

JAERI-M

9817

医療用¹⁹²Ir線源の製造

1981年11月

佐藤 彰・木暮 広人・加藤 久

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、複製などのお問い合わせは、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 ^{192}Ir 線源の製造

日本原子力研究所 アイソトープ事業部 製造部

佐藤 彰・木暮 広人・加藤 久

(1981年11月2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、がんの治療に使用される ^{192}Ir 密封小線源製造のための技術開発を行った。ヘアピン、シングルピン、シードについては1980年10月から定常生産を開始するとともに、リボン、シンワイヤの試験頒布を実施している。医療用 ^{192}Ir 線源のために行った技術的検討及び製造方法について記述した。

^{192}Ir 線源の製造に先立ち、各種ターゲットの自己遮蔽効果、放射能測定法、放射能分布測定及び表面汚染検査などの検討を行い、それらの結果にもとづいて製造を実施した。

ターゲットはいずれも肉厚0.1mmの白金管で被覆した白金-イリジウム合金線を使用した。放射化にはJRR-2, JRR-3, JRR-4の各原子炉を使用し、臨床に必要な放射能であるヘアピンの20mCi, シングルピンの10mCi, シードの1mCi又は3mCi, シンワイヤの1mm当たり0.22mCiを得た。リボンはポリエチレン細管に詰める6～12個のシード数に応じて6mCi～12mCi又は9.6mCi～19.2mCiを得た。各線源は放射性核種純度、表面汚染度などの測定結果から、充分治療に適用できるものであることを確認した。

Production of ^{192}Ir Sources for Radiotherapy

Akira SATO, Hiroto KOGURE and Hisashi KATO

Division of Radioisotope Production, Radioisotope Center,
JAERI

(Received November 2, 1981)

Radiation sources of ^{192}Ir for cancer therapy were developed in the Division of Radioisotope Production, Radioisotope Center, Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI).

"Hairpin", "Single-pin" and "Seed" have been produced since October 1980. "Ribbon" and "Thinwire" have been submitted to the clinical test.

Platinum-iridium alloy wires sheathed in the pure platinum tube of 0.1 mm thick were irradiated by the JRR-2, JRR-3 or JRR-4 reactor. Radioactive intensities obtained at the end of irradiation were 20 mCi for a hairpin, 10 mCi for a single-pin, 1 mCi or 3 mCi for a seed, 0.22 mCi per millimeter for a thinwire, and 6 ~ 12 mCi or 9.6 ~ 19.2 mCi for a ribbon, respectively.

In the development irradiation condition for obtaining desired radioactivities was studied self-shielding effect in the production of ^{192}Ir , routine method of the radioactivity measurement, radioactivity deviation and the surface contamination of the sources were studied. The sources were confirmed to be of sufficient quality.

Keywords : Gamma Radiation Source, Clinical Radiation Source, Iridium-192 Source, Radioisotope Production, Self-Shielding, Neutron Activation, Sealed Source, Hairpin, Single-pin, Seed, Ribbon, Thinwire Source, Radiotherapy

目 次

1. 緒 言	1
2. ^{192}Ir 線源製造に関する基礎資料	2
3. 生成量の計算	2
4. ターゲットの仕様と製作	3
5. 照 射	4
6. 技術的検討	4
6.1 放射能測定	4
6.2 自己遮蔽効果	5
6.3 つめ合わせ効果	6
6.4 放射能分布測定	6
6.5 表面汚染検査	7
6.6 リボン用ポリエチレン細管の照射試験	7
7. 医療用 ^{192}Ir 線源の製造	8
7.1 ターゲットの作製と照射	8
7.2 カプセルの開封と試料の解体	8
7.3 放射能測定	9
7.4 製品の出荷	9
8. 結 論	9
謝 辞	10
参考文 献	10

Contents

1. Introduction	1
2. Nuclear properties for the production of ^{192}Ir sources	2
3. Calculation of yield	2
4. Specification and preparation of the target	3
5. Irradiation	4
6. Technical investigation	4
6.1 Radioactivity measurement	4
6.2 Self-shielding effect	5
6.3 Packing effect	6
6.4 Measurement of radioactivity dispersion	6
6.5 Investigation of surface contamination.....	7
6.6 Irradiation test of the polyethylene tube for ribbon targets...	7
7. Production	8
7.1 Encapsulation and irradiation	8
7.2 Opening and disassembling.....	8
7.3 Radioactivity measurement.....	9
7.4 Shipping	9
8. Conclusion	9
Acknowledgement	10
Reference	10

1. 緒 言

最近，密封小線源が放射線医学において癌治療に利用され，優れた効果をあげている。密封小線源治療は，コバルト-60，リニアックなどを用いる外部照射法に比べて，その適応範囲は限定されるが，的確な腫瘍の制御という点では最も実績のある手段であり，子宮頸癌に対する腔内照射，口腔癌に対する組織内照射は，それぞれの疾患に対する治療法の中で最も有力な方法となっている。¹⁾

日本原子力研究所製造部では，医療用線源についてはすでに昭和49年度，永久刺入用線源として国産化の望まれていた¹⁹⁸Au線源(Gold grain)²⁾の製造開発に着手し，昭和50年度から定常製造，定常頒布を行っている。試験製造以来，昭和56年8月迄の間に，14,574個，296 Ciの製造を行い国内需要を賄ってきた。さらに，従来一定期間挿入用線源として使用されてきた²²⁶Ra針，¹³⁷Cs管線源などに代り，ガンマ線エネルギーも比較的低い上に，白金との合金化により線源自身が柔軟性を持つ医療用¹⁹²Ir線源の国産化が早急に望まれる状況に至った。

製造部では昭和53年度より，大阪大学医学部重松康教授の主宰する厚生省がん助成金による「新しい密封小線源ならびにその治療装置の開発と臨床応用No.53-21」の研究に参加し，二年間にわたる¹⁹²Ir線源の開発を行い，その製造技術を確立した^{3), 4)}。線源の種類は，口腔内用にデザインされたヘアピン，シングルピンの他により広い適応範囲をもつ線状線源として自由な長さに切断して使用できる針金状[Thin wire(以下シンワイヤと記す)]，シードおよびシードを一定間隔でポリエチレン細管に封入したリボンの5種類である。試験製品による数例の臨床試験を経たのち，昭和55年10月より定常生産体制に入るとともに，ヘアピン，シングルピン，シードの有償頒布を開始し，国内需要に応えている。

¹⁹²Ir線源による新しい治療法，いわゆる後装填法(After loading technique)は，ヘアピン，シングルピンの場合，あらかじめ腫瘍組織内にステンレス製の案内管(Guide needle)を刺入し，その位置をX線写真により確認したのち，線源を刺入し，案内管と置換して照射を行うものである。この方法は臨床時における医師の被曝線量の低減化，幾何学的に確実な刺入による正確な線量評価，治療時の患者の苦痛をやわらげるという従来の線源では得られなかつた特徴をもっている。

¹⁹²Ir線源用ターゲットには，すべて肉厚0.1mmの純白金管で被覆した白金-イリジウム合金線を使用し，使用法に応じて，ヘアピン，シングルピン，シード，シンワイヤ状に成型した。リボンはシードを6～12個，外径1.0mmのポリエチレン細管に装填したものである。治療に必要な各線源の放射能は，ヘアピン，シングルピン，シードにおいてそれぞれ1個当たり20mCi，10mCi，1mCi(又は3mCi)，シンワイヤについては長さ1mm当たり0.22mCi，リボンではシードの数に応じて6～12mCi(又は9.6～19.2mCi)である。ヘアピン，シンワイヤ，リボンについては臨床時的人体組織への線量評価の上から，線源全長にわたる放射能分布の均一性が要求されるので，放射能分布の測定を行った。又，各線源はすべて密封線源として使用されるため，線源表面の汚染検査を拭きとり試験，煮沸試験により行った。リボン用の

ポリエチレン細管は、¹⁹²Ir のおよそ 2 半減期にわたる使用期間中に封入したシードの脱落などを生じないよう安全性を保証しなければならないので、ポリエチレン細管の照射損傷と経時変化を検討し、健全性の確認を行った。以上に述べたすべての試験項目について、臨床的に充分適用できるものであることが判明した。これらの試験に先立ち、原子炉の照射条件、放射能測定条件などの検討を行った。

開発期間中に製造した試験製品は、大阪大学、東京医科歯科大学、国立がんセンター、愛知がんセンターなどの医療機関にて試用され、臨床結果が報告されている。

この報告では、医療用 ¹⁹²Ir 線源の製造に関する技術開発、使用機器および製造法の概要について述べる。

2. ¹⁹²Ir 線源製造に関する基礎資料

¹⁹²Ir は原子炉内の熱中性子により ¹⁹¹Ir (n, γ) ¹⁹²Ir 反応により生成する。天然に存在するイリジウムには ¹⁹¹Ir と ¹⁹³Ir の同位体が存在し、それぞれの存在比は 37.3%, 62.7%⁵⁾ である。¹⁹²Ir は大部分が β 崩壊して ¹⁹²Pt となり、一部が軌道電子捕獲により ¹⁹²Os となる。この β 崩壊にともなって放出される γ 線は非常に多種にわたり、その主なエネルギーと放出割合は、0.296 MeV (29%), 0.308 MeV (30%), 0.316 MeV (81%), 0.468 MeV (49%) などである。¹⁹²Ir の崩壊図を Fig. 1 に、物理的諸数値を Table 1 に示す。

3. 生 成 量 の 計 算

イリジウムターゲットの中性子照射により得られる ¹⁹²Ir の生成量の計算の際には、生成量計算の一般式 $A = Nf\sigma_{act} (1 - e^{-\lambda t})$ に加えて、¹⁹¹Ir の放射化断面積が 940 barn と大きいことや照射期間の長さにより ¹⁹¹Ir の barn up、生成した ¹⁹²Ir の減衰、¹⁹¹Ir の二重中性子捕獲による ¹⁹³Ir の生成 (¹⁹²Ir の放射化断面積は 1500 barn) などの諸因子を考慮しなければならないが、医療用線源の製造には $\sim 10^{13} n \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1}$ の領域で数時間の照射しか必要としないのでこれらの諸係数は無視することができる。よって医療用 ¹⁹²Ir の照射直後の生成量は以下の計算により求めた。

$$A = \frac{w\theta / M \cdot N_A \cdot f \cdot \sigma_{act} (1 - e^{-0.693t} / T)}{3.7 \times 10^7} \quad (1)$$

ここで各記号は次の通りである。

A : 照射直後の放射能 (mCi)

M, W : ターゲット元素の原子量と用いた重量 (g)

θ : ターゲット核種の存在比

f : 中性子束密度 ($n \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1}$)

ポリエチレン細管は、¹⁹²Ir のおよそ 2 半減期にわたる使用期間中に封入したシードの脱落などを生じないよう安全性を保証しなければならないので、ポリエチレン細管の照射損傷と経時変化を検討し、健全性の確認を行った。以上に述べたすべての試験項目について、臨床的に充分適用できるものであることが判明した。これらの試験に先立ち、原子炉の照射条件、放射能測定条件などの検討を行った。

開発期間中に製造した試験製品は、大阪大学、東京医科歯科大学、国立がんセンター、愛知がんセンターなどの医療機関にて試用され、臨床結果が報告されている。

この報告では、医療用 ¹⁹²Ir 線源の製造に関する技術開発、使用機器および製造法の概要について述べる。

2. ¹⁹²Ir 線源製造に関する基礎資料

¹⁹²Ir は原子炉内の熱中性子により ¹⁹¹Ir (n, γ) ¹⁹²Ir 反応により生成する。天然に存在するイリジウムには ¹⁹¹Ir と ¹⁹³Ir の同位体が存在し、それぞれの存在比は 37.3%, 62.7%⁵⁾ である。¹⁹²Ir は大部分が β崩壊して ¹⁹²Pt となり、一部が軌道電子捕獲により ¹⁹²Os となる。この β崩壊にともなって放出される γ線は非常に多種にわたり、その主なエネルギーと放出割合は、0.296 MeV (29%), 0.308 MeV (30%), 0.316 MeV (81%), 0.468 MeV (49%) などである。¹⁹²Ir の崩壊図を Fig. 1 に、物理的諸数値を Table 1 に示す。

3. 生 成 量 の 計 算

イリジウムターゲットの中性子照射により得られる ¹⁹²Ir の生成量の計算の際には、生成量計算の一般式 $A = Nf \sigma_{act} (1 - e^{-\lambda t})$ に加えて、¹⁹¹Ir の放射化断面積が 940 barn と大きいことや照射期間の長さにより ¹⁹¹Ir の barn up、生成した ¹⁹²Ir の減衰、¹⁹¹Ir の二重中性子捕獲による ¹⁹³Ir の生成 (¹⁹²Ir の放射化断面積は 1500 barn) などの諸因子を考慮しなければならないが、医療用線源の製造には ~ 10^{13} n · cm⁻² · s⁻¹ の領域で数時間の照射しか必要としないのでこれらの諸係数は無視することができる。よって医療用 ¹⁹²Ir の照射直後の生成量は以下の計算により求めた。

$$A = \frac{w\theta / M \cdot N_A \cdot f \cdot \sigma_{act} (1 - e^{-0.693t} / T)}{3.7 \times 10^7} \quad (1)$$

ここで各記号は次の通りである。

A : 照射直後の放射能 (mCi)

M, W : ターゲット元素の原子量と用いた重量 (g)

θ : ターゲット核種の存在比

f : 中性子束密度 (n · cm⁻² · s⁻¹)

ポリエチレン細管は、¹⁹²Ir のおよそ 2 半減期にわたる使用期間中に封入したシードの脱落などを生じないよう安全性を保証しなければならないので、ポリエチレン細管の照射損傷と経時変化を検討し、健全性の確認を行った。以上に述べたすべての試験項目について、臨床的に充分適用できるものであることが判明した。これらの試験に先立ち、原子炉の照射条件、放射能測定条件などの検討を行った。

