587. 活性炭遅延ベッドの過渡応答解析

遊佐英夫*, 安藤康正**,
神谷九二男*, 村田寿典*

(1973年 2月2日 受理)

(1973年 5月19日 再受理)

Transient Response Analysis of the Activated Charcoal Delay Bed

By Hideo YUSA, Yasumasa ANDO,
Kunio KAMIYA and Toshifumi MURATA

The activated charcoal delay bed system is today installed in several BWR power stations, in view of the great reduction obtained thereby in the reactor off-gas activity release. In this system, there will be a slow change of noble-gas activity at the outlet of the charcoal adsorber bed, corresponding to the rapid changes of the operational conditions such as off-gas flow rate, charcoal temperature and pressure.

This transient response is theoretically analyzed, taking into account local variations of the noble-gas holdup time in the adsorber bed, and non-equilibrium between dynamic adsorption and desorption. Furthermore, ^{133}Xe activity changes at the adsorber outlet are measured under rapid increase of the gas flow rate and charcoal temperature, using a test plant of actual practical size. From the fairly good agreement obtained between observed and calculated values, the reliability of the proposed theoretical model is confirmed.

KEYWORDS: noble gases, off gases, charcoal adsorber bed, xenon 133, adsorption, desorption, activity release, flow rate, temperature dependence, charcoal, BWR type reactors, transient response, leaks

I. 緒 言

微量の希ガスを含有しているBWRオフガスを活性炭充填層に通気すると、オフガスの主成分である空気に比して沸点の高い希ガスは活性炭に物理吸着されやすいため、活性炭層中で可逆的な吸着と脱着を繰り返しながら流れ方向に沿って徐々に移動する。この遅延効果により放射性希ガスは長時間活性炭層にホールドアップされることになり、この間に放射能が減衰する。

この装置について最初に系統的な研究を行なったのは Browning らであり、1960年頃詳細な基礎実験結果を報告している⁽¹⁾。活性炭層の設計式を提案し、重要な設計基準値である動的吸着平衡係数と理論段数に及ぼす活性炭の種類、温度、圧力、湿度、ガス流速などの影響を明らかにした。しかしながら、当時の発電プラ

ントにおいて希ガスホールドアップ装置を設置する計画は皆無であったため、一部のインパイルループ試験装置に適用されただけで、実用化されるまでには至らなかった。このほか Underhill⁽²⁾や河添⁽³⁾の物質移動に関する理論研究、木谷ら⁽⁴⁾の基礎実験など多数の報告が見られる。

1966年、西ドイツのAEG社が初めてKRB発電所(BWR, 237 MWe)に希ガスホールドアップ装置を設置し、この装置は現在も順調に稼働しているようである。しかしながら、開発研究の状況あるいは運転実績などの詳細についてはほとんど公表されていない。最近、当装置設計の基礎になったと推察される基礎実験

* (株)日立製作所 日立研究所(Hitachi Res. Lab., Hitachi Ltd.)

** 動力炉・核燃料開発事業団(Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corp.)

結果が報告されている⁽⁵⁾。

著者らは1968年に基礎実験に着手して以来、実用規模装置による性能確認試験に至るまでの系統的な開発研究を実施して来た⁽⁶⁾。この成果をもとにして設計、製作された実験装置が、日本原子力発電敦賀炉、東京電力福島1号、2号炉に設置され、現在順調な運転が続けられている。

以上述べた従来の研究開発において、未検討のまま残されている重要な問題の1つに過渡応答解析がある。すなわち、オフガス流量、活性炭層温度、ガスの湿度などが急激に増加すると、活性炭の希ガスホールドアップ性能が低下し、吸着層出口の希ガス放射能が増加することになる。この応答は極めてゆっくりとしており、しかも複雑である。希ガスホールドアップ装置は、原子力プラントの安全対策装置であるがゆえに、定常運転条件下における性能だけでなく、何らかの原因により操作条件が変化して性能が低下した場合の環境に及ぼす影響も明らかにしておくことが、今後実用化が進むにつれてますます要求されるようになるであろう。

