

放射線管理測定における液体 シンチレーション計測法の測定精度

川崎医療短期大学 放射線技術科

村中 明 板谷 道信 西村 明久 西下 創一

(平成4年8月24日受理)

Counting Accuracy of Liquid Scintillation Methods in Radiation Monitoring

Akira MURANAKA, Michinobu ITAYA
Akihisa NISHIMURA and Soichi NISHISHITA

*Department of Radiological Technology
Kawasaki College of Allied Health Professions
Kurashiki, Okayama 701-01, Japan
(Received on Aug. 24, 1992)*

Key words : 液体シンチレーションカウンタ, 放射線管理測定, 効率トレーサ法, ^{125}I

概 要

放射線管理測定への利用を念頭におき、液体シンチレーションカウンタを用いた β 線放出核種の放射能測定における測定精度を検討した。

クエンチングの補正法の1つである効率トレーサ法は、他の補正法に比べてクエンチングの大きい試料に対して測定不能になりやすく、 ^3H の測定でやや測定誤差が大きい傾向が認められた。しかし、free (^3H 以外の核種)の測定条件では高い測定精度が得られ、全ての β 線放出核種の放射能を決定できることから、多核種混合試料を測定することの多い放射線管理測定に適したクエンチング補正方法であると考えられた。液体シンチレータの容量の変化による測定値の変動は、数%以内であった。ろ紙に付着した試料では、シンチレータに均一に溶解した試料に比べて測定値が20~30%減少し、その補正が必要であると考えられた。また、 ^{125}I のスペクトルは ^3H や ^{14}C のスペクトルと重なっており、その計数効率率は測定条件によって異なるが30~80%であった。したがって、 γ 線放出核種が混合した試料を測定する場合には、あらかじめその核種の液体シンチレーションカウンタの測定値に与える影響を評価しておく必要があると考えられた。

1. はじめに

液体シンチレーションカウンタ(LSC)は、医学研究分野で ^3H 、 ^{14}C などの低エネルギー β 線放出核種の放射能測定器として広く使用されている。一方、放射線管理測定の分野においても、 β 線放出核種の排水中放射能濃度、スミヤ法を用いた表面汚染密度、ろ紙集塵法を用いた空气中放射性ダスト濃度の測定などに利用することができる。最近のLSCは、医学研究にお

ける標準的な条件に対して放射能(dpm値)の測定が自動化されている。しかし、多くの核種が混在したり、ろ紙に付着した放射能の測定など特殊な条件で測定するこのある管理測定においては、測定値の補正が必要なが多い。

今回我々はLSCの放射線管理への利用を念頭におき、種々の条件におけるLSCの測定精度を検討するとともにその問題点について考察した。検討した項目はクエンチング補正法の種類、シンチレータの液量、測定試料の形状およ

び γ 線放出核種の測定値に及ぼす影響などである。 γ 線放出核種は通常 LSC で測定されることはないが、 β 線や内部転換電子を伴う場合には LSC の計数値に影響することが知られており¹⁾、今回は日常放射線管理で問題になることの多い¹²⁵I についてその影響を検討した。

2. 使用装置および実験方法

2.1 使用装置と線源

実験に使用した液体シンチレーションカウンタ (LSC) は、川崎医科大学 RI センターに設置されているアロカ社製 LSC-3100 である。 β 線スペクトルは、板谷ら²⁾の開発した MCA エミュレータ用ユーティリティソフト (LSC.EXE) を用いて LSC のデータをパソコンに取り込み、川崎医療短期大学放射線技術科に設置されているマルチチャンネル波高分析器 (MCA 7800) システムを用いて測定した。

クエンチング補正用標準線源として、³H (323 k dpm) のクエンチングの程度を変化させた No.1 (クエンチング大) ~No.10 (クエンチング小) の線源および¹⁴C (100k dpm) の No.1 ~No.10 の線源を用いた。また、液体シンチレータとして Aquasol-2 (NEN 社製) を用い、³H-H₂O、¹⁴C-Lysine および¹²⁵I-NaI 溶液の適当な量を加えて、それぞれの核種の測定試料を作成した。