開発期間中に製造した試験製品は、大阪大学、東京医科歯科大学、国立がんセンター、愛知がんセンターなどの医療機関にて試用され、臨床結果が報告されている。

この報告では、医療用 ¹⁹²Ir 線源の製造に関する技術開発、使用機器および製造法の概要について述べる。

2. ¹⁹²Ir 線源製造に関する基礎資料

¹⁹²Ir は原子炉内の熱中性子により ¹⁹¹Ir (n, γ) ¹⁹²Ir 反応により生成する。天然に存在するイリジウムには ¹⁹¹Ir と ¹⁹³Ir の同位体が存在し、それぞれの存在比は 37.3%, 62.7%⁵⁾ である。¹⁹²Ir は大部分が β 崩壊して ¹⁹²Pt となり、一部が軌道電子捕獲により ¹⁹²Os となる。この β 崩壊にともなって放出される γ 線は非常に多種にわたり、その主なエネルギーと放出割合は、0.296 MeV (29%), 0.308 MeV (30%), 0.316 MeV (81%), 0.468 MeV (49%) などである。¹⁹²Ir の崩壊図を Fig. 1 に、物理的諸数値を Table 1 に示す。

3. 生 成 量 の 計 算

イリジウムターゲットの中性子照射により得られる ¹⁹²Ir の生成量の計算の際には、生成量計算の一般式 $A = Nf\sigma_{act} (1 - e^{-\lambda t})$ に加えて、¹⁹¹Ir の放射化断面積が 940 barn と大きいことや照射期間の長さにより ¹⁹¹Ir の barn up、生成した ¹⁹²Ir の減衰、¹⁹¹Ir の二重中性子捕獲による ¹⁹³Ir の生成 (¹⁹²Ir の放射化断面積は 1500 barn) などの諸因子を考慮しなければならないが、医療用線源の製造には ~ 10^{18} n · cm⁻² · s⁻¹ の領域で数時間の照射しか必要としないのでこれらの諸係数は無視することができる。よって医療用 ¹⁹²Ir の照射直後の生成量は以下の計算により求めた。

$$A = \frac{w\theta / M \cdot N_A \cdot f \cdot \sigma_{act} (1 - e^{-0.693t/T})}{3.7 \times 10^7} \quad (1)$$

ここで各記号は次の通りである。

A : 照射直後の放射能 (mCi)

M, W : ターゲット元素の原子量と用いた重量 (g)

θ : ターゲット核種の存在比

f : 中性子束密度 (n · cm⁻² · s⁻¹)

σ_{act} : 生成核反応の同位体放射化断面積

T : 半減期

t : 照射時間

N_A : Avogadro 数

さらに ^{192}Ir 線源の製造には、次のような諸因子を考慮しなければならない。

a) 照射中のイリジウムターゲット自身の吸収によるターゲット中の熱中性子束の低下（中性子自己遮蔽効果 : F_n ）

b) γ 線の出力測定時における、イリジウム線源自身による γ 線の自己吸収（ γ 線自己吸収効果 : F_γ ）

c) 照射中のターゲットによる熱中性子束のかく乱のため、個々のターゲットの近傍における熱中性子束の低下の相乗作用（つめ合わせ効果 : F_p ）

以上の各効果と測定される放射能生成量 (A_m) との関係は次のような式で与えられる。

$$A_m = F_n \cdot F_\gamma \cdot F_p \cdot A$$

ここで A は、前記(1)式から求められた放射能生成量である。 $F_n \cdot F_\gamma \cdot F_p = F$ を総合して自己遮蔽係数という。

4. ターゲットの仕様と製作

ターゲットの形状は、従来、英國の The Radiochemical Center (1981年5月7日に Amersham International Limited に社名変更) 製のヘアピン、シングルピン、シンワイヤ、米国の Alpha-Omega Service Inc. 製のシードが使用されてきたことを考慮して決めた。ヘアピン、シングルピンは、直径 0.45mm、長さがそれぞれ 93mm, 47.6mm の白金-イリジウム合金線 (75% 対 25%)、シードは直径 0.3mm、長さ 3mm の白金-イリジウム合金線 (80% 対 20%)、またシンワイヤは直径 0.1mm、長さ 300 ~ 500mm の白金-イリジウム合金線 (80% 対 20%) で、いづれも 0.1mm 厚の白金管で被覆されている。ヘアピン、シングルピンの場合は両端が白金溶封されているが、シードの場合は両端を白金溶封することが困難なためロジウムめっきが施されている。シンワイヤは任意の長さに切断して使用するため両端のメッキはされていない。白金管による被覆は ^{192}Ir による汚染の防止と β 線強度を弱めるためのものである。リボンは 6 ~ 12 個のシードを外径 1.0mm のポリエチレン細管に、ナイロンスペーサと交互に装填して作製した。

ターゲットの製作にあたっては、国内、国外のメーカー数社に問い合わせを行い技術的検討と試作を行った。ヘアピンについては、国内メーカーと西独のヘラウス社 (W.C.Heraeus) の試作品とを比較したところ、直線性、溶接による両端の寸法の変化（先端の直径、長さ）などの外観検査において、ヘラウス社製品がはるかに優れていることが結論された。このため、ヘアピン、シングルピンの製作はヘラウス社に決定した。シードについては、国外メーカーでの製作が不可能だったので、徳力商店で製作することにした。なお、両端のロジウムめっきは、従来

σ_{act} : 生成核反応の同位体放射化断面積

T : 半減期

t : 照射時間

N_A : Avogadro 数

さらに ^{192}Ir 線源の製造には、次のような諸因子を考慮しなければならない。

a) 照射中のイリジウムターゲット自身の吸収によるターゲット中の熱中性子束の低下（中性子自己遮蔽効果 : F_n ）

b) γ 線の出力測定時における、イリジウム線源自身による γ 線の自己吸収（ γ 線自己吸収効果 : F_γ ）

c) 照射中のターゲットによる熱中性子束のかく乱のため、個々のターゲットの近傍における熱中性子束の低下の相乗作用（つめ合わせ効果 : F_p ）

以上の各効果と測定される放射能生成量 (Am) との関係は次のような式で与えられる。

$$A_m = F_n \cdot F_\gamma \cdot F_p \cdot A$$

ここで A は、前記(1)式から求められた放射能生成量である。 $F_n \cdot F_\gamma \cdot F_p = F$ を総合して自己遮蔽係数という。

4. ターゲットの仕様と製作

ターゲットの形状は、従来、英國の The Radiochemical Center (1981年5月7日に Amersham International Limited に社名変更) 製のヘアピン、シングルピン、シンワイヤ、米国の Alpha-Omega Service Inc. 製のシードが使用されてきたことを考慮して決めた。ヘアピン、シングルピンは、直径 0.45mm、長さがそれぞれ 93mm, 47.6mm の白金ーイリジウム合金線 (75% 対 25%)、シードは直径 0.3mm、長さ 3mm の白金ーイリジウム合金線 (80% 対 20%)、またシンワイヤは直径 0.1mm、長さ 300 ~ 500mm の白金ーイリジウム合金線 (80% 対 20%) で、いづれも 0.1mm 厚の白金管で被覆されている。ヘアピン、シングルピンの場合は両端が白金溶封されているが、シードの場合は両端を白金溶封することが困難なためロジウムめっきが施されている。シンワイヤは任意の長さに切断して使用するため両端のメッキはされていない。白金管による被覆は ^{192}Ir による汚染の防止と β 線強度を弱めるためのものである。リボンは 6 ~ 12 個のシードを外径 1.0mm のポリエチレン細管に、ナイロンスペーサと交互に装填して作製した。

ターゲットの製作にあたっては、国内、国外のメーカー数社に問い合わせを行い技術的検討と試作を行った。ヘアピンについては、国内メーカーと西独のヘラウス社 (W.C. Heraeus) の試作品とを比較したところ、直線性、溶接による両端の寸法の変化（先端の直径、長さ）などの外観検査において、ヘラウス社製品がはるかに優れていることが結論された。このため、ヘアピン、シングルピンの製作はヘラウス社に決定した。シードについては、国外メーカーでの製作が不可能だったので、徳力商店で製作することにした。なお、両端のロジウムめっきは、従来

のかしめ法、白金溶封法に比べて安価であり、かつ白金-イリジウム合金の確実な封入ができる上に形状の変形もないなどの利点がある。生成するロジウムの放射能は放射化断面積が小さく、生成核種の半減期も短いことから特に問題にはならない。シンワイヤについても徳力商店で製作することにした。なお、ヘアピン、シングルピンは線上の白金-イリジウム合金として購入したのち、製造部で開発した成型器 (Phot-1) を用いて成型加工した。それぞれのターゲットの仕様を Fig. 2, Fig. 3, Table 2 に示す。

5. 照射

原子炉及び照射孔は、JRR-2 2インチ気送管（熱中性子束密度： $\sim 5 \times 10^{13} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ）、JRR-3 HP-1（熱中性子束密度： $\sim 4 \times 10^{13} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ）、JRR-4 Tパイプ（熱中性子束密度： $\sim 8 \times 10^{13} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ）を使用した。原研においてラジオアイソトープの製造に用いられている原子炉とその特性を Table 3 に示す。アルミニウムカプセルを使用した場合、カプセルの発熱によりポリエチレン細管が変質することが判ったので、リボンの照射はカプセルにポリイミド樹脂を用いている JRR-3 HP-1 に限定された。

照射カプセルには、現在各原子炉の照射に利用されているアルミニウムカプセルとポリイミド樹脂カプセルを用いた。照射中及び照射試料移送中のターゲットの形状保持ならびにつめ合わせ効果を考慮して、ヘアピン・シングルピン用、シード用のアルミニウムスペーサをそれぞれ製作するとともに、照射カプセル内の上部と下部にはショックアブソーバを配置した。アルミニウムカプセルにはアルミニウム箔を、ポリイミド樹脂カプセルにはポリイミド樹脂の切削くず、または石英綿を用いた。カプセルならびにスペーサとターゲットの照射時の形状を Fig. 4 に示す。ヘアピン・シングルピン用スペーサは、ヘアピンで 7 本、シングルピンで 14 本迄装填できる。シード用スペーサはシードを 25 個迄つめて照射した。シンワイヤは 300 ~ 500 mm の長さのものをコイル状とし、高さ 50 mm 程度にして照射した。

ヘアピン・シングルピンを JRR-3 HP-1 で照射した場合、ターゲットに変形（曲がり）が見られたので原因を調べた。カプセル内でのスペーサとターゲットの配置と、気送管移送の際にターゲットの方向の関係によってカプセルの停止時に生じる衝撃が原因で変形が生じることを確認したので、その後はカプセルの圧送方向を指定することにより、ターゲットの変形を防止することに成功した。

6. 技術的検討

6.1 放射能測定

医療用 ^{192}Ir 線源は、人体への直接刺入という点から他の目的の線源と違って安全性が重視され、充分な品質の保証を要求される。 ^{192}Ir 線源の放射能測定については、放射能強度、放

のかしめ法、白金溶封法に比べて安価であり、かつ白金-イリジウム合金の確実な封入ができる上に形状の変形もないなどの利点がある。生成するロジウムの放射能は放射化断面積が小さく、生成核種の半減期も短いことから特に問題にはならない。シンワイヤについても徳力商店で製作することにした。なお、ヘアピン、シングルピンは線上の白金-イリジウム合金として購入したのち、製造部で開発した成型器（Phot-1）を用いて成型加工した。それぞれのターゲットの仕様を Fig. 2, Fig. 3, Table 2 に示す。

5. 照射

原子炉及び照射孔は、JRR-2 2インチ気送管（熱中性子束密度： $\sim 5 \times 10^{13} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ）、JRR-3 HP-1（熱中性子束密度： $\sim 4 \times 10^{13} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ）、JRR-4 Tパイプ（熱中性子束密度： $\sim 8 \times 10^{13} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ）を使用した。原研においてラジオアイソトープの製造に用いられている原子炉とその特性をTable 3に示す。アルミニウムカプセルを使用した場合、カプセルの発熱によりポリエチレン細管が変質することが判ったので、リボンの照射はカプセルにポリイミド樹脂を用いているJRR-3 HP-1に限定された。

照射カプセルには、現在各原子炉の照射に利用されているアルミニウムカプセルとポリイミド樹脂カプセルを用いた。照射中及び照射試料移送中のターゲットの形状保持ならびにつめ合わせ効果を考慮して、ヘアピン・シングルピン用、シード用のアルミニウムスペーサをそれぞれ製作するとともに、照射カプセル内の上部と下部にはショックアブソーバを配置した。アルミニウムカプセルにはアルミニウム箔を、ポリイミド樹脂カプセルにはポリイミド樹脂の切削くず、または石英綿を用いた。カプセルならびにスペーサとターゲットの照射時の形状をFig. 4に示す。ヘアピン・シングルピン用スペーサは、ヘアピンで7本、シングルピンで14本迄装填できる。シード用スペーサはシードを25個迄つめて照射した。シンワイヤは300～500mmの長さのものをコイル状とし、高さ50mm程度にして照射した。

ヘアピン・シングルピンをJRR-3 HP-1で照射した場合、ターゲットに変形（曲がり）が見られたので原因を調べた。カプセル内でのスペーサとターゲットの配置と、気送管移送の際にターゲットの方向の関係によってカプセルの停止時に生じる衝撃が原因で変形が生じることを確認したので、その後はカプセルの圧送方向を指定することにより、ターゲットの変形を防止することに成功した。