本報では、実用規模の試験装置を用いて上記過渡応答現象を測定し、この結果を充分説明することのできる理論解析の手法を見出すことを試みた。

Ⅱ. 実用規模試験装置

著者らは約3年間にわたって行なった基礎実験の結果を実機設計に適用するに当って、その妥当性を確かめておくために動力炉・核燃料開発事業団の委託研究

費を受けて、実用規模の試験装置を試作した⁽⁶⁾。以下この装置を要約して述べる。

装置の概略フローシートを Fig. 1 に、外観写真を Photo. 1 に示す。また、Table 1 に装置の主な仕様を示す。圧縮機からの空気は、冷却器により5℃に冷却された後、水分離器において粗除湿される。さらに、モレキュラシープ脱湿塔を経て露点-70℃に乾燥される。ブロウにより加熱器、脱湿塔、冷却器、水分離器を通る閉回路に空気を循環させることによって脱湿塔を再生する。1.7 t の国産活性炭が充填された吸着塔は、冷凍機からの冷媒によって平均温度が0℃になるように冷却される。活性炭吸着塔の希ガスホールドアップ性能を調べるために、半減期5.3日の¹³³Xeを含む試料ガスをステップ状に導入し、吸着塔出口における放射能をガスフローカウンタによって測定する。

Fig. 1 Flow diagram of the test plant

実用規模の活性炭吸着層について、定常状態での希ガスホールドアップ性能は、次の簡便設計式により見

Photo. 1 External view of the test plant

Table 1 Principal specifications of test plant

1. Charcoal adsorber bed	
Size of activated charcoal (mesh)	4~6
Amount of charcoal (t)	1.7
Diameter of bed (m)	1.4
Height of bed (m)	2.5
Bulk density of bed (t/m ³)	0.45
Mean temperature of bed (°C)	0
Superficial gas velocity in bed (cm/sec)	0.22
2. Normal inlet gas conditions	
Flow rate of air (Nm ³ /hr)	12
Pressure (atm)	1
Temperature (°C)	0
Dew point (°C)	-70
Stable Xe conc. in air (ppm)	0.1
¹³³ Xe activity (mCi/Nm ³)	0.2

積られる⁽⁶⁾。

$$C_L = C_0 \exp(-\lambda t_{m_0}) \quad (1)$$

$$t_{m_0} = K_0 M / F_0 \quad (2)$$

ここに、 C_L : 吸着層出口の放射能(cpm)

C_0 : 吸着層入口の放射能(cpm), いまの場合3,900

λ : 着目希ガスの崩壊定数(hr⁻¹), ¹³³Xeの場合 5.5×10^{-3}

t_{m_0} : 活性炭吸着層の希ガスホールドアップ時間(hr)

K_0 : 動的吸着平衡係数(m³/t)

M : 活性炭重量(t), いまの場合1.7

F_0 : ガス流量(m³/hr), いまの場合12

上式において、 K_0 がいわば設計基準値であり、活性炭の種類、温度、圧力、活性炭含水率などに依存する。これらの関係は基礎実験により正確に求めておいた⁽⁶⁾。Table 1に示した条件下での K_0 の値は2,200である。

(2)式より t_{m_0} を計算すると312 hrになり、この値を(1)式に代入して C_L を計算すると650 cpmとなる。一方、測定値の方は600 cpmであり、両者はよく一致した。

Ⅲ. 過渡応答試験結果

前述の実用規模試験装置を用いて2ケースの過渡応答試験を行なった。まず、冷凍機からの冷媒の流れを

停止すると、活性炭層の温度は徐々に増加し、平均温度0°Cから約6日後に平衡値の15°Cに達した。

次に、温度15°Cの条件下でガス流量を12から24Nm³/hrにステップ状に増加させた。以上の温度ならびに流量変化に対応する、吸着層出口における¹³³Xe放射能の時間変化を測定した。Fig. 2にその試験結果を示す。図中、実線が実測値、○印が後述の理論解析によって求めた計算値である。図の(a)は温度上昇時、(b)は流量増大時の放射能変化である。前者の場合には希ガスの脱着が起るので、一度最大値を経て平衡値に落ち着いている。

