–843 (1990).
- 5) Proj. Mgt. Gr. of Study on Release and Transport of Radioactive Materials in Reprocessing Plant, *Report of Study on Release and Transport of Radioactive Materials in Reprocessing Plant* (2014), [in Japanese, available in National Diet Library].
- 6) https://www.nsr.go.jp/disclosure/meeting/REP/data/20140610_01shiryo_04.pdf
- 7) SAIC, *Nuclear Fuel Cycle Facility Accident Analysis Handbook*, NUREG/CR-6410 (1998).
- 8) I. Kataoka, M. Ishii, *Mechanistic Modeling and Correlations for Pool-Entrainment Phenomenon*, NUREG/CR-3304 (1983).
- 9) Japan Nuclear Fuel Limited, *Application for Designation of Reprocessing Business* (1989) (revised in 1996, 2001, and 2004), [in Japanese].
- 10) G. C. K. Yeh, N. Zuber, *On the Problem of Liquid Entrainment*, ANL-6244 (1960).
- 11) K. Yoshida, *Development of Entrainment Correlation for Very Low Gas Velocity*, JAEA-Research 2010-047 (2010), [in Japanese].
- 12) K. Yoshida, S. Tashiro, Y. Amano *et al.*, “Development of Ru transfer rate correlation to vapor phase in accident of evaporation to dryness by boiling of reprocessed high level liquid waste,” *Trans. At. Energy Soc. Jpn.*, **13**[4], [in Japanese, to be published].
- 13) J. Ishikawa, K. Kido, K. Yoshida, “Development of simulation tool for boiling event of reprocessed radioactive liquid waste,” *Trans. At. Energy Soc. Jpn.*, **12**[2], 165–174 (2013), [in Japanese].
- 14) K. Yoshida, J. Ishikawa, *Estimation of Thermodynamic Properties of Gases Affecting Aerosol Transport Behaviors in Boiling Accident of Reprocessed Liquid Wastes at Fuel Reprocessing Facilities*, JAEA-Research 2013-013 (2013), [in Japanese].
- 15) The Japan Society of Mechanical Engineers, *JSME Steam Tables* (1980).
- 16) B. E. Poling, J. M. Prausnitz, J. P. O’Connell, *The Properties of Gases and Liquids 5th Ed.*, McGraw-Hill, New York, Chapter 9 (2005).
- 17) J. H. Perry, C. H. Chilton, Ed., *Chemical Engineer’s Handbook, 5th Ed.*, McGraw-Hill, New York, Chapter 3 (1974).
- 18) K. Yoshida, H. Abe, *Proposal of Estimation Method for Liquid/Vapor Equilibrium of Multicomponent Nitrate Solution*, JAEA-Research 2014-001 (2014), [in Japanese].