

JAERI-M

7 2 0 9

放射性同位体製造資料-1207

医療用 ^{198}Au グレインの製造

1977年8月

加藤 久・木暮 広人・立川 克浩・源河 次雄

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

医療用 ^{198}Au グレインの製造

日本原子力研究所アイソトープ事業部製造部

加藤 久・木暮 広人・立川 克浩・源河 次雄

(1977年7月14日受理)

日本原子力研究所アイソトープ事業部製造部では、がん治療などに使用される医療用放射線源 ^{198}Au グレインの定常生産を実施しているが、グレイン製造のために行なった技術的検討および製造方法について述べた。

製造に先だち、グレインの自己しゃへい効果、放射能測定法およびグレインの放射能のばらつきなどについて検討を行ない、それらの結果にもとづいて製造を実施した。

グレインは直径 0.5 mm、長さ 2.5 mm の金線から成り、肉厚 0.15 mm の白金によって被覆されている。グレイン 14 個をアルミニウム管内に装填し、さらにアルミニウム管 4 本を 1 本のカプセルに封入し、 $10^{13} \text{n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 領域の熱中性子を照射した。照射には JRR-2 の HR 孔、JRR-3 の HR および VR 孔、そして JRR-4 の S および T パイプを使用した。

グレイン 1 個あたりの放射能は使用時において約 5 mCi となるようにあらかじめ照射・製造計画を立て、製品は毎週供給を原則として製造出荷した。

Production of ^{198}Au Grain for Radiotherapy

Hisashi KATOH, Hiroto KOGURE, Katsuhiro TACHIKAWA
and Tsuguo GENKA

Division of Radioisotope Production, Radioisotope Center, JAERI

(Received July 14, 1977)

Gold-198 "grains" as a clinical radiation source in cancer therapy have been produced in the Division of Radioisotope Production, Radioisotope Center, Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI), since 1975.

Effect of self-shielding in production of gold-198 "grains", routine method of activity measurement and activity deviation of grains produced were studied.

The gold-198 "grain" is a gold wire 0.5mm in diameter and 2.5mm long, and is enclosed in pure platinum tube of 0.15mm thick. Fourteen grains were previously loaded in an aluminum tube and irradiated with thermal neutron flux about $10^{13} \text{ n/cm}^2 \text{ sec}$. Four such tubes (56 grains) in a capsule are irradiated in HR hole of JRR-2, HR and VR holes of JRR-3, S and T pipes of JRR-4.

The radioactivity of each grain is controlled by choosing irradiation conditions to give 5mCi at the time of use; the products are delivered regulaly once a week.

Keywords: Gamma Radiation Source, Clinical Radiation Source, Gold-198, Gold Grain, Therapy, Radioisotope production, Activity Measurement, Self-shielding, Activity Deviation, Irradiation,

目 次

1. 緒 論	1
2. ^{198}Au の核的性質とターゲットの仕様	1
3. 技術的検討	1
3. 1 放射能測定法	1
3. 2 放射能のばらつき	4
3. 3 自己しゃへい効果	5
3. 4 白金の鞘による放射能	6
3. 5 ^{198}Au に含まれる ^{199}Au	6
4. グレインの製造	8
4. 1 ターゲットの作製と照射	8
4. 2 カプセル開封と試料の解体	8
4. 3 放射能測定	13
4. 4 製品の出荷	13
5. 結 論	13
参考文献	14

Contents

1. Introduction
2. Characteristics of ^{198}Au and target specification
3. Discussions
 3. 1 Method of radioactivity measurement
 3. 2 Deviation of radioactivity
 3. 3 Self-shielding effect
 3. 4 Radioactivity of platinum sheath
 3. 5 Content of ^{199}Au in ^{198}Au
4. Production
 4. 1 Encapsulation and irradiation
 4. 2 Opening and disassembling
 4. 3 Radioactivity measurement
 4. 4 Shipping
5. Conclusion

References

1. 緒論

がん治療などに従来使用されてきた²²²Rn シードの代りに、最近¹⁹⁸Au グレイン〔以下グレイン(grain)という〕の需要が高まってきた。これは²²²Rn がガス状であるため製造および使用時における危険性が高いのに比べ、¹⁹⁸Au が物的に安定であるうえに原子炉内の熱中性子の照射によって容易に製造できる利点をもち、さらにがん治療に適したγ線エネルギーと半減期をもつためである。¹⁾

この要望に応じるため、日本原子力研究所アイソトープ事業部製造部においては、昭和50年6月にその製造技術の開発を開始し、引き続き試験製品の製造に着手した。その後定常生産に移行し、昭和52年6月までの間に71回の製造を行い、総数3766個を頒布してきた。

現在のところ、グレイン1個あたりの放射能は毎週水曜日の使用予定日において約5mCiとなるように照射し、原則として週1回の頒布を行なっている。

この報告ではグレインの製造に関する技術開発および製造方法の概要を述べる。

2. ¹⁹⁸Au の核的性質とターゲットの仕様

¹⁹⁸Au の核的性質および製造に関する基礎数値を Table 1²⁾に示す。グレインの製造に用いるターゲットは Table 2 に示す仕様の純金の粒(pellet)を肉厚0.15mmの白金の鞘(sheath)で被覆し、両端に厚さ0.05mmの白金メッキを施したもの(grain)である。白金による被覆はβ線の強度を弱めるためのものである。これらの仕様は、グレイン装填用マガジンと、患部への刺入器(Implantation gun)の構造から決められたものである。さらに14個のグレインが肉厚0.8mmのアルミニウム管の中へ一列に装填されている。以上の各仕様の詳細を Fig. 1 に示す。

3. 技術的検討

製造にさきだち、原子炉における熱中性子照射および放射能測定に関する技術的検討のための予備実験と簡単な計算を行なったので以下に述べる。

3.1 放射能測定法

放射能測定には、 $4\pi\beta - \gamma$ 同時計数法により較正されたトレーサラボ社製ウェル型電離箱³⁾

1. 緒論

がん治療などに従来使用されてきた²²²Rn シードの代りに、最近¹⁹⁸Au グレイン〔以下グレイン(grain)という〕の需要が高まってきた。これは²²²Rn がガス状であるため製造および使用時における危険性が高いのに比べ、¹⁹⁸Au が物的に安定であるうえに原子炉内の熱中性子の照射によって容易に製造できる利点をもち、さらにがん治療に適したγ線エネルギーと半減期をもつためである。¹⁾

