

《技術報告》

β線用シンチレーションサーベイメータを用いた ストロンチウム-89 排液中放射能濃度の簡易定量法の開発

成田 浩人 *1,*5 土屋 裕介 *2 平瀬 清 *1,*6 内山 眞幸 *3
福士 政広 *4

要旨 有痛性骨転移の疼痛緩和治療薬として放射性塩化ストロンチウム-89 (^{89}Sr) が使用されている。 ^{89}Sr は純β線放出核種であるため定量することは難しい。 ^{89}Sr の管理のため、排液中の放射能濃度の定量法を試みた。今回、β線用シンチレーションサーベイメータを用いて、排液中の ^{89}Sr の定量評価を目的とした。本法で求めたサーベイメータの検出効率は35.95%であった。2 mlの試料を30分間測定することで ^{89}Sr の定量を可能とした。β線の測定において考慮しなければならない自己吸収は、ポリエチレンろ紙を用いることによって検出効率の向上が可能となった。 ^{89}Sr の試料に妨害核種となるγ線放出他核種の混入があっても、条件を設定し十分な減衰の後に計測すれば、法令上の排水中濃度限度値を超えることが確認できた。本法はβ線核種を含む排液の簡便な管理法と考える。

(核医学 49: 351–355, 2012)

I. はじめに

有痛性骨転移の疼痛緩和治療に塩化ストロンチウム-89 (^{89}Sr) が用いられている。この塩化ストロンチウム-89 は半減期 50.5 日、β線エネルギー 1.495 MeV、放射能比 100% の診療用放射性同位元素である。

今まで主に診断用としてγ線を用いていた核医学施設には、排液中のβ線を測定できる装置を備えていないところが多い。 ^{89}Sr は純β線放出

核種であるため、排水時におけるβ線の測定方法が課題となっていた。

今回、われわれはβ線用プラスチックシンチレーションサーベイメータ TCS-316H (以下「PSSM」という。)を用いて、簡便な排液中の ^{89}Sr 放射能濃度測定法を提案する。

PSSM は、検出面に約 100 cm² のβ線測定用プラスチックシンチレータを用いたサーベイメータである¹⁾。本機は、通常の汚染確認として用いられるが、測定時間を設定したスケアラ機能もあるため、今回の検討に用いた。

法令上放射性物質の排液は、核種ごとに放射能濃度限度が定められており、排水中に含まれる放射能濃度を測定しなければならない。排液中の放射能濃度測定には、管理区域である排水施設に排水モニタを設置するか貯留槽に溜められた排液のサンプルを定量するが、 ^{89}Sr は純β線放出核種であるため一般的な核医学施設に設けられているγ線を測定する装置では測定できない²⁾。排水設備にβ線を測定するシステムの導入は多大な費用

*1 東京慈恵会医科大学附属病院放射線部

*2 佐久総合病院診療放射線科

*3 東京慈恵会医科大学放射線医学講座

*4 首都大学東京健康福祉学部放射線学科

*5 首都大学大学院健康福祉学部人間健康科学研究科放射線科学域

*6 金沢大学大学院医学系研究科保健学専攻

受付：23年12月16日

最終稿受付：24年7月4日

別刷請求先：港区西新橋3-19-18 (☎ 105-8471)

東京慈恵会医科大学附属病院放射線部

成田 浩人

もかかり、管理も難しい。また、 β 線溶液の測定は、自己吸収があるため、一般的には液体シンチレーションカウンタ（以下「LSC」という。）を用いるが、病院等での管理では一般的でない^{3,4)}。したがって、本研究では、排液中の ^{89}Sr の濃度の簡便な定量法の開発を目的とし、その濃度限度である 0.3 Bq/cm^3 が定量可能かどうか検討した。さらに、定量時の妨害核種となる γ 線放出核種の混入に対する影響を知ることで、他核種の排水中の濃度限度の管理が行えるか検討した。

II. 方 法

PSSMの測定効率を求めるために、既知の ^{89}Sr 試料を作成した。

1) 排液サンプルの試料調製

製薬会社から放射能濃度証明を発行された ^{89}Sr 製剤（ 37.08 MBq/ml 容量 4 ml 検定日時2011年5月20日21時）の分注後残液バイアルに幾何学的同一条件とするため蒸留水を入れ、使用前と同量の 4 ml 容量として、これを検討に用いる排液試料とした。おおよその放射能濃度を知るため、ドーズキャリブレーションプレート（IGC-7）にて放射能を測定した。

