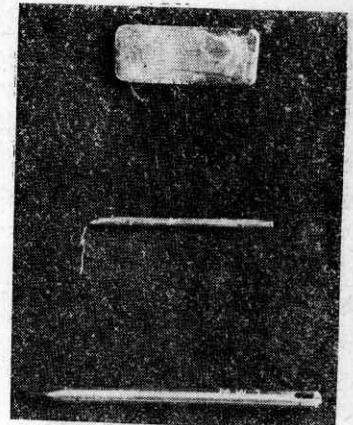


醫療用放射性合金の製造

—放射性同位元素 $^{27}\text{Co}^{60}$ —

加藤正夫・武谷清昭

放射性同位元素の使い方は、それら放射する γ 線とか β 線そのものを利用する場合、label を付した追跡體として使うものと大別される。この研究は前者であつて、 Co^{60} が放射する γ 線を放射線醫療に利用する目的で、 Co^{60} をふくむ放射性合金を製作した。ラジウム針に比していちじるしく低廉で、任意の形状に加工し得るなどの特長があり、治療効果も満足すべきものであつた。



上・ Co^{60} 板 中・ Co^{60} 針 下・Ra 針

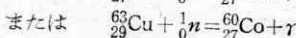
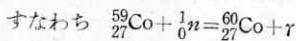
1. 緒言

アメリカの A.E.C. (Atomic Energy Commission, Oak Ridge Tenn.) では各種の放射性同位元素 (Radioactive Isotope, 以下 R.I. と略稱する) を製造して、廣く國外にも輸出している。昭和 25 年春から夏にかけてわが國にも Co^{60} , C^{14} , Fe^{59} , Ca^{45} , P^{32} , S^{35} , Sb^{124} などが輸入され、主として醫學農學の研究に供せられた。その多くは追跡體 (tracer) として用いられたが、一方 R.I. のもつ放射能そのものを放射線醫學に應用する研究も行われた。ここに報告する研究は後者に必要な放射性合金の製造を目的としたものである。

1948 年 W.G. Myers⁽¹⁾ によつて Co^{60} がラジウム (Ra) の代用として理論的に使用可能であることが證明されて以來、ラジウムに代つて Co^{60} による治療が急速に普及しつつある。この目的にアメリカでは放射性コバルトまたはコバルト合金線が作られており、これを針にして癌その他の治療に使つている。Ra に比較していちじるしく低廉⁽²⁾ (百分の一以下の價格で供給されていると思われる) でしかも後に述べるように治療効果は同等である。當時アメリカ製品のこの針が當分輸入の見込ないこと、また一日も早くわが國で Co^{60} による治療の經驗を得ておくことの必要にせまられた放射線醫學界の要望に答えて、輸入された $\text{Co}^{60}\text{Cl}_2$ 水溶液を用いて放射性合金針と板とを製作した。その経過およびこれに関連する事項について報告する。

2. 放射性同位元素 Co^{60} ⁽³⁾

ウラニウムバイル (いわゆる原子爐) に入れられた元素は、モデレーターにより緩速された中性子によつて irradiate され R.I. となる。 Co^{60} も同じ反應によつて作られるが、この場合は Co^{59} に対する (n, γ) 反應による。

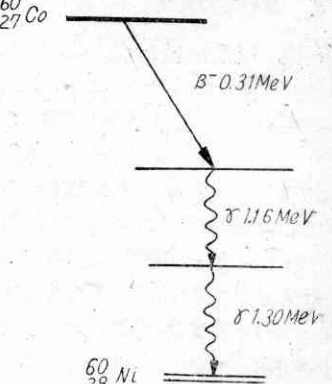


などによつて生成されるが、Co に對する (d, p) 反應、

Ni に對する (d, α) 反應等によつても irradiate することができる。

このようにして生じた Co^{60} は、原子番號 27、質量數 60 であつて、第 1 圖のように 0.31 MeV の陰電子を放出して原子番號 28 になるが、なお不安定で餘分のエネルギーを 1.16 Mev および 1.30 Mev の γ 線として放出し、安定な同位元素 ${}_{28}^{60}\text{Ni}$ になる。

放射線治療にはこの γ 線を使うのであるが、このエネルギーがラジウムから放射する γ 線の平均エネルギーに近く、また半減期が長く (5.3 年) かつ比放射能の大きいことが特長である。



第 1 圖 Co^{60} (半減期 5.3 年) の崩壊圖式

Ra 1mg の放射能は 1mc という單位でよばれる。Curie (C) とは 1g の Ra と放射平衡の状態にある RaE の質量で、電離作用でいえば 2.99×10^{-6} e.s.u. の電流を支持する (放射能の單位については脚註* 参照)。

Ra は α (4.791 Mev) 線および γ 線 (0.19 Mev) を放射して RaB, RaC を經て崩壊していくのであるが、この RaC が放射する γ 線のエネルギーが 1.8 Mev である。いわゆるラジウム治療にはこれらの γ 線を利用するのであるが、同一 mc 數の Co^{60} の γ 線とその強さを比較すると、文献によれば 1:1.6 となる。宮川博士⁽⁴⁾ の實驗によれば 1:1.52 なる數字が得られている (Co^{60} には厚さ 2mm の Pb, ラジウムには厚さ 0.5mm Pt をそれぞれフィルターに用いている)。同博士は " Co^{60} の

* 放射能の單位⁽⁵⁾ を Curie によつて表わす場合、Ra 1g から 3.7×10^{10} α 粒子 (4.79 MeV) を毎秒放出するので、この量を 1C と稱していたが、 α 粒子を出さない崩壊もあるから、C 單位で表わすことは適當でない。だから毎秒 3.7×10^{10} 崩壊する量を 1mc として使用している。