この要望に応じるため、日本原子力研究所アイソトープ事業部製造部においては、昭和50年6月にその製造技術の開発を開始し、引き続き試験製品の製造に着手した。その後定常生産に移行し、昭和52年6月までの間に71回の製造を行い、総数3766個を頒布してきた。

現在のところ、グレイン1個あたりの放射能は毎週水曜日の使用予定日において約5mCiとなるように照射し、原則として週1回の頒布を行なっている。

この報告ではグレインの製造に関する技術開発および製造方法の概要を述べる。

2. ¹⁹⁸Au の核的性質とターゲットの仕様

¹⁹⁸Au の核的性質および製造に関する基礎数値を Table 1²⁾に示す。グレインの製造に用いるターゲットは Table 2 に示す仕様の純金の粒(pellet)を肉厚0.15mmの白金の鞘(sheath)で被覆し、両端に厚さ0.05mmの白金メッキを施したもの(grain)である。白金による被覆はβ線の強度を弱めるためのものである。これらの仕様は、グレイン装填用マガジンと、患部への刺入器(Implantation gun)の構造から決められたものである。さらに14個のグレインが肉厚0.8mmのアルミニウム管の中へ一列に装填されている。以上の各仕様の詳細を Fig. 1 に示す。

3. 技術的検討

製造にさきだち、原子炉における熱中性子照射および放射能測定に関する技術的検討のための予備実験と簡単な計算を行なったので以下に述べる。

3.1 放射能測定法

放射能測定には、 $4\pi\beta - \gamma$ 同時計数法により較正されたトレーサラボ社製ウェル型電離箱³⁾

1. 緒論

がん治療などに従来使用されてきた²²²Rn シードの代りに、最近¹⁹⁸Au グレイン〔以下グレイン(grain)という〕の需要が高まってきた。これは²²²Rn がガス状であるため製造および使用時における危険性が高いのに比べ、¹⁹⁸Au が物的に安定であるうえに原子炉内の熱中性子の照射によって容易に製造できる利点をもち、さらにがん治療に適したγ線エネルギーと半減期をもつためである。¹⁾

この要望に応じるため、日本原子力研究所アイソトープ事業部製造部においては、昭和50年6月にその製造技術の開発を開始し、引き続き試験製品の製造に着手した。その後定常生産に移行し、昭和52年6月までの間に71回の製造を行い、総数3766個を頒布してきた。

現在のところ、グレイン1個あたりの放射能は毎週水曜日の使用予定日において約5mCiとなるように照射し、原則として週1回の頒布を行なっている。

この報告ではグレインの製造に関する技術開発および製造方法の概要を述べる。

2. ¹⁹⁸Au の核的性質とターゲットの仕様

¹⁹⁸Au の核的性質および製造に関する基礎数値を Table 1²⁾に示す。グレインの製造に用いるターゲットは Table 2 に示す仕様の純金の粒(pellet)を肉厚0.15mmの白金の鞘(sheath)で被覆し、両端に厚さ0.05mmの白金メッキを施したもの(grain)である。白金による被覆はβ線の強度を弱めるためのものである。これらの仕様は、グレイン装填用マガジンと、患部への刺入器(Implantation gun)の構造から決められたものである。さらに14個のグレインが肉厚0.8mmのアルミニウム管の中へ一列に装填されている。以上の各仕様の詳細を Fig. 1 に示す。

3. 技術的検討

製造にさきだち、原子炉における熱中性子照射および放射能測定に関する技術的検討のための予備実験と簡単な計算を行なったので以下に述べる。

3.1 放射能測定法

放射能測定には、 $4\pi\beta-\gamma$ 同時計数法により較正されたトレーサラボ社製ウェル型電離箱³⁾

Table 1 Characteristics of ^{198}Au

Half-life	2.7 days
Gamma-ray energy (MeV)	0.412(95.8%) 0.69(1.0%) 1.09(0.2%)
Beta-ray energy (MeV)	0.29(1.2%) 0.96(98.8%) 1.37(0.025%)
Radiation output per Ci (Roentgens per hour at 1 m)	0.23
Reaction	$^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$
Activation cross section (barns)	98.8

Table 2 Specification of target

	Au pellet	Pt sheath	Au grain	Al tube
Diameter (mm)	0.5	I.D. > 0.5 O.D. 0.8	0.8	I.D. 0.9 O.D. 2.5
Length (mm)	2.5	2.5	2.5	38
Weight (mg)	8.7	11.0	19.7	(Au grain ; 14 pieces)

