

平成 30 年 5 月 25 日現在

機関番号：82118

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2017

課題番号：25400307

研究課題名(和文) J-PARCニュートリノビームラインの放射化水処理の研究

研究課題名(英文) Study of radioactive water management in J-PARC neutrino beamline

研究代表者

大山 雄一 (Oyama, Yuichi)

大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・素粒子原子核研究所・講師

研究者番号：30213896

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：J-PARCニュートリノビームラインにおいて、電磁ホーンやヘリウム容器を冷却するための冷却水はビームに曝されることにより放射線同位元素が生じる。このうち⁷Beの除去効率を高めることは実験を行うのに不可欠である。2013年から2017年の間にイオン交換樹脂を用いた⁷Beの除去効率は99.99%で、目標に達成した。また、イオン交換樹脂の劣化は見られず、少なくとも5年以上の連続使用に耐えられることが証明された。一方、今後ビーム強度の増強に伴いイオン交換樹脂通水に使える時間は限られる。ポンプやフィルターの保守方法、イオン交換樹脂通水量増加や複数のタンクの必要性等今後の課題が明らかになった。

研究成果の概要(英文)：In J-PARC neutrino facility, cooling water for beam line instruments are highly radioactivated. To dispose the radioactive water, radioactive source such as ⁷Be should be removed by ion-exchanger. Efficient radioactive sources from water were studied. Using the circulation system for ion-exchangers, the reduction efficiency of ⁷Be was 99.99%. This is good number even when the beam power is increase to 750kW, which is the present goal of the operation. No deterioration of ion-exchanger was found. On the other hand, the time for the ion-exchanger circulation will be limited in future because more frequent disposal of the radio active water is required from the concentration of ³H. It was found that maintenance for pre- and post-filters as well as circulation pump are very important for future upgrade of the beam power, Facility upgrade such as larger flow in the ion-exchanger circulation system and multiple buffer tank will be needed.

研究分野：高エネルギー物理学

キーワード：ニュートリノ J-PARC T2K ビームライン 放射線 ベリリウム 放射化水

1. 研究開始当初の背景

茨城県東海村の J-PARC からニュートリノビームを 295km 離れたスーパーカミオカンデに向けて発射して、ニュートリノ振動について詳しく調べる実験(T2K 実験)が 2009 年 4 月にスタートした。大強度のニュートリノビームを作るため、平成 24 年夏までの時点で陽子加速器の一次陽子ビーム 170kW 運転が達成されていた。数年後には～750kW まで増強する計画が進行中であった。

ターゲットステーションでは、陽子ビームのターゲットへの衝突により大量の熱や放射線が発生する。温度上昇によるビームライン機器の破損を防ぐために常に冷却水を循環させてビームライン機器を冷却している。この冷却水はビーム近傍を通るためビームからの γ 線や中性子に曝されて酸素原子が核破壊を起こす。これにより大量のトリチウム(^3H)やベリリウム(^7Be)等の放射性同位元素 (RI) が生成され、放射化水になる。

放射化水は 1～2 ヶ月のビームサイクルに合わせてイオン交換樹脂に通水する。イオン交換樹脂での除去が不可能な ^3H 以外の RI を取り除いてから排水する。一番除去が困難な ^7Be のニュートリノビームラインからの排出枠は法律により年間 1.2GBq と決められている。2011 年度は、60GBq の ^7Be を 0.55GBq までイオン交換樹脂で取り除いて排水した。すなわち除去効率は 99%強であった。今後のビーム強度増強により、ビームからの γ 線や中性子のフラックスは陽子ビーム強度に比例して増えるので、750kW 運転では 800GBq の ^7Be 生成が予想される。従って 99.9%以上の除去効率が求められる。

