

論文

降水降下物放射能測定のための自動蒸発濃縮器の開発

齋藤 正明* 加藤 徳雄**

A New Automatic Evaporation System for Fallout Measurement

Masaaki Saito*, Norio Kato**

A continuous evaporation system was developed. Sample water was continuously supplied to rotary evaporator with a tube pump. The tube pump was controlled by a water level sensor placed in a sample flask. A condenser was turned upside down, and droplets of water were continuously removed by an aspirator. The merits of the system are as follows: (1) labor saving, with continuous day and night unmanned operation, (2) no generation of water vapor in a room, (3) very safe, with only 60°C heating temperature, (4) 20L of sample water per day can be evaporated.

キーワード: 自動蒸発器, 降雨, 降下物, 環境放射能

Keywords: Automatic evaporator, Rain, Fallout, Environmental radioactivity

1. はじめに

環境放射能水準調査は, 大気中に放出された放射性核種による環境レベルを把握し, 国民の被ばく線量評価に資することを目的として全国的に実施されてきている。その中で, 降下物(フォールアウト)中の放射能測定における降水試料の前処理について, 無人連続運転可能な自動蒸発装置を開発した。

文部科学省が定める放射能測定マニュアルの降水降下物の項⁽¹⁾には, 降水降下物中に存在する放射性核種は, 性状や化学形が不明のことが多いため, γ 線スペクトロメトリの前処理として蒸発濃縮が必要, と記載されている。約 1m² 大型水盤にて貯留した1カ月間降水 50-200L を U-8 型計測容器に適合する 0.1L 以下にまでビーカーあるいは蒸発皿にて加熱して蒸発濃縮し, 半導体検出器にかける, という手法に沿って蒸発濃縮操作がなされてきた。

著者の職場においても, 放射線管理部門によって降水降下物監視が継続されてきたが, 職員数が減少する現況で, 研究部門に担当業務が回ってきた。本業務はチェルノブイリ事故の放射能を我が国で最初に報告した事業の一環であり, また, 昨今の近隣国の核不安も関連して業務中断しにくい状況にあった。

これまで, 降下物測定 of 労力, エネルギー及び時間のほとんどは, 蒸発操作, とりわけ上澄み水分の除去に費やされていた。その作業には次のような問題点があった。

(1)火災予防面: 蒸発濃縮操作において, 赤熱ニクロム線ヒーターを使用するため監視が必要で, 勤務時間の昼間運転に限定されていた。このため蒸発濃縮操作に4基の電熱

器を使っても作業に2週間以上を要した。

(2)操作の煩雑さ: 蒸発操作において試料水量が減少する毎に試料水を手動で補給する必要があった。空焚きによるビーカー破損などトラブルの際は試料損失分を補正しなければならなかった。また, 総量数十Lもの水分を加熱蒸発させるので, ドラフトチャンバーなどで湿気を屋外に排出する必要があった。

作業にかかる労力及び時間を職員の減少数に合わせ 1/3 以下とすることを目標にした。このために, 既製品のロータリーエバポレータを変則的に利用し, 試料水供給及び留出水の除去を連続的に行うようにした。より安全な 60°C 定温加熱の無人化連続運転によって, 労力を削減し, 従来の1日当たり8時間稼働に比較して処理能力3倍増, 20L タンク1個分の処理を達成できた。

2. 実験および結果

市販品ロータリーエバポレータを利用し, 次のような連続蒸発装置を考案した。本報告によるオリジナルなポイントは次の2点である。

(1)試料タンクからチューブローラーポンプによって連続的に試料水を試料フラスコに供給する。試料フラスコ水面に配置した水位センサによって供給量を自動制御する。

(2)冷却管部の上下を転倒させ, 留出水を排気とともに連続的に吸引除去する。

使用器材は, ロータリーエバポレータ: 柴田科学器械工業製 RE-111-B 型, WB-461 型, 循環ポンプ型アスピレータ: アドバンテック製 AS-75 型, チューブローラーポンプ: アトー製ペリスタバイオミニポンプ AC-2120 型, 受けフラスコに替えて特注品ガラス製ふた。