2) 液体シンチレーションカウンタ (LSC-6100) による ^{89}Sr 排水試料の定量

1)で調製した ^{89}Sr 排水試料 0.5 ml を液体シンチレータ（Optiphase HiSafe 2）と混合し測定用試料を作製した。測定用試料をLSCにて効率トレーサ法を用いて定量した（2011年11月15日）。効率トレーサ法とはクエンチングによる計数効率の低下を標準クエンチング試料を用いず、一般の β 放射体の絶対壊変率から求める方法である。効率トレーサ法では β 線スペクトルの積分値によって未知の β 放射体の積分値を外挿してその放射能を求めることができる。効率トレーサ法に用いた標準線源は ^{14}C （1993/8/11, $111,800\text{ dpm}$, 半減期 $5,730$ 年）である。試料をエネルギー幅 $10\text{--}1500\text{ keV}$, $20\text{--}1500\text{ keV}$, $30\text{--}1500\text{ keV}$, $40\text{--}1500\text{ keV}$, $50\text{--}1500\text{ keV}$, $60\text{--}1500\text{ keV}$ とし、各々2分間の測定結果から、横軸に効率 x 、縦軸に放射能 y と

して直線近似により以下の一次式を求めた。

$$y = 149956x + 558820 \quad (1)$$

3) 妨害核種試料

当院では ^{131}I を甲状腺癌の治療目的で使用している。2011年6月10日から2011年7月21日までの41日間に貯留した 15 m^3 の排水を2011年7月21日に γ 線水モニタ（DWM-101）で定量した結果 $1.07 \times 10^2\text{ Bq/cm}^3$ であった。この期間に入院治療した ^{131}I 投与患者は12人で合計投与量 44.40 GBq である。2011年11月27日の同排液 15 m^3 は ^{131}I の半減期で減衰計算すると2011年7月21日から129日経過しているため $1.50 \times 10^{-3}\text{ Bq/cm}^3$ となり、これを妨害核種試料とした。

実験1 PSSMでの ^{89}Sr 単独試料の測定

既知となった測定用試料 2 ml （ 14 Bq/ml ：2011年11月27日）をPSSMの測定窓を超えない大きさ（ $5\text{ cm} \times 15\text{ cm}$ ）のポリエチレンろ紙に染みこませ（試料A）、乾燥後PSSMのスクーラーモードにて10分間計測を10回繰り返した（Fig. 1）。また、正味のカウントを求めるためバックグラウンドを100分間計測した。

排水の放射能濃度計算

排水の放射能濃度は、以下の①式より求められる。



Fig. 1 A PSSM (TCS-316H, Hitachi Aloka Medical, Ltd.) was used to measure for 10 minutes the radioactivity of a $50 \times 150\text{-mm}$ piece of polyethylene filter paper that had absorbed 2 ml of a solution containing a ^{89}Sr concentration of 14 Bq/ml .

$$B \text{ (Bq/cm}^3\text{)} = \frac{N-Nb}{\eta \times V} \times 100 \times \frac{1}{T_s} \times \frac{1}{60} \quad \dots \text{①}$$

- B: 排水の放射能濃度 (Bq/cm³)
- N: 測定で得られたカウント (counts)
- Nb: バックグラウンド計数值 (counts)
- η: 検出効率 (%)
- V: 測定容量 (cm³)
- T_s: 試料測定時間 (min)

検出限界値は以下の②式で求められる。

$$A \text{ (Bq/cm}^3\text{)} = k \times \frac{\sqrt{Nb/T_s}}{\eta \times V} \times 100 \times \frac{1}{60} \quad \dots \text{②}$$

- A: 検出限界値 (Bq/cm³)
- k: 標準偏差の幅
- T_s: 試料測定時間 (min)
- Nb: BG 値 (cpm)
- η: 検出効率 (%)
- V: 測定容量 (cm³)

実験 2 妨害核種を混入させた測定

試料 A に妨害核種試料 2 ml を染みこませ (試料 B), 乾燥後 PSSM で実験 1 同様スケーラーモードにて 10 分間計測を 10 回繰り返した。

III. 結 果

1) 排水サンプルをドーズキャリブレーションで計測した結果

計測値 1.183 MBq/4 ml, すなわち放射能濃度 295750 Bq/ml を得た (2011 年 5 月 25 日)。この計測から実験日の 179 日後 (2011 年 11 月 15 日) の放射能を算出すると 25346 Bq/ml であった。

2) LSC による⁸⁹Sr排水試料の定量結果

検出効率 1 の場合を求めると試料の放射能が求められる。すなわち (1) 式より検出効率 x=1 とすると, ⁸⁹Sr 排水試料 708776 dpm が求められた。