6. 技術的検討

6.1 放射能測定

医療用¹⁹²Ir線源は、人体への直接刺入という点から他の目的の線源と違って安全性が重視され、充分な品質の保証を要求される。¹⁹²Ir線源の放射能測定については、放射能強度、放

のかしめ法、白金溶封法に比べて安価であり、かつ白金マイリジウム合金の確実な封入ができる上に形状の変形もないなどの利点がある。生成するロジウムの放射能は放射化断面積が小さく、生成核種の半減期も短いことから特に問題にはならない。シンワイヤについても徳力商店で製作することにした。なお、ヘアピン、シングルピンは線上の白金-イリジウム合金として購入したのち、製造部で開発した成型器 (Phot-1) を用いて成型加工した。それぞれのターゲットの仕様を Fig. 2, Fig. 3, Table 2 に示す。

5. 照射

原子炉及び照射孔は、JRR-2 2インチ気送管（熱中性子束密度： $\sim 5 \times 10^{13} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ）、JRR-3 HP-1（熱中性子束密度： $\sim 4 \times 10^{13} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ）、JRR-4 Tパイプ（熱中性子束密度： $\sim 8 \times 10^{13} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ）を使用した。原研においてラジオアイソトープの製造に用いられている原子炉とその特性を Table 3 に示す。アルミニウムカプセルを使用した場合、カプセルの発熱によりポリエチレン細管が変質することが判ったので、リボンの照射はカプセルにポリイミド樹脂を用いている JRR-3 HP-1 に限定された。

照射カプセルには、現在各原子炉の照射に利用されているアルミニウムカプセルとポリイミド樹脂カプセルを用いた。照射中及び照射試料移送中のターゲットの形状保持ならびにつめ合わせ効果を考慮して、ヘアピン・シングルピン用、シード用のアルミニウムスペーサをそれぞれ製作するとともに、照射カプセル内の上部と下部にはショックアブソーバを配置した。アルミニウムカプセルにはアルミニウム箔を、ポリイミド樹脂カプセルにはポリイミド樹脂の切削くず、または石英綿を用いた。カプセルならびにスペーサとターゲットの照射時の形状を Fig. 4 に示す。ヘアピン・シングルピン用スペーサは、ヘアピンで 7 本、シングルピンで 14 本 迄装填できる。シード用スペーサはシードを 25 個迄つめて照射した。シンワイヤは 300 ~ 500 mm の長さのものをコイル状とし、高さ 50 mm 程度にして照射した。

ヘアピン・シングルピンを JRR-3 HP-1 で照射した場合、ターゲットに変形（曲がり）が見られたので原因を調べた。カプセル内でのスペーサとターゲットの配置と、気送管移送の際にターゲットの方向の関係によってカプセルの停止時に生じる衝撃が原因で変形が生じることを確認したので、その後はカプセルの圧送方向を指定することにより、ターゲットの変形を防止することに成功した。

6. 技術的検討

6.1 放射能測定

医療用 ^{192}Ir 線源は、人体への直接刺入という点から他の目的の線源と違って安全性が重視され、充分な品質の保証を要求される。 ^{192}Ir 線源の放射能測定については、放射能強度、放

射能分布、放射性核種的純度について慎重な検討を行った。放射能測定器は井戸型電離箱を用いることにし、線源の形状を考慮して井戸寸法の長いものを選んだ。まず米国 Capintec, Inc., 製井戸型電離箱 (CRC-10型、直径 60mm, 深さ 250mm) を使用し、井戸内での線源の位置、姿勢が測定値に与える影響を調べるために、¹⁹²Ir 点状線源を用いて、井戸内の垂直方向の感度の分布を求めた結果を Fig. 5 に示す。最適試料位置内における感度分布の差は 0.5% であった。次に ¹⁹²Ir 線源製造に用いる貯蔵配分セル内に組込んだアロカ社製のキュリーメータにより、それぞれの形状の線源を測定し、キャビンティック社製の測定値と比較し、それぞれの校正定数を求めた。シンワイヤ：0.58 > シード：0.54 > リボン：0.50 > ヘアピン・シングルピン：0.47 であった。

¹⁹²Ir 線源は、イリジウムの (n, γ) 反応により製造するが、この際 ¹⁹⁴Ir が副生する。⁵⁾ その半減期は 19.2 時間であるため、¹⁹²Ir に比べて急速に減衰する。照射直後からイリジウム線源の放射能の減衰を追跡した結果を Fig. 6 に示す。この結果、約一週間の冷却期間をおいてから測定することにより、¹⁹⁴Ir の放射能は ¹⁹²Ir の放射能に対して無視できる程度に減衰し、¹⁹²Ir として測定することができる。一方、白金もまた放射化し 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)などを生成するが、いずれも ¹⁹²Ir に比べて生成量が無視できる程度に少ないので問題にはならない。照射後一週間の冷却期間をおいたのち米国 EG&G ORTEC 社製 Ge(Li) 検出器 (検出効率 25%, エネルギ分解能 2.10 keV) を有する 4096 チャネル波高分析器により、イリジウム線源を測定した結果を Fig. 7 に示す。¹⁹²Ir 以外の核種は認められなかった。

ヘアピン、シングルピン、シンワイヤについては 3mm 幅のスリットの鉛コリメータと 1" × 1" ϕ NaI(Tl) 検出器をもつ自動走査装置⁶⁾ (Fig. 8) により放射能分布を測定した。またシードは一個ごとに、リボンは照射後ポリエチレン細管をカッタで切断し、シード一個ごとにして、それぞれの放射能強度を電離箱で測定した。

6.2 自己遮蔽効果

イリジウムターゲットを照射した場合、3. 生成量の計算の項で述べたように、イリジウム自身による自己遮蔽効果と、それを包む白金管による遮蔽効果のため、生成量計算で求めた放射能に対し、実測放射能が低下する。この低下率 (自己遮蔽係数) をあらかじめ照射試験により求めておくことが、照射条件を決定する際に必要となる。ここで述べる自己遮蔽効果は、中性子の自己遮蔽効果と γ 線の自己吸収効果を包含して扱っている。以下の方法により自己遮蔽効果を測定した。なお、シングルピンの場合の自己遮蔽効果もヘアピンと同一に取扱った。

まずヘアピンについて検討した。白金-イリジウム合金線と被覆のための白金管をそれぞれ製作し、白金管に白金-イリジウム合金線を挿入した状態で、中性子束測定用の金箔 (厚さ 2 mg/cm²) と同一のカプセルに入れて試験的に短時間照射した。金箔は非常に薄いため金箔自身による自己遮蔽効果は無視できるとした。照射後、金箔の比放射能から原子炉照射位置における熱中性子束密度を算出し、その値を用いて ¹⁹²Ir の生成量を計算により求めた (A)。白金管を取除いた白金-イリジウム合金線の放射能 (B) と白金管に白金-イリジウム合金線

を挿入した状態での放射能 (C) を測定により求めた。ここで B/A は白金ーイリジウム合金の自己遮蔽効果, C/B は白金管による ^{192}Ir の γ 線の吸収効果と考えることができる。なお、この場合は 1 本のヘアピンを照射したのでつめ合わせ効果を考慮する必要がなく、C/A が、白金管による ^{192}Ir の γ 線吸収効果を含むヘアピンの自己遮蔽係数になる。結果を Table 4 に示す。その後、数回にわたり、臨床に必要とされる放射能を得るためにヘアピンを 4 本、シードを 20 個、シンワイヤを 1 本、それぞれ金箔とともにカプセルに入れて照射して求めた各形状の線源の自己遮蔽係数（白金管による ^{192}Ir の γ 線吸収効果を含む）を Table 5 に示す。以上の結果から、実規模の製造における自己遮蔽係数を、ヘアピン・シングルピンは 0.5, シードは 0.6, シンワイヤは 0.7 として照射条件を決定する時に考慮することにした。

6.3 つめ合わせ効果

イリジウムターゲットのつめ合わせ効果を、ヘアピンを照射カプセル内に配置して検討した。イリジウムにおいては、熱中性子による全吸収断面積が $440 \pm 20 \text{ barn}$ と大きいため、ターゲットの近傍で中性子束密度が局部的に低下し、生成する放射能に影響を与える。ヘアピンをそれぞれ 1 本, 3 本, 4 本, 7 本照射カプセルにつめ、JRR-3 HP-1 で 90 分間照射した時のつめ合わせ効果の結果を Fig. 9, Table 6 に示す。1 本から 4 本の間ではほとんど生成放射能に影響しないが、4 本から 7 本の間で若干の減少を示した。しかし同一カプセル内では各ヘアピンの放射能のばらつきが少ないので、製造時の照射にあたっては、照射するヘアピン・シングルピンの本数に応じて照射時間を補正し、目的放射能を得ることにした。

6.4 放射能分布測定

ヘアピン、シンワイヤの全長にわたる放射能分布を自動走査装置により測定した。ターゲットを照射したのちヘアピン、シンワイヤをそれぞれ直線状にし、3mm 間隔ごとに測定した結果を Fig. 10, Fig. 11 に示す。JRR-3 HP-1 で照射した場合、ヘアピンの全長(93mm)にわたる放射能分布は、最大値を 1.0 とした場合、平均値に対して $\pm 2\%$ の範囲に入った。これは同時に測定した外国製のヘアピンと比較してもばらつきが非常に少なく、臨床面からの要求も充分に満足するものである。シンワイヤについても、全長 300mm について測定したところ、放射能分布は、最大値 1.0 に対して平均値から $+3\%$, -5% の範囲でのばらつきを得た。外国製品と比較してもばらつきの少ない線源を得ることができた。以上の結果からいえることは、ペアピン・シングルピン、シンワイヤを構成している白金ーイリジウム合金が極めて高い均一性をもっていること、照射孔（照射位置）内の熱中性子束密度の分布が極めて変化の少ない医療用線源製造に適したものであるということである。シードの放射能のばらつきについて試験的に製造した 25 mCi / 個を含め、1 mCi / 個, 3 mCi / 個の測定結果の例を Fig. 12 に示す。JRR-4 T パイプで 3 時間 40 分照射した 20 個の 1 mCi シードの平均値ならびに標準偏差 (σ) は $1.05 \pm 0.04 \text{ mCi}$ 同じく HP-1 で 16 時間 40 分照射した 20 個の 3 mCi シードは $3.01 \pm 0.04 \text{ mCi}$ であった。リボンについては、シード 1 個あたり 1 mCi, 1.6 mCi の製造の

一例をFig. 13に示す。JRR-3 HP-1でそれぞれ6時間、9時間照射した場合、 $1.1 \pm 0.02 \text{ mCi}$ 、 $1.6 \pm 0.02 \text{ mCi}$ の結果を得た。以上に述べた放射能分布測定の結果は、臨床面からの要求をすべて充分に満たすものであった。

6.5 表面汚染検査

医療用線源は、すべて密封線源としてγ線治療のため人体患部に直接刺入されるので、線源表面の放射性汚染は防止しなければならない。ヘアピン、シンワイヤ、シードを原子炉で照射したのち、化学実験用フードに移し、拭き取り試験と煮沸試験を行った。フード内に鉛遮蔽体を設け、鉛ガラス越しにピンセット操作を行った。拭き取り試験には、エチルアルコールで湿したガーゼを数枚重ね、線源表面を充分に拭き取ってから256チャネル波高分析器[NaI(Tl), $3'' \times 3''\phi$]で放射能を測定する方法を採用した。シンワイヤは腫瘍患部に応じて自由な長さに切断して使用するため、ニッパで線源を切断したのち切断面についても拭き取り試験を行った。煮沸試験は、100mℓのコニカルビーカに水50mℓを入れ、それぞれの線源を入れたのち電熱器で約5mℓになる迄煮沸する方法で行った。放冷したのち10mℓのポリエチレン製棒状瓶に移し、前述の256チャネル波高分析器で放射能を測定した。試験結果をTable 7に示す。ヘアピン、シード、シンワイヤとともに、原研製造部における密封線源の基準値、すなわち拭き取り試験については $5 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}$ 、煮沸試験については $2 \times 10^{-2} \mu\text{Ci}$ 以下であった。

6.6 リボン用ポリエチレン細管の照射試験

従来から諸外国において用いられているリボン状線源は、あらかじめシードを原子炉で中性子照射したのち、利用者が利用目的に応じて細いプラスチック管に充填する方法で製造されていた。照射済みのシードをリボン状に組立てる作業では、遠隔操作による取扱いがほとんど不可能で、作業者の受ける放射線被曝が極めて多くなるため、安全性の面で問題がある。この欠点を改善するために製造法を検討した結果、次の方法を考案し実施することにした。それは、あらかじめポリエチレン細管の中に、照射する前のシードを目的の数だけナイロンスペーサと交互につめ込み、ポリエチレン細管の両端を溶封する。このようにして作製したリボン状ターゲットを原子炉で中性子照射することにより ^{192}Ir リボンを製造する方法である（以下、原研法と呼ぶ）。しかし、原研法の場合にはポリエチレン細管を中性子照射するので、その照射損傷と健全性を確認する必要があった。原子炉での照射中、照射後の線源取扱い時、あるいはおよそ2半減期にわたる使用期間中、ポリエチレン細管は適当な柔軟性と強度を保持するものでなければならない。そこで次のような方法でポリエチレン細管の照射損傷と健全性を検討した。まず、ポリエチレン細管をアルミニウムカプセルに入れ、JRR-2 気送管で68分照射したところ、ポリエチレン細管が黒化ならびに軟化した。この原因はアルミニウムカプセルの照射による発熱によるものと考えられることから、リボンの照射にアルミニウムカプセルは使用できないと判断した。そのため、リボンの照射はポリイミド樹脂カプセルを使用するJRR-3 HP-1に限定することにした。JRR-3 HP-1を用い、リボン用ポリエチレン細管を10cm

