資 料

バイオサイエンスのためのアイソトープ測定機器 (第二シリーズ)

Ⅲ. ガンマカウンタ——主にオートガンマカウンタについて

青木 達

京都大学放射性同位元素総合センター
606-01 京都市左京区吉田近衛町

Key Words : gamma counting, sodium iodide (NaI) scintillator

1. はじめに

ラジオアイソトープ (RI) はトレーサとして多くの研究分野で利用されており、最近では特にバイオサイエンスの領域で RI を活用した研究が活発に進められている。もし用いる RI が γ 線を放出する核種であるなら放射能を知るには、 γ 線を測定する方が β 線を測定するよりも容易である。 γ 線は物質の透過力が高いため、 β 線測定で問題となる自己吸収や液体シンチレーション測定で問題となるクエンチングなどを考慮する必要がない。

γ 線を測定するには、本項で述べる NaI(Tl) シンチレーション検出器または Ge 半導体検出器が用いられる。後者の半導体検出器は γ 線スペクトルのエネルギー分解能がよく、環境試料や放射化分析で測定する試料など複数の γ 線放出核種を含む試料の測定には威力を発揮する。ただし液体窒素で検出器を冷却する必要があり、大きな検出器を作ることが難しく高価になり、また検出効率が NaI(Tl) シンチレーション検出器に比べ低い、などの欠点がある。またバックグラウンド計数を下げて検出感度を上げるために、検出器を鉛でシールドする。検出器は真空中に保たれたクライオスタットの中に納め

られ、液体窒素で冷却する。したがって、試料を自動で交換するには機構が複雑となる。

RI をトレーサとして用いる実験では、測定の対象になる核種はあらかじめわかっており、また単一の核種でラベルされた試料を測定する場合が多い。このような試料の測定には、検出効率がよく、維持管理の容易な NaI(Tl) シンチレーション検出器による γ 線測定装置が通常用いられる。

このような NaI(Tl) シンチレーション検出器を装備し、試料自動交換装置をもつオートガンマカウンタと呼ばれる装置が数社から市販されている。最近では装置も改良され、マルチチャンネルアナライザを備え、測定中に試料のスペクトルを見ることができる。これによって測定ウィンドウが適切に設定されているかどうかの確認や、不純物として混入しているかもしれない RI の存在の有無などを知ることができる。

また、多量の試料測定の実望に応じて、検出器を 5 本、10 本と多数装備し、同時に数個の試料を測定できる装置も販売されている。

ここでは NaI(Tl) シンチレーション検出器を 1 個装備し、試料を自動交換できるガンマカウンタについて、構造や取扱い上の注意などを述べてみたい。多検出器を装備した機種、特に RIA 用の装置については、本シリーズの別の項において解説される。

[†] Instrument for Radiation Measurement in Biosciences (2). III. Gamma Counter. Toru Aoki: Radioisotope Research Center, Kyoto University, Yoshida-Konoecho, Sakyo-ku, Kyoto-shi 606-01, Japan.

2. 検出器の原理と構造

NaI(Tl) シンチレーション検出器は、模式図を図1に示したように、タリウム (Tl) をごく微量添加したヨウ化ナトリウム (NaI) の結晶をアルミニウムで覆い、光電子増倍管に接続したもので、光電子増倍管に接している面はガラスでできている。

図1 NaI(Tl) シンチレーション検出器

γ (X) 線がこの NaI(Tl) 結晶に入射すると、添加されたタリウムは吸収したエネルギーが光として放出されやすいように、活性化物質として働く。被覆のアルミニウムは強度や耐久性が保たれる限り薄くしてある。 γ (X) 線のエネルギーが低くなるとそこで光子の吸収があり検出効率が下がる。

シンチレータから放出された光は、光電子増倍管によって光の信号から電気信号に変換される。光電子増倍管は光電陰極と呼ばれる半透明な膜と十数段のダイノードと呼ばれる電極および陽極からできており、光電陰極に入射した光は光電効果により光電子に変換される。このようにして生じた光電子は第一ダイノードに入射して、入射電子数よりも多い二次電子が放出される。二次電子は順次ダイノード間の電界によって加速され、次々とその数を増していく。このようにして増幅された信号パルスは AD 変換され、マルチチャンネルアナライザでパルス波長と数が測られる。シンチレーション発光の減衰時間は非常に短く $10^{-7} - 10^{-8}$ 秒で、高計数率の測定が可能である。

図2に単一エネルギーの γ 線が入射した場合の NaI(Tl) 検出器で得られた波高分布を示す。Pのピークは全吸収ピーク（光電ピーク）で光電効果によって γ 線の全エネルギーが結晶に吸収されて生じたものである。ピークの高さの半