Fig. 2 Transient response test result

Ⅳ. 理論解析

希ガスホールドアップ装置において操作条件が急変すると、吸着層内での希ガスの進行速度が場所的にも時間的にも変化する。また、希ガスの吸、脱着量の平衡関係が崩れる。前述の流量増大時の場合のように、条件変化がステップ状で、なおかつ希ガスの脱着が起らない場合には解析が比較的簡単である。一方、温度上昇時の場合には、条件変化がステップ状でなく、しかも場所的に不均一な上昇をするので、希ガス進行速度が複雑な変化をする。その上、このような場合には活性炭からの希ガスの脱着が起るので、ますます解析が困難になる。ここでは、以上の2ケースについて別々に計算式の導出を試みる。

1. 条件変化がステップ状で希ガス脱着のない場合
解析モデルをFig. 3に示す。流量急変により、活性炭吸着層における希ガス進行速度が、 U_0 より U_1 にステップ状に変化したものとする。条件変化後 t hrの吸着層出口放射能を求めてみる。出口より l の距離にある希ガスが、 t hr後に検出されるものとする。 L を全長とすると、長さ $L-l$ の吸着層における希ガス進行速度は U_0 であり、長さ l での速度は U_1 であるから、それぞれの位置での希ガスホールドアップ時間は、 $(L-l)/U_0$ および l/U_1 となる。入口放射能を C_0 とすると、出口より l の位置での放射能は $C_0 \exp\{-\lambda \cdot (L-l)/U_0\}$ であり、出口に達するまでにさらに $\exp\{-\lambda \cdot l/U_1\}$ だけ減衰することになる。

Fig. 3 Theoretical model of the special case
(Case of stepwise change of operational conditions, and no noble gas desorption)

したがって、条件変化後 t hrの吸着層出口放射能は次式で与えられる。

$$C_t = C_0 \exp\left\{-\lambda\left(\frac{L-l}{U_0} + \frac{l}{U_1}\right)\right\} \quad (3)$$

定義から $l/U_1 = t$ であるから、これを(3)式に代入して l を消去すると次式が得られる。

$$C_t = C_0 \exp\left\{-\lambda\left(\frac{L-U_1 t}{U_0} + t\right)\right\} \quad (4)$$

ただし、上式は $t \leq L/U_1$ の範囲で成立する。 $t > L/U_1$ での吸着層出口放射能は、次式で与えられるような平衡値になる。

$$C_L = C_0 \exp\left(-\lambda \frac{L}{U_1}\right) \quad (5)$$

(4),(5)式中の U_0 , U_1 は次のようにして求められる。前述の(2)式において、 t_m , M , F_0 は次式のように書き換えることができる。

$$t_m = L/U_0 \quad (6)$$

$$M = L S \rho \quad (7)$$

$$F_0 = u_0 S \quad (8)$$

ここに、 S : 活性炭吸着層断面積(m^2),

いまの場合 1.54

ρ : 活性炭吸着層充填密度(t/m^3),

いまの場合 0.45

u_0 : 条件変化前の定常状態における活性炭吸着層内ガス空塔速度(m/hr)

(6)~(8)式を(2)式に代入して U_0 について整理すると、

$$U_0 = u_0 / \rho K_0 \quad (9)$$

同様に U_1 は、

$$U_1 = u_1 / \rho K_0 \quad (10)$$

ここに、 u_1 : 条件変化後の活性炭吸着層内ガス空塔速度(m/hr)

(9),(10)式より希ガス進行速度を求め、これらを(4)式に代入すると、条件変化後の活性炭吸着層出口放射能の時間変化を計算することができる。

2. 一般的な過渡応答の場合

解析モデルをFig. 4に模式的に示す。吸着層を出口より $l_1, l_2, \dots, l_n$ というように微小長さ分割する。

これらの長さは、微小時間 Δt の間に希ガスが進行する距離である。図において、出口より $l_1 + l_2 + \dots + l_n$ の位置に存在していた希ガスが、条件変化後に出口まで到達する時間を t_n と定義する。また、この希ガスの条件変化後の速度を、 $U_n, U_{n-1}, \dots, U_2, U_1$ の微小長さにおいてそれぞれ $U_{n,1}, U_{n-1,2}, \dots, U_{2,n-1}, U_{1,n}$ と定義する。