に切断したものを 10 本、リボンの製造に必要な 5.5 時間 (1mCi / シード) または 9 時間 (1.6mCi / シード) の照射を行った。照射後、引張り試験器（今田製作所製の プッシュプルスケール、PSM-5、最大荷重 5 kg）を用いて公称伸びと公称応力の関係を測定した。試験体のうち中心部で切断したものの平均値を用いてプロットした公称伸びと公称応力との関係を Fig. 14 に示す。未照射のポリエチレン細管の伸び率 295 % に対して、照射時間が 5.5 時間、9 時間の場合それぞれ 133 %、90 % になり、照射量にともない伸び率は低下したが、切断荷重はいずれも 2kg/mm^2 程度で、顕著な変化は見られなかった。柔軟性については照射前後に大きな変化はなく充分な柔軟性が保たれていることが見出された。次に、原研法で ^{192}Ir リボンを製造し、二半減期にわたり目視観察を行ったが、特に経時的な変化は見られなかった。

このような検討と同時に、製造した ^{192}Ir リボンを医療機関に試験頒布し使用に供したところ、特に使用上の問題は無いとの臨床結果を得た。以上の結果から、 ^{192}Ir リボンの製造法は確立したものと結論された。

7. 医療用 ^{192}Ir 線源の製造

以上に述べた医療用 ^{192}Ir 線源に関する技術開発に基づき Fig. 15 に示す工程にしたがい本格製造に着手した。その概要を以下に述べる。

7.1 ターゲットの作成と照射

利用者からの注文に応じて、ヘアピン、シングルピン、シンワイヤ、シード、リボンの照射用ターゲットを作製する。放射化後の放射能汚染を少なくするため、試薬特級のアセトンを用いてターゲットおよびスペーサに付着している油分、金属性微粉などを超音波洗浄により除去する。各種ターゲットは均一な照射条件が得られるように、それぞれスペーサと組合わせ、各原子炉専用のアルミニウムカプセル、またはポリイミド樹脂カプセルに封入する。

製造に際し中性子照射を行う原子炉及び照射孔は、JRR-2 の 2 インチ気送管、JRR-3 の HP-1、JRR-4 の T パイプである。各原子炉の照射条件は、カプセルにつめるターゲットの数量及び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て決定する。すなわちヘアピン、シングルピン、シードは一個あたりそれぞれ 20mCi , 10mCi , 1mCi 又は 3mCi に、シンワイヤは 1mm 当り 0.22mCi 、リボンはシード一個あたり 1mCi 又は 1.6mCi になるように決定する。現在迄に製造頒布した各線源の製造条件と結果を Table 8, Table 9, Table 10 に示す。各表の中で照射時間が他と著しく異なるものは、前記の照射時から出荷時までの経過時間が他と大きく異なるためである。

7.2 カプセルの開封と試料の解体

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の詰替セルを経て、トングスマ

に切断したものを 10 本、リボンの製造に必要な 5.5 時間 (1mCi/シード) または 9 時間 (1.6mCi/シード) の照射を行った。照射後、引張り試験器（今田製作所製のプッシュプルスケール、PSM-5、最大荷重 5 kg）を用いて公称伸びと公称応力の関係を測定した。試験体のうち中心部で切断したものの平均値を用いてプロットした公称伸びと公称応力との関係を Fig. 14 に示す。未照射のポリエチレン細管の伸び率 295 % に対して、照射時間が 5.5 時間、9 時間の場合それぞれ 133 %、90 % になり、照射量にともない伸び率は低下したが、切断荷重はいずれも 2 kg/mm^2 程度で、顕著な変化は見られなかった。柔軟性については照射前後に大きな変化はなく充分な柔軟性が保たれていることが見出された。次に、原研法で ^{192}Ir リボンを製造し、二半減期にわたり目視観察を行ったが、特に経時的な変化は見られなかった。

このような検討と同時に、製造した ^{192}Ir リボンを医療機関に試験頒布し使用に供したところ、特に使用上の問題は無いとの臨床結果を得た。以上の結果から、 ^{192}Ir リボンの製造法は確立したものと結論された。

7. 医療用 ^{192}Ir 線源の製造

以上に述べた医療用 ^{192}Ir 線源に関する技術開発に基づき Fig. 15 に示す工程にしたがい本格製造に着手した。その概要を以下に述べる。

7.1 ターゲットの作成と照射

利用者からの注文に応じて、ヘアピン、シングルピン、シンワイヤ、シード、リボンの照射用ターゲットを作製する。放射化後の放射能汚染を少なくするため、試薬特級のアセトンを用いてターゲットおよびスペーサに付着している油分、金属性微粉などを超音波洗浄により除去する。各種ターゲットは均一な照射条件が得られるように、それぞれスペーサと組合わせ、各原子炉専用のアルミニウムカプセル、またはポリイミド樹脂カプセルに封入する。

製造に際し中性子照射を行う原子炉及び照射孔は、JRR-2 の 2 インチ気送管、JRR-3 の HP-1、JRR-4 の T パイプである。各原子炉の照射条件は、カプセルにつめるターゲットの数量及び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て決定する。すなわちヘアピン、シングルピン、シードは一個あたりそれぞれ 20 mCi, 10 mCi, 1 mCi 又は 3 mCi に、シンワイヤは 1 mm 当り 0.22 mCi、リボンはシード一個あたり 1 mCi 又は 1.6 mCi になるように決定する。現在迄に製造頒布した各線源の製造条件と結果を Table 8, Table 9, Table 10 に示す。各表の中で照射時間が他と著しく異なるものは、前記の照射時から出荷時までの経過時間が他と大きく異なるためである。

7.2 カプセルの開封と試料の解体

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の詰替セルを経て、トングスマ

ニプレータを有する鉛遮蔽厚 10 cm の貯蔵配分セル (No 4) に搬入される。カプセル表面を水道水で洗浄したのち、アルミニウムカプセル、ポリイミド樹脂カプセルを、それぞれ専用の開封器を用いて開封する。ポリイミド樹脂カプセル開封器は研究炉管理部研究炉利用課で開発し、製造部で改良したものである (Phot-2)。医療用線源の製造にともなって生じる主な廃棄物は、アルミニウムのカプセル、スペーサ、箔などであり、これらは低いレベル廃棄物として処理することができる。

7.3 放射能測定

放射能測定は、貯蔵配分セル (No 3) 内に検出部を設置し、側面を厚さ 5 cm の鉛で遮蔽した井戸型電離箱によって行う。この電離箱の各線源に対する校正定数は、6.1 放射能測定の項で求めた値すなわちヘアピン及びシングルピン、シンワイヤ、シードならびにリボンに対してそれぞれ 0.47, 0.58, 0.54 及び 0.50 を用いる。実際の測定においては、まず ^{137}Cs 校正用線源で測定器の作動を確認したのち、バックグランドを測定する。次に ^{192}Ir 線源を測定し、測定値よりバックグランドを差引き、各線源形状に応じた校正定数を乗じて求める。

7.4 製品の出荷

放射性物質標識のついたラベルに、線源の種類、放射能強度、出荷日時を記入し、ガラス瓶に張りつけ貯蔵配分セルに、出荷用鉛容器とともに入れる。トング操作によりガラス瓶のネジ蓋を開き、線源を収納したのちネジ蓋を閉め、鉛容器に入れ、更に輸送用アルミニウム容器へ収めて車輌により輸送する。

8. 結論

以上に述べた医療用 ^{192}Ir 線源の製造に係わる技術的検討から、特に良質の各種形状ターゲットの製作、イリジウム-白金、白金管の自己遮蔽効果の検討、各種形状線源の放射能測定法及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、表面汚染検査、リボン用ポリエチレン細管の照射試験の結果から、充分に医療用線源として利用できる見通しが得られた。製造工程における線源の取扱いには、とりわけ相互汚染の防止に対する配慮が必要であり、これに対して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うことなどによって充分な効果を得ることができた。

試験製造開始時（昭和 54 年 5 月）から、昭和 56 年 8 月迄の間に製造し、頒布した医療用 ^{192}Ir 線源の総数量は、ヘアピンが 167 本、シングルピンが 56 本、シードが 582 個、リボンが 22 本である。

将来、需要量の増加が見込まれることを考慮し、JRR-2 の 2 インチ気送管、JRR-3 の

ニプレータを有する鉛遮蔽厚 10 cm の貯蔵配分セル (No 4) に搬入される。カプセル表面を水道水で洗浄したのち、アルミニウムカプセル、ポリイミド樹脂カプセルを、それぞれ専用の開封器を用いて開封する。ポリイミド樹脂カプセル開封器は研究炉管理部研究炉利用課で開発し、製造部で改良したものである (Phot-2)。医療用線源の製造にともなって生じる主な廃棄物は、アルミニウムのカプセル、スペーサ、箔などであり、これらは低いレベル廃棄物として処理することができる。

7.3 放射能測定

放射能測定は、貯蔵配分セル (No 3) 内に検出部を設置し、側面を厚さ 5 cm の鉛で遮蔽した井戸型電離箱によって行う。この電離箱の各線源に対する校正定数は、6.1 放射能測定の項で求めた値すなわちヘアピン及びシングルピン、シンワイヤ、シードならびにリボンに対してそれぞれ 0.47, 0.58, 0.54 及び 0.50 を用いる。実際の測定においては、まず ^{137}Cs 校正用線源で測定器の作動を確認したのち、バックグランドを測定する。次に ^{192}Ir 線源を測定し、測定値よりバックグランドを差引き、各線源形状に応じた校正定数を乗じて求める。

7.4 製品の出荷

放射性物質標識のついたラベルに、線源の種類、放射能強度、出荷日時を記入し、ガラス瓶に張りつけ貯蔵配分セルに、出荷用鉛容器とともに入れる。トンネル操作によりガラス瓶のネジ蓋を開き、線源を収納したのちネジ蓋を閉め、鉛容器に入れ、更に輸送用アルミニウム容器へ収めて車輌により輸送する。

8. 結論

以上に述べた医療用 ^{192}Ir 線源の製造に係わる技術的検討から、特に良質の各種形状ターゲットの製作、イリジウムー白金、白金管の自己遮蔽効果の検討、各種形状線源の放射能測定法及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、表面汚染検査、リボン用ポリエチレン細管の照射試験の結果から、充分に医療用線源として利用できる見通しが得られた。製造工程における線源の取扱いには、とりわけ相互汚染の防止に対する配慮が必要であり、これに対して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うことなどによって充分な効果を得ることができた。

試験製造開始時（昭和 54 年 5 月）から、昭和 56 年 8 月迄の間に製造し、頒布した医療用 ^{192}Ir 線源の総数量は、ヘアピンが 167 本、シングルピンが 56 本、シードが 582 個、リボンが 22 本である。

将来、需要量の増加が見込まれることを考慮し、JRR-2 の 2 インチ気送管、JRR-3 の

HP-1, JRR-4 の T パイプ以外の照射孔における照射条件の検討, 更に品質面での一層の改良など, 安定供給を前提とした定常生産の継続にあたり検討すべき課題が残されている。

謝 辞

医療用 ^{192}Ir 線源の製造技術開発にあたり御協力をいただいた四方英治製造技術課長, 鈴木恭平前製造課長(現本部安全管理室), 検査課の竹内紀男, 小林勝利両氏, 製造課の反田孝美氏ならびに中性子照射に関して御協力をいただいた研究炉管理部研究炉利用課の諸氏および製造課生産事務係長大杉稔氏, 出荷業務を円滑に遂行していただ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。製造技術の開発ならびに試験製品について臨床面から多くの御助言をいただいた大阪大学医学部重松康教授をはじめとする厚生省・班研究メンバーの諸氏に深く感謝します。

参 考 文 献

- 1) 重松康: "癌の臨床別集 密封小線源治療", 1980
- 2) 加藤久他: "医療用 ^{198}Au グレインの製造", JAERI-M 7209 (1977)
- 3) H.Kato et al. : "Production of radioisotopic gamma radiation sources in JAERI", JAERI-M 8810 (1980)
- 4) H.Kato et al. : "Development of ^{192}Ir sources for Brachytherapy", Radioisotopes, 29 (9)
- 5) C.M.Ledere et al. : Table of Isotopes, 7 th Edition, John Wiley & Sons, Inc. (1978) New York
- 6) 上沖寛他: "放射性試料を用いたペーパークロマトグラフィおよび薄層クロマトグラフィ用の自動放射能走査装置", 第12回理工学における同位元素研究発表会, 20 PIII-11, 東京 (1975)

HP-1, JRR-4 の T パイプ以外の照射孔における照射条件の検討, 更に品質面での一層の改良など, 安定供給を前提とした定常生産の継続にあたり検討すべき課題が残されている。

謝 辞

医療用 ^{192}Ir 線源の製造技術開発にあたり御協力をいただいた四方英治製造技術課長, 鈴木恭平前製造課長(現本部安全管理室), 検査課の竹内紀男, 小林勝利両氏, 製造課の反田孝美氏ならびに中性子照射に関して御協力をいただいた研究炉管理部研究炉利用課の諸氏および製造課生産事務係長大杉稔氏, 出荷業務を円滑に遂行していただ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。製造技術の開発ならびに試験製品について臨床面から多くの御助言をいただいた大阪大学医学部重松康教授をはじめとする厚生省・班研究メンバーの諸氏に深く感謝します。

参 考 文 献

- 1) 重松康: "癌の臨床別集 密封小線源治療", 1980
- 2) 加藤久他: "医療用 ^{198}Au グレインの製造", JAERI-M 7209 (1977)
- 3) H.Kato et al.: "Production of radioisotopic gamma radiation sources in JAERI", JAERI-M 8810 (1980)
- 4) H.Kato et al.: "Development of ^{192}Ir sources for Brachytherapy", Radioisotopes, 29 (9)
- 5) C.M.Ledere et al.: Table of Isotopes, 7 th Edition, John Wiley & Sons, Inc. (1978) New York
- 6) 上沖寛他: "放射性試料を用いたペーパークロマトグラフィおよび薄層クロマトグラフィ用の自動放射能走査装置", 第12回理工学における同位元素研究発表会, 20 PIII-11, 東京 (1975)