図2 NaI(Tl) のスペクトル

分の位置のピーク幅 ΔE を半値幅と呼び、エネルギー分解能を $(\Delta E/E) \times 100$ (%) で表す。 ^{137}Cs の 662 keV の γ 線に対する分解能は 7 - 10% 程度である。ピーク P 左側に現れている C の部分は γ 線のコンプトン散乱によって生じたスペクトルである。結晶が大きくなると光電ピークの割合が増える。

測定ウィンドウの設定に当たって、2 核種以上存在する試料では、他の核種からの影響を低く押さえるようにウィンドウを光電ピークに合わせ、挟む形で設定するのがよい。単一核種の試料の測定には、コンプトン散乱部分も含めて広くウィンドウを設定する方がより短い測定時間で大きな計数が得られ、統計的誤差が小さくなる。

3. 市販されている装置

現在市販されている検出器を 1 個装備した自動ガンマ線測定装置には次のようなものがある (図 3)。

アロカ社

オートウエルガンマシステム

ARC-380 2 インチ NaI(Tl) 300 サンプル

ARC-380 3 インチ NaI(Tl) (オプション) 300 サンプル

パッカード社

コブラ II 5002型 2 インチ

NaI(Tl) 750 サンプル

コブラ II 5003型 3 インチ

NaI(Tl) 750 サンプル

ファルマシア社

1470 ウィザード 2 インチ NaI(Tl) 550 サンプル

1470 ウィザード 2 インチ NaI(Tl) 1 000 サンプル

1480 ウィザード 3 インチ NaI(Tl) 270 (20 ml バイアルを測定するとき、外径最大 28 mm) / 1 000 (外径 13 mm までのバイアル測定時) サンプル

アロカ社 ARC-380

パッカード社 コブラ II 5003

ファルマシア社 1480 ウィザード

図 3 シングルディテクタを装備した代表的なオートガンマカウンタ

ブル

アロカ社の装置には2インチの検出器が標準で装備され、オプションとして3インチの検出器の装備も可能である。パッカード社の装置に

は2インチと3インチのモデルがあり、検出器の大きさの違い以外は、ほとんどの機能を共有する。ファルマシア社の装置も2インチと3インチのモデルがあり、2インチ検出器の1470

表 1 シングルディテクタを装備したオートガンマカウンタの主な仕様

	アロカ社 ARC-380	パッカード社 コブラ II 5002, 5003	ファルマシア社 1470, 1480 ウィザード
検出器	ウエル型	スルーホール型	ウエル型
NaI(Tl) クリスタル	2 インチ 3 インチ (オプション)	5002 2 インチ 5003 3 インチ	1470 2 インチ 1480 3 インチ
検出効率	2 インチ ^{125}I : 82% 16-71 keV ^{137}Cs : 10% 547-770 keV 3 インチ ^{125}I : 80% 16-71 keV ^{137}Cs : 21% 547-770 keV	5002 ^{125}I : >72% 15-75 keV 5003 ^{125}I : >74% 15-75 keV ^{137}Cs : 57%* 15-1 000 keV ^{137}Cs : 25%* 520-700 keV *実測値	1470 ^{125}I : >78% 15-1 000 keV ^{137}Cs : 26% 15-1 000 keV 1480 ^{125}I : 78% 15-1 000 keV ^{137}Cs : 47% 15-1 000 keV
測定バイアルサイズ	外径 (10-15) mm 高さ (70-105) mm	外径 (10-16) mm 高さ (60-87) mm	1470 最大 13 mm ϕ ×90 mm 最大 17 mm ϕ ×120 mm (トレイ使用しないとき) 1480 最大 28 mm ϕ ×100 mm
測定サンプル数	チューブ 300 本	チューブ 750 本	1470 チューブ 550 本 1470 チューブ 1 000 本 20 ml バイアル 270 本 1480 チューブ 1 000 本
鉛遮蔽	サンプル側 90 mm 上下 10 mm	5002 50 mm 5003 76 mm	1470 サンプル側 30 mm 上下 12 mm 1480 サンプル側 75 mm 上下 50 mm
測定エネルギーレンジ	15-2 000 keV	15-2 000 keV	1470 15-1 024 keV 1480 15-2 000 keV
マルチチャンネル数	1 000 チャンネル	4 096 チャンネル	1 024 チャンネル
スペクトル表示	可	可	可
プリセット核種	7 種	8 種	31 種
測定条件設定数	30 種	60 種	99 種
核種設定可能領域数	2	3	2
寸法・重量	W 68×D 55×H 57 cm 150 kg	5002 W 69×D 81×H 71 cm 182 kg 5003 W 69×D 81×H 71 cm 227 kg	1470 W 65×D 77×H 53 cm (500 サンプル) 128 kg 1470 W 110×D 65×H 53 cm (1 000 サンプル) 140 kg 1480 W 117×D 74×H 65 cm 315 kg