Fig. 4 Theoretical model of the general case

以上の記号の定義から、次のような関係式が成立する。

$$\Delta t = l_1/U_{1,1} = l_2/U_{2,1} = \dots = l_n/U_{n,1} \quad (11)$$

$$t_1 = l_1/U_{1,1} \quad (12)$$

$$t_2 = l_2/U_{2,1} + l_1/U_{1,2} \quad (13)$$

.....

$$t_n = l_n/U_{n,1} + l_{n-1}/U_{n-1,2} + \dots + l_2/U_{2,n-1} + l_1/U_{1,n} \quad (14)$$

次に、吸着層出口放射能の時間変化を考えてみる。

まず、条件変化後 t_1 hr の活性炭吸着層出口放射能 C_{t_1} を求める。脱着がない場合には、前節の議論と同様にして $C_0 \exp\{-\lambda(L-l_1)/U_0 + \Delta t\}$ で与えられる。一方、脱着による濃度増加分は次のようにして求められる。

ガス相の放射性希ガス濃度を C 、動的吸着平衡係数を K 、活性炭の希ガス吸着量を Q とすると、これらの間には次の関係が成立する。

$$Q = KC \quad \text{もしくは} \quad C = Q/K \quad (15)$$

いま、条件変化によって K が $K'(K > K')$ に変化したとすると、脱着量は $(K - K')C$ である。この脱着に伴うガス相の希ガス濃度増加分は、(15)式と類似の考え方から $(K - K')C/K$ で与えられる。したがって、脱着を考慮した場合の C_{t_1} は次式のように表わされる。

$$\begin{aligned} C_{t_1} &= C_0 \left(1 + \frac{K_0 - K_{1,1}}{K_0} \right) \exp \left\{ -\lambda \left(\frac{L - l_1}{U_0} + \Delta t \right) \right\} \\ &= C_0 \left(2 - \frac{K_{1,1}}{K_0} \right) \exp \left\{ -\lambda \left(\frac{L - l_1}{U_0} + \Delta t \right) \right\} \end{aligned} \quad (16)$$

K の添字は U のそれと同様に定義される。

次に C_{t_2} を求める。出口より $l_1 + l_2$ の位置にあった希ガスが l_1 の位置に達したときの放射能は、上と同様の考え方から、

$$C_0 \left(2 - \frac{K_{2,1}}{K_0} \right) \exp \left\{ -\lambda \left(\frac{L - l_1 - l_2}{U_0} + \Delta t \right) \right\}$$

である。また、吸着層 l_1 において動的吸着平衡係数が $K_{1,1}$ から $K_{1,2}$ に減少することにより脱着が起り、これによる希ガス濃度増加分は

$$C_0 \left(1 - \frac{K_{1,2}}{K_{1,1}} \right) \exp \left\{ -\lambda \left(\frac{L - l_1}{U_0} \right) \right\}$$

である。以上の量が l_1 の長さを $U_{1,2}$ の速度で通過する間に減衰するので、 C_{t_2} は次式で表わされる。

$$\begin{aligned} C_{t_2} &= \left[C_0 \left(2 - \frac{K_{2,1}}{K_0} \right) \exp \left\{ -\lambda \left(\frac{L - l_1 - l_2}{U_0} + \Delta t \right) \right\} \right. \\ &\quad \left. + C_0 \left(1 - \frac{K_{1,2}}{K_{1,1}} \right) \exp \left\{ -\lambda \left(\frac{L - l_1}{U_0} \right) \right\} \right] \exp \left(-\lambda \frac{l_1}{U_{1,2}} \right) \\ &= C_0 \left(2 - \frac{K_{2,1}}{K_0} \right) \exp \left\{ -\lambda \left(\frac{L - l_1 - l_2}{U_0} + t_2 \right) \right\} \\ &\quad + C_0 \left(1 - \frac{K_{1,2}}{K_{1,1}} \right) \exp \left\{ -\lambda \left(\frac{L - l_1}{U_0} + t_2 - \Delta t \right) \right\} \end{aligned} \quad (17)$$

