

## 液体シンチレーション計数法の代わりに ラジオルミノグラフィを

馬場 茂雄

ラジオルミノグラフィ(RLG)は、液体シンチレーション計数法(LSC)より優れた測定精度を有し、安価で環境に優しい $\beta$ 核種の定量測定法である。

### LSCの問題点

約半世紀にわたり、 $^{14}\text{C}$ は専らLSCで測定されてきたが、この方法には多くの問題がある。高価なシンチレータとバイアルを必要とするばかりでなく、測定に伴って出る大量の放射性廃棄物が現場の管理者の頭痛の種になっている。ガラスバイアルは保管廃棄しなく、次世代にわたる負債を蓄積している。また、LSC廃液の処理も難題である。シンチレータとバイアルのコスト及び測定後の廃棄物の処理費用を合算すると、測定価格は1試料当たり200~300円に達する。現在、我が国では約1,000台のLSCが稼働している。各LSCが1労働日当たり100個の試料を計っていると仮定すると、測定試料数は年間数千万個、放射能測定に伴う年間総経費は数十億~百億円に達すると見積もられる。

### RLGが優れている点

RLGは、富士写真フイルム(株)によって開発された技術である。その原理は、薄層クロマトプレート(TLC)、全身オート切片(WBA)等と接触(露光)させたイメージングプレート(IP)をパイオイメージアナライザ(BAS)で解析し、IP上に記録された放射線エネルギーの分布状態をphoto-stimulated luminescence(PSL)の

分布画像として取り出すことにある。可視光線に曝すことによって、IPに残っていた放射線画像は完全に消去できるので、IPは反復使用できる。すなわち、RLGは、何の化学物質も消費しないで放射能を測定できる、環境に優しい放射能測定法である。

低レベル放射能の測定精度は、検出効率( $E$ )の1乗、計測時間とバックグラウンド値(BG)の逆数の1/2乗に比例して向上する。RLGにおける $E$ は幾何学的効率(TLC、WBAでは0.5、後述のマイクロプレートでは0.14)や自己吸収などによって異なるが、LSCの1/3~1/10である。LSCでは、所定時間内に処理しなければならない試料数の要求から、計数時間は長くても10分である。RLGにおける露光時間は、任意に設定でき、普通1~3日である。低温露光によってフェーディングを押さえれば更に延ばすこともできる。BGは検出部の体積に比例する。RLGにおける検出部の体積(=関心領域の面積×IPの感光層の厚さ)はLSCの1/1,000のオーダーで、それだけ相対的に低いBG下で測定できる。また、露光容器壁を厚くすることによって容易にBGを下げることもできる。RLGにおける $E$ の低さは、桁違いに長い露光時間とBGの低さによって完全に帳消しされる。

RLGが定量測定法として認知されるには、RLGは放射能の2次元分布画像の解析手段として不動の地位を確立したが、放射能の定量

測定法としての市民権をいまだ得ていないように思われる。そのゆえんとして、感度の面均一性を試験し、不均一性が認められた場合には正規化 (normalize) するという2次元放射能測定法としてのキーポイントが未解決のままであること、また自己吸収、測定値の統計変動、PSL値のBq値への変換など、最も基礎的な事項が等閑にされたままであることなどが挙げられる。

### 測定結果の正規化

RLGにおける感度面均一性には、IPとBAS双方の感度面均一性が関わっており、両者が重なった状態でしか観察されない。

筆者らは、1枚の<sup>147</sup>Pm平面線源に露光された複数枚のIPを2台のBASで解析した。解析はIPの周辺部10mmを除外し、684のエリア(10×10mm)に分けて行った。まず、1枚のIP(IP1)について観察されたエリアごとのPSL値(PSL<sub>ob</sub>/mm<sup>2</sup>)の分布を調べた。次に、他のIPを用いて、各エリアのPSL<sub>ob</sub>/mm<sup>2</sup>の全エリアの平均値に対する比(感度比)を算出した。IP1における各エリアのPSL<sub>ob</sub>/mm<sup>2</sup>を、対応するエリアの感度比で正規化し、正規化されたPSL値(PSL<sub>nor</sub>/mm<sup>2</sup>)を算出した。

実験結果を統計学的に処理した結果、PSL<sub>ob</sub>/mm<sup>2</sup>に見られる主要変動要因はBASによるPSL読取り過程にあること、各BASの感度には固有の方向変動性があること、IPの感度面均一性は高いこと等が明らかにされた。<sup>147</sup>Pm平面線源を180度回転して露光しても同じ方向変動性が見られることから平面線源には問題ないことが分かった。

実験結果の一例を図1に示す。4枚のIPを<sup>147</sup>Pm平面線源に露光し、IP1~IP4を作製した。AはIP1におけるPSL<sub>ob</sub>/mm<sup>2</sup>の分布である。PSL<sub>ob</sub>/mm<sup>2</sup>に少数とはいえ、異常に高いエリアが存在することは2次元放射能測定法としては致命的な欠陥である。最高値と最低値には10%以上の差がある。Aに見られる1.52%と