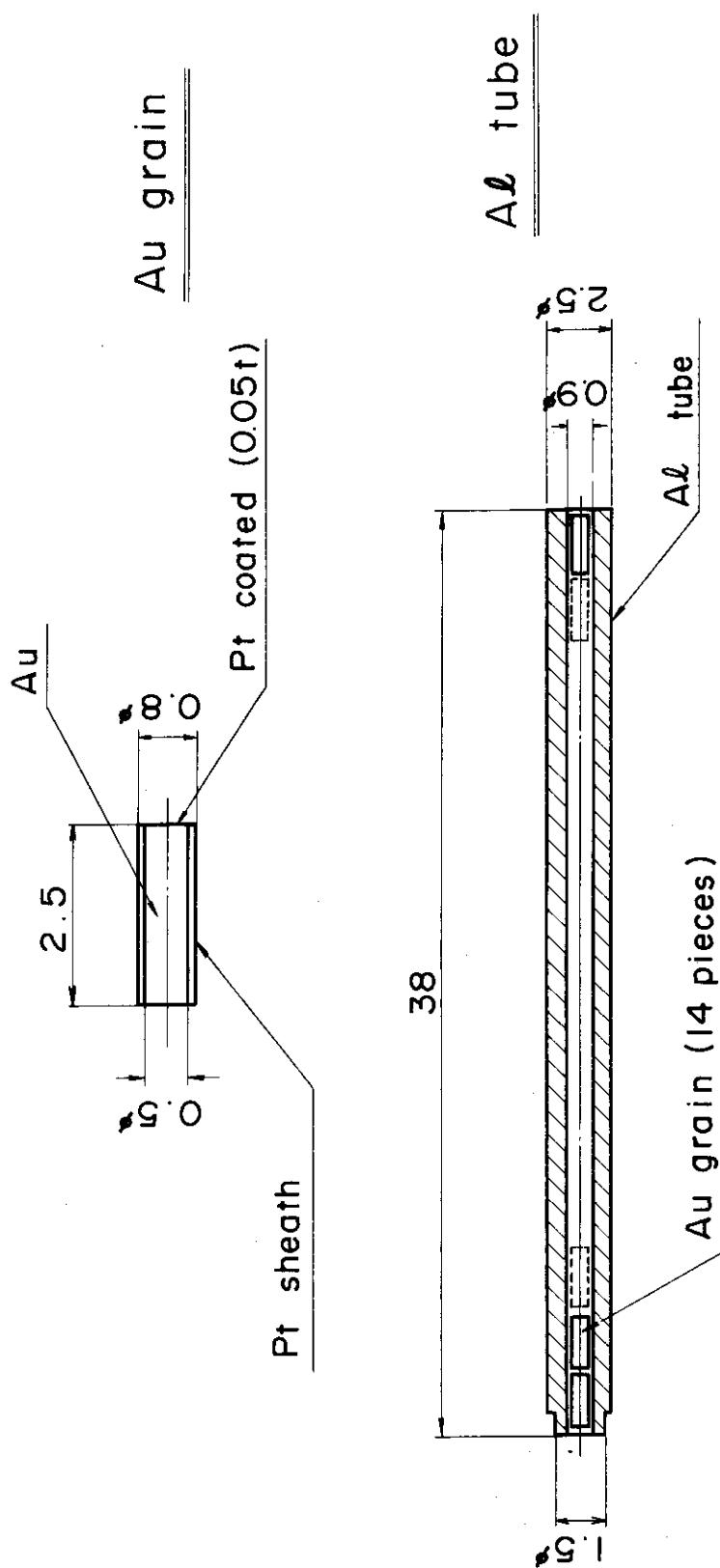


Fig. 1 Target design for ^{198}Au grain

を使用した。

グレインは形状が小さく遠隔操作による取扱いが極めて困難である。そのため実際の製造においては、グレインはアルミニウム管に装填されたままの状態で中性子照射し、さらに放射能測定を行なった。したがってグレイン各個の測定は行なわないことになる。そこでアルミニウム管のまま一括測定したとき、その測定値から求められるグレイン1個あたりの放射能が、個別測定によって得た放射能と、どの程度の相違を生じるかをあらかじめ検討した。測定試料は、1本につき14個のグレインが装填された3本のアルミニウム管を、JRR-4, Tパイプにおいて10秒間、同一カプセル内で照射した。最初に、アルミニウム管1本あたりの放射能を測定し、その測定値からグレイン1個あたりの放射能(1本のアルミニウム管の放射能×1/14)を求めた。その後アルミニウム管からグレインを1個づつ取り出し個別測定による放射能を求め、一括測定から求めた値と比較した。この結果、Table 3に示すように、両測定法によるグレイン1個あたりの放射能は、一括測定を行った場合の方がみかけ上3%程度低い値が得られた。

Table 3 Comparison of the two modes of radioactivity measurement
for ^{198}Au grains

Measurement of 14 grains together in Al tube		Measurement of each grain	
$\mu\text{Ci}/\text{Al tube}$ (A)	$\mu\text{Ci}/\text{grain}$ (A/14)	$\mu\text{Ci}/\text{grain}$	Standard deviation (%)
336	24.0	24.6	±6.1
332	23.7	24.6	±7.3
327	23.4	24.2	±7.9

しかしここで行なった測定精度(約3%)を考慮すると実用上は両者の差は無視することができ、一括測定法からグレイン1個あたりの放射能を求めても差し支えないことがわかった。

3.2 放射能のはらつき

グレインの放射能のはらつきは使用時における線量評価のうえで大きな問題となり、これを小さく抑えることが製品の品質管理上からみて必要である。利用者の要望などを考慮し、グレインの放射能のはらつきは、1本のアルミニウム管内において±10%程度に抑えることを目標とした。ここで、ばらつきのおもな原因として考えられるグレイン自身の重量のはらつきと熱中性子束分布の影響について、グレインの放射能のはらつきに及ぼす効果を検討した。グレインの重量のはらつきについては、白金被覆が施されていない金粒(グレインの金粒と同仕様)について秤量した結果9.0 mg ±3%となり、機械加工精度の一応の限界とみなした。グレインはJRR-4, Tパイプにおいて照射し、個々のグレインの放射能のはらつきを測定したところ、Table 3に示すように6~8%という結果を得た。比較的均一な熱中性子束分布をもつといわれるJRR-4, Tパイプ⁴⁾からみて、重量のはらつきの2~3倍の放射能のはらつきを生じたことは、グレインを放射化するうえで熱中性子束分布の影響が極めて大きな要因となること

を表わし、グレインの照射位置における熱中性子束分布にたいする充分な配慮が必要であることを明らかにした。

3.3 自己しゃへい効果

グレインを照射した場合に、金自身による自己しゃへい効果と、それを包む白金によるしゃへい効果のため、これらの影響によりあらかじめ生成量計算から求め得る放射能に対し実測放射能は低下することになる。この低下率すなわち自己しゃへい係数は、グレインの中性子照射によって得られる放射能を照射前に推定するさいの補正に用いられ、照射条件を求める際に必要な値である。ここで述べる自己しゃへいは、中性子の自己しゃへいとγ線の自己吸収による両効果を包含して取扱った。そこで以下の方法によって自己しゃへい効果を測定し、それぞれのしゃへい係数を求めた。

グレインの照射と同時に、白金被覆が施されていない裸の金粒（グレインの金粒と同仕様）と金箔（厚さ 2 mg/cm^2 ）を同一カプセル内で照射した。金箔は非常に薄いため、金箔自身によって生じるしゃへい効果は金粒などのしゃへい効果と比べてほとんど無視し得ると考えられる。そのためこゝでは金箔によるしゃへい効果を無視した。最初に被覆のない裸の金粒と金箔の比放射能の比を求め、この値を金粒による自己しゃへい係数(A)とした。次にグレインと金箔の比放射能の比を求めてグレインによる自己しゃへい係数(B)とした。そしてこの両しゃへい係数の違いは、グレインの金粒を被覆している白金の鞘によるしゃへい係数と考えることができる。このようにして求めた各しゃへい係数をTable 4に示す。以上から、中性子照射によって得られる実際のグレインの放射能は、金自身の自己しゃへい効果とそれを被覆している白金のしゃへい効果とによって、これらの効果がまったくないとしたときの放射能のおよそ60%程度しか得られないことがわかった。したがってグレインの照射条件を求めるためには、これらのしゃへい効果による生成量の減少分の約40%を考慮する必要があることが明らかになった。また1本のカプセル内におけるアルミニウム管の照射量の違いによるしゃへい効果への影響については、後述するスペーサを使用したその後の試験製造中において、1~4本の範囲ではまったく影響がないことが確認できた。