2.2 クエンチングの補正方法

クエンチング補正法として、実験に使用した LSC-3100 に標準装備されている外部標準線源チャンネル比法 (ESCRM) と効率トレーサ法 (ETM) を用いた。ESCRM は³H、¹⁴C の測定に最も一般的に使用されているクエンチング補正法で、外部標準線源として¹³⁷Cs が用いられている。ETM は β 線出力の積分バイアス曲線を利用したクエンチング補正法で³⁾、 β 線による出力を種々のウィンドウで測定し、計数効率100% になる点を補外して求めて測定試料の放射能値を決定する方法である。実験に使用した LSC には³H と free (その他の核種) の2つの測定条件が備わっており、ESCRM では不可能な³H、¹⁴C 以外の核種の放射能値も測定できる利点がある。

2.3 実験方法

1) ESCRM と ETM の補正精度の比較

³H、¹⁴C のクエンチング補正用標準線源を 1

Table 1 Counting accuracy of external standard channel ratio method (ESCRM) and efficiency tracing method (ETM) in liquid scintillation counting

Standard source (No.)	ESCRM (dpm)	ETM (dpm)	
³ H	1	278226 (-13.9%)	RATIO OVER
	2	280819 (-13.1%)	RATIO OVER
	3	289169 (-10.5%)	RATIO OVER
	4	295167 (- 8.6%)	RATIO OVER
	5	310819 (- 3.8%)	273797 (-15.2%)
	6	310746 (- 3.8%)	297616 (- 7.9%)
	7	310568 (- 3.8%)	303348 (- 6.1%)
	8	315287 (- 2.8%)	311144 (- 3.7%)
	9	315283 (- 2.8%)	320625 (- 0.7%)
	10	317512 (- 1.7%)	319624 (- 1.0%)
¹⁴ C	1	RATIO OVER	RATIO OVER
	2	98560 (- 1.4%)	RATIO OVER
	3	98093 (- 1.9%)	RATIO OVER
	4	99566 (- 0.4%)	100778 (+ 0.8%)
	5	102441 (+ 2.4%)	101239 (+ 1.2%)
	6	102992 (+ 3.0%)	100181 (+ 0.2%)
	7	102659 (+ 2.7%)	99591 (- 0.4%)
	8	102123 (+ 2.1%)	100152 (+ 0.2%)
	9	101750 (+ 1.8%)	99960 (0 %)
	10	100797 (+ 0.8%)	99562 (- 0.4%)

分間ずつ測定し、クエンチング補正法 ESCRM および ETM を用いて各線源の放射能値を求めた。そして、標準線源のあらかじめ分かっている放射能値を基準 (100%) として、実測された値の誤差を求めた。

2) シンチレータの液量の測定値に及ぼす影響

20ml 用ガラスバイアルビンを用いて、¹⁴C 溶液の一定量を 2 ml のシンチレータに溶解した試料を作成し、ESCRM と ETM を用いて放射能値を測定した。その後、シンチレータをバイアルビンに順次 20ml まで追加し、各液量における放射能値を求めた。

3) 試料の形状の測定値に及ぼす影響

¹⁴C 溶液の一定量を 10ml のシンチレータに均一に溶解した試料と、同量の¹⁴C をろ紙にしみ込ませ乾燥させた後バイアルビンの底に入れ 10ml のシンチレータを加えた試料を作成し、ESCRM と ETM を用いて放射能値を求め比較した。さらに、ろ紙の試料については測定後ろ紙を取り出してシンチレータのみの放射能を測定し、¹⁴C のろ紙からの溶出の程度を検討した。