一日当たり 20L の水を蒸発させるための理論的な最小電

* ライフサイエンスグループ

** 愛媛県立医療技術大学

力約 700W に対し、熱損失を考慮すると、実用にはウォータースタットの加熱能力 900W (実測値) では不足である。300W の補助ヒーターを追加した上に、ウォータースタットを保温シートで囲い、熱損失を抑制した。

また、他に、住居隣接という当所実験室の特殊事情に配慮し火災予防措置として、ウォータースタット既設の安全機構に加え、図写真中の各部にみられる多重の過熱停止機能(フロートスイッチ、過熱ヒューズ、及び電磁リレー)を付加してある。過熱停止機能については、一般実験施設では不要と考えられるので本報では詳述しない。

2.1 試料水の連続補給 上澄み成分と沈降成分は次のように分別した。一か月間貯留した降水試料は藻類など浮遊物、懸濁物を含む。2日間ほど遮光状態で放置すると、沈降物がタンク底部に付着するので、上澄み水をサイホン式灯油ポンプで別のタンクに移し替えた。残留した沈降成分を含む試料水にテフロン沸石(Norton Co.製 Chemware) 20g 程度加えてタンクを揺することで、付着物は容易に剥離する。台所用品として市販されている目の粗い濾し網を通して沸石を除去し、沈降水を集めた。沈降成分の処理の改善は後の 2.4 項で述べる。

ロータリーエバポレータに試料水補給用のチューブを接続し、チューブローラーポンプ(以下チューブポンプ)によって毎時一定量の試料上澄み水を試料フラスコに連続供給した。図1のように、試料フラスコ中の水面位置に水位センサを配置し、チューブポンプ制御部と接続した。センサが水面から離れている間は導通抵抗大→チューブポンプ稼働→水位が上昇、センサが水面と接触している間は導通抵抗小→チューブポンプ停止→蒸発により水位が低下、という動作を繰り返して供給水の自動制御を行う。以上の動作で常に一定水量が試料フラスコ中に残るように試料水を供給し続ける。

水位センサによる水供給制御について詳細に述べる。チューブポンプ付属の外部接続コネクタの端子3本を利用して、チューブポンプのオンオフ制御を行った。水位センサは2本の金属線の先端を電極として約 5 mm 間隔にしただけの単純なもので、電極先端が水面に接触することで、水の微小な導通性を検知するものである。金属線として 1mm φ のステンレス線を用い、テフロンチューブを被覆し先端 5 mm を露出させたものである。ステンレス線の2本の先端は段違いになるように 10 mm ずらした配置として、電極間の付着物による導通を抑制し、誤動作を起しにくい構造とした。

チューブポンプの取り扱い説明書には、外部制御端子をグラウンド端子と短絡させることによって、チューブポンプの運転を内部制御から外部制御へと切り替え可能、と記載されている。試験してみたところ、外部切り替え時はチューブポンプの動作が停止するので実質的に水送出動作のオフ制御として利用できることが確認できた。チューブポンプを停止させるのに必要な2端子間の抵抗値を実測したところ、最大値で 2kΩ であった。一方、未濃縮の降水試料

に水位センサが接触した時の抵抗値は 20kΩ-2MΩ で両者を直結してもチューブポンプは停止動作しない。水面に接触したセンサによって停止動作するように、図1に示すNOT論理型のCMOS-ICを使用した。NAND型でもNOR型でも2つの入力ピンを短絡すればNOT型入力相当になる。本報ではNAND型であるテキサスインスツルメンツ社製 74HC00 を使用した。

チューブポンプの外部制御端子(4番ピン)にNOT型論理の入力を接続し、電源端子(3番ピン+5V)からセンサを通して電位を加えたところ、センサと水面の接触によって制御端子電圧が動作電位まで低下し、水位センサによるチューブポンプの停止動作が確認できた。