HP-1, JRR-4 の T パイプ以外の照射孔における照射条件の検討, 更に品質面での一層の改良など, 安定供給を前提とした定常生産の継続にあたり検討すべき課題が残されている。

謝 辞

医療用 ^{192}Ir 線源の製造技術開発にあたり御協力をいただいた四方英治製造技術課長, 鈴木恭平前製造課長(現本部安全管理室), 検査課の竹内紀男, 小林勝利両氏, 製造課の反田孝美氏ならびに中性子照射に関して御協力をいただいた研究炉管理部研究炉利用課の諸氏および製造課生産事務係長大杉稔氏, 出荷業務を円滑に遂行していただ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。製造技術の開発ならびに試験製品について臨床面から多くの御助言をいただいた大阪大学医学部重松康教授をはじめとする厚生省・班研究メンバーの諸氏に深く感謝します。

参 考 文 献

- 1) 重松康: "癌の臨床別集 密封小線源治療", 1980
- 2) 加藤久他: "医療用 ^{198}Au グレインの製造", JAERI-M 7209 (1977)
- 3) H.Kato et al. : "Production of radioisotopic gamma radiation sources in JAERI", JAERI-M 8810 (1980)
- 4) H.Kato et al. : "Development of ^{192}Ir sources for Brachytherapy", Radioisotopes, 29 (9)
- 5) C.M.Ledere et al. : Table of Isotopes, 7 th Edition, John Wiley & Sons, Inc. (1978) New York
- 6) 上沖寛他: "放射性試料を用いたペーパークロマトグラフィおよび薄層クロマトグラフィ用の自動放射能走査装置", 第12回理工学における同位元素研究発表会, 20 PIII-11, 東京 (1975)

Table 1 Characteristics of ^{192}Ir

Half-life (day)	74.2
Gamma-ray energy(MeV)	0.296(29%), 0.308(30%), 0.316(81%), 0.468(49%) 0.589(4%), 0.604(9%), 0.612(6%)
Beta-ray energy(MeV)	0.24(8%), 0.536(41%), 0.672(46%)
Reaction	$^{191}\text{Ir}(n,\gamma)^{192}\text{Ir}$
Radiation output per Ci (Roentgens per hour at 1 m)	0.48
mg Ra equivalent (mCi)	1.72

Table 2 Specification of ^{192}Ir clinical radiation sources

Form	Size (mm)	(Pt+Ir) weight (mg)	Ir weight (mg)	^{192}Ir radioactivity (mCi)	Note
Hairpin	0.65 ⁶ ×93 ¹	610	764	2.0	
Single-pin	0.65 ⁶ ×47.6 ¹	290	39.1	10	
Seed	0.50 ⁶ ×30 ¹	131	0.919	1	
Ribbon	6~12 seeds/ribbon	131/seed	0.919/seed	1 or 16/seed	10^6 polyethylene
Thinwire	0.3 ⁶ ×500 ¹	760	17	110	

Table 3 Nuclear reactor in JAERI and their characteristics of interest to
the production of radioisotopes

Reactor	JRR - 2	JRR - 3	JRR - 4	JMTR
Fuel	93% enriched U	1.5% enriched UO_2	93% enriched U-Al	93% enriched U
Moderator	Heavy water	Heavy water	Light water	Light water
Cooling	Heavy water	Heavy water	Light water	Light water
Maximum thermal output	10 MW	10 MW	3.5 MW	50 MW
Irradiation hole (thermal neutron flux)	VT - 1 $(1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1})$	Hydraulic rabbit $(4 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1})$	T - pipe $(8 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1})$	$I = 1$ $(1 \sim 3 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1})$
HR	$(5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1})$		S - pipe $(5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1})$	Hydraulic tube $(3 \sim 6 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1})$
Operation periods	288 hr / 1 cycle 13 cycles / 1 year	288 hr / 1 cycle 13 cycles / 1 year	6 hr / 1 day 4 days / 1 week	570 hr / 1 cycle 6 cycles / 1 year
			43 cycles / 1 year	

Table 4 Shielding effect of ^{192}Ir sources

Sample	^{192}Ir wire		* B/A	^{192}Ir wire + Pt sheath		** C/B
	Calculation (A) ($\mu\text{Ci}/\text{mm}$)	Measurement (B) ($\mu\text{Ci}/\text{mm}$)		Measurement (C) ($\mu\text{Ci}/\text{mm}$)		
No.1	4.88	3.00	0.61	2.80	0.93	
No.2	9.92	6.02	0.61	5.62	0.93	
No.3	18.9	11.9	0.63	11.1	0.93	

* Neutron shielding effect of ^{192}Ir wire and platinum sheath
 ** Gamma ray absorption effect in platinum sheath
 Activities at the end of irradiation

Table 5 Self-shielding factor of ^{192}Ir

Sample	^{192}Ir wire calculation(A) (mCi)	^{192}Ir wire+Pt sheath Measurement(B) (mCi)	Self-shielding factor
Hairpin No.1	45.3	22.8	0.50
	43.1	22.0	0.51
	44.1	21.6	0.49
Seed No.1	1.80	1.04	0.58
	1.8	1.03	0.57
	1.78	1.03	0.58
Thin wire No.1	2.19	1.65	0.75
	0.36	0.25	0.67

Thinwire: mCi/mm

Table 6. Packing effect of hairpin ^{192}Ir sources at JRR-3

Sample	Number of target (pieces per capsule)	Irradiation time (min)	Thermal neutron flux ($\text{n/cm}^2\text{sec}$)	*Activity (mCi/mm)	Standard deviation (%)
No.1	1	90	3.1×10^{13}	0.23	—
No.2	3	"	3.0×10^{13}	0.23	± 0.6
No.3	4	"	3.0×10^{13}	0.23	± 1.1
No.4	7	"	2.8×10^{13}	0.21	± 0.9

*Activities at the end of irradiation

Table 7 Results of leakage test of ^{192}Ir hairpin, seed, thinwire

Target form	Testing	Allowance (μCi)	Measurement (μCi)
Hairpin (18mCi)	Wipe test	5×10^{-3}	24×10^{-5}
	Immersion test	2×10^{-2}	5.5×10^{-5}
Seed (1.1mCi)	Wipe test	5×10^{-3}	1.5×10^{-5}
	Immersion test	2×10^{-2}	B G
Thinwire (0.22mCi/mm)	Wipe test	5×10^{-3}	B G
	Immersion test	2×10^{-2}	B G

Table 8 Irradiation results of ^{192}Ir hairpin

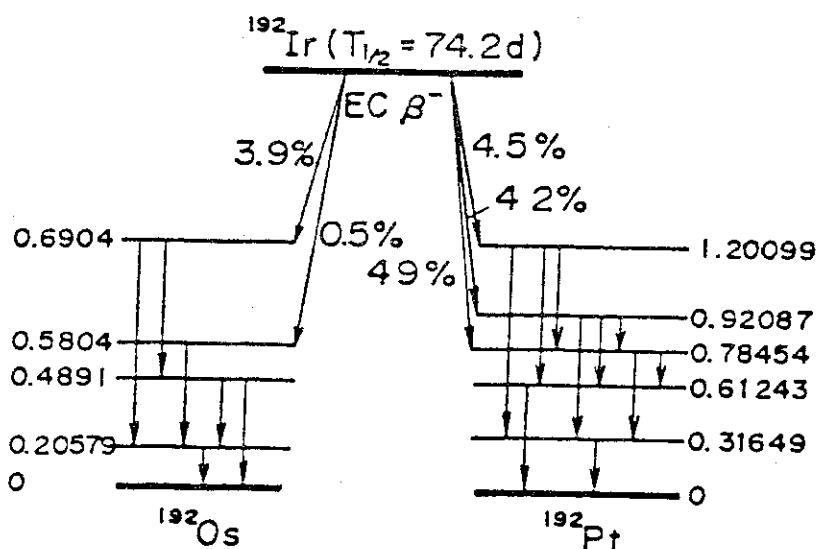
Reactor	Irradiation hole	Irradiation time	Shipping Date	Activity(mCi)	Quantity
JRR-3	HP-1	90 m	79-5-11	16.7	24
"	"	"	9-22	19.2	27
JRR-2	2" Pn.	40 m	80-2-13	18.3	16
JRR-3	HP-1	90m	4-11	21.0	5
"	"	"	5-20	21.0	6
"	"	"	6-10	19.0	10
"	"	"	6-17	19.0	4
"	"	2h 24m	8-15	21.0	6
"	"	90 m	10-17	17.6	7
"	"	100m	11-14	21.0	6
"	"	"	81-1-23	21.0	5
"	"	"	1-30	22.0	5
"	"	"	2-3	21.0	6
JRR-4	T-pipe	60m	4-22	22.0	10
"	"	70m	5-15	24.0	6
"	"	55m	"	22.0	3
JRR-2	2" Pn.	55m	6-5	21.0	2
"	"	60m	7-17	23.0	10
"	"	"	8-7	23.0	9

Table 9 Irradiation results of ^{192}Ir single-pin

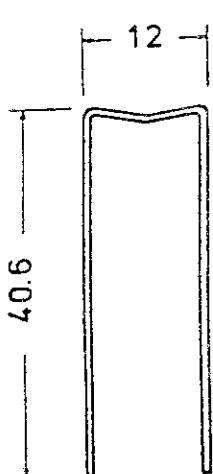
Reactor	Irradiation hole	Irradiation time	Shipping Date	Activity(mCi)	Quantity
JRR-2	2" Pn.	40 m	80-2-13	9.1	9
JRR-3	HP-1	90 m	4-11	11.0	5
"	"	"	5-20	10.0	1
"	"	"	6-10	9.7	6
"	"	"	6-17	9.5	5
"	"	2h 24m	8-15	11.0	1
"	"	90 m	10-17	8.7	5
"	"	100 m	11-14	10.0	1
"	"	"	81-1-23	10.0	3
"	"	"	1-30	11.0	3
"	"	"	2-3	10.0	1
"	"	"	220	10.0	2
JRR-4	T-Pipe	60m	4-24	11.0	6
"	"	70m	5-15	12.0	1
JRR-2	2" Pn.	60m	7-17	11.0	6
"	"	"	8-6	12.0	1

Table 10 Irradiation results of ^{192}Ir seed, ribbon and thinwire

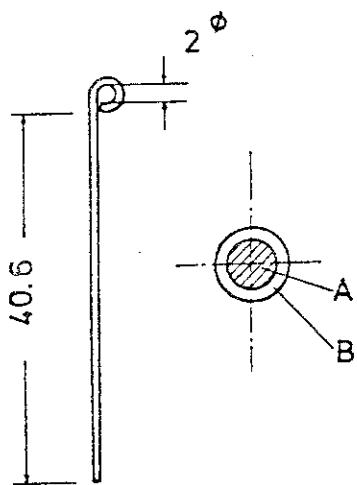
Reactor	Irradiation hole	Irradiation time	Shipping Date	Activity(mCi)	Quantity	Note
<u>Seed</u>	JRR-2	2" Pn.	2h30m	80-2-20	0.95	50
	JRR-3	H P-1	5h	4-11	0.89	·
	"	"	5h	6-10	0.87	·
	"	"	7h03m	8-1	0.91	·
	JRR-4	T-pipe	3h45m	9-12	0.97	20
	JRR-3	VR-113	267.5 h	10-9	.22	2
	"	HP-1	5h30m	10-3	0.90	50
	"	"	6h	12-12	0.89	·
	"	"	6h	81-1-30	1.0	·
	JRR-2	2" Pn.	3h	4-10	0.78	·
	"	"	3h25m	6-5	1.1	70
	"	"	3h25m	8-6	1.1	90
<u>Ribbon</u>	JRR-3	H P-1	2h	79-10-12	61	6
	"	"	2h	·	7.0	3
	"	"	6h	80-12-3	100	5
	"	"	9h	12-4	11.5	8 { 7 · · · x4 8 · · · x4 }
<u>Thin wire</u>	JRR-3	H P-1	27h	81-9-21	120	1 0.3×500^l

Fig.1 Decay scheme of ^{192}Ir

Hairpin



Single-pin



Material

A : Pt-Ir alloy (Ir 25 wt%)
dia: 0,45 mm

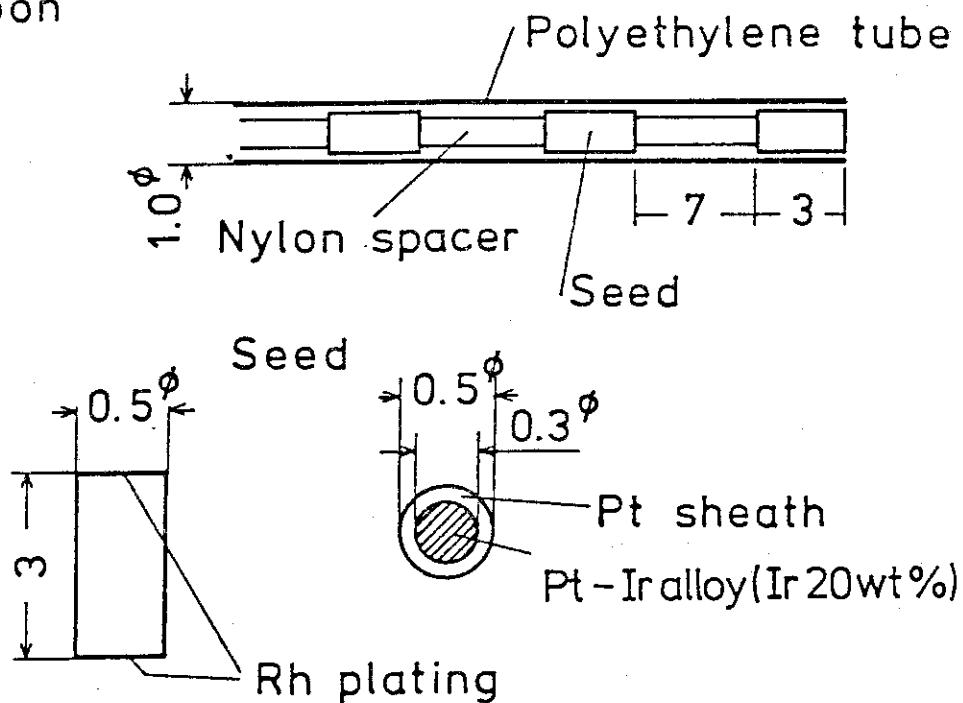
B : Pt tube
inside dia : 0,45 mm
outsid dia : 0,65mm