4) β 線放出核種の測定値に及ぼす ^{125}I の影響
 ^3H , ^{14}C および ^{125}I 溶液を蒸留水で希釈し、その0.05mlをシンチレータ10mlに溶かした試料を作成し、同一条件で各核種のスペクトルを測定して比較した。また、 ^{125}I の試料をLSCの β 線放出核種を測定するための種々の測定条件で測定し、各条件における計数効率を求めた。 ^{125}I の放射能の絶対値は、同一試料を計数効率の分かっているウエル型NaI(Tl)シンチレーションカウンタで測定し、決定した。

3. 実験結果

3.1 ESCRM と ETM の補正精度の比較

表1に外部標準線源チャンネル比法(ESCRM)と効率トレーサ法(ETM)で測定したクエンチング補正用標準線源の放射能値とその誤差を示した。RATIO OVERはクエンチングの程度が大きく、測定条件から外れて測定不能であることを示している。ETMでは、ESCRMに比べてクエンチングの大きい試料でRATIO OVERになりやすい傾向が認められた。 ^3H の測定誤差はクエンチングの大きい試料ほど大きくなる傾向があり、ESCRMにおいては-13.9~-1.7%、ETMにおいては-15.2~-0.7%であった。 ^{14}C の測定誤差は ^3H の場合より小さく、ESCRMでは $\pm 3\%$ 以下、ETMでは $\pm 1.2\%$ 以下であった。

3.2 シンチレータの液量の測定値に及ぼす影響

図1に ^{14}C 試料におけるシンチレータの液量とESCRMおよびETMの測定値の変動を検討した結果を示した。シンチレータの液量が増加す

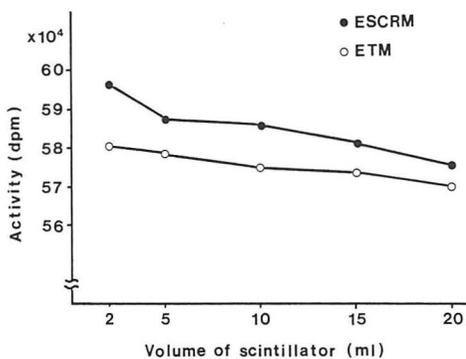


Fig. 1 Effect of volume of liquid scintillator on activity determined from ESCRM and ETM.

ると測定値は両者とも減少する傾向を示した。シンチレータの容量が10mlの場合の測定値を基準として、2~20mlの範囲の測定値の変動はESCRMでは+1.7~-1.7%、ETMでは+1.2~-0.9%であった。以下の実験については、シンチレータの容量は10mlで行った。

3.3 試料の形状の測定値に及ぼす影響

表2に ^{14}C 試料の形状による測定値の変動を検討した結果を示した。均一に溶解した試料に比べて、ろ紙に付着した試料の測定値はESCRMでは73.3%にETMでは80.2%に減少した。そのうち、ろ紙からシンチレータへの ^{14}C の溶出は1.6%であった。したがって、ろ紙に付着した ^{14}C のみの放射能の測定値は、均一に溶解した試料の測定値(実際に存在する放射能の値を数%の誤差の範囲で表しているとみなしてよい)に対して、ESCRMでは71.7%、ETMでは78.6%であった。

3.4 β 線放出核種の測定値に及ぼす ^{125}I の影響

図2に ^3H , ^{14}C および ^{125}I のLSCで測定し

Table 2 Comparison of measured values of activity in ^{14}C disc sample with that in homogeneous sample

^{14}C sample	ESCRM (dpm)	ETM (dpm)
A. Homogeneous sample	175351 (100%)	172827 (100%)
B. Disc sample (paper filter)	128543 (73.3%)	138540 (80.2%)
C. Eluted sample without disc	2842 (1.6%)	2685 (1.6%)

Table 3 Counting efficiency of ^{125}I with liquid scintillation counter

Instrument	Measurement condition	Counts rate (cpm)	Activity (dpm)	Counting efficiency (%)	
NaI(Tl)	^{125}I window (15~90 keV)	188040	275315	100	
LSC	ESCRM	^3H window	90520	198682	72.2
		^{14}C window	133552	148276	53.9
	ETM	^3H window*	76567	169041	61.4
		^{14}C window*	61063	91604	33.3
	free	^3H	126253	221785	80.6
			126240	167102	60.7