Table 4 Self-shielding effect on ^{198}Au grain

Au pellet (A)	Au grain (B)	Pt sheath (B/A)
0.69	0.59	0.86
0.65	0.58	0.89
0.71	0.64	0.90
0.73	0.63	0.86
0.67	0.56	0.84

3.4 白金の鞘による放射能

グレインを被覆している白金の鞘は熱中性子照射によって放射化し、¹⁹¹Pt(半減期：3日),^{193m}Pt(半減期：4.3日),¹⁹⁷Pt(半減期：18時間),¹⁹⁹Pt(半減期：30分)などを生成する。したがってこれらの放射能が目的の核種である¹⁹⁸Auの放射能にたいし相対的に無視できない大きさの場合、¹⁹⁸Auの放射能測定に支障を来たすことになる。このうち¹⁹¹Ptと^{193m}Ptは同位体中の存在比が0.012%, 0.78%と極めて低いため、グレインの放射能測定値にたいしだけ影響を及ぼすことはない。実際のグレインの放射能測定は、照射後の冷却時間と製作作業に費やされる所要時間により照射後24時間以上経過した時点で行なう。この測定時点における¹⁹⁹Ptの放射能は、その半減期から推定して充分減衰し無視できる値である。また¹⁹⁷Ptと¹⁹⁸Auの放射能の比率は、Fig. 2に示すように熱中性子束をパラメータとしたとき、照射後24時間経過した測定時において1%以下となり、ほとんど無視できる値である。なお、Fig. 2における¹⁹⁸Auの生成曲線は前項の自己しゃへい効果による補正を加味し、実際に生成されるグレインの放射能である。

以上から、グレインの放射能測定には、照射後24時間以上経過すれば白金の鞘によって生成される放射能についてはとくに考慮をする必要はないとの結論を得た。

3.5 ¹⁹⁸Auに含まれる¹⁹⁹Au

熱中性子照射によって生成する¹⁹⁸Auは、¹⁹⁷Au(n, γ)¹⁹⁸Au反応によるものである。しかし、¹⁹⁸Auは 2.58×10^4 バーン⁵⁾という非常に高い放射化断面積をもつため、照射中さらに熱中性子を吸収して¹⁹⁸Au(n, γ)¹⁹⁹Au反応による¹⁹⁹Auを生成する。¹⁹⁹Auの半減期は3.15日であり¹⁹⁸Auの半減期より長く、¹⁹⁹Auの含有量が多くなると目的とする核種¹⁹⁸Auの放射能測定の妨げとなる。熱中性子照射によって生成する¹⁹⁹Auの含有量は、上記の放射化断面積を用い、次の計算式によって求めた値とよく一致するという中村⁶⁾らの報告がある。

$$A_9/A_8 = \frac{\phi \sigma_9 \left\{ (1 - e^{-\lambda_9 t}) - \frac{\lambda_9}{\lambda_9 - (\lambda_8 + \sigma_9 \phi)} (e^{-(\lambda_8 + \phi \sigma_9)t} - e^{-\lambda_9 t}) \right\}}{\lambda_8 \left\{ 1 - e^{-(\lambda_8 + \phi \lambda_9)t} \right\}}$$

ここで、

A_9, A_8 : ¹⁹⁹Au, ¹⁹⁸Auの放射能(mCi)

ϕ : 热中性子束($n/cm^2 \cdot sec$)

λ_9, λ_8 : ¹⁹⁹Au, ¹⁹⁸Auの崩壊係数($2.55 \times 10^{-6}, 2.97 \times 10^{-6} sec^{-1}$)

σ_9 : ¹⁹⁸Au(n, γ)¹⁹⁹Au反応の熱中性子束にたいする放射化断面積
($2.58 \times 10^{-20} cm^2$)

t : 照射時間(sec)

