技術報告**7. 遠 隔 ビ ペ ッ タ ー**

江村 悟*, 中原嘉則*, 大貫 守*, 河野信昭*

(1967年 3月6日 受理)

*Remotely Operated Pipetter*By Satoru EMURA, Yoshinori NAKAHARA,
Mamoru ÔNUKI and Nobuaki KÔNO

Two positive delivery pipettors (1ml and 5ml in capacity) have been devised for pipetting aliquots of highly radioactive liquid samples intended, various analytical determinations in the reprocessing analytical facility at the Japan Atomic Energy Research Institute.

The pipetter assembly consists of pipet, electrical elevator, control unit, three valves and trap, as well as nitrogen gas and vacuum lines.

The structural material of the parts of the pipet in contact with the sample are either stainless steel or teflon.

A precision of 0.2% standard deviation of successive 100 μ l deliveries of distilled water and concentrated nitric acid was obtained on the 1ml pipetter.

Design criteria for the pipetter, its principle of operation and method of decontamination are described.

I. 緒 言

遠隔ビペッターは高放射性溶液試料を取り扱う遠隔分析施設でもっとも重要な機器の1つで、化学分析や放射能計数などいろいろな定量操作の基礎となるものである。内装するセルの大きさ、形状、マニプレータの種類、取り扱い溶液組成、使用目的、使用頻度などに応じ、諸外国においては簡単な器具的なものから精巧なものまで非常に多くの遠隔ビペッター^{(1)~(9)}が工夫、製作、使用されている。このうち、装置的なものとしては ORNL のサーボ制御ビペッター^{(11)~(13)}、ICPP の RAF model B ビペッター^{(14)~(15)} および SRP のクレーンビペッターで代表される直接計量方式と Hanford⁽¹⁶⁾ および Harwell⁽¹⁷⁾ で開発されたオイル置換方式とがある。

原研においても、再処理試験施設の分析セルで使用するため、1962年から ORNL のサーボ制御ビペッターおよび RAF model B ビペッターをモデルとして直接計量方式による遠隔ビペッターを試作し、これに改良を重ねた結果、管理分析用として十分な計量精度お

よび正確さを有する装置を完成するとともに、操作法および保守法をも確立した。本報は 100 μ l および 500 μ l を計量する遠隔ビペッターの特長、操作原理および性能試験結果について報告する。

II. 経 過

遠隔ビペッターの製作にあたっては下記の諸点を設計基準とした。設置個所は 1×1×1 m のインナーボックスが収められた鉛遮蔽15cmの分析セルで、内装は遠隔ビペッターの本体のみとする。これらの操作はセル外に設置するコントロールボックスとトンガマニプレータにより、ゴム蓋のついた試料ビンセットしてから計量、洗浄および廃液処理まで一切を遠隔的に行う。取り扱い溶液としては α 、 β 、 γ 放射性物質を含む硝酸、TBP-ドデカンおよび水酸化ナトリウム溶液で、その放射能レベルは $\beta + \gamma$ で最高 200mCi/ml と予想される。このため溶液と接触する部分には腐食および放射線に十分な耐性をもつ材質が必要となる。計量範

* 日本原子力研究所(Japan At. Energy Res. Inst)

図は $100\ \mu\text{l}$ ～数 ml とし、その精度は標準偏差 0.3% 以下とする。一方、本装置を管理分析用として多人数で連続的に使用するため単純で個人誤差の原因とならないような動作機構であり、十分な堅牢性を備え、その上、計量、洗浄、乾燥操作を迅速に行う必要がある。また、内装部の遠隔保守がある程度可能であるとともに、部品および本体の分解取出し、組立てが容易な構造とする。以上の点を考慮して主要材質に SUS-27 および四フッ化エチレン樹脂を用い、ORNL のサーボ制御方式に多少の改良を加えたものを試作した。この装置について操作上の問題点および性能を検討した結果、第1図(a)のようにプランジャ部の先端に設けた逆L字形細孔によって溶液の吸引、遮蔽を行うことは固形物による細孔のつまり、有効計量容積の減少、液遮断のタイムラグおよびプランジャ加工の複雑さなどの欠陥が見い出された。また、シリンダが垂直であるため実際にはエア抜きが不完全であった。