CMOS-ICは入力抵抗が極めて高いので、安定動作のために入力側を2MΩの抵抗でグラウンド(0V)に接続した上でチューブポンプ側とエバポレータ側で金属ケース部分のアース接地を確実にする必要があった。センサに流れる電流が 0.001mA 以下となることから電極析出物を少なくできる。また、蒸留水並の試料水(電導度 3μS)でも動作可能などトランジスタを使用した場合⁽³⁾より利点が多い。

本システムに市販のチューブポンプを使用する場合、気密性を高め、停止動作を確実にするために、以下のように、プレッシャーノブ部のネジをスプリング形式に改造する必要があった。

チューブポンプは、6個の遊星型圧搾ローラーの軌跡がチューブをはさんで圧搾プレートの円に内接する構造であるが、ローラーが可動するためには圧搾プレートの円は圧搾ローラーの軌跡より大きなものとなる。しかし、これではローラーが最頂部に達するとき以外は圧搾プレートとローラー離れ、液送の際に漏れを生じることになる。現実にはチューブ材質の変形によって支えられているが、本実験のような減圧状態では漏れが生じることがある。調査した範囲では他社製でも同様であった。この問題点はメーカーによって認識されているようで、取扱説明書にもプレッシャーノブの過度な締め付けは避けるように、との記述があった。

この問題の解決のために、両端に張力をかけた板バネでローラーに密着させる方式及び可動式圧搾プレート方式の二つを考案した。本実験ではスプリングをプレッシャーノブ部にはめ込むだけで済む、改造の容易な可動式圧搾プレート方式を採用した。改造の結果、動作が確実となっただけでなく、回転軸に無理な力がかからなくなり、汎用機器としてのチューブローラーチューブポンプの完成度を向上させることができた。

2.2 留出水の除去 ロータリーエバポレータの通常の使用法は、内部の気体を冷却管上部から吸引し、下部に接続した受けフラスコ中に水蒸気成分を凝縮滴下させるものである。この場合、受けフラスコが満杯になる前に凝縮水を除去しなければ、1L以上の水を蒸発させる連続運転を行うことができない。冷却管の最頂部吸引口を最底部となるように、上下を転倒し(図2及び図3)、凝縮水を排気と

もに吸引除去する, という変則的な使用法を試みたところ, 凝縮水をアスピレータまで連続的に吸引除去することが可能となった。

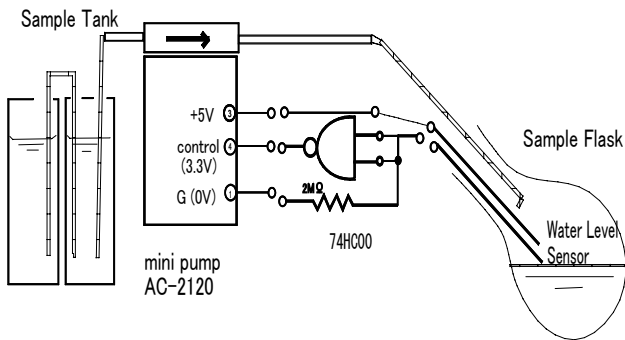


図1. 試料水補給自動制御システム

2.3 連続蒸発濃縮システム 完成した連続蒸発濃縮システムの全体像を図3に示す。また, 主要部の拡大図を図2に示す。

(1)試料水タンク (20L, 図3下部) はそれぞれの水位を等しくし, 数100Lの試料水でも無人で, 連続処理できるようにゴムチューブあるいは灯油用ポンプによって各々サイホン方式で接続されている。試料タンクの一つには送水用チューブの先端が入っており, チューブポンプ (図3中段左側) に接続されている。

(2)試料水はチューブポンプによってロータリーエバポレータ (図3中段右側) へ送出される。詳細な配置, 接続関係は図4の通りで, 試料水はチューブを通して, 試料水補給口から内部に入り, テフロンチューブを通して, 試料フラスコに入り, フラスコ上部内壁を伝って流下することで, 水面位置に生じやすいガラス壁面の付着析出物を常時洗い落とす仕組みになっている。