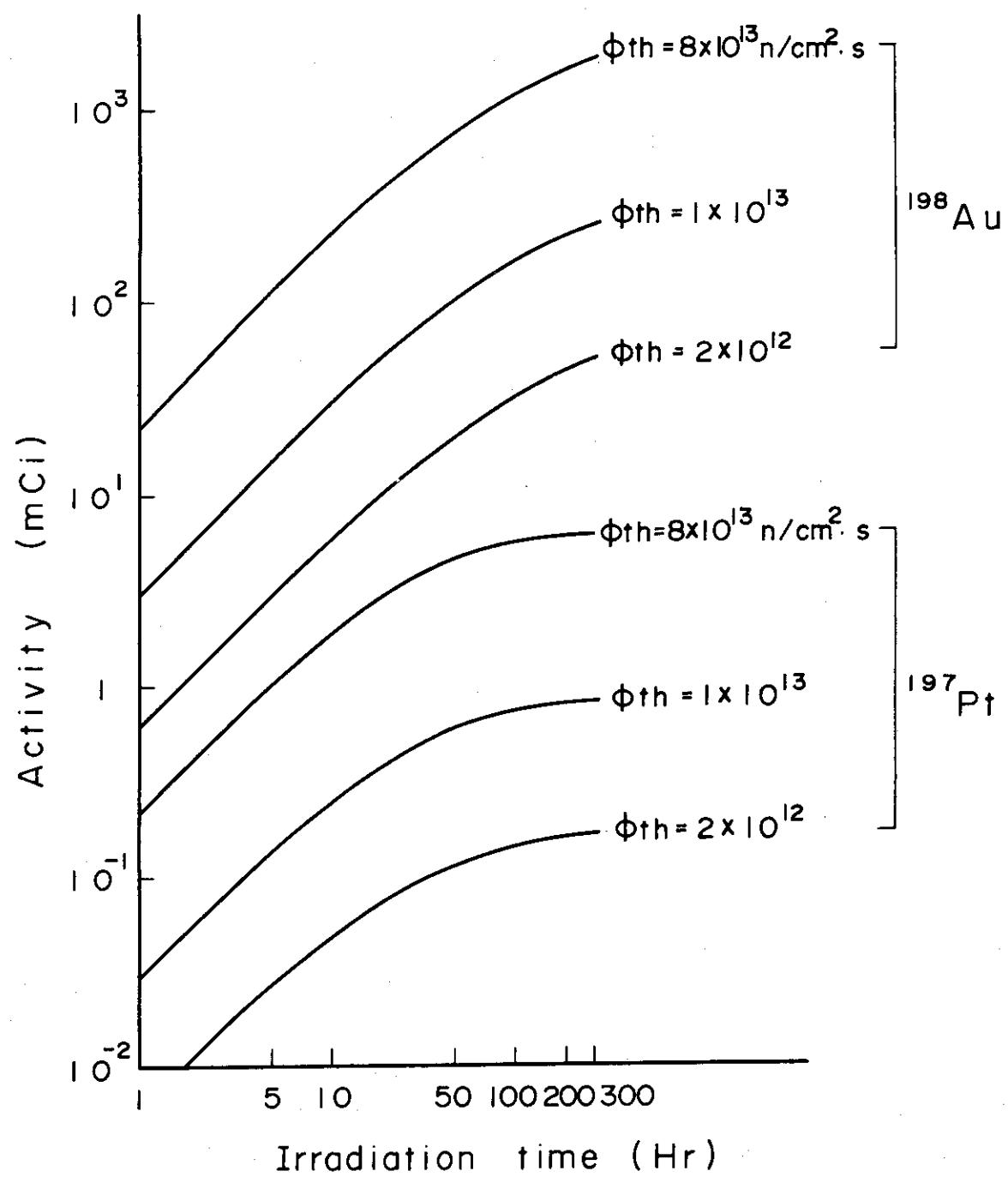


Fig. 2 Activity of ^{198}Au grain and ^{197}Pt after 24 hour cooling as a function of the irradiation time for various values of the thermal neutron flux

である。

上記計算式により、熱中性子束および照射時間を Table 5 に示す照射条件のうちから 3 例を選び、 A_9/A_8 の値を求めた。その結果 Table 6 に示すように、 ^{199}Au の放射能は ^{198}Au の放射能にたいして 0.4 % 以下となり、放射能測定時およびその後の使用時においてもほとんど支障になるようなことはないと考えられる。

4. グレインの製造

以上に述べたグレインの製造に関する技術開発にもとづき、Fig. 3 のフローシートに示す工程にしたがい製造に着手した。その概要を以下に述べる。

4.1 ターゲットの作製と照射

1 回の製造で取扱ったターゲット量は、アルミニウム管にして 4 本（グレイン数にして 56 個）であった。中性子照射する前の各ターゲットは、放射化後の放射能汚染を少なくするためエタノールによって超音波洗浄し、アルミニウム管およびその内部のグレインに付着している油膜、金属性微粉などを除去した。各ターゲットは熱中性子にたいして均一な照射条件が得られるように、Fig. 4 に示すようなアルミニウム製のスペーサに配置した。そして各原子炉専用のアルミニウム製のカプセル内へ冷間圧接によって封入した。

製造に際し中性子照射を行なった原子炉および照射孔は、JRR-2 の水平実験孔 (HR)、JRR-3 の水平 (HR) および垂直実験孔 (VR)、JRR-4 の S および T パイプである。各原子炉とその照射位置における照射条件は、照射直後から出荷時までの経過時間中の放射能の減衰を考慮し、使用予定日とされる毎週水曜日におけるグレイン 1 個あたりの放射能が 5~6 mCi 程度になるように決定した。実際の製造で実施した照射条件とそれらの結果のうち、各原子炉および照射孔別の一例を Table 5 に示す。表中、照射直後のグレインの放射能が照射条件によって大きく異なっているのは、前記の製造期間中の経過時間による放射能の減衰を見込んで照射したためである。また JRR-4、S パイプにおける照射は、JRR-4 の運転時間が 1 日につき 6 時間までに限定されているため 2 日ないし 3 日間にわたって適当な照射時間の調整を行なった結果、このように複雑な照射形態となった。

4.2 カプセル開封と試料の解体

中性子照射を終えたカプセルは、ラジオアイソトープ製造棟⁷⁾の詰替セル（鉛遮蔽厚 10 cm）⁸⁾に搬入して開封した。この詰替セルは、原子炉からの各種の試料搬入とカプセル開封とに使用されているため放射能汚染が著しく、カプセル開封後の試料の取扱いには不適である。そのためグレイン製造時における試料の解体、測定準備などの作業は、放射能汚染のない貯蔵配分セル（鉛遮蔽厚 10 cm）で行なった。このように作業内容に応じたセルの使い分けは、取扱い施

である。

上記計算式により、熱中性子束および照射時間をTable 5に示す照射条件のうちから3例を選び、 A_9/A_8 の値を求めた。その結果Table 6に示すように、 ^{199}Au の放射能は ^{198}Au の放射能にたいして0.4%以下となり、放射能測定時およびその後の使用時においてもほとんど支障になることはないと考えられる。

4. グレインの製造

以上に述べたグレインの製造に関する技術開発にもとづき、Fig. 3のフローシートに示す工程にしたがい製造に着手した。その概要を以下に述べる。

4.1 ターゲットの作製と照射

1回の製造で取扱ったターゲット量は、アルミニウム管にして4本（グレイン数にして56個）であった。中性子照射する前の各ターゲットは、放射化後の放射能汚染を少なくするためエタノールによって超音波洗浄し、アルミニウム管およびその内部のグレインに付着している油膜、金属性微粉などを除去した。各ターゲットは熱中性子にたいして均一な照射条件が得られるように、Fig. 4に示すようなアルミニウム製のスペーサに配置した。そして各原子炉専用のアルミニウム製のカプセル内へ冷間圧接によって封入した。

製造に際し中性子照射を行なった原子炉および照射孔は、JRR-2の水平実験孔(HR)、JRR-3の水平(HR)および垂直実験孔(VR)、JRR-4のSおよびTパイプである。各原子炉とその照射位置における照射条件は、照射直後から出荷時までの経過時間中の放射能の減衰を考慮し、使用予定日とされる毎週水曜日におけるグレイン1個あたりの放射能が5~6mCi程度になるように決定した。実際の製造で実施した照射条件とそれらの結果のうち、各原子炉および照射孔別の一例をTable 5に示す。表中、照射直後のグレインの放射能が照射条件によって大きく異なっているのは、前記の製造期間中の経過時間による放射能の減衰を見込んで照射したためである。またJRR-4、Sパイプにおける照射は、JRR-4の運転時間が1日につき6時間までに限定されているため2日ないし3日間にわたって適当な照射時間の調整を行なった結果、このように複雑な照射形態となった。