708776 dpm/0.5 ml なので, 試料の放射能濃度 23625 Bq/ml である。

放射能濃度が高いので試料を 1000 倍程度希釈し, 再度測定した。

希釈後の⁸⁹Sr 放射能濃度は 16.27 Bq/ml (2011

年 11 月 15 日) であった。

3) 妨害核種試料の結果

妨害核種試料 1.50 × 10⁻³ Bq/cm³ (2011 年 11 月 27 日)。

PSSM にて測定したポリエチレンろ紙における放射能濃度の結果

Table 1 Measurements of counts with the PSSM

Number of measurement	Sample A	Sample B
	14 Bq/ml × 2 ml counts	Sample A + γ ray solution 2 ml counts
1	8340	8433
2	8144	8213
3	8114	8236
4	8206	8181
5	8282	8387
6	8342	8290
7	8190	8186
8	8118	8355
9	8420	8401
10	8434	8396
Mean ± SD	8259 ± 121.2	8307 ± 97.7

We measured samples A and B for 10 minutes 10 times. Sample B mixed 2 ml of effluent including a gamma-ray-emitting nuclide for interference with sample A. The background was 22193 counts. The measurement time was 100 minutes.

B.G. は 22193 counts/100 min であった。

Sample A と Sample B での F 検定: p 値は 0.53 で等分散である。

対応のある t 検定で p 値は 0.129, ウェルチの検定でも p 値は 0.335 と Sample A と Sample B の間に有意差が認められなかった。

実験 1 の結果

PSSM における⁸⁹Sr 単独の β 線検出効率の算定:

1) β線検出効率:

10 回測定平均値は 8259 counts/10 min ± 121.2 であり, ①式より検出効率 η を算出すると, η = 35.95% であった。

検出限界値は②式で求められる。

標準偏差の幅を 3σ として ^{89}Sr 排液試料 2 ml での検出限界値 0.32 Bq/cm^3 であった。

実験2の結果

妨害核種を混入させた試料 B を PSSM で測定した結果、10 回測定平均値は $8307 \text{ counts/10 min} \pm 97.7$ であった。変動率は 3.03% であった。

IV. 考 察

本研究は、法令上の排水中濃度限度値を簡便に計測することを目的とした。放射能濃度の低い試料作成のため、分注使用後の ^{89}Sr 残液を用いた。おおよその放射能濃度を知るため、幾何学的同一条件となる蒸留水を入れたバイアルをドーズキャリブレーションで計測した結果、LSC で求めた定量値と類似し目安として把握することに有効であった。

土屋らは、本実験と同じ検出器を用いた 12 本の 2.5 ml プラスチックシリンジ、計 30 ml の試料測定では、検出効率 6.31% が得られたと報告した⁵⁾。 ^{89}Sr の β 線は水中での飛程が平均 2~3 mm (最大 8 mm) であり、液厚が大きいほど自己吸収が大きくなり検出効率が低下する。したがって、自己吸収を少なくするため、水分をなくすことで検出効率が向上した。検出効率の向上は、測定試料の減少や測定時間の短縮に繋がる。今回、行った方法は検出効率の向上を期待し、ポリエチレンろ紙に浸透乾燥させたことである。実験 1 の結果より検出効率 35.95% が得られた。これは放射能を測定する上で幾何学的に 2π で最大 50% としても非常に高い効率と言える (PSSM の仕様書に記載された機器効率は $45\%/2\pi \pm 25\%$ 以内)。実験 1 では 2 ml を 10 分間計測を 10 回繰り返した。PSSM の変動率は 3.87% と安定していた。法令で定められた ^{89}Sr の排水中濃度限度は 0.3 Bq/cm^3 である。検出限界値は目標とする値の 1/3 以下の値であることが望ましい。検出限界値を算出すると、 $A=0.32 \text{ Bq/cm}^3$ となり、2 ml の試料を 10 分間の測定では不十分である。検出限界値が 0.1 Bq/cm^3 となる計測時間を求めると、同一試料

を 30 分間計測すれば、検出限界値 0.1 Bq/cm^3 となることが分かった。

ここで試料 A (14 Bq/cm^3) の 2 ml を 30 分間計測したと仮定すると 8259 カウントの 3 倍、すなわち 24777 カウントとなる。30 分間のバックグラウンド 6658 カウントを引くと 18119 カウントとなる。これから 0.3 Bq/cm^3 における真のカウントを求めると 388 カウントとなった。PSSM の変動率を考えても ^{89}Sr の排水中濃度限度である 0.3 Bq/cm^3 が定量可能であることが分かった。