ウィザードでは装填可能サンプル数が550のものと1000のものがある。3社の代表的な機種の写真を図3示す。

4. 装置の仕様

検出器を1個装備した測定装置の主な仕様を表1に示し、個々の内容について具体的に説明する。

4.1 NaI(Tl) 検出器

NaI(Tl) 検出器には、図4に示したように構造の異なるウェルタイプとスルーホールタイプの2種類がある。ウェルタイプはNaI(Tl)結晶に測定試料の入る穴が井戸のように設けられており、光は光電子増倍管で下から受ける。

一方、スルーホールタイプは穴が結晶を通過しており、光は横から受けるようになっている。

この構造の違いは、試料交換の方法の違いとなって現れる。ウェルタイプのアロカ社ARC-380では、マニプレータでテストチューブをつまみ、検出器の穴に入れるフィンガーアーム方法をとっている。ファルマシア社ウィザードでも同様の方法で試料交換を行うが、その際テストチューブをそれぞれ試料ホルダーに入れ、ホルダー（キャリア）ごと移送し測定する。

一方、スルーホールタイプのパッカード社コブラIIでは、テストチューブを下からロッドで押し上げ検出器内に運ぶエレベータ方式で試料交換を行う。この交換方法は構造も簡単で他の方法に比べ交換速度も速い。ただし、ターンテーブル上にある他の試料からの放射線が検出器に入るクロストークと呼ばれる現象が生じる。すなわち、ある試料を測定中、他に放射線の強い試料が前後に存在するとその放射線の影響を受けることがあるので注意が必要である。

テストチューブの外側、特に底の部分はRIによって汚染しやすい。ウェルタイプの検出器では、汚染したチューブによって生じる検出器の汚染を防ぐため、アロカ社ARC-380では汚染防止チューブを用い、もし汚染防止チューブが汚染したら、その汚染チューブを交換するよ

図4 NaI(Tl) 検出器の構造の違い

うにしている。測定チューブをつまみ上げるマニプレータにはカバーがあり、汚染したカバーは交換できるようになっている。ファルマシア社ウィザードでは、試料を入れたホルダーをキャリアとし、検出器にテストチューブが直接触れないように工夫している。パッカード社コブラIIでは、汚染防止のため、検出器のホールをスプラッシュガードと呼ばれるチューブでカバーしている。もし汚染しバックグラウンドが上がるようであれば、このチューブや押し上げ棒の先に付いたテフロンキャップが交換できるようになっている。

4.2 検出効率

次に検出効率について見る。効率は検出器のタイプと大きさとで少し異なる。タイプの違いで見ると、原理的にはウェルタイプの方がスルーホールタイプに比べ検出の立体角が大きく効率も高いと考えられる。カタログやメーカー提供の資料による効率を表に示した（一部は実測値）。¹²⁵Iの効率で比較するとウェルタイプの方が少し高いようである。

サイズの違いで見ると、エネルギーの低い¹²⁵Iの効率は2インチの検出器と3インチの検出器でほとんど差がみられない。¹³⁷Cs（662 keV）のようにエネルギーが高くなると3イン

チの検出器の方が2インチの検出器に比べ2倍近く高い効率が得られる。エネルギーの高い γ 線を出す核種に対しては、スルーホールタイプで高い効率が得られている。ウェルタイプの結晶は側面に比べ底の部分の厚みが薄いため、高エネルギーの γ 線は通り抜けていく割合が増えるが、スルーホールタイプでは試料を検出器の中心にくるようにセットできるためであろうか。

溶液試料の γ 線測定では、 β 線の液体シンチレーション測定で生じるクエンチング現象のような溶液組成の違いによる効率の変動は大きくない。しかし、試料調製時には次の点に注意すべきであろう。一つは液量に対する効率の変化である。液量が増すと効率は落ちるのが普通であり、あらかじめ使用するRIを一定量取り液量を変え、効率の変動を確かめておくといよい。スルーホールタイプでは液量が増しても試料が検出器の中心にくるように調節でき、効率の減少を押さえる工夫をしている。

ライフサイエンスの分野でよく用いられる ^{125}I については、35.5 keVの γ 線およびTeの特性K-X線(27-36 keV)、16-24 keVのエネルギー領域において顕著に現れるGeのK-X線エスケープピーク、そして50-65 keVのサムピークを測っている。このようにいずれのピークもエネルギーが低いためチューブの材質の違いで効率が変わり、プラスチック製のチューブに比べ、ガラスチューブを用いると計数率が低くなる。