4.2 カプセル開封と試料の解体

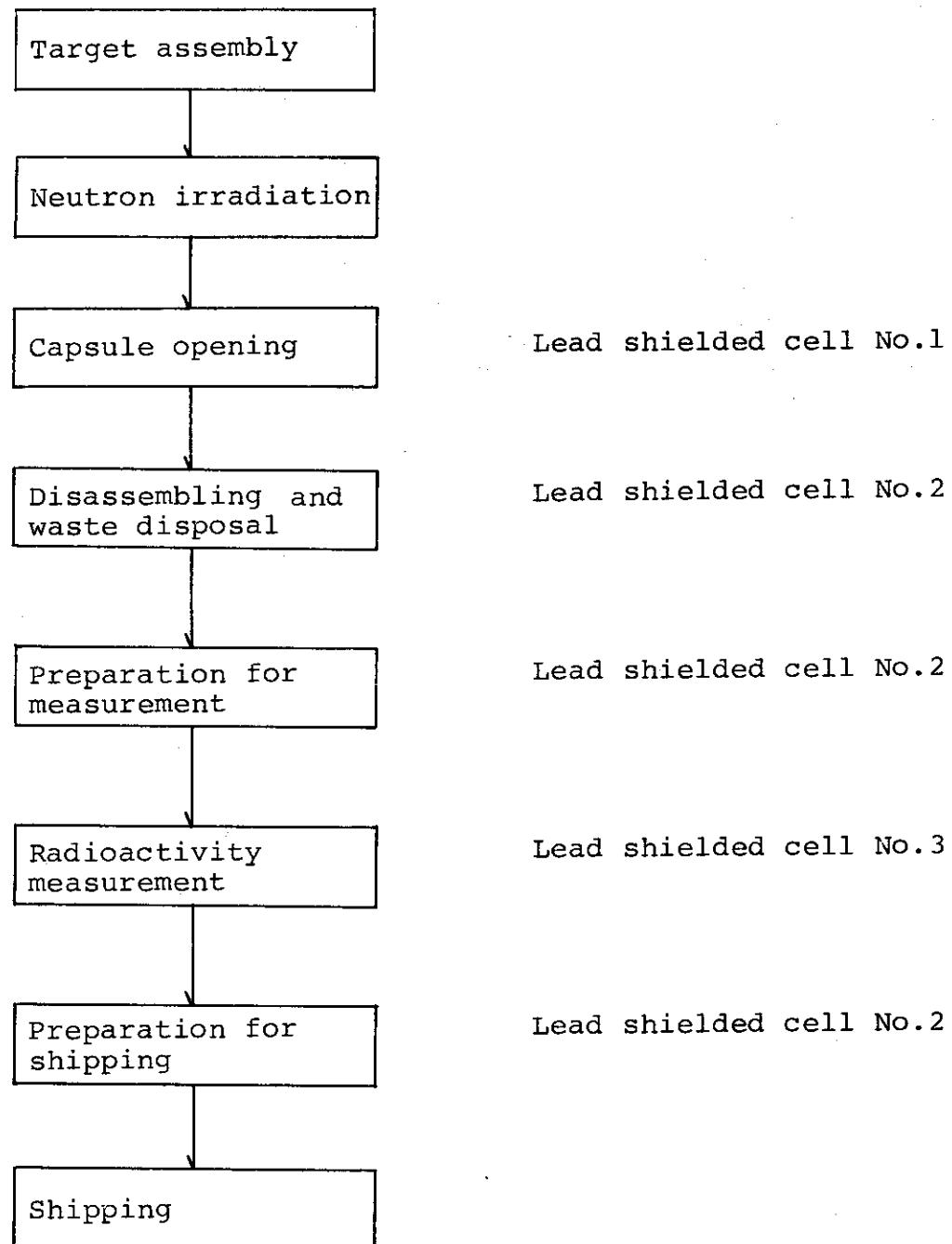
中性子照射を終えたカプセルは、ラジオアイソトープ製造棟⁷⁾の詰替セル（鉛遮蔽厚10cm）⁸⁾に搬入して開封した。この詰替セルは、原子炉からの各種の試料搬入とカプセル開封とに使用されているため放射能汚染が著しく、カプセル開封後の試料の取扱いには不適である。そのためグレイン製造時における試料の解体、測定準備などの作業は、放射能汚染のない貯蔵配分セル（鉛遮蔽厚10cm）で行なった。このように作業内容に応じたセルの使い分けは、取扱い施

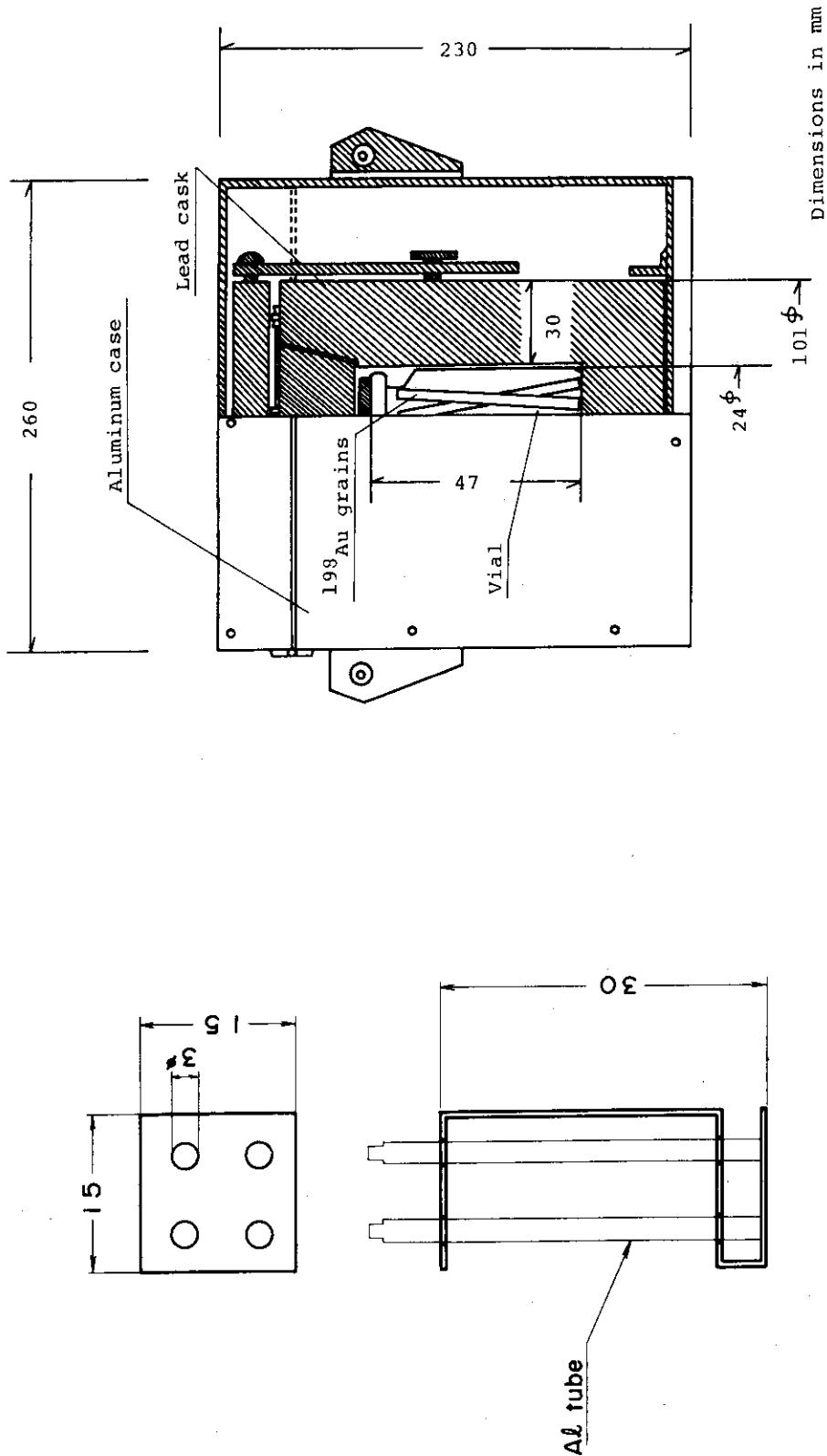
Table 5 Results of ^{198}Au grain irradiation