Weight Hairpin : 610 mg
Single-pin : 290mg

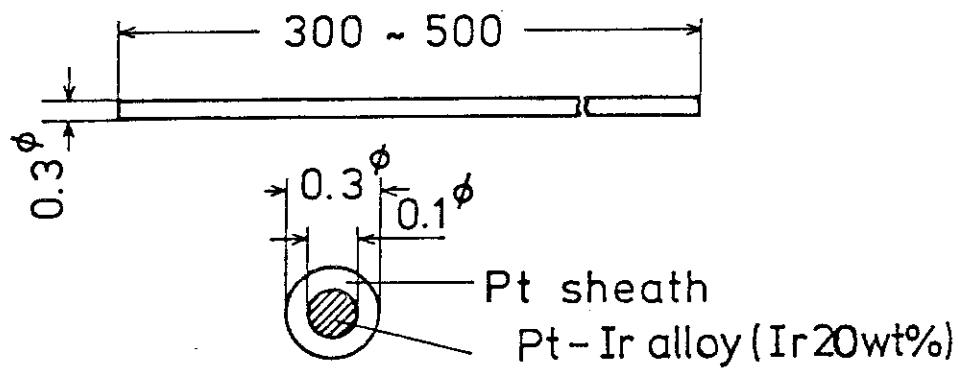
both ends closed by welding

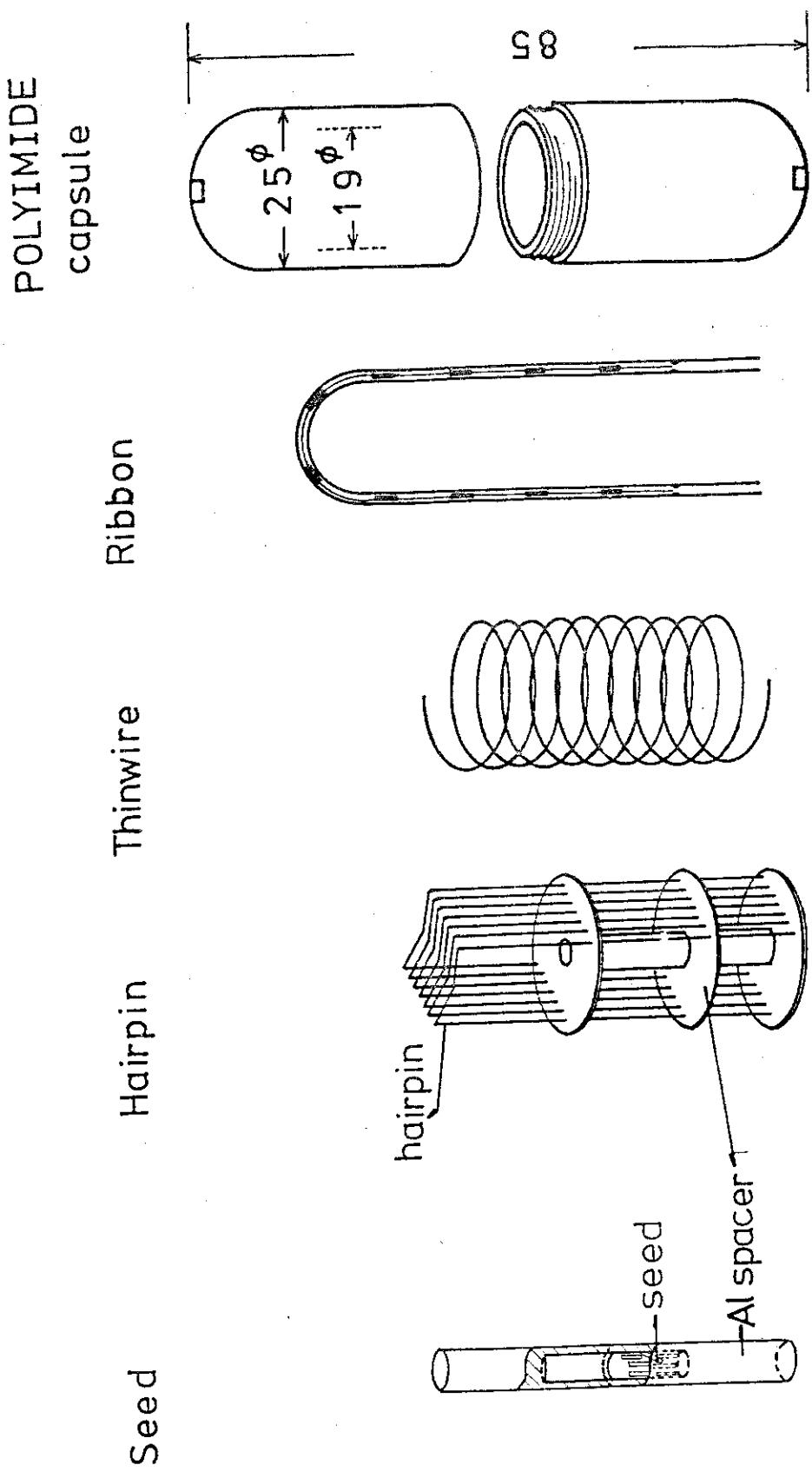
Fig. 2 Target designs for ^{192}Ir hairpin and single-pin