同様に一般に C_{t_n} は、

$$\begin{aligned} C_{t_n} &= C_0 \left(2 - \frac{K_{n,1}}{K_0} \right) \exp \left\{ -\lambda \left(\frac{L - \sum_{i=1}^n l_i}{U_0} + t_n \right) \right\} \\ &\quad + C_0 \left(1 - \frac{K_{n-1,2}}{K_{n-1,1}} \right) \exp \left\{ -\lambda \left(\frac{L - \sum_{i=1}^{n-1} l_i}{U_0} + t_n - \Delta t \right) \right\} \\ &\quad \vdots \\ &\quad + C_0 \left(1 - \frac{K_{2,n-1}}{K_{2,n-2}} \right) \exp \left\{ -\lambda \left(\frac{L - l_1 - l_2}{U_0} \right. \right. \\ &\quad \left. \left. + \frac{l_2}{U_{2,n-1}} + \frac{l_1}{U_{1,n}} \right) \right\} \\ &\quad + C_0 \left(1 - \frac{K_{1,n}}{K_{1,n-1}} \right) \exp \left\{ -\lambda \left(\frac{L - l_1}{U_0} + \frac{l_1}{U_{1,n}} \right) \right\} \end{aligned} \quad (18)$$

以上、(16)式により C_{t_1} を、(17)式により C_{t_2} を、というように出口から入口に向かって計算を進めるようにする。

V. 実測値と計算値との比較検討

1. 流量変化

前述の(4)式により C_t を計算する。式中、 $C_0 = 3,900$ cpm, $\lambda = 5.5 \times 10^{-3}$ hr $^{-1}$, $L = 2.5$ m である。

U_0 と U_1 はそれぞれ(9)、(10)式より求められる。式中、 $\rho = 0.45$ t/m 3 , $u_0 = 7.8$ m/hr, $u_1 = 15.6$ m/hr, $K_0 = K_1 = 1,400$ m 3 /t である。

以上を代入すると、(4)式は

$$C_t = 3,900 \exp(5.5 \times 10^{-3} t - 1.1) \quad (19)$$

ただし、上式は $t \leq L/U_1 = 100$ hr の範囲で成立する。これ以上の時間では、(5)式で与えられるような定常値 C_L になり、計算値は 2,350 である。計算値を実測値と比較して前述の Fig. 2 に示しておいたが、両者はよく一致している。

2. 温度変化

前述の(16)~(18)式により C_{t_1} , C_{t_2} , ..., C_{t_n} を計算する。これらの式はコンピュータコード向きの形をしており、 Δt を十分に小さくにとって精度の高い計算を行うことができる。しかし、本報では理論の妥当性を確認することに主眼をおき、 $\Delta t = 48$ hr とかなり大きくとって手計算によって求めることにする。計算を行うには、吸着層温度の時間変化ならびに K の温度依存性を知る必要がある。それぞれの測定結果は Fig. 5 のようである。吸着層温度については、半径方向にも多少の温度分布があるが、この点を考慮すると計算が極めて複雑になるので、ここでは一応半径方向分布を平均化し、Fig. 5(a)のような軸方向分布について解析を進めることにする。Fig. 5(b)の K の温度依存性は基礎実験装置を用いて測定したものである⁽⁶⁾。

Fig. 5 Variation of adsorber bed temperature with time and temperature dependency of K