Reactor	Irradiation hole	Irradiation time	Thermal neutron flux ($\text{n}/\text{cm}^2 \text{ sec}$)	Activity after irradiation (mCi/grain)	Activity at use (mCi/grain)
JRR-2	HR	1h20m	6.5×10^{-3}	37.6	5.0
JRR-2	HR	1h40m	5.6×10^{-3}	46.3	6.2
JRR-2	HR	2h	5.4×10^{-3}	51.6	5.3
JRR-2	HR	2h30m	4.8×10^{-3}	56.6	6.0
JRR-2	HR	4h30m	4.8×10^{-3}	109	5.3
JRR-2	HR	24h	6.4×10^{-3}	617	4.7
JRR-3	HR-2-7	10h	8.0×10^{-2}	36.3	6.7
JRR-3	HR-2-2	17h		49.4	6.3
JRR-3	VR-2-11	24h28m	2.6×10^{-3}	861.4	6.5
JRR-3	VR-2-17	26h37m	2.8×10^{-2}	110.2	5.0
JRR-4	T-pipe	1h05m	5.3×10^{-3}	29.3	5.2
JRR-4	T-pipe	1h40m	3.4×10^{-3}	22.2	5.1
JRR-4	T-pipe	2h	3.1×10^{-3}	25.4	5.7
JRR-4	S-pipe	2h30m	4.1×10^{-3}	39.1	7.2
JRR-4	S-pipe	4h	3.7×10^{-3}	59.2	6.3
JRR-4	S-pipe	6h+6h	3.6×10^{-3}	173	6.6
JRR-4	S-pipe	3h50m+6h	3.5×10^{-3}	129.6	6.5
JRR-4	S-pipe	5h+4h+2h40m	2.9×10^{-3}	126	6.3

Table 6 Content of ^{199}Au in ^{198}Au after irradiation of Au

Reactor	Irradiation hole	Irradiation time	Thermal neutron flux	$^{199}\text{Au}/^{198}\text{Au}$
JRR-3	VR-2-17	264h37m	$2.8 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \text{ sec}$	4.0×10^{-3}
JRR-2	HR	1h20m	6.5×10^{13}	5.7×10^{-5}
JRR-4	S-pipe	2h30m	4.1×10^{13}	6.0×10^{-5}

Fig. 3 Flow sheet of ^{198}Au grain production

Fig. 4 Aluminum spacer for ^{198}Au grain irradiationFig. 5 Packaging for ^{198}Au grains

設および装置などからのグレインへの放射能汚染を防禦するうえで効果的な処置であった。グレインの製造とともに生じるおもな廃棄物は、アルミニウムカプセル、アルミニウム箔、アルミニウムスペーサなどである。これらの廃棄物は約1週間後にはその表面線量率が1~2 mR/hになり、低レベル廃棄物として処理することができる。

4.3 放射能測定

放射能測定は放射能検定用セル（鉛遮蔽厚5cm）⁹⁾に設置されたウエル型電離箱によって行った。この電離箱の較正定数は、¹⁹⁸Auの1規定塩酸溶液を電離箱で測定し、これを正確に希釈して4πβ-γ同時計数法により絶対測定を行って決定した。グレインの放射能測定はさきの予備実験で行った一括測定法によって実施するため、グレインを装填したアルミニウム管1本づゝを別々のバイエル瓶に入れて測定した。そしてそれらの測定値からグレイン1個あたりの放射能を求めた。Table 5に示す各グレインの放射能は、すべて一括測定法によって得た値である。これらの測定結果からほど初期の予定通りの成果を得ることができ、今後さらに細密な照射時間の調整により、使用時におけるグレイン1個あたりの放射能を5mCiに近づけることは可能であるとの見通しを得た。

4.4 製品の出荷

出荷用グレインは、アルミニウム管のまゝ全数(4本)を一括してバイエル瓶に入れゴム栓で封入りし、遮蔽厚3cmの鉛容器へ格納した。さらに出荷時には、この鉛容器を輸送用アルミニウム容器へ収めた。これらの梱包状態をFig. 5に示す。出荷時におけるグレインの総放射能は1~1.3Ciとなり、アルミニウム箱表面のγ線漏洩線量率は30~40mR/hであった。

5. 結論

以上のようにグレインの製造に係わるいくつかの技術的検討から、とくにグレインによる自己しゃへい効果の検討、一括測定による放射能測定法および放射能のばらつきを抑えるための照射技術の確立など、今後の製造への見通しを立てるのに充分な結果を得ることができた。また製造工程中におけるグレインの取扱いには、とりわけ相互汚染の防止に対する配慮が必要であり、そのためには作業内容に応じたセルの使い分けと、常時セル内の汚染チェックを行なうことなどによって充分効果をあげることができた。また各原子炉の併用により、週1回の出荷頻度に充分対処できる見通しを得ることができた。