いう相対標準偏差(RSD)からは“均一性は十分に高い”ように錯覚しがちであるが、正規分布しないPSL<sub>ob</sub>/mm<sup>2</sup>に単純に標準偏差を適用して統計学的な判断を下すことは適切ではない。

Bは、IP2~IP4における感度比の平均値を使い、エリアレベルでIP1のPSL<sub>ob</sub>/mm<sup>2</sup>を正規化して得られたPSL<sub>nor</sub>/mm<sup>2</sup>の分布である。正規化によって、BASのPSL読取り感度における均一性は著しく改善される。PSL<sub>nor</sub>/mm<sup>2</sup>は正規分布し、検出限界を統計的に論ずることができるようになる。RSDが0.46%であることは、RLGは精度の極めて高い2次元放射能測定法になることを示唆している。話を単純化するためにエリアレベルで正規化する過程を説明したが、ピクセルレベルで正規化することもできる。

正規化作業に必要なのは、<sup>147</sup>Pm平面線源そのものではなく、この線源に露光されたIPであることを強調しておく。後者は、放射性物質ではないので、放射線障害防止法の規制を受けることなく輸送できる。輸送はこの試験に対して何の障害にもならないことは経験済みであ

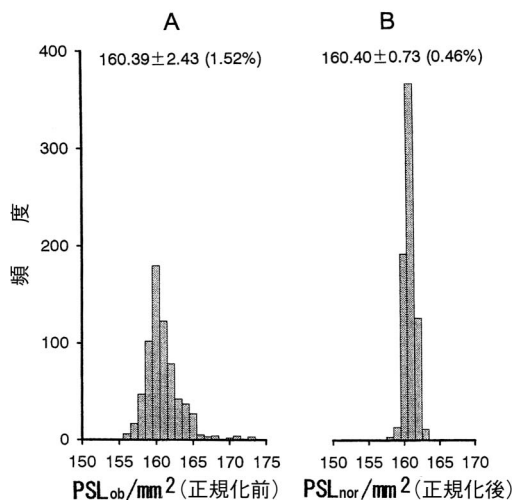


図1 <sup>147</sup>Pm平面線源で照射されたIPにおけるPSL/mm<sup>2</sup>の分布

る。我が国に1か所照射施設を作り、 $\beta$ 線に均一照射されたIPを供給するようにすれば全国のBASを正規化することができる。これは $^{14}\text{C}$ 平面線源でも可能なはずである。

### BGの正規化処理

放射能の検出限界(D. L.)はBGの変動の大きさによって決まる。普通、BGの3SD以上の信号を与える放射能をもってD. L.としている。この場合には、誤って有意な放射能ありと判断する確率を0.26%以下にすることができる。RLGでは、BGはBASにおけるPSL読取りにおける不均一性の他に遮へい強度の不均一性の影響も受ける。したがって、定量測定では正規化されたBG値(PSL<sub>nor.bg</sub>)を用いるのが望ましい。

四囲を10mmの真鍮角棒、上下を20mm真鍮板で組み立てた容器の中で5枚のIPを72時間静置した。任意の1枚のIPで観察された各エリアのPSL<sub>ob.bg</sub>/100mm<sup>2</sup>を、前述した感度の正規化手法に準じて正規化した。算出されたPSL<sub>nor.bg</sub>/100mm<sup>2</sup>は317.5±5.9PSLであった。これだけの精度をLSCで確保するためには100分計測が要求される。この解析条件下で $^{32}\text{P}$  $\beta$ 粒子は1個あたり平均0.084PSLを与える。317.5PSLは、3,780個の $^{32}\text{P}$  $\beta$ 粒子が入射したときに予想される値に相当し、この数の放射性壊変に伴う統計変動は1.6%で、この値はPSL<sub>nor.bg</sub>/100mm<sup>2</sup>のRSDとほぼ一致していることは興味深いことである。

### RLGとLSCの比較

極低放射能領域における測定精度を比較したデータを図2に示す。RLG測定シートは、放射性試料液を縦横10mm間隔でプラスチックフィルムにスポットし、乾燥することにより作成した。LSCはアロカ(株)の普通のLSC及び逆同時計数回路つきlowBG LSCを用いた。

LSC、RLGの検出限界はいずれもBG値及び計数(露光)時間の逆数の1/2乗に比例して改

善されている。このことは、放射能測定法として両者に本質的な差がないことを意味している。Cの条件における測定精度は、lowBG LSCによる100分計数のときのそれよりも優れていることを強調しておく。

### マイクロプレートRLGの提案

筆者は、LSCに代わる方法としてマイクロプレートRLGを提案した。この方法の骨子は、マイクロプレート(48穴、底面積100mm<sup>2</sup>、深さ5mm)のウェルに液状試料を取り、乾燥してRLGを行うことにある。詳細は堀江正信氏の解説(RADIOISOTOPES, 48, 488-503(1999))に譲る。