(3)水位センサ先端は試料フラスコ内部の目標とする水面高さに配置され, センサからのリード線は図4のように, 通常用途の受けフラスコ接続部分に取り付けられた小穴の付いたふた (ガラス製の特注製作品) を通して外部に引き出され, チューブポンプの外部制御端子に配線されている。

(4)蒸発した水蒸気は転倒させた冷却管内部 (図2左側) で凝縮滴下し, 排気口 (図2左端) に接続された真空ホースを通してアスピレータ (図3左下) によって連続的に除去される。

冷却管に毎分約1Lの流量で送られた水道冷却水は, ウォーターバス補給部でオーバーフローを経て排水される。この際に, ウォーターバスの熱損失を抑制するために, 水補給-オーバーフロー部分を断熱シートで囲った。

これまで1年間以上, 16回の連続運転を行ったが, 結果は大変好調であった。チューブポンプのオンオフ制御を約1500万回繰り返した計算になるが動作ミスは起きなかった。

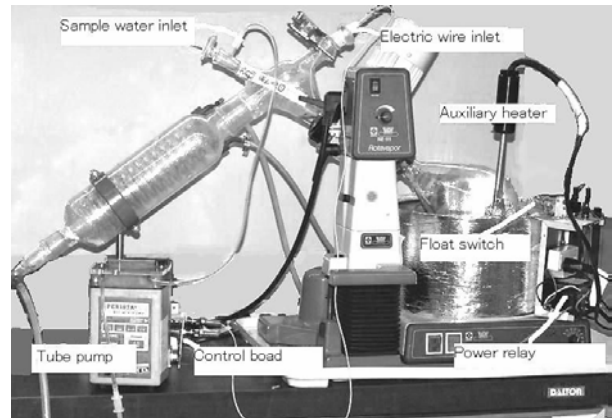


図2. 自動蒸発濃縮装置の主要部

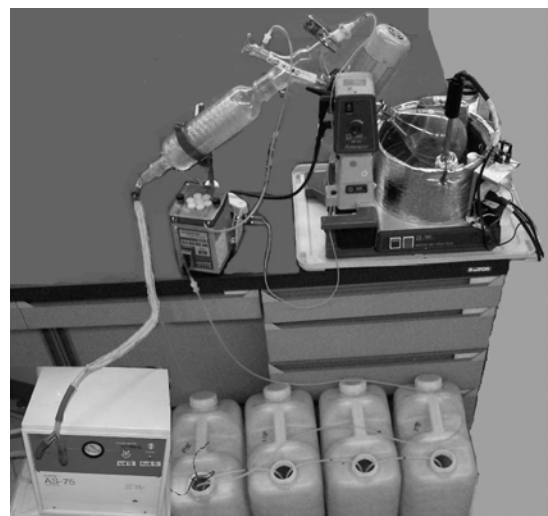


図3. 自動蒸発濃縮装置の全システム

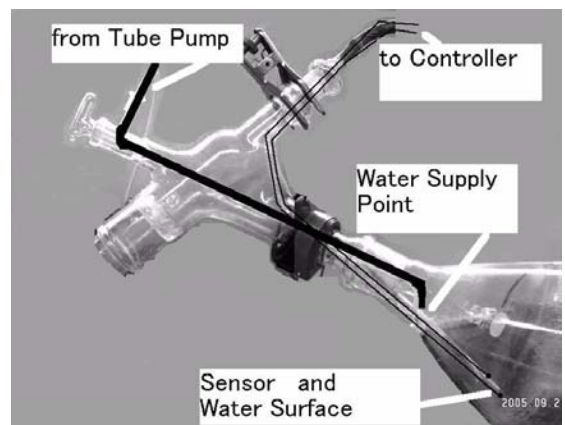


図4. 蒸発器内部の構造

沈殿物を残す0.5Lまで蒸発処理するのにかかった時間を実例で挙げれば, 60Lの試料水で約2日間, 120Lで6日間, 130Lで8日間, 170Lで8日間などであった。