さらには、ターゲットステーションの改造後の 4MW 運転では、陽子ビーム強度に比例して発熱量も増えるので、これを冷却するための冷却水も増やさなければならない。冷却水が増えれば放射線に曝される酸素原子も増え、放射線のフラックスの増加と合わせておよそビーム強度の 2 乗に比例して RI の生成量も増える、 ^7Be の年間生成量は～20000GBq が見積られる。よって 99.99%以上の除去効率が必須である。

2. 研究の目的

現在 T2K 実験で用いられている第二設備棟バッファタンク (後述する) と、現在のビーム運転で生じた放射化水を用いて、放射冷却水中の ^7Be 濃度をイオン交換樹脂で 99.9%除去まで実践し、除去率を 99.99%にするための方法を検討する。検討すべき項目の 1 つはイオン交換樹脂の種類である。 ^7Be を最も効率よく除去できる樹脂や、場合によっては複数の樹脂の組み合わせ、その順序や混合比等まで実験し検討する。

また、 ^7Be イオンは水中のさまざまな高分子と結合しコロイド化しやすく、これが ^7Be をイオン交換樹脂に吸着しにくくする理由の 1 つである。コロイドを分解するためには

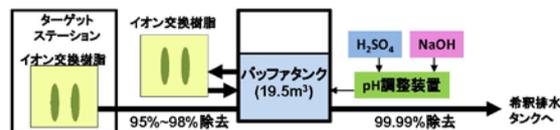
水を酸性にすればよい。pH を適宜コントロールし最適の pH を方法を見つける。

放射化水中の金属イオンの種類と濃度を定量的に分析する。また、 ^{22}Na 、 ^{54}Mn 等の RI の量も Ge 半導体検出器等を使って定量的に調べる。陽子ビームによる周辺物質の放射化をシミュレーションを用いて計算し、金属イオンの量と RI の量の関係を調べる。これらの情報を基に冷却水に溶けだした金属イオンが冷却水循環システムのどの部分からのものであるかを検討し、今後 4MW 運転に向けてターゲットステーション等の冷却システムを全面的にアップグレードする時の設計のための基礎資料とする。

3. 研究の方法

研究は T2K 実験で実際に生じた 15m³ 程度の放射化水を用いて行う。T2K 実験では約 2 ヶ月のビーム運転の後、ビーム期間中に生じた放射化水を 2 日～4 日かけてターゲットステーション内でイオン交換樹脂に通水して ^7Be の 95%～98%程度を除去する。設備及び時間の制約からターゲットステーション内ではこれ以上の ^7Be 除去はできない。

その後、ターゲットステーション隣の第二設備棟 (NU2) に設置された一時貯蔵タンク (通称バッファタンク) に放射化水を送水する。バッファタンクにはさらに ^7Be 等を取り除くためのイオン交換樹脂 (2 棟) や放射化水の pH をコントロールするための pH 調整装置が備えられている。バッファタンクの概念図を下図に示す。



バッファタンクはビーム運転中でも人間が立ち入れるエリアに設置されているため、次サイクルのビーム運転開始後でも時間をかけてイオン交換樹脂に通水し、RI を除去することができる。 ^3H 以外の RI が十分除去できたことを確認した後、放射化水を数回～十数回に分けて希釈排水タンクに送水し、十分低い ^3H 濃度まで希釈してから排水を行う。1 回の排水には原研による検査や承認等を含めて 3 平日かかる。バッファタンク内の放射化水は 2 ヶ月程度で処理が終わり、次のサイクルのビーム運転からの放射化水の受け入れが可能になる。

本研究では、バッファタンクでイオン交換樹脂通水の経過を追いながら放射化水中の ^7Be 濃度、他の金属性 RI の濃度、金属イオンの濃度を測定する。水中の RI 濃度の測定は J-PARC の標準的な Ge 半導体検出器を用いる方法と、必要に応じて我々の目的に特化した種々の測定方法を併用する。