第1図 ピペッター部の構造

一方、電気的には第2図の設定ヘリカルとして10回転、2,000等分に目盛られた微動ダイヤルによる $500\ \Omega$ の連続可変抵抗器を使用していたため、微量溶液の計量という利点はあったが、ダイヤル操作から生ずる個人誤差が極めて大きかった。これらの経験から、まず主要材質の SUS-27 を 32 に変更して第1図(b)のようにシリンダを傾斜させ、プランジャを簡略化するとともにシリンダの近くにソレノイドバルブを設け、これにより液の流れを遮断する構造にかえた。電気的にもプランジャの全ストロークを10等分するよう、設定ヘリカルに10個の $50\ \Omega$ トリマ抵抗器を直列に並べて10接点ロータリースイッチにおきかえた。その他、分析セルの諸設備との関連において細部にわたり改良を加えた。

第2図 遠隔ピペッターのブロックダイアグラム

Ⅲ. 遠隔ピペッターの構造と操作原理

装置はピペッター部、エレベータ部、コントロール部および電磁バルブ、ゲージ、トラップなどから構成されており、ピペッター部はコントロール部からの遠隔操作により試料液の吸引、計量を行う。エレベータは容器ホルダを希望の高さに昇降させ、電磁バルブはピペッターのシリンダと減圧装置との中間にあって、その通路の開閉を行うためのものである。全容量 $1.0\ \text{ml}$ と $5.0\ \text{ml}$ とは、シリンダとプランジャの寸法が異なるのみで他は全く同一であるため、以下、 $1.0\ \text{ml}$ 用ピペッターについて各部の詳細を述べる。

写真1 分析セル前面と遠隔ピペッターのコントロールボックス

写真2 遠隔ピペッター内装

1. ピペッター部

試料溶液の計量は SUS-32 のシリンダとプランジャで行う。シリンダに收容しうる全容量は 1.0ml であり、支持架によって固定されたプランジャがシリンダ内を上下に微動する構造となっている。プランジャの上下運動はバランシングモータから減速歯車をへた回転運動によって行われ、プランジャは支持架に固定されたギアボックスとシリンダとの間を送りネジ機構によって上下する。全容量 1.0ml のプランジャのストロークおよそ 30mm が溶液の 1.0ml に相当するよう設計されている。プランジャの表面は研磨仕上げで、その外径の加工精度は $1/1,000\text{mm}$ 以下におさえ、 $100\mu\text{l}$ の計量において標準偏差 0.3% 以下となるように製作した。バランシングモータはプランジャを駆動すると同時に他のギアをへて駆動用ヘリカル摺動子を駆動する。ヘリカルは 20 回転 500Ω の巻線抵抗で送りネジ 20 回転に対応し、その 2 回転 50Ω が試料の $100\mu\text{l}$ に相当する。ヘリカルにおける摺動子の位置とプランジャの位置は 1:1 の対応を保ち、摺動子の回転角がプランジャのストロークを、また摺動子の位置がプランジャの位置を決める構造になっている。摺動子の作動は後述のコントロールボックスからの信号によって行われる。シリンダの上部に電磁バルブが取り付けられており、プランジャがそのストロークの最上端に達するとシリンダにあけられた細孔と四フッ化エチレン樹脂のチューブを通して導通する。シリンダへの試料液の吸引は、通常プランジャを最上端に上げた状態で電磁バルブを経て減圧吸引する。シリンダの下端には四フッ化エチレン樹脂製のパッキングを介して皮下注射針ブロックが固定してある。針先はゴム蓋を突きさした場合、ゴム肩が針に入るのを防ぐため内側に彎曲させてある。計量される液はこの針からシリンダへ吸引され、計量された液はここから目的容器に排出する。ピ

ペッター上部のギア、バランシングモータなどは腐食や放射性物質による汚染を防ぐためステンレス鋼製のケースに収め密閉してある。

2. エレベータ

エレベータは容器ホルダを昇降する機構とピペッターを支持するスタンドとしての機能を兼ねており、エレベータは架台にあるシンクロナスモータから直立した送りネジにより容器ホルダを任意の高さに昇降させる。直立部後方に 2 個ずつ 2 組のマイクロスイッチを固定させるツマミがついており、1 個のマイクロスイッチに左右 2 個ずつのツマミがついている。この部分には上昇および下降を限定するためのマイクロスイッチ各 1 個ずつ計 2 個が收容され、それぞれ設定した位置で上昇下降が自動的に停止するようになっている。容器ホルダには試料ビン、ビーカー、メスフラスコなどをのせることができる。エレベータのストロークは 200mm あって、この間であればマイクロスイッチの調節で任意個所に停止させることができる。

