

## J-PARC リニアックにおける冷却水への微量金属混入の調査 INVESTIGATION FOR TINY METAL CONTAMINATION OF WATER COOLING SYSTEM IN J-PARC LINAC

菅沼和明<sup>#</sup>, 廣木文雄, 伊藤崇, 山崎良雄  
Kazuaki Suganuma<sup>#</sup>, Fumio Hiroki, Takashi Ito, Yoshio Yamazaki  
Japan Atomic Energy Agency

### Abstract

In the past, water flow decreased at water cooling system in J-PARC Linac. Contamination get mixed in cooling water. The problem was resolved by changing the system of the circulation pumps and reducing the tiny metal in water cooling system. However, suppression of occurring tiny metal is unresolved. The tiny metal is the unique problem of accelerator. It is caused by heavy using oxygen free copper and phosphorus deoxidized copper. The two copper is used for the part of accelerator and purified water. The object of the report is investigation of tiny metal contamination of water cooling system in J-PARC Linac.

### 1. はじめに

J-PARC リニアック[1]の冷却水システムは、流量変動が発生し、安定運転の妨げになっていた。2018年の日本加速器学会年会の発表[2]では、冷却水の汚濁が流量変動を引き起こす原因であることを突き止め、循環ポンプの仕様変更と冷却水の汚濁を低減する対策を実行し、流量変動を収束させた事を報告している。しかしながら、汚濁の発生源の抑制は未解決である。これまでの調査から、汚濁は微量金属の混入で、冷却水に精製水を使用することによる無酸素銅への浸食と腐食によって起こることが判明している。hungry water とも呼ばれる精製水(純水、イオン交換水を含む)の使用による無酸素銅への浸食と腐食に関する文献は少なく、精製水を使用し無酸素銅を多用する、加速器の特有の問題かもしれない。加速器に使用する冷却水は、放射線の影響を抑えるために不純物を極力排除した精製水を使用している。一方、加速空洞及び電磁石を製作する部材には、伝熱に優れている銅の使用や加工精度に優れている鉄を多用している。また、加速器は高電圧、大電流を使用する必要があり、工業用水や水道水の使用では、安定運転へのリスクが伴う。一般的な設備の冷却水に銅を使用する場合、防食剤を使用することで、腐食を抑制できるが、前述したとおり、加速器は、放射線場、高電圧の環境であり防食剤の使用が制限される。本報告では、J-PARC リニアック冷却水設備における微量金属混入の調査について進捗を報告する。

### 2. 冷却水設備への微量金属の混入

2006年9月に運転を開始したJ-PARCリニアックの冷却水設備の設備名称RI4において、冷却水循環経路にある電磁石の冷却水流量が徐々に減少していることに気づいた。2016年6月に一部の電磁石の冷却水配管の両端を開放し、配管内に圧縮空気を送ったところ、黒く汚れた冷却水が出てきた。流量低下が起きるのは、最も流量が絞られている特定の電磁石のみである。この汚れを

発見以降、夏のメンテナンス時に定期的に圧縮空気を送る作業を実施し配管内の清掃をおこなっている。Figure 1に2016年6月当時撮影した作業写真を示す。作業付近の床は黒く汚れており、圧縮空気によって配管内から排出された冷却水の汚濁の状況が確認できる。筆者らは配管清掃後の排出された汚濁水をバケツに集めて保管したところ比重の違いによる沈殿物が現れたため、沈殿物を乾燥させ分析を試みた。乾燥させた沈殿物をHORIBA製エネルギー分散型微小部蛍光X線分析装置、型式XGT-5000WRにかけたところ、そのほとんどの元素として銅を検出している。同様に粒度測定を実施した。HORIBA製レーザー回折散乱方式、粒度分布測定装置を用いたところ、メジアン径が11.19 $\mu\text{m}$ 、10%粒子径が3.36 $\mu\text{m}$ であった。



Figure 1: Inquiry into contamination of water cooling system.

<sup>#</sup> suganuma.kazuaki@jaea.go.jp

### 3. 銅の腐食の予備調査

銅の腐食が我々の使用する冷却水で本当に起こるのか確認するため、リニアック冷却水設備の設備名称 RI4 を含めたリニアック全ての冷却水設備に使用している精製水(イオン交換水)を用いて、銅の腐食の予備調査を実施した。設備名称 RI4 の運転水温である 27°C に設定した恒温槽内で、銅のテストピースを冷却水に浸漬し、攪拌しながら 1 ヶ月間保持した。Figure 2 に試験装置の概略図を、Fig. 3 に 1 ヶ月後の銅のテストピースを示す。ほんの 1 ヶ月間冷却水に浸ただけで銅のテストピースの表面は変色している。酸化膜に覆われていると考えられる。

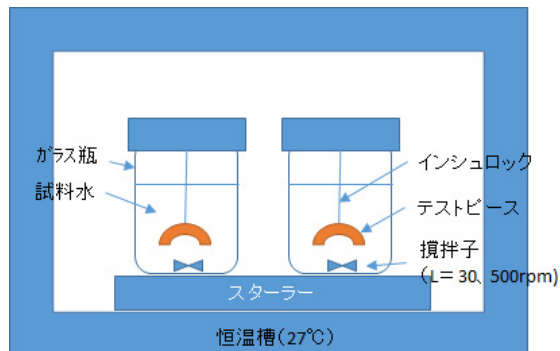


Figure 2: Schematic view of corrosion test system.