タンクに貯水した体積 V_0 の放射化水を、

イオン交換樹脂 V だけ循環通水した場合、水中のイオン性 RI の濃度 R は $R=R_0 \times \exp(-V/V_0)$ となる。ここで R_0 は通水前の濃度である。RI のイオン交換樹脂吸着性が悪く吸着されない場合は R はこれより減少が小さい。従って通水量の関数として RI 濃度を測定すれば RI のイオン交換樹脂吸着性を評価できる。

RI 除去効率を、イオン交換樹脂の種類や放射化水の pH を変えて測定する。イオン交換樹脂は、現在ミックスベッドと呼ばれる汎用性の高いものを使っている。これは陽イオン交換樹脂と陰イオン交換樹脂を 1 : 1 の割合で混ぜたものである。T2K で除去の必要があるのは陽イオンのみなので、陽イオン交換樹脂だけのものを使用することを検討している。また金属イオンと H+ が交換される一般的な陽イオン交換樹脂の他に、H+ のかわりに Na+ が交換されるナトリウム型の樹脂の使用も考えている。バッファタンクには 2 種類のイオン交換樹脂棟を直列もしくは並列に接続することができるので、いくつかのイオン交換樹脂を合わせて使用した場合の効果も検証する。

水を酸性にして ${}^7\text{Be}$ イオンのコロイドを分解するために、バッファタンクには pH を自動的にコントロールするシステムが備わっている。pH を一度酸性にして、排水時には中性に戻す。通水時間とともにどのように pH を変えれば ${}^7\text{Be}$ を効率よく除去できるかについて測定を行う。2 種類のシミュレーションを行い、測定値と比較する。陽子ビームとターゲットの衝突によって生成された γ 線や中性子が、水や金属の核を破壊して RI が作られる過程をシミュレーションし、測定値と比較する。 ${}^3\text{H}$ と ${}^7\text{Be}$ 以外の RI がどの金属から生成されるかを各 RI の生成量も考慮して決定し、将来の 4MW ビームライン設計において冷却水配管の材質等の検討に役立てる。

4. 研究成果

ニュートリノビームラインで生成された放射化水のイオン交換樹脂通水前後の ${}^7\text{Be}$ の放射能濃度とその除去率を以下の表にまとめる。表はビーム強度とともに年度ごとにまとめている。

年度	ビーム強度	${}^7\text{Be}$ 除去
2013	2.20 x 10 ²⁰ pot (=106kW x 10 ⁷ 秒相当)	~130GBq -> 6.5MBq 99.99%除去
2014	2.09 x 10 ²⁰ pot (=101kW x 10 ⁷ 秒相当)	~124GBq -> 12.0MBq 99.99%除去
2015	2.44 x 10 ²⁰ pot (=118kW x 10 ⁷ 秒相当)	~145GBq -> 29.2MBq 99.98%除去
2016	6.97 x 10 ²⁰ pot (=337kW x 10 ⁷ 秒相当)	~414GBq -> 57.0MBq 99.99%除去
2017	8.19 x 10 ²⁰ pot (=396kW x 10 ⁷ 秒相当)	~500GBq -> 189/0MBq 99.96%除去

実験開始時の計画では毎年度 750kW x 10⁷ 秒相当のビームを得る予定であったが、2017 年度でも約 400kW x 10⁷相当 であり大強度の

ビームに対する ${}^7\text{Be}$ 除去効率を検証する機会を失ったのは残念である。特に、2013 年度のハドロン事故と 2015 年度の電磁ホーン故障によるビーム時間の短縮の影響が大きかった。

イオン交換樹脂が本格的に稼働した 2013 年度から 6 年の使用を経て、イオン交換樹脂の劣化はみられない。イオン交換樹脂の劣化は放射化水中のイオンの量に依存し、放射線イオンの割合にはよらない。従って今後ビーム強度が増えても劣化の進行には影響しない。イオン交換樹脂交換が 6 年以上劣化しないということはイオン交換樹脂デミナーの交換は今後実験終了までに多くとも数回であろう。これはメンテナンスのうえで非常に有用な結果である。