ロータリーエバポレータの回転接続部に取り付けられた真空シールを交換した当初は1日当たり20L以上の蒸発処理が可能であったにもかかわらず, 徐々に蒸発速度が低下

傾向にあった。真空シール部から明らかな空気吸入が認められると蒸発速度が著しく低下したことから、処理速度が変動した主因は真空シールの劣化に伴う蒸発効率低下によるものと思われる。

また、循環ポンプ型アスピレータは水温が上昇して減圧能力が低下しやすく、処理速度を低下させることになるので水道水を流し 25℃以下となるように管理しなければならない。以上のように夜間、休日無人連続運転で従来比約4倍の処理効果が達成できた。

運転終了動作まで完全自動化されているわけではないので、終了予定日時が休日や夜間など無人状態にならないように運転を計画、調整する必要がある。

2.4 従来方式の蒸発濃縮器の自動化 これまで述べてきた蒸発濃縮は試料水量のほとんどを占める上澄み成分の処理についてであった。最終的には、上澄み成分の濃縮水約 500mL 及び沈降物を含む残りを合わせた数L分の試料水は、従来方式の加熱蒸発で 100 mL 以下にまで濃縮した後、放射能測定マニュアル⁽¹⁾⁽²⁾に従ってU 8 型計測容器に収め乾燥器 60℃で処理し、計測試料とした。

従来方式の加熱濃縮には、引火の危険性の少ない電磁調理器型電熱器 (1400W 松下電器製 KZ-PH3) 及び鉄製のホーロー容器 4L 用あるいは 1L 用を使用した。この操作においても図 5 に示すようにバッチ式蒸発装置の自動停止システムを製作した。双方向型サイリスタモジュール (日興電子工業社製 SL105)、電磁開閉器 (松下電器社製 FC-15N) を組み合わせた。水位センサを用いた電子制御システムは前述したロータリーエバポレータでの使用例と似ているが、動作は逆であり、水面がセンサ先端より低下すると電源を切断する仕組みである。蒸発によってセンサ先端が水から離れる高さまで水面が低下すると、電磁開閉器によって加熱器電源が遮断される。

3. まとめ

水位センサ、市販品ロータリーエバポレータ及びチューブポンプを使用し、タンクから試料フラスコに試料水を供給する自動制御システムを開発した。冷却管部の上下を転倒させ、留出水を排気とともに吸引除去することで、100L を超える試料水の連続蒸発濃縮が可能となった。さらに、このシステムには次の利点がある。(1)昼夜無人連続運転が可能で労力を大幅に省くことができる。(2)蒸発水分は実験室内に排出されることなくアスピレータを通して排水される。(3)加熱温度が 60℃で安全性が高い。(4)24 時間当たり約 20L の試料水の処理が可能である。

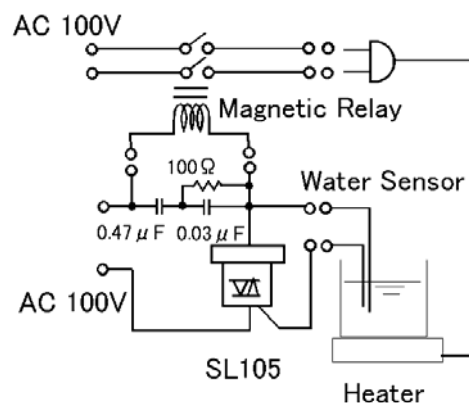


図 5. バッチ式蒸発器の自動切断システム

(平成 18 年 10 月 23 日受付, 平成 18 年 11 月 24 日再受付)

文 献

- (1) 放射能測定法シリーズ 13「ゲルマニウム半導体検出器などを用いる機器分析法のための試料の前処理法」, p. 5, 昭和 57 年, 科学技術庁(1982)
- (2) 放射能測定法シリーズ 16「環境試料採取法」, p15, 昭和 58 年, 科学技術庁(1983)
- (3) 斎藤正明, 加藤徳雄: *Radioisotopes*, **55**, 189-194(2006)