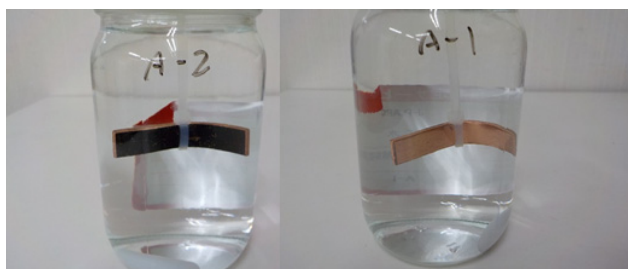


Figure 3: Corroded copper plate.

### 4. 糸巻きフィルターによる汚濁の捕捉

#### 4.1 汚濁の捕捉と状況観察

2017 年 4 月から汚濁状況を調べるために、RI4 系の循環系路内に低流量ラインの糸巻きフィルターを新設し、フィルターに汚濁を捕捉の後、定量分析をおこなっている。粒度測定の結果から、汚濁の捕捉に使用するフィルターは 3M 製の D-PPPY 糸巻きフィルターとし、フィルターは積算流量を記録し 1 ヶ月に 1 度交換している。取り外した使用済みのフィルターは酸洗し、その溶液で ICP 発光分光分析をおこなっている。

#### 4.2 汚濁の除去による水質改善の試み

Figure 4 に 2017 年 4 月から現在までの ICP 発光分光分析によって得られた銅の数値を時系列で示す。2017 年 4 月から 2018 年 8 月までの糸巻きフィルターに捕捉された銅は数値の変動がそれほど無い。これは、冷却水

循環経路にある銅の配管表面に析出する酸化銅の発生量と捕捉される量が同じであることが考えられる。この結果から、析出した酸化膜は、冷却水中に浮遊しており、銅粒子が研磨剤となって、酸化膜をはぎ取り、一定量冷却水中を浮遊していると考えられる。また、酸化膜が剥がれた表面には新たな酸化膜が析出していると考えられる。2017 年の夏に浮遊物を除去する目的で浄化ラインに全体流量の 5% 程度の流量にフィルターを新設し、2018 年 5 月から積極的にフィルター交換を実施している。Figure 5 に新設した浄化ラインのフィルターの交換風景を示す。Figure 4 に戻るが、2017 年夏以降は、数値が一旦上昇したが、その後 1/4 程度の数値に落ち着いている。鉄は 2016 年の冷却水ポンプの損傷によって冷却水中にまき散らした後の冷却水中の残留物である。

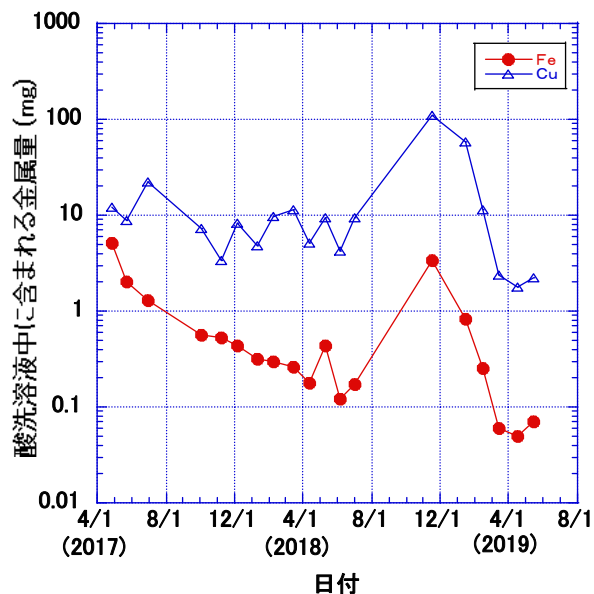


Figure 4: Rate of copper dissolved in diluted nitric acid.



Figure 5: Replace a filter of RI4 water cooling system in J-PARC Linac.



Figure 6 に設備名称 RI4 の冷却水流量と時間の関係を示す。示した記録は、2015年11月15日から及び2019年6月1日からの、それぞれの冷却水流量と時間の関係である。2015年は、緩やかに流量が減少する現象があったため、週に1回程度、流量調整をおこなっていた。この調整ため流量が上昇している。長い期間このような流量調整と流量減少が続いていた。Figure 7 に冷却水流量とフィルターに捕捉された銅の量を示す。冷却水が停止している夏の期間に銅の量が上昇していると考えられる。冷却水が滞留することで酸化膜が析出する速度が上昇するのかもしれない。2018年6月を見ると冷却水中の銅の量が10 mg以下となっており、流量変動も落ち着いている。2018年7月からの夏のメンテナンス期間に銅の量が増えており、流量変動も大きい。