*windows in simultaneous measurement of ^3H and ^{14}C

たスペクトルを示した。 ^{125}I の内部転換電子によるスペクトルは ^3H , ^{14}C の β 線のスペクトルと重なっており, ^{125}I を含む試料をLSCで測定すると ^3H , ^{14}C をはじめ β 線放出核種の測定値に影響を与えることがわかる。

表3に ^{125}I をLSCの種々の条件で測定し,NaI(Tl)シンチレーションカウンタで決定した放射能に対する計数効率を求めた結果を示した。 ^3H windowの効率は61.4~80.6%, ^{14}C window (freeを含む)の効率は33.3~60.7%であった。

4. 考 察

β 線スペクトルは0から最大エネルギーまでの連続スペクトルであり,液体シンチレーション

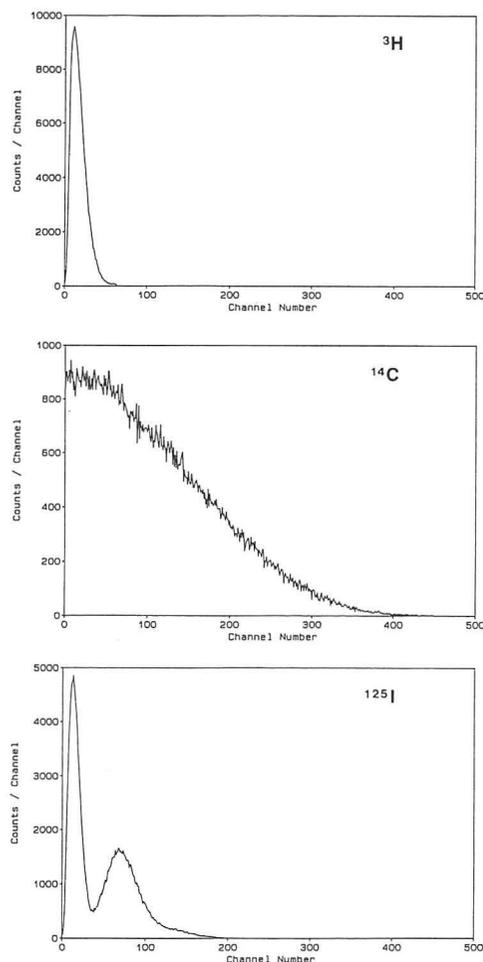


Fig. 2 Pulse height spectra of ^3H , ^{14}C and ^{125}I obtained with liquid scintillation counter.

ン計測法では原理的にスペクトルの全面積(全計数率)を求めれば放射能値を決定できる。しかし,波高分析が可能なパルス波高には下限があり,この下限以下の出力は計数できない。したがって,もともと低エネルギーの β 線を放出する ^3H (最大エネルギー:18.6 keV)の測定やクエンチングの程度が大きくスペクトルが低エネルギー側に大きくシフトしている試料の測定では,下限以下の微小パルスの割合が高くなり誤差が大きくなる。特にETMは検出されない微小パルスの計数を補外して求めていることから,この傾向が強くなると考えられる。

ETMは,外部標準線源を使用しないため ^{14}C 以上の β 線エネルギーを持つ核種の放射能値も決定でき,多核種混合試料でもその中に含まれる核種の数やエネルギーに関係なく全放射能を測定できるという特長を持っている。一般に放射線管理測定における試料では含まれる核種が不明であり,その核種を同定し各核種ごとの放射能を厳密に求めることは困難なことが多い。そこで,日常の管理においては,多少の正確さは犠牲にしても出来るだけ簡単な方法で放射能レベルを定期的に測定し,異常値がでた場合にさらに精密な測定方法で分析するという手法がとられている。このような放射線モニタリングの手法に,ETMは正に適した測定法であるといえる。