4・3 測定バイアルのサイズとサンプル数

ARC-380では、ピックアップ方式で試料を運ぶためサイズの制限を受ける。最小径より細い場合や短い場合はアダプタ(高さ5 mm, 外径15 mm)に入れて測定できる。測定チューブをマニプレータで直接つまみ上げるため、キャップなどはしっかり締めて途中で落ちることのないようにしておく。コブラIIでも直径と長さの範囲が決められているが、試料容器が小さい場合には適当なサイズのチューブに入れて測定が可能である。また底が尖った遠心チュー

ブや径の細いチューブをそのまま測るとチューブがまっすぐ上に上昇しないで、はねて汚染事故を起こすことがある。ウイザードではホルダーに入れて測るため、表に示すように長さや直径が指定されたサイズ内であればよい。

1480ウイザードでは液体シンチレーション測定に用いる20 mlバイアルを測定できる。試料量が多い場合、たとえば生体試料や排水または環境水など濃縮して測定するには便利である。

一度にセットできる測定サンプル数は多い方が使い勝手はよい。特に数多くの試料を測定しなければならない場合には、望まれる機能である。ARC-380のサンプル搭載数はチューブ300本であるが、装置はコンパクトで設置面積も小さくできている。

4・4 測定エネルギー範囲とスペクトル表示

いずれの機種もマルチチャネルアナライザ(MCR)を内蔵しており、測定範囲も15 keVから2 000 keV(1470ウイザードは15 keVから1 024 keV)と低エネルギーの γ 線から測定が可能である。測定中もスペクトルを見ることができるので、設定した測定範囲が適当であるかどうか確認できる。未知のRIを含む試料でもエネルギーから核種の推定ができる。汚染などでバックグラウンドが上がったときにも、スペクトルを見ればどのような核種で汚染したかわかる。

^{125}I と ^{137}Cs のスペクトルを図5と図6に示した。

4・5 測定条件の設定

測定は通常、使用者ごと、核種別にプログラムに記憶させて行う。測定時間と測定ウィンドウを決め、必要に応じてバックグラウンド減算機能、DPM演算機能や半減期補正処理などを組み込む。測定条件設定数はARC-380で30種、コブラIIで60種、1470, 1480ウイザードで99種となっており、種々の条件に設定したプログラムを作っておくことができる。ウィンドウ設定にあたっては、あらかじめARC-380で7核種、コブラIIで8核種、1470, 1480ウイ

図 5 ^{125}I の γ 線および特性 X 線スペクトル 図 6 ^{137}Cs の γ 線スペクトル

ザードで 31 核種が組み込まれているので、核種を指定しウインドウ条件を呼び出せばよい。ただし、コンプトン散乱スペクトルの部分を含むか含まないかで、自分の望むウインドウ幅に設定し直す方がよい場合もある。もし測定する核種のウインドウ情報が組み込まれていなくても、スペクトルを表示させ、低エネルギーのコンプトン散乱を含み光電ピークを取り込む広いウインドウ幅の設定か、光電ピークのみ測定する設定のいずれかを行えばよい。核種設定可能領域数は ARC-380 で 2、コブラ II で 3、1470、

1480 ウィザードで 2 となっており、エネルギーの異なる 2 ないし 3 核種を別々のウインドウで同時に測定が可能である。

むろんプログラム測定ばかりでなく、少数の試料をマニュアル測定することも可能である。また、測定結果はプリンタに打ち出すとともに、内部の記憶装置に記憶させたり、RC-232C により外部のパーソナルコンピュータに転送して、各自作成したプログラムでデータ解析も可能である。

オプションでラジオイムノアッセイ (RIA) 解析用のソフトも準備されているので利用できる。

5. あとがき

以上、これまで測定してきた経験とカタログデータおよびメーカー提供の資料に基づいて述べた。上記 3 機種間に性能的に大きな差はないようであるが、検出器がウエルタイプとスルーホールタイプの間で細かい差があるので、それぞれ特徴を生かした使い方をするとよいであろう。 γ 線測定は、液体シンチレーション測定に比べ簡便で、有機廃液処理の問題もないなど有利な点も多く、これからも広く活用されることが望まれる。

なお文献は特に引用しなかったが、RI の利用や放射線計測に関連したほとんどの書籍に、NaI(Tl) 検出器に関する記述があるので参考にすればより深い知識が得られるであろう。

問合せ先

- (1) アロカ(株)
Tel. 0422-45-5502 Fax. 0422-48-5886
- (2) ファルマシア バイオテック(株)
Tel. 03-3492-9370 Fax. 03-3492-9337
- (3) パッカーード ジャパン(株)
Tel. 03-3866-5850 Fax. 03-3866-5165