まず, $C_{1,1}$ を(16)式より計算する。式中, $K_0 = 2,200$ m^3/t , $U_0 = 8.4 \times 10^{-3}$ m/hr である。 l_1 は(11)式によって計算されるが, $U_{1,1}$ が未定なので次のような手順で求める。近似的に $l_1 \div \Delta t$ $U_0 = 0.40$ m とすると, Fig. 5(a)の①曲線を用いて $0 \sim 48 \text{ hr} (= \Delta t)$ での平均温度として約 1°C が求まる。この温度での K 値を Fig. 5(b)より求めると $K_{1,1} = 2,150$ m^3/t であり, したがって $U_{1,1} = U_0(K_0/K_{1,1}) (274/273) = 8.6 \times 10^{-3}$ m/hr となる。(11)式より $l_1 = 0.41$ m が求まる。以上の値を(16)式に代入して $C_{1,1}$ を計算すると850となる。

次に $C_{1,2}$ を計算する。 l_2 を次の手順で求める。近似的に $l_2 \div l_1 = 0.41$ m とすると, $l_1 + l_2 \div 0.82$ m なので, Fig. 5(a)の②曲線を用いて $0 \sim 48$ hr での平均温度を求めると約 2°C である。

この温度での K 値を Fig. 5(b)より求めると, $K_{2,1} = 2,100$ m^3/t であり, したがって $U_{2,1} = 8.9 \times 10^{-3}$ m/hr , さらに(11)式より $l_2 = 0.43$ m となる。(17)式中の $K_{1,2}$ は次の手順で求める。Fig. 5(a)の③曲線において, $48 \sim 96 \text{ hr}$ での平均温度を求めると約 8°C であり, この温度での K 値を Fig. 5(b)より求めると $K_{1,2} = 1,800$ m^3/t である。したがって, $U_{1,2} = 1.1 \times 10^{-2}$ m/hr であり, t_2 を(13)式より計算すると85hr である。以上の値を(17)式に代入して $C_{1,2}$ を計算すると1,200になる。同様に $C_{1,3}$, $C_{1,4}$, ... を計算して Fig. 2 に実測値と比較して示した。吸着層内の半径方向温度分布を無視して $\Delta t = 48 \text{ hr}$ と大きくとり, 大ざっぱな近似計算を行なったにもかかわらず, 計算値はかなりよく実測値と一致している。

VI. 結 論

希ガスホールドアップ装置において, オフガス流量, 活性炭吸着層温度などの操作条件が急変したときの吸着層出口における希ガス放射能の時間変化を計算するための理論解析, ならびに理論の妥当性をチェックするための実験を行なった。

- (1) 条件変化がステップ状で, なおかつ希ガスの脱着が起らない場合には解析が簡単で, 活性炭吸着層における希ガス進行速度の変化のみを考慮した Fig. 3 に示したモデル 1 が使用できる。吸着層出口での希ガス放射能の時間変化の計算式は(4)式のようになる。
- (2) 上記以外の一般的な過渡応答では, 希ガス進行速度の変化ならびに希ガス脱着の両者を, 微小時間, 微小長さに区切った領域で求めるようにし, 吸着層の出口より入口に向かって計算を進める Fig. 4 のモデル 2 を用いた。計算式は(16)~(18)式のようなものである。
- (3) 活性炭充填量 1.7 t の実用試験装置を用いて, 流量増大時および温度上昇時の過渡応答を測定した。前者についてはモデル 1 による計算, 後者についてはモデル 2 による計算を行なった。

計算値と実測値はよく一致し, 特にモデル 2 による計算では半径方向の温度分布を無視し, 時間区分を大きくとるような近似を行なったにもかかわらず, 実測値の傾向とかなりよく一致し, 理論の妥当性を立証することができた。

今後は, 計算式をコード化し, BWR 発電所に設置されている実用装置について挙動解析を行い, 装置の信頼性向上に努めたいと考えている。

— 参 考 文 献 —

- (1) BROWNING, W.E., ADAMS, R.E., ACKLEY, R.D.: TID-7593, (1961).
- (2) UNDERHILL, D.W.: NYO-84-8, (1967).
- (3) 河添邦太郎: 化学工学, 31[4], 354~358 (1967).
- (4) KITANI, S., et al.: J. Nucl. Sci. Technol., 2[2], 51~56 (1965).
- (5) FÖRSTER, K.: Kerntechnik, 13[5], 214~219 (1971).
- (6) 村田寿典: 空気清浄, 10[2], 55~62 (1972).