3. コントロール部

コントロールボックスはバランシングモータの駆動用増幅回路(計量回路)、満液表示回路およびこれらの電源回路を主要部分とし、他にエレベータの上昇、下降指示回路、電磁バルブの開閉回路から構成され、遮蔽セル外に設置し、ピペッター本体とはケーブルによって接続されている。第 2 図において、 VR_1 , VR_3 の摺動抵抗と VR_2 の 10 個のトリマ抵抗は直流ブリッジを形成し、 VR_2 の設定ヘリカルの回転によって生ずるブリッジの不均衡電圧 ($0.1\sim 1\text{V}$) はメカニカルチョップを通して交流増幅され、 VR_1 とプランジャに連動しているバランシングモータとを平衡状態まで駆動する。トリマ抵抗の 1 個の回転はブリッジに 0.1V の不均衡電圧を生じ、この電圧はプランジャを全ストローク 30mm の $1/10$ 、すなわち 3mm 下降させ、シリンダ内の液を $100\mu\text{l}$ 排出する。バランシングモータの回転方向はブリッジの不均衡電圧の極性により決定される。満液表示回路は、検知部(電磁バルブ)に導電性の溶液が流入すると、液面とステンレス電極が接触したことをトランジスタにより検知、増幅され、ブザーで警報を発すると同時にコントロールボックスの赤色ランプが点灯する。しかし、導電性の液が存在しないときは青色ランプが点灯する。

4. 電磁バルブ

使用している電磁バルブは 3 個あって、共に市販のステンレス鋼製である。シリンダに最も近いバルブは満液検知部の機能をも兼ねている。

5. その他

シリンダからトラップまでのラインには四フッ化エチレン樹脂チューブを利用した。バルブやゲージとの継手には組立て、分解が容易なものをSUS-28で製作した。減圧系と加圧系のバルブはセル前面にあって、前者は試料液の吸引とピペッターの洗浄ならびに乾燥用であり、一方、後者は針の孔づまりを防ぐためチッ素ガスで圧出するためのものである。トラップはガラス製で下部に弁があり、減圧することにより弁が持ち上がり、トラップが密閉されて液が流入する。トラップにたまった液は減圧系を断つことにより重力で弁が落下し、ドレーンへ流下する。

Ⅳ. 実験および結果

1. 操作方法

ゴム蓋付の試料ビンをエレベータホルダにのせ、コントロールボックスのスイッチ操作により試料ビンを持ち上げて注射針でゴム蓋を突きさし、針先を試料液中に浸す。コントロールボックスのロータリースイッチ操作により、ピペッターのプランジャを上端に引き上げてチッ素ラインを開いてエア抜きを行なったあと、5cmHg程度の減圧度で液をシリンダに満たす。満液となったところで減圧ラインを断ち、試料ビンホルダを下げて試料ビンを取り除く。つづいてエレベータにピーカなどの容器をのせてプランジャを全ストロークの1/10下げて液を排出する。液の計量は1mlまでならば100 μ lの整数倍を採取することができる。つぎのサンプルを取り扱うさいには、前のサンプルがウランを含む酸溶液であれば1M硝酸→蒸留水→アセトンで、水酸化ナトリウム溶液ならば蒸留水→1M硝酸→蒸留水→アセトンで、また有機溶媒の場合にはアセトン→蒸留水→1M硝酸→蒸留水→アセトンの順で断続的に吸引、洗浄したのち、減圧により内部を乾燥する。

2. 性能テスト

遠隔ピペッターの計量精度を調べるため、前項の操作方法に従って蒸留水と30% TBP-ドデカンのサンプルは重量法で、また濃硝酸サンプルに対しては中和滴定法により、採取量100 μ l(全容量1.0ml)および500 μ l(全容量5.0ml)の2台についてプランジャの全ストロークにわたる精度を求めた。室温20°~22℃で測定したのち温度補正を行なった。その結果を第1表に示す。

30% TBP-ドデカンサンプルは他のサンプルに比べて精度がやや低いが、これは揮発およびステンレス針の濡れと滴形成との関係による影響と考えられる。誤

第1表 遠隔ピペッターの精度

	500 μ l		100 μ l	
	計量 平均値 (μ l)	標準偏 差(σ) (%)	計量 平均値 (μ l)	標準偏 差(σ) (%)
蒸留水	498.9	0.1 ₁	99.6	0.1 ₉
30% TBP- ドデカン	498.4	0.1 ₅	99.5	0.3 ₂
濃硝酸	498.7	0.1 ₂	99.4	0.2 ₃

(n=40)

差は500 μ l用で-0.3%, 100 μ l用では-0.5%程度であった。

3. 除染

遠隔ピペッターの除染法を検討するため、ピペッターの溶液と接する部分、すなわち、プランジャ、シリンダおよびパッキングと同一材料、同一仕上げのテストピースをセットできる除染ループを用い、操作法と同じ条件で放射性溶液を満たし、酸洗浄または水洗浄によりその汚染蓄積度を比較した。