本法では1度に6枚のマイクロプレートを測定できる。マイクロプレートは1枚600円である。RI汚染と湿気に注意すればIPは何十回も反復使用できる。また、測定済みマイクロプレートは可燃廃棄物として日本アイソトープ協会に不燃廃棄物に比べて低価額で引取ってもらえる。したがって、本法による1試料当たりの測定経費はLSCの1/10以下である。

この方法が最もうまく適用できるのは、ラジオ液体クロマトグラフィにおけるオフライン計数法としてである。その他、プラズマや尿等水溶液試料にも適用できる。

$^3\text{H}$ は、マイクロプレートのウェル相当部分に窓を持つスペーサーを介し、ヘリウム気流中、 $^3\text{H}$ 用IPに露光させることによって測定できるが、自己吸収が著しいので、この核種のRLGによる定量は諦めた方が賢明である。 $^{35}\text{S}$ 、 $^{33}\text{P}$ 、 $^{45}\text{Ca}$ などはこのマイクロプレートがそのまま使用できる。 $^{32}\text{P}$ は高エネルギーの $\beta$ 線を放射する。この核種を本法で測定すると、ウェル側壁を透過した $\beta$ 線が隣のウェル領域にまで達し、いわゆるクロストークを起こすのでこのマイクロプレートでは測定できない。 $^{32}\text{P}$ は、このマイクロプレートのウェルとほぼ同サイズのプラスチック皿にとり、15mm間隔(中心から中心)において、この皿が入る穴を穿った真鍮板へ埋

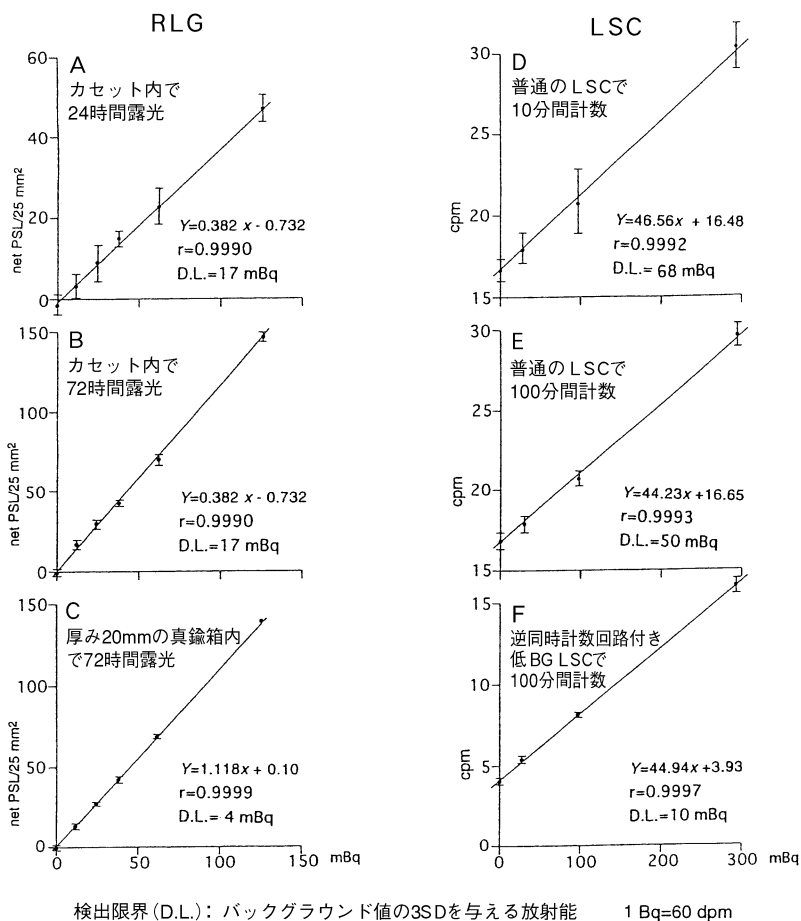


図2 サブペクレル<sup>14</sup>Cの検量線

め込んで露光すれば極めて高い感度（24時間露光で6 mBq）で測定できる。LSCで<sup>32</sup>Pを長時間計数するとき、減衰を補正しなければならないが、RLGは一括測定であるので、その必要は全くない。これも、短半減期核種の測定におけるRLGのメリットである。

おわりに

栗原紀夫氏を委員長とする、日本アイソトープ協会ライフサイエンス部会のアイソトープトレーサ研究用機器専門委員会はRLGの基礎から応用にわたる解説をRADIOISOTOPES誌に

連載した（1998年11月号～2001年4月号）。GM計数管に始まる、すべての放射能測定法は欧米で開発されたもので、放射化学に籍をおく者として肩身の狭い思いをしてきた。RLGこそ、原理の開発から実用化まですべて国産の技術である。国粹主義者ではないが、省資源の叫ばれている今日、RLGをもっと普及させたいと願っている。紙面の都合で文献は割愛した。必要な方はホームページ「トレーサー法による薬物動態研究塾」の9章を参照されたい。

（東京薬科大学名誉教授）