このことを踏まえ、通常核医学診療を行う上で混入する他の γ 線放出核種の影響を無視することができるためには、どのくらいの期間貯留すればよいかを考察した。実験 2 で用いた試料は 41 日間で 15 m^3 の排水が貯留された貯留槽の試料である。この期間に甲状腺癌の治療目的で患者に投与された ^{131}I は合計 44.4 GBq である。12 人いずれも 3 日程度入院ののち退院しているが、条件を厳しく設定して、投与された放射能すべてが貯留槽を閉じる 41 日目に流れたと仮定する。その時 ^{131}I の濃度は 2960 Bq/cm^3 となる。この溶液を 129 日間放置すると $4.1 \times 10^{-2} \text{ Bq/cm}^3$ と推定できる。実際は ^{201}Tl や $^{99\text{m}}\text{Tc}$ など他の γ 線核種が混在することになるが、半減期から考えて本法での妨害核種となり得ないため、 ^{131}I のみを考えた。44.4 GBq/ 15 m^3 の ^{131}I であっても、130 日間の減衰によって ^{131}I の排水時の放射能濃度限度値を下まわる。

実験 2 の時点で実際の放射能濃度は $1.50 \times 10^{-3} \text{ Bq/cm}^3$ であり、実験 2 の結果から互いに有意差はなく、たとえ大量の γ 線核種が混入したとしても、130 日間の減衰を待った後に ^{89}Sr の計測を行うことで排水時の放射能濃度限度値以下であることを確認できる。

V. 結 論

純 β 線放出核種である ^{89}Sr の排液中の放射能濃度測定は、従来液体シンチレーションカウンタが必要とされてきた。本法により、汚染測定用の PSSM を用いることで、簡便に排液の放射

能濃度限度を確認できた。 ^{131}I 排水濃度限度値は $4.0 \times 10^{-2} \text{ Bq/cm}^3$ であり、他の診療用放射性同位元素の中で最も厳しい値である。したがって、本法を用いて、排液2 mlを30分間計測して得られたバックグラウンドを引いた正味の計数が18119カウント、変動率を考慮しかつ安全側を考えて15000カウント以下であれば、 ^{89}Sr の β 線放出核種や γ 線を含む他の核種すべての排水中濃度限度を下まわるため、排水可能な濃度であると判断できる。

すなわち、日常の管理において、純 β 線溶液の定量は容易ではないが、サンプル2 mlを30分測定する簡便な本法にて、 ^{90}Y の混入があっても排水可能な濃度か否かを確認できることを示した。

文 献

- 1) β 線用ラギッドシンチレーションサーベイメーター MODEL TCS-316H JIS Z 4329: 2004 適合仕様書 アロカ株式会社.
- 2) 日本核医学会 RI 内用療法ワーキンググループ作業班: 排気・排水に係る放射性同位元素濃度管理ガイドライン. 日本放射線技術学会誌 2001; 57, 3: 285-301.
- 3) 文部科学省, 放射能測定法シリーズ No. 2 放射性ストロンチウム分析法 2007.
- 4) 中野政尚, 檜山佳典, 渡辺 均, 住谷秀一: 液体シンチレーションカウンタを用いた排水中 ^{89}Sr 及び ^{90}Sr 迅速分析法. *RADIOISOTOPES* 2010; 59: 319-328.
- 5) 土屋裕介, 成田浩人: プラスチックシンチレーションサーベイメータを用いた純 β 線放出核種の簡易定量の検討. 日本放射線技術学会東京部会雑誌 2010; 116: 74-76.

Summary

Development of a Simple Quantitative Method for the Strontium-89 Concentration of Radioactive Liquid Waste Using the Plastic Scintillation Survey Meter for Beta Rays

Hiroto NARITA*1,*4, Yuusuke TSUCHIYA*2, Kiyoshi HIRASE*1,*5, Mayuki UCHIYAMA*3 and Masahiro FUKUSHI*4

*1Department of Radiology, Jikei University School of Medicine Hospital

*2Department of Radiology, Saku Central Hospital

*3Department of Radiology, Jikei University School of Medicine

*4Department of Radiological Sciences, Graduate Schools of Human Health Science, Tokyo Metropolitan University

*5Department of Radiological Sciences, Graduate Schools of Human Health Science, Kanazawa University

Strontium-89 (^{89}Sr : pure β , E: 1.495 MeV-100%, half-life: 50.5 days) chloride is used as pain relief from bone metastases. An assay of ^{89}Sr is difficult because of a pure beta emitter. For management of ^{89}Sr , we tried to evaluate a simple quantitative method for the ^{89}Sr concentration of radioactive liquid waste using scintillation survey meter for beta rays. The counting efficiency of the survey meter with this method was

35.95%. A simple 30 minutes measurement of 2 ml of the sample made the quantitative measurement of ^{89}Sr practical. Reducing self-absorption of the beta ray in the solution by counting on the polyethylene paper improved the counting efficiency. Our method made it easy to manage the radioactive liquid waste under the legal restrictions.

Key words: Strontium-89, Survey meter, Beta ray.