Ribbon



Thinwire

Fig.3 Target designs for ^{192}Ir ribbon and thin wire



Al spacer is covered
with Al foil

Fig. 4 Target designs for the irradiation

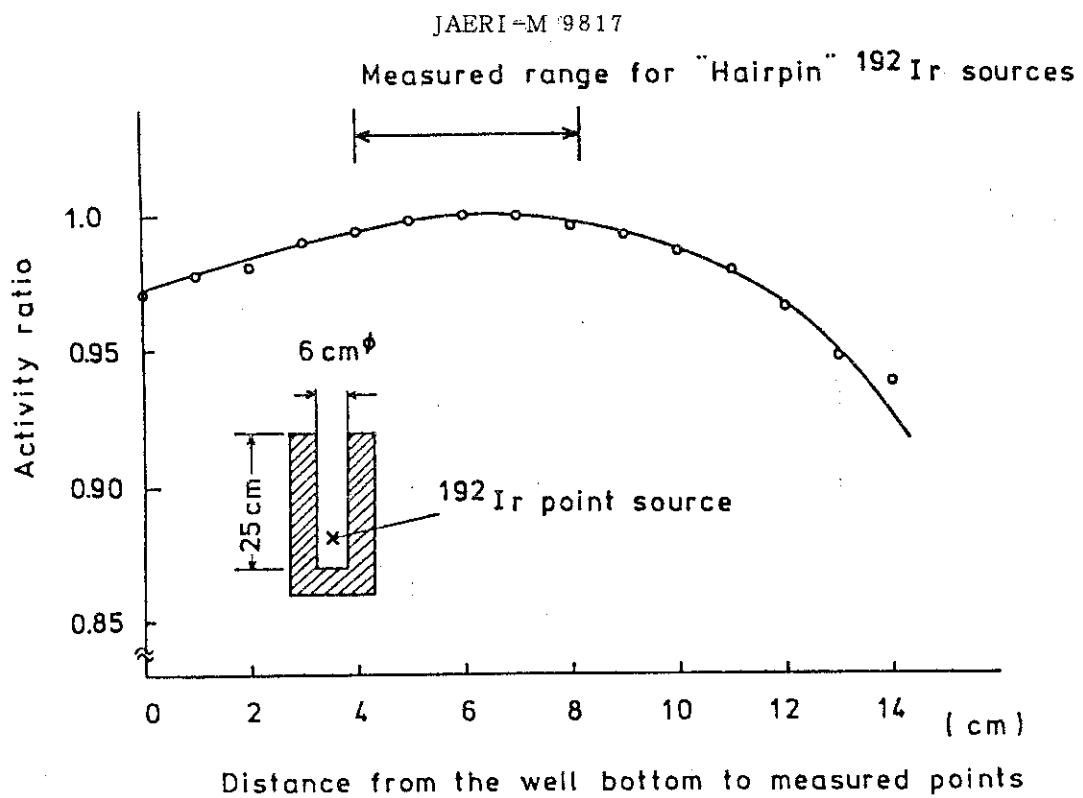


Fig.5 Response curve of the well type ionization chamber

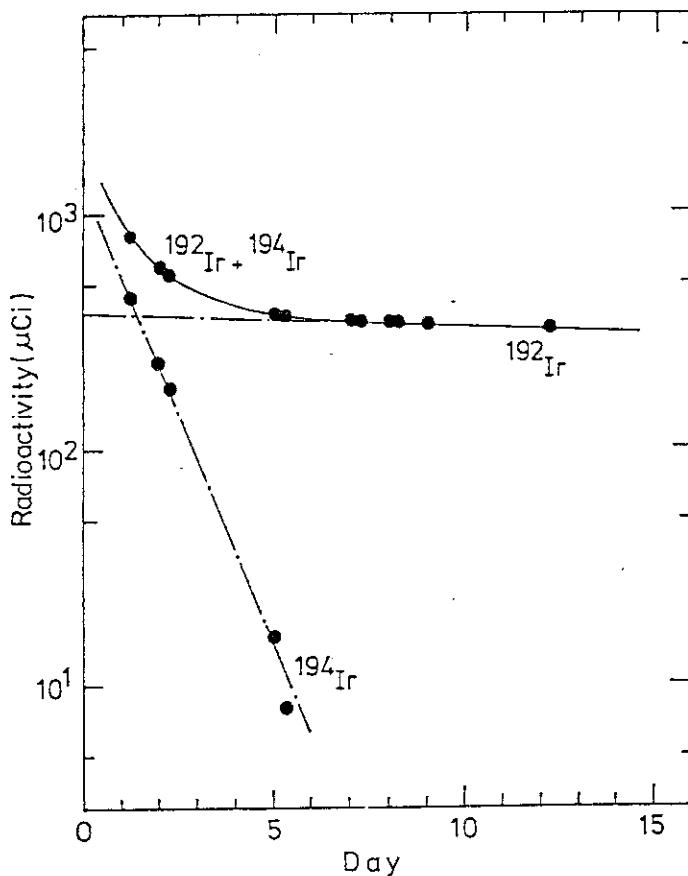


Fig.6 Decay curve of irradiated hairpin target

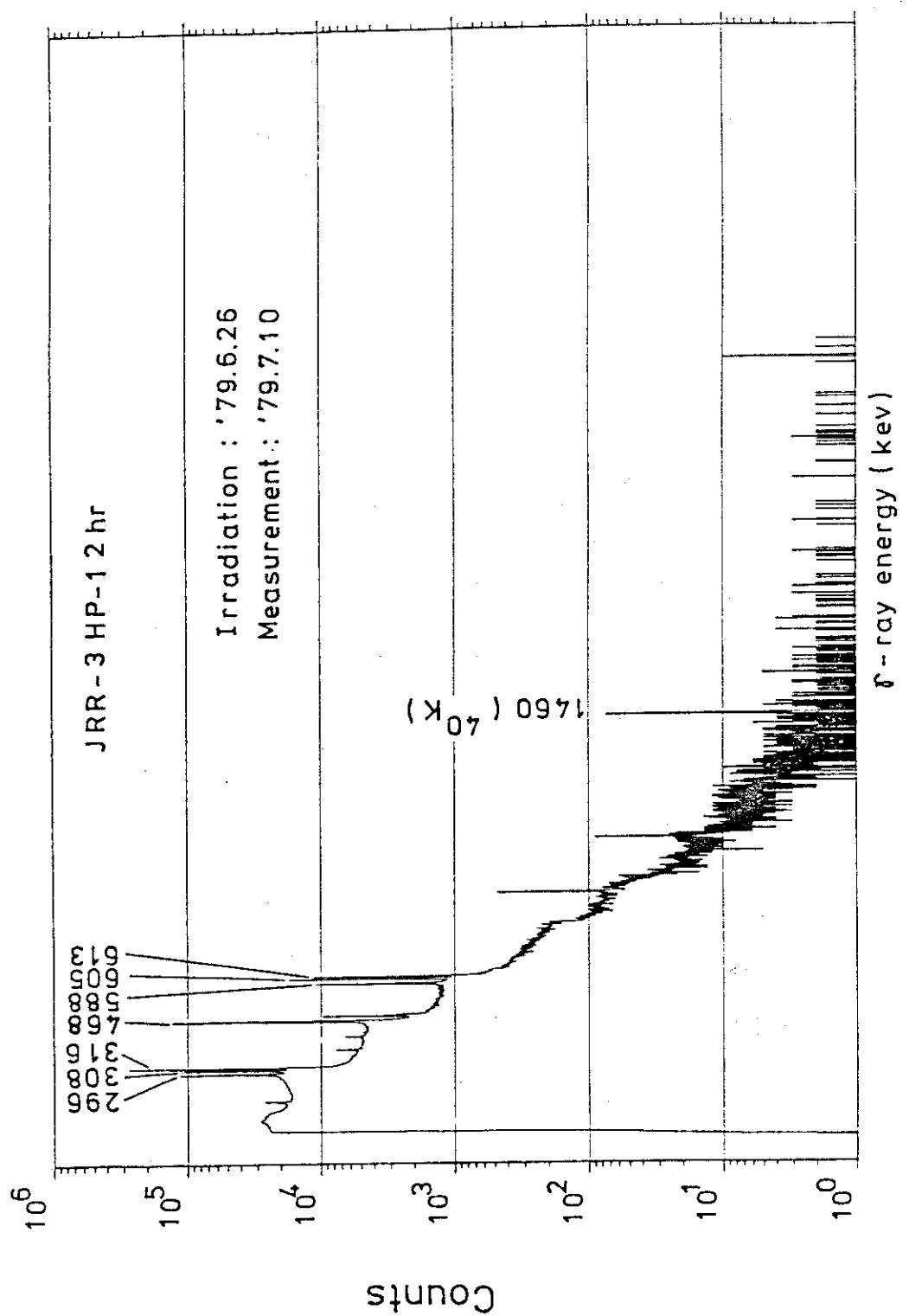


Fig.7 Gamma-ray spectrum analysis of ^{192}Ir seed

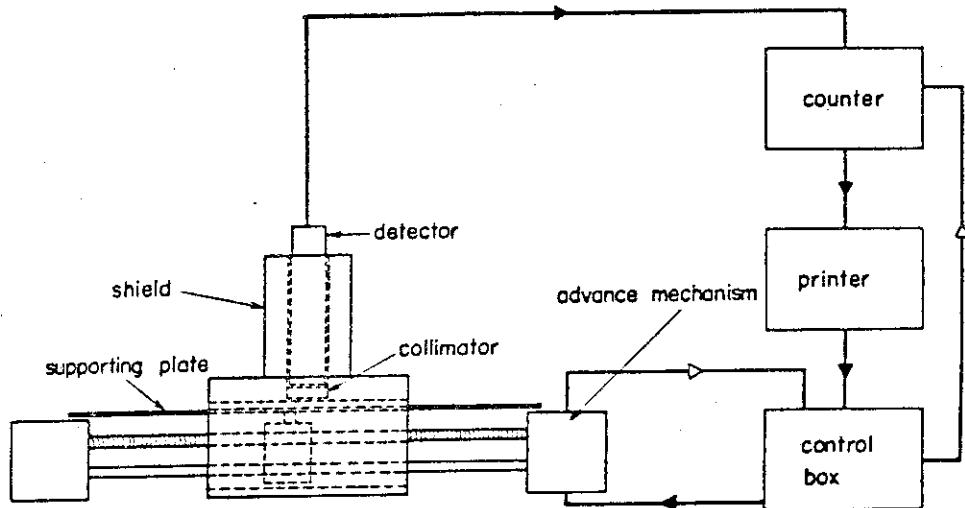


Fig. 8 Diagram of automatic scanning device

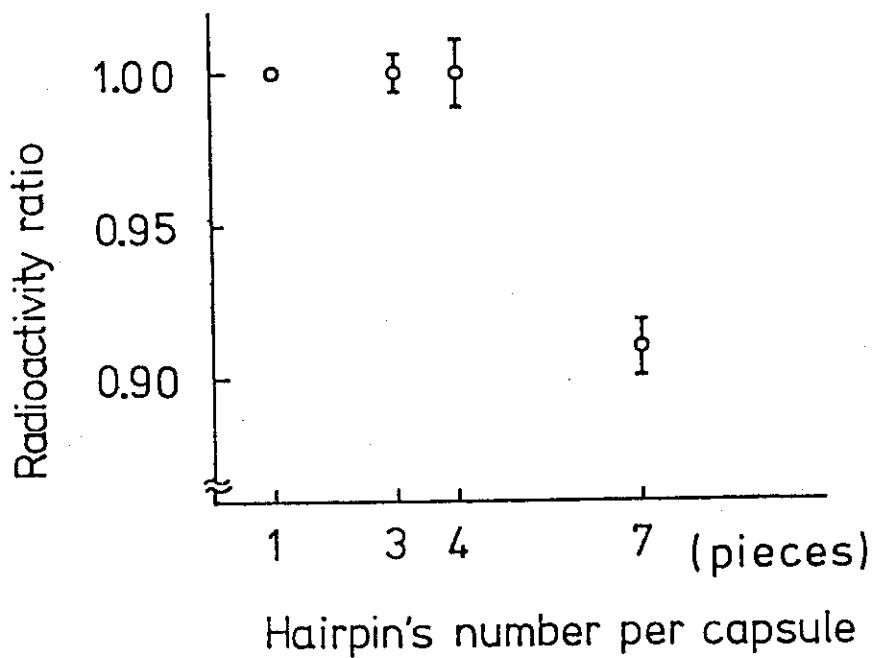
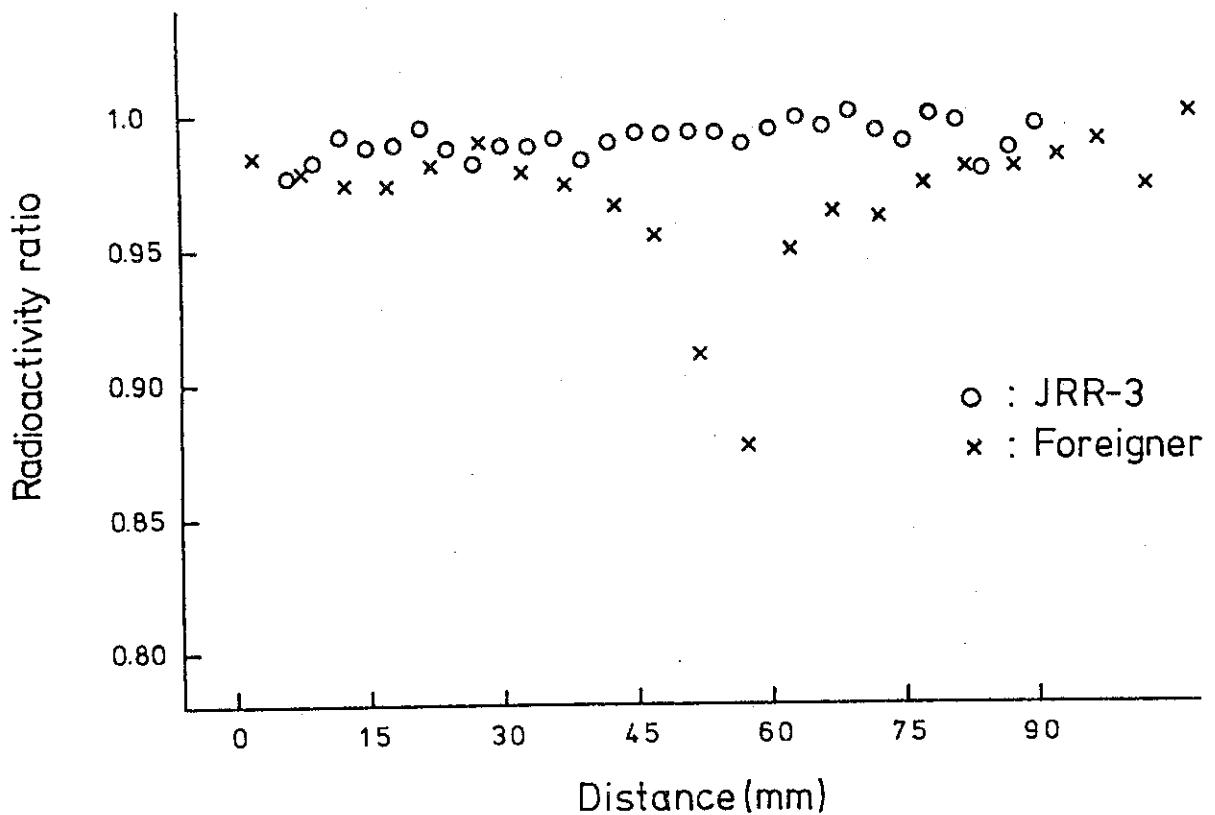
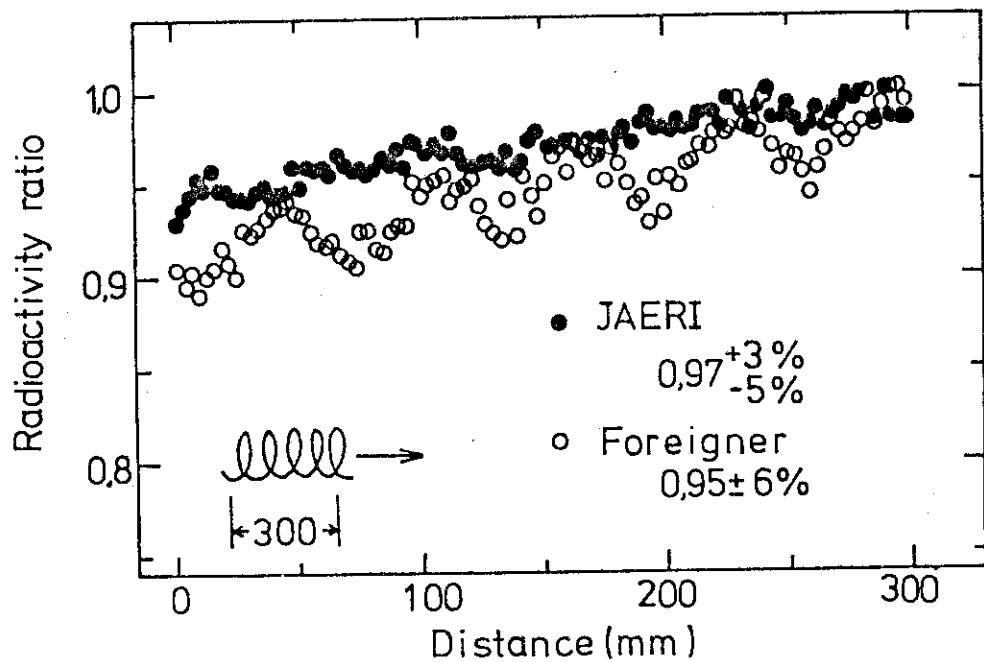


Fig.9 Packing effect of hairpin target

Fig.10 Linear distribution of radioactivity of ^{192}Ir hairpinFig.11 Linear distribution of radioactivity of ^{192}Ir thinwire