イオン交換樹脂は EG-4A-HG と IR120B の両方を用いた。両者の除去効率に大きな違いは見られなかった。イオン交換樹脂システム的设计について得た知識の 1 つはプレフィルター及びポストフィルターフィルターの選択である。イオン交換樹脂システムが詰まってしまつて水が流れなくなることがあった。原因はイオン交換樹脂の前後のフィルターの詰まりであった。フィルターを 5 ミクロンのものから 100 ミクロンのものに交換した結果、フィルターは 1 年程度は詰まらなくなった。我々の使用目的は通水後の水は捨てるだけなので通水後のきれいな水は必要ないという特殊事情をシステム設計の時に考慮すべきである。

弱いビーム強度において目標としている 99.99%の除去効率は十分達成されている。ビーム強度が増強された 2017 年度においては 99.96%に後退した。これはイオン交換樹脂通水ポンプの故障によりイオン交換樹脂通水が不十分であったためである。

現在 3H の生成量が増加に伴い放射化水希釈排水の回数が増えている。3 平日に 1 回の排水を滞りなく続ける必要がある、イオン交換樹脂通水を早く終え、希釈排水処理する必要がある。これが放射化水排水システム中のイオン交換樹脂通水への大きな課題になりつつある。

現在のイオン交換樹脂通水の流量は 15liter/min である。バッファタンクの水が 1 循環し、 ${}^7\text{Be}$ 濃度が 1/e になるには約 24 時間の通水が必要である。昼間のみの通水を考えると 3 平日が必要である。1/e で不十分であればさらに長い通水時間が必要である。今後早い ${}^7\text{Be}$ 除去を行うためにはイオン交換樹脂通水速度を上げることが必須である。さらにイオン交換樹脂を通った水を元のバッファタンクに戻すとタンク内の水の放射能濃度が指数関数的に減少するだけで効率が良くない。別タンクに移す等の方法が考えられる。複数のバッファタンクを建設し片方のタンクの放射化水を希釈排水している間にもう 1 つのタンクの水の ${}^7\text{Be}$ 等を除去するのは非常に効率的である。また故障なく常にイオ

ン交換樹脂を動かすためにはプレフィルター・ポストフィルターや通水ポンプ等の二重化も必要である。これらの経験の蓄積は今後の1.3MWビームへの増強の際に大きく役立つ。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 28 件)

①Combined Analysis of Neutrino and Antineutrino Oscillations at T2K, T2K collaboration, K. Abe, Y. Oyama (203 番目), T. Ishida (95 番目), Y. Yamada (300 番目), 他 314 名, Phys. Rev. Lett, 118, 151801 (2017), 査読あり 10.1103/PhysRevLett.118.151801

②Upper bound on neutrino mass based on T2K neutrino timing measurements, T2K collaboration, K. Abe, Y. Oyama (228 番目), T. Ishida (116 番目), Y. Yamada (334 番目), 他 348 名, Phys. Rev. D93, 012006 (2016), 査読あり 10.1103/PhysRevD.93.012006

③Measurement of the muon neutrino inclusive charged-current cross section in the energy range of 1-3 GeV with the T2K INGRID detector, T2K collaboration, K. Abe, Y. Oyama (205 番目), T. Ishida (97 番目), Y. Yamada (301 番目), 他 316 名, Phys. Rev. D93, 072002 (2016), 査読あり 10.1103/PhysRevD.93.072002

④Measurement of muon antineutrino oscillations with an accelerator-produced off-axis beam, T2K collaboration, K. Abe, Y. Oyama (210 番目), T. Ishida (100 番目), Y. Yamada (309 番目), 他 324 名, Phys. Rev. Lett, 116, 181801 (2016), 査読あり 10.1103/PhysRevLett.116.181801

⑤Measurements of neutrino oscillation in appearance and disappearance channels by the T2K experiment with 6.6×10^{20} protons on target, T2K collaboration, K. Abe, Y. Oyama (227 番目), T. Ishida (116 番目), Y. Yamada (332 番目), 他 346 名, Phys. Rev. D91, 072010 (2015), 査読あり 10.1103/PhysRevD.91.072010