実験には第3図のようなループ2個に径19mmのSUS-32の超仕上げ、および四フッ化エチレン樹脂の上

第3図 除染テスト用ループとテストピース

仕上げテストピース4個をそれぞれ交互にパッキングを介してセットした。減圧法で貯槽からループ内へ合成放射性溶液(ウラン50g/l, 硝酸濃度1M, F.P. 9.5×10⁻²μCi/ml)を満たし10min後に排出し、つづいて水洗浄の場合は蒸留水150mlを3回に分けて吸引、洗浄し、ついで150mlのアセトンを3回に分けて脱水、減圧乾燥した。一方、酸洗浄の場合は水洗浄前に1M硝酸を3回に分けて洗浄を行なった。乾燥したテストピースはシンチレーションカウンタで比較線源として¹³⁷Csを用いて吸着した放射能を測定した。その洗浄効果の傾向を第4図に示した。SUS-32と四フッ化エチレン樹脂とでは仕上げ度が異なるが前者に比べ後者はやや除染され難い。しかし、両材質とも硝酸洗浄の方がその効果は大きく、また汚染蓄積度は汚染-洗浄サイクルの2~10回まで直線的に増大するがそれ以後

第4図 ピペッター材質の除染は平衡状態となる。遠隔ピペッターでは計量採取後はつぎのサンプルに備えて直ちに洗浄乾燥を繰り返すため、一般的には前述の操作法で十分目的が果せるものと思われる。

V. 結 言

これまで述べてきた遠隔ピペッターは管理分析用として十分な性能および機能を有することがわかったが、取り扱う溶液を硝酸、水酸化ナトリウム、TBP-ドデカンとビューレックスプロセス溶液を対象として設計、製作されているため、ピペッターの主要材質であるSUS-32を腐食させるような塩酸、王水系を取り扱う場合には、ORNLで開発された Graphitar grade 14のような耐薬品性および機械強度の十分な材料^{(15)~(22)}によっておきかえなければならない。

本遠隔ピペッターの製作にいろいろ便宜を図っていただいた日本原子力研究所青地哲男室長ならびに製作に協力された平沼産業株式会社信午博士に感謝します。

(1965年4月5日、本会昭和40年年会において一部発表)

— 参 考 文 献 —

- (1) E.J. LILJEGREN, S.H. WEBSTER: *Nucleonics*, **10** [7], 67 (1952),
- (2) G.HALL: *AERE-C/R* 958, (1952).
- (3) E.W. KISIELESKI, D.F. UECKER: *Science*, **118**, 102 (1953).
- (4) K.H. HAMMIL: *Nucleonics*, **12**, 52 (1954).
- (5) E.WRIGHT: *Atomics*, **7** [1], 30 (1956).
- (6) D.G. BOASE, J.L. DRUMMOND: *IGO. TM/W.042* (1957).
- (7) C.JACKSON: *AERE-ES/R* 2490, (1958).
- (8) N.FARLOW, S.WIEL, J.POLISSAR: *USNRDL-TR* 389, (1959).
- (9) S.GYOERGYI, J.GAZSÓ: *Kiserl. Orvostud*, **15**, 669 (1963).
- (10) E.S. FLEISCHER, A.B. SNYDER, et al.: *UCRL-9661*, (1964).
- (11) D.J. FISHER: "Hot Laboratory Equipment", 2nd. Ed., (1958), *U.S. AEC, Technical Service*.
- (12) M.T. KELLEY, H.L. HEMPHILL, D.J. FISHER: *TID-7568*, Pt.2, 98 (1958).
- (13) H.C. JONES, D.J. FISHER: *ORNL-3060*, (1961).
- (14) F.W. DYKES: *TID-7568*, Pt.2, 65 (1958).
- (15) F.W. DYKES, J.P. MORGAN, W.G. RIEDER: *IDO-14456*, (1958).
- (16) K.H. HAMMILL: *HW-30556*, (1954).
- (17) A.J. WOOD, A.J. FUDGE: *AERE-R-3976*, (1962).
- (18) D.J. FISHER: *ORNL-2866*, (1960).
- (19) D.J. FISHER, M.T. KELLEY, W.L. BELEW: *TID-7606*, 311 (1960).
- (20) D.J. FISHER, W.L. BELEW, M.T. KELLY: *ORNL-3060*, 7 (1961).
- (21) D.J. FISHER, W.L. BELOW: *ORNL-3243*, (1962).
- (22) W.L. MADDOX, F.E. HAGA, D.J. FISHER: *ORNL-P-1533*, (1965).