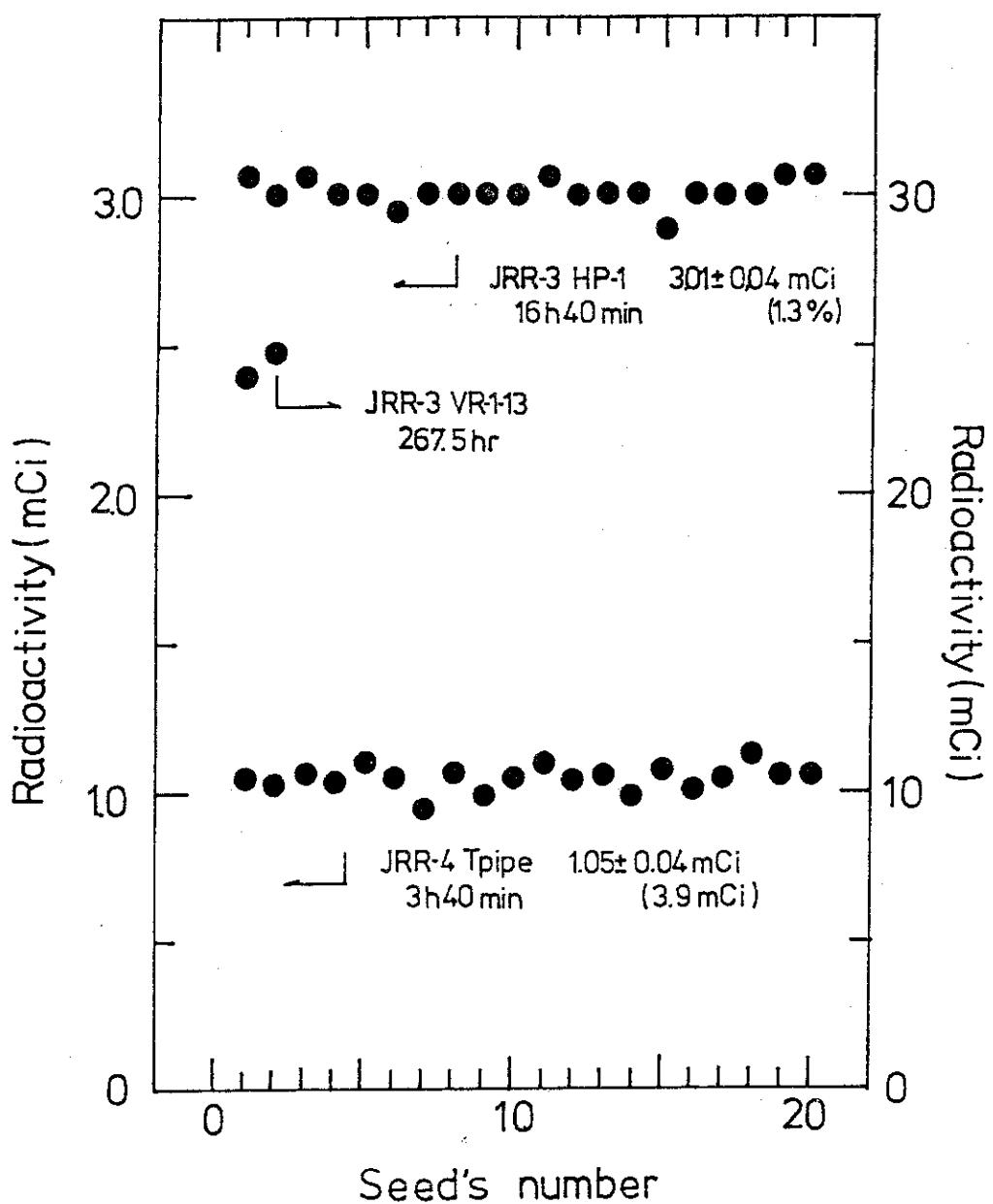


Fig.12 Distribution of radioactivity of ^{192}Ir seed

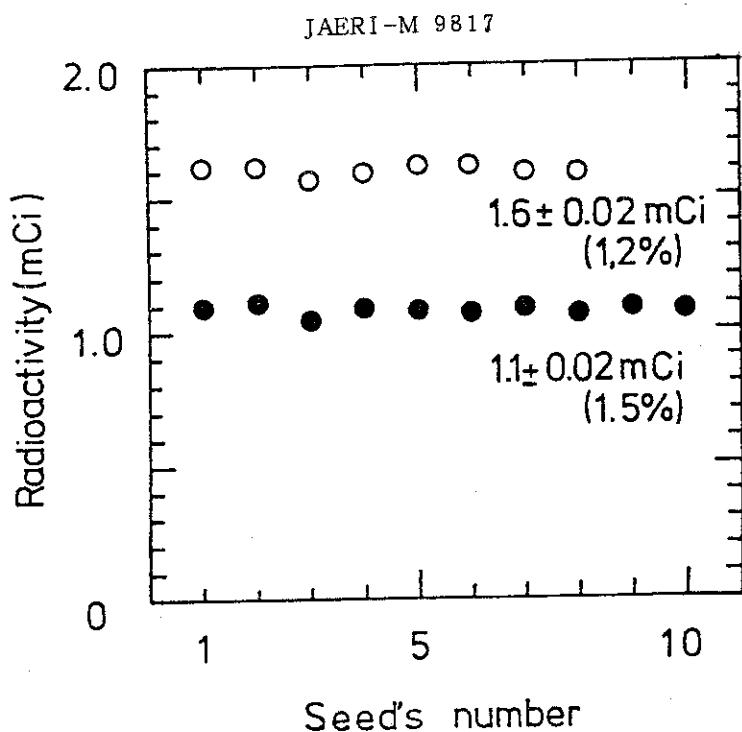


Fig.13 Distribution of radioactivity of ^{192}Ir seed in ribbon

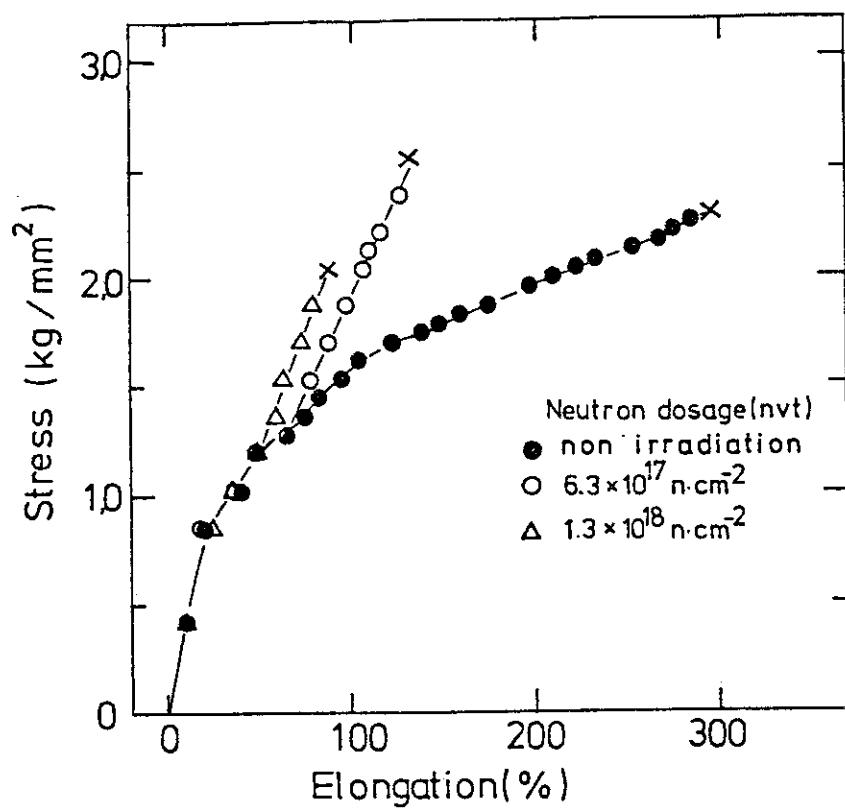
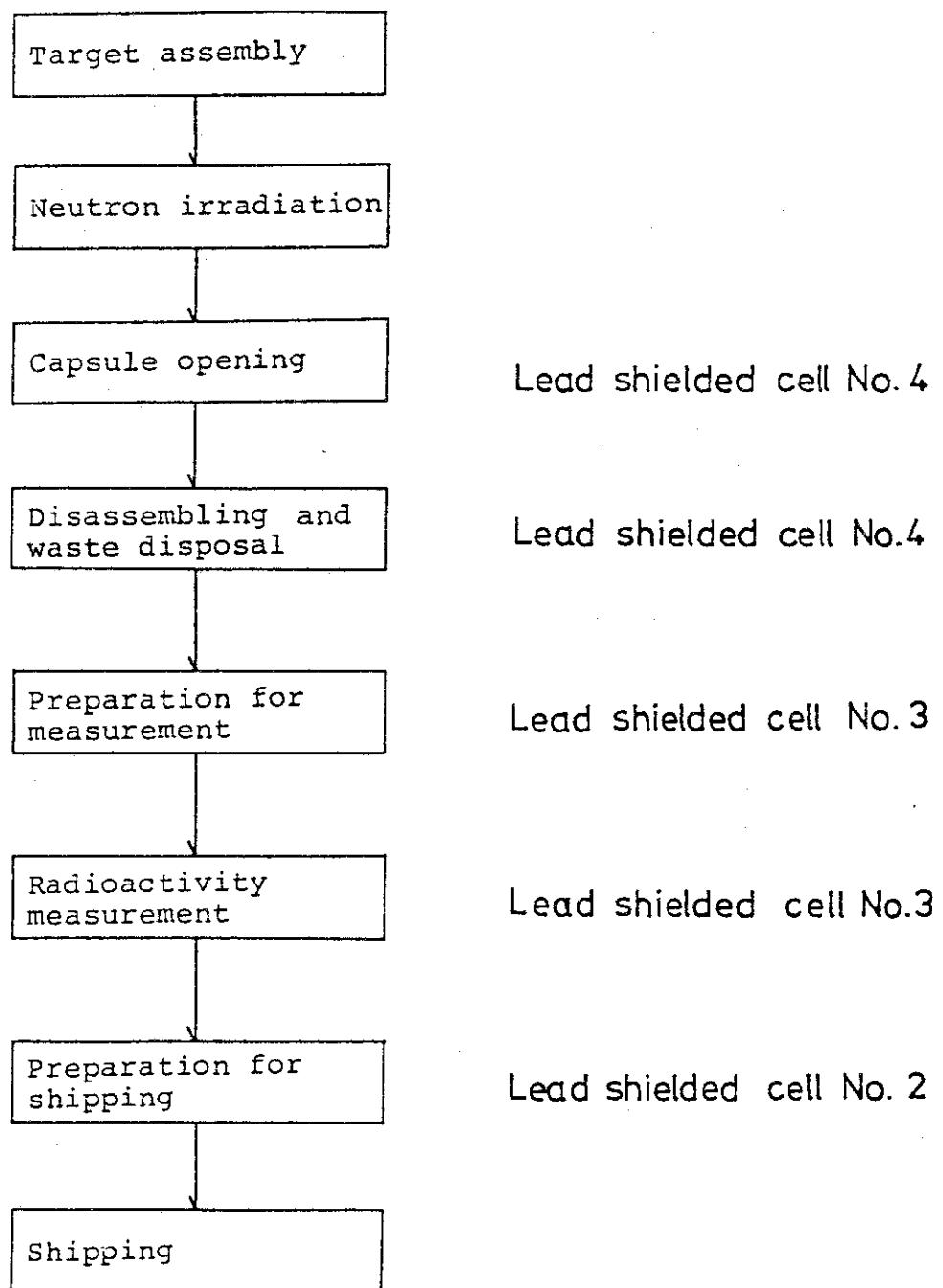


Fig.14 Elongation test of polyethylene tube for ^{192}Ir ribbon (nominal stress vs. nominal elongation)

Fig. 15 Flow sheet of ^{192}Ir production

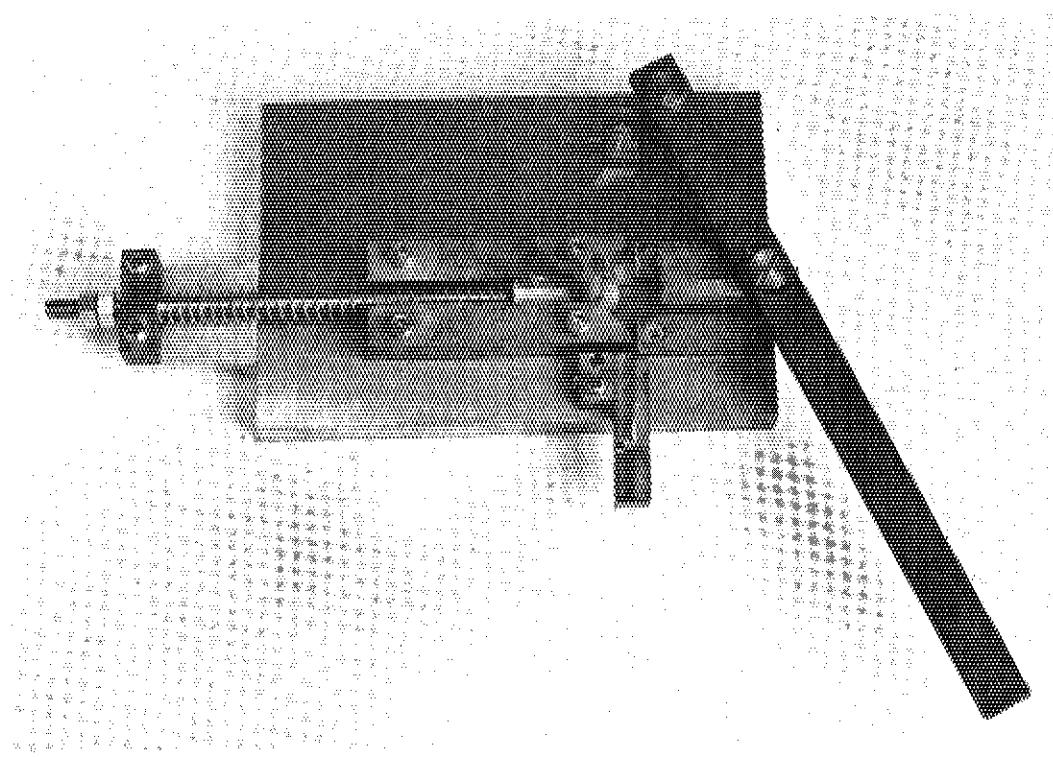


Photo. 1 Forming device for hairpin source

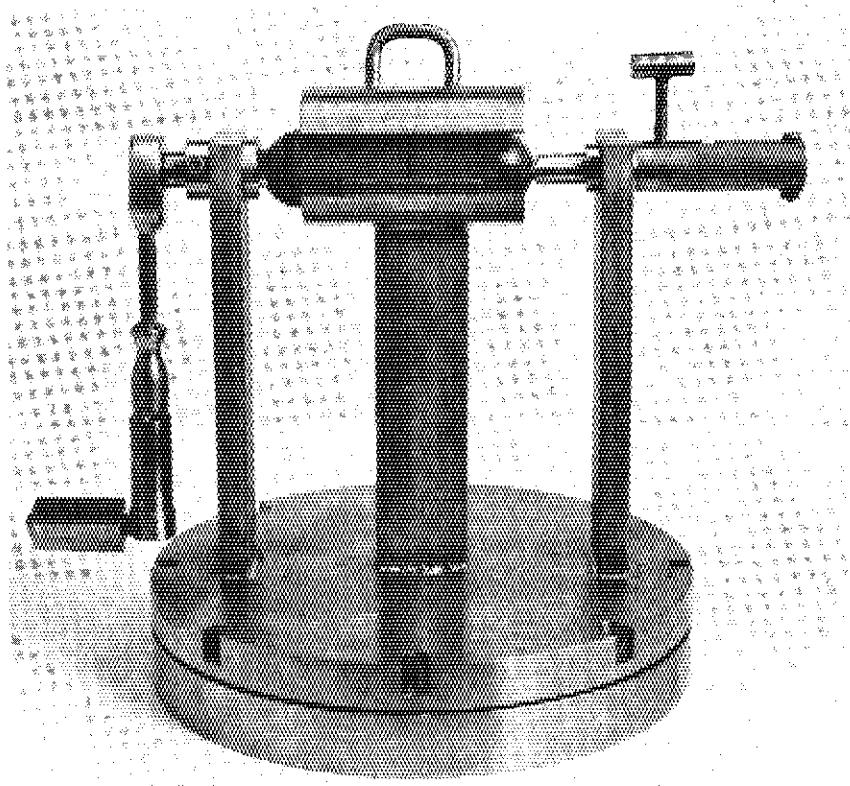


Photo. 2 Opener for polyimide capsule