試験製造からその後の定常製造にいたる期間中(昭和52年6月まで)に取扱ったグレインの総放射能は、約142Ci、グレイン数は3766個に達した。これらの全製品の1個あたり

設および装置などからのグレインへの放射能汚染を防禦するうえで効果的な処置であった。グレインの製造とともに生じるおもな廃棄物は、アルミニウムカプセル、アルミニウム箔、アルミニウムスペーサなどである。これらの廃棄物は約1週間後にはその表面線量率が1~2 mR/hになり、低レベル廃棄物として処理することができる。

4.3 放射能測定

放射能測定は放射能検定用セル（鉛遮蔽厚5cm）⁹⁾に設置されたウエル型電離箱によって行った。この電離箱の較正定数は、¹⁹⁸Auの1規定塩酸溶液を電離箱で測定し、これを正確に希釈して4πβ-γ同時計数法により絶対測定を行って決定した。グレインの放射能測定はさきの予備実験で行った一括測定法によって実施するため、グレインを装填したアルミニウム管1本づゝを別々のバイエル瓶に入れて測定した。そしてそれらの測定値からグレイン1個あたりの放射能を求めた。Table 5に示す各グレインの放射能は、すべて一括測定法によって得た値である。これらの測定結果からほど初期の予定通りの成果を得ることができ、今後さらに細密な照射時間の調整により、使用時におけるグレイン1個あたりの放射能を5mCiに近づけることは可能であるとの見通しを得た。

4.4 製品の出荷

出荷用グレインは、アルミニウム管のまゝ全数(4本)を一括してバイエル瓶に入れゴム栓で封入し、遮蔽厚3cmの鉛容器へ格納した。さらに出荷時には、この鉛容器を輸送用アルミニウム容器へ収めた。これらの梱包状態をFig. 5に示す。出荷時におけるグレインの総放射能は1~1.3Ciとなり、アルミニウム箱表面のγ線漏洩線量率は30~40mR/hであった。

5. 結論

以上のようにグレインの製造に係わるいくつかの技術的検討から、とくにグレインによる自己しゃへい効果の検討、一括測定による放射能測定法および放射能のばらつきを抑えるための照射技術の確立など、今後の製造への見通しを立てるのに充分な結果を得ることができた。また製造工程におけるグレインの取扱いには、とりわけ相互汚染の防止に対する配慮が必要であり、そのためには作業内容に応じたセルの使い分けと、常時セル内の汚染チェックを行なうことなどによって充分効果をあげることができた。また各原子炉の併用により、週1回の出荷頻度に充分対処できる見通しを得ることができた。

試験製造からその後の定常製造にいたる期間中(昭和52年6月まで)に取扱ったグレインの総放射能は、約142Ci、グレイン数は3766個に達した。これらの全製品の1個あたり

の平均放射能は、使用予定日において約 5.4 mCi でありほど予定通りの値を得ることができた。

将来、グレインの需要量の増加が見込まれることを考慮し、照射カプセル中のグレイン数をアルミニウム管にして 5 本以上に增量して照射したとき、つめ合わせ効果により生成する放射能へ及ぼす影響、さらにグレイン 1 個あたりの放射能 (5 mCi) の精度を高めるための照射条件の確立など、今後製品の品質向上と安定供給を前提とする定常生産の継続にあたり検討を要する課題である。

謝　　辞

グレインの製造開発および試験製造の全般にわたり御指導いたゞいた天野 恕製造部長、伊藤 太郎前製造課長、また本資料のまとめに際し御指導いたゞいた阿部 俊彦製造部次長に深く感謝致します。またグレインの中性子照射に御協力いたゞいた研究炉管理部研究炉利用課の諸氏および製品の出荷業務を円滑に遂行していたアイソトープ事業部事業課の諸氏に深く感謝します。

参　考　文　献

1. Y. H. Son, and J. Wakley : Radiology, 98, 425 (1971)
2. B. J. Wilson : The Radiochemical Manual, 2nd ed., The Radiochemical Center, Amersham, 190 (1966)
3. 渡辺鑑、竹内紀男：Source Calibrator の 2, 3 の特性、
4. 未発表
5. Goldberg, M. D., Mughabghab, S. F., et al. : BNL-325, 2nd ed.
Supl. 2 (1966)
6. 中村治人、山林尚道：日本原子力学会誌, 11[12], 721 (1969)
7. 木村健二郎他：第 6 回日本アイソトープ会議報文集, AF-2, 306 (1964)
8. 望月勉他：同上, AF-4, 312 (1964)
9. 鈴木恭平他：同上, AF-5, 315 (1964)

の平均放射能は、使用予定日において約 5.4 mCi でありほど予定通りの値を得ることができた。

将来、グレインの需要量の増加が見込まれることを考慮し、照射カプセル中のグレイン数をアルミニウム管にして 5 本以上に增量して照射したとき、つめ合わせ効果により生成する放射能へ及ぼす影響、さらにグレイン 1 個あたりの放射能 (5 mCi) の精度を高めるための照射条件の確立など、今後製品の品質向上と安定供給を前提とする定常生産の継続にあたり検討を要する課題である。

謝　　辞

グレインの製造開発および試験製造の全般にわたり御指導いたゞいた天野 恕製造部長、伊藤 太郎前製造課長、また本資料のまとめに際し御指導いたゞいた阿部 俊彦製造部次長に深く感謝致します。またグレインの中性子照射に御協力いたゞいた研究炉管理部研究炉利用課の諸氏および製品の出荷業務を円滑に遂行していたアイソトープ事業部事業課の諸氏に深く感謝します。

参　考　文　献

1. Y. H. Son, and J. Wakley : Radiology, 98, 425 (1971)
2. B. J. Wilson : The Radiochemical Manual, 2nd ed., The Radiochemical Center, Amersham, 190 (1966)
3. 渡辺鑑、竹内紀男：Source Calibrator の 2, 3 の特性、
4. 未発表
5. Goldberg, M. D., Mughabghab, S. F., et al. : BNL-325, 2nd ed.
Supl. 2 (1966)
6. 中村治人、山林尚道：日本原子力学会誌, 11(12), 721 (1969)
7. 木村健二郎他：第 6 回日本アイソトープ会議報文集, AF-2, 306 (1964)
8. 望月勉他：同上, AF-4, 312 (1964)
9. 鈴木恭平他：同上, AF-5, 315 (1964)