液体シンチレータの容量の変化やろ紙状の試料の測定では,試料に含まれる β 線によって発生したシンチレーションの光が光電子増倍管に達する過程の幾何学的な効率が変わるため,測定値に影響を与えることが予想される。シンチレータの容量の変化が2~20mlの範囲では,放射能の測定値の変動は数%以内と小さく,実際の管理測定では考慮しなくてもよい程度であった。

ろ紙状の試料では,ろ紙に付着した ^{14}C のみの測定値はESCRMでは約30%,ETMでは約20%過小評価されており,実際の試料においても補正が必要と考えられた。ただし,この値は ^{14}C より約1/10のエネルギーしか持たない ^3H には適用できない。 ^3H の場合にはろ紙による β 線の吸収など他の因子が影響してくるため,別に実験的に補正係数を求める必要がある。また,

ろ紙に捕集された放射性物質が液体シンチレータにどの程度溶出しているかが測定精度に影響する。この溶出程度は個々の試料によって異なるため、厳密な測定では可溶化処理などによってシンチレータ中に均一分散して測定する⁴⁾。しかし、日常の管理測定では、全放射性物質がろ紙に付着しているものとして補正すると安全側に評価でき、十分放射線モニタリングの目的を達成できると考えられる。

放射線管理測定における試料では β 、 γ 核種混合の場合もあり、 γ 線放出核種の液体シンチレーションカウンタ(LSC)の測定値に及ぼす影響を評価しておく必要がある。今回検討した ^{125}I は、実際の臨床のインビトロ検査においてもLSCによって測定されることもあり⁵⁾、LSCの各測定ウィンドウに対して高い計数効率を示した。Horrocks, D. L. は⁶⁾、 ^{125}I のLSCによるスペクトルは12と40 keVにピークを持ち、計数効率が76%であったと報告している。我々の実験でも、これにほぼ近い結果が得られた。

実際に ^{125}I を含む β 線放出核種の試料をLSCで測定する場合、 ^{125}I の影響を除くためには以下の手順で行なえばよい。①その試料をウエル型NaI(Tl)シンチレーションカウンタで測定し ^{125}I の放射能を求める。②その試料をLSCの各測定条件で測定し、 β 線放出核種の放射能を求める。③②で求めた放射能の値から、①で求めた ^{125}I の放射能の値にそれぞれの測定条件における表3の計数効率をかけた値を差し引くと β 線放

出核種のみ放射能の値が求まる。

今回は ^{125}I についてのみの検討であったが、実際の測定試料に混合する可能性のある他の γ 線放出核種についても同様な検討が必要と考えられる。

謝 辞

本研究にご協力頂いた、川崎医科大学 RI センターの職員の皆様ならびに放射線技術科第13期生の石井孝之君、野山正利君、吉原千春さんに深く感謝いたします。

文 献

- 1) 石河寛昭：液体シンチレーション測定法。南山堂、東京、(1977)
- 2) 板谷道信、他：マルチチャンネルアナライザーエミュレータ用ユーティリティソフトの開発。川崎医療短期大学紀要、10、21—26、(1990)
- 3) 野口正安：液体シンチレーション計数技術(X)。RADIOISOTOPES、24(10)、743—753、(1975)
- 4) 滝上 誠、他：液体シンチレーション測定によるろ紙試料の放射能決定。RADIOISOTOPES、30(3)、135—139、(1981)
- 5) Helman E. Z., et al: Counting of Beta and Gamma Emitters Used in Clinical Radioimmunoassays and Competitive-Binding Assays by Liquid Scintillation Counters. Clinical Chemistry、19(2)、191—196、(1973)
- 6) Horrocks D. L.: Measurement of ^{125}I by Liquid Scintillation Methods. Nuclear Instruments and Methods、133、293—301、(1976)