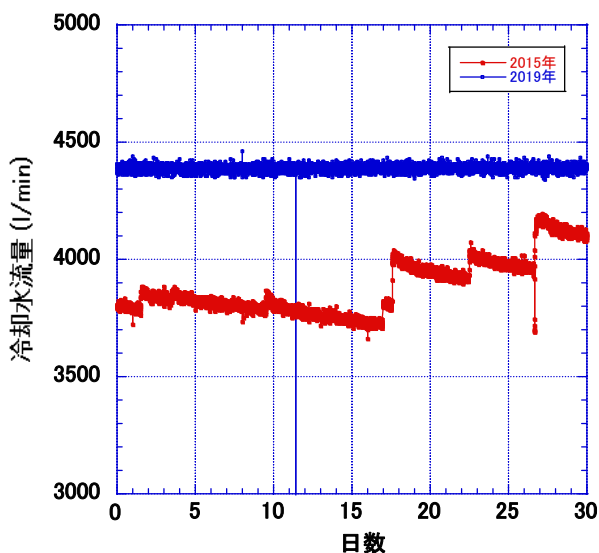


Figure 6: Water flow rate of RI4 water cooling system in J-PARC Linac.

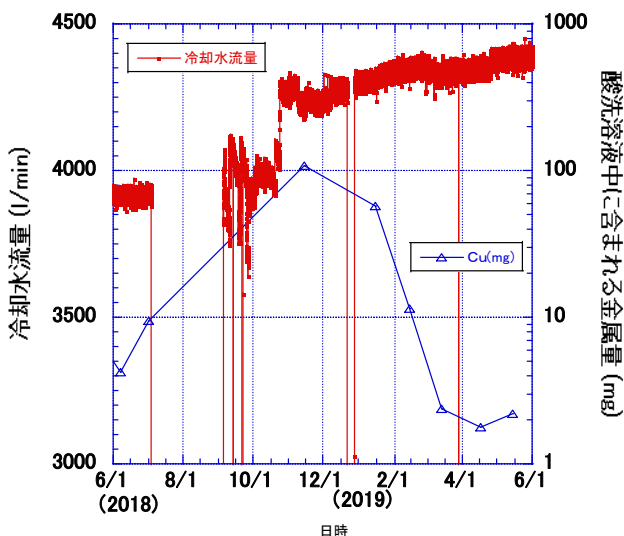


Figure 7: Water flow rate of RI4 water cooling system and rate of copper dissolved in diluted nitric acid.

その後、冷却水中の銅の量が減少するにつれて、冷却水の変動も落ち着いている。単純に冷却水中の銅の量がポンプのインペラに比重として影響しているのかもしれない。2019年6月からは非常に安定した冷却水流量になっている。

## 5. 今後の進め方

銅の腐食の発生源抑制要因探求のための新たな試験装置を製作中である。この試験装置を用いて冷却水中の溶存酸素濃度を任意の値に制御し銅の腐食の進み具合を確認する予定である。新しく銅の腐食確認用サンプルに銅の薄膜を使用することで、腐食の進行を時間の関数に関連させる提案をしたい。出力された値を用いて統計手法を用いて銅の溶存酸素濃度毎の冷却水への耐腐食性を整理してみる。具体的には、ワイブル解析を用いて銅の腐食の進行を、銅の寿命に置き換えて整理、評価する予定である。

## 6. まとめ

J-PARC リニアック冷却水設備の設備名称 RI4 において微量金属の混入がある。この微量金属は冷却水流量の変動を引き起こし、過去に安定運転の妨げになっていた。冷却水に混入する微量金属は銅であり、メジアン径が10ミクロン程度の粒子である。冷却水に精製水を使用することによる無酸素銅への浸食と腐食によって起こる。微量金属の定量分析及び微量金属の除去の目的で、冷却水の経路にそれぞれ中空糸フィルターを設置し金属粒子を捕獲し、定期的に定量分析及び金属除去をおこなっている。経路への中空糸フィルターの追加設置で冷却水に浮遊する微量金属は減少傾向にある。今後、発生源抑制の為の試験及び対策をおこなう予定である。

## 謝辞

冷却水への微量金属混入の調査にあたっては、J-PARC 加速器ディビジョン長 長谷川和男様、J-PARC 加速器副ディビジョン長 金正倫計様にご助言を頂きました。御礼申し上げます。銅の腐食の予備調査を実施するにあたって、株式会社環境測定サービスの大家幹仁様、国井和博様のご協力を頂きました。御礼申し上げます。フィルターの設置、交換、回収にあたっては、J-PARC 施設工務セクションの鈴木博様、本田智幸様にご協力を頂きました。御礼申し上げます。新しい腐食試験装置の製作に関しては J-PARC 施設工務セクションの関山喜雄様にご協力を頂きました。御礼申し上げます。

## 参考文献

- [1] 山崎良成, "Accelerator technical design report for J-PARC", KEK-report 2002-13(2002).
- [2] K. Suganuma *et al.*, "J-PARC リニアック加速空洞用冷却水設備の現状 2018", Proceedings of the 15th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, Nagaoka, Japan, Aug. 7-10, 2018, pp. 309-311.