⑥Measurement of the ν_μ charged-current quasielastic cross section on carbon with the ND280 detector at T2K T2K collaboration, K. Abe, Y. Oyama (232 番目), T. Ishida (118 番目), Y. Yamada (342 番

目), 他 356 名, Phys. Rev. D92, 112003 (2015), 査読あり 10.1103/PhysRevD.92.112003

⑦Observation of Electron Neutrino Appearance in a Muon Neutrino Beam, T2K collaboration, K. Abe, Y. Oyama (221 番目), T. Ishida (112 番目), Y. Yamada (325 番目), 他 334 名, Phys. Rev. Lett, 112, 061802 (2014), 査読あり 10.1103/PhysRevLett.112.061802

⑧Precise Measurement of the Neutrino Mixing Parameter θ_{23} from Muon Neutrino Disappearance in an Off-axis Beam, T2K collaboration, K. Abe, Y. Oyama (220 番目), T. Ishida (110 番目), Y. Yamada (325 番目), 他 336 名, Phys. Rev. Lett, 112, 181801 (2014), 査読あり 10.1103/PhysRevLett.112.181801

⑨Measurement of the inclusive ν_μ charged current cross section on carbon in the near detector of the T2K experiment, T2K collaboration, K. Abe, Y. Oyama (240 番目), T. Ishida (117 番目), Y. Yamada (343 番目), 他 352 名, Phys. Rev. D87, 092003 (2013), 査読あり 10.1103/PhysRevD.87.092003

[学会発表] (計 8 件)

①Neutrino physics and detectors: From Kamiokande to T2K Yuichi Oyama, "XIV ICFA School On Instrumentation In Elementary Particle Physics", Havana, Cuba, November 27-December 8, 2017

②J-PARC NU Radioactive Waste Treatment Yuichi Oyama, "10th International Workshop on Neutrino Beams and Instrumentation (NBI2017)", Tokai, Ibaraki, Japan, September 18-22, 2017

③Latest results from neutrino oscillation experiments Yuichi Oyama, "Astroparticle Physics @ Yachay", Quito and Yachay, Ecuador, Dec. 6-8, 2016

④ Latest results from T2K and other neutrino oscillation experiments Yuichi Oyama, "Colombian Meeting on High Energy Physics (1st ComHEP)", Medellin, Colombia, Nov. 28 - Dec. 2, 2016

⑤Current status of the T2K experiment

Yuichi Oyama, "18th International Conference From the Planck Scale to the Electroweak Scale (Planck2015)", Ioannina, Greece, May 25-29, 2015

⑥T2K water drainage / Exhausted Air
Yuichi Oyama, "9th International Workshop on Neutrino Beams and Instrumentation (NBI2014)", Fermilab, Batavia, IL, USA, September 23-26, 2014

⑦Status of LBL experiments in Japan
Taku Ishida, "9th International Workshop on Neutrino Beams and Instrumentation (NBI2014)", Fermilab, Batavia, IL, USA, September 23-26, 2014

⑧Future upgrade of the neutrino beam-line for multi-MW beam
Yuichi Oyama, "5th Open Meeting for the Hyper-Kamiokande Project, UBC, Vancouver, Canada, July 19-22, 2014

〔図書〕 (計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

http://jnusrv01.kek.jp/public/t2k_ja/

6. 研究組織

(1) 研究代表者

大山 雄一 (OYAMA YUICHI)
高エネルギー加速器研究機構・
素粒子原子核研究所・講師
研究者番号：30213896

(2) 研究分担者

石田 卓 (ISHIDA TAKU)
高エネルギー加速器研究機構・
素粒子原子核研究所・研究機関講師
研究者番号：70290856

山田 善一 (YAMADA YOSHIKAZU)
高エネルギー加速器研究機構・
素粒子原子核研究所・教授
研究者番号：00200759