100 mc 時はラジウムの 150~160 mc 時に相當すると考えればよい。臨床治療においてもこの値を基礎として配量を行つたのであるが妥當と思われた。もちろん物理學的に嚴密に言えば波長の異なる 2 系統の γ 線がある特定の装置による電離測定により比較し、その値を直ちに生體組織の照射量として配量に應用することは妥當でないが、 Co^{60} から放射される γ 線とラジウムから放射される γ 線のおおの平均エネルギーが似ているので、大體電離測定値による兩者の比を臨床の配量に用いてよいと思ふ。と述べられている。

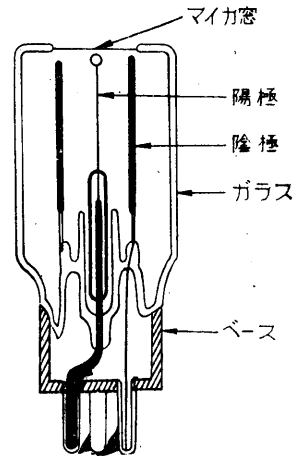
なお γ 線の Pb による吸収については、 Co^{60} とラジウムとの半價層はそれぞれ 15 mm および 13.5 mm である。 Co^{60} を扱う實驗に際して γ 線の遮蔽に必要な數値としてあげておく。しかし放射能測定に際しては線源による back-scattering, forward-scattering および自己吸収など種種の條件が加わるから、この半價層の數値から計算される數値より餘裕をもたせた厚みの Pb の遮蔽が必要である。

3. 放射能の測定

α 線、 β 線、 γ 線および X 線など放射線の検出の機構はすべて同じで、それらによつて生じたイオンによる。この中で γ 線および X 線は電磁波であるため直接にはイオンを生ずるのではなく、二次電子が電離したイオンを検出して γ 線および X 線を知る。このイオンを検出するには現在大別して二つの方法に分けられる。(1) 生じたイオン電子の電荷 e の移動によつて電極の電荷を中和する量的作用によつて測定する方法と、(2) 生じたイオンのため高電壓の極間に起る放電の回数によつて測定する方法とである。なおその他にはシンチレーションカウンタ (Scintillation Counter) もあるが、現在わが國で實用されている検出器は上記 2 方法の中にあつた。これらについて簡単に説明しておく。

(1) 初期においては箔検電器によつて測定されていたが、後にローリツェン (Lauritzen) 検電器の極の移動速度を望遠鏡によつて測定して、放射線の相對強度を知る。(2) よく知られている、ガイガーミュラー (Geiger-Müller) 計數管 (以下 G.M. 管と略稱する) がある。G.M. 管内に充したガスが到來したイオンによつて放電を起す。これをスピーカーによつてパルス數を聞いて毎分の計數をするが、計數装置 (Scaler) によつて數値を知ることでもできる。ある時間以内に連續して入つたイオンに對して分離不能となる。この時間を不感時間 (dead time) といつて、一般に 10^{-4} 秒程度である。G.M. 管には吸収されやすい β 線に對して管内に侵入しうやうに薄い數 mg/cm^2 のマイカ窓があつて (第 2 圖)、吸収されずに透過した β 粒子に對しては 1:1 のパルスを生ずる。 γ 線は G.M. 管外側に衝突して生じた陰電子

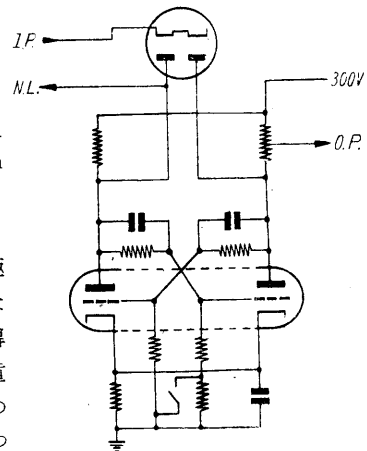
によつてパルスを生ずるため、G.M. 管を通過する γ 線の 0.1~0.4% の計數を行うに過ぎない。放射線の強度を測定する場合には、Geometry が重要である。前述の通り試料自身の吸収、散亂ならびに測定する近傍の物質による散亂、さらに測定器の試料に對する位置な



によつて測定値が相違する。だからある測定實驗の値はその測定固有の値で他の測定の場合には適用されない。また G.M. 管では自然計數 (back ground) といつて線源がなくても、宇宙線、G.M. 管の構成物質によつて毎分 20~30 パルスを生ずる。そのためパルスの計數の際に線源自身から到來する放射線の統計的變動と重複して計數値算出に面倒さを加えている。ローリツェン検電器の場合であつても、上述の原因などもあわせて自然漏洩があるために、觀測値からその影響をのぞかなくてはならない。

計數装置は、パルスを正確に計數するため、Wynn-

Williams が 2 個のサイクロンを用いて 1/2 遞減装置を最初に作り、後に Hinginbotham が 2 極管および 3 極管を用いて第 4 圖に示すような極めて動作の安定な 1/2 遞減装置を得た。これを n 段重ねると $(1/2)^n$ の遞減が可能となつてくる。最後の出



第 3 圖 Hinginbotham 回路
力パルスを機械的動作にして文字盤上の指針の動きにかえる。三極管回路を重ねて途中から feed back させ、1/10 の遞減回路が作られている⁽⁶⁾。わが國でも 1/100 計數装置として製作されているが、Hinginbotham 回路にくらべると動作がやゝ不安定である缺點があるが、數値が 10 進法であるため便利である。

4. 放射性合金の製造⁽⁷⁾⁽⁸⁾

(1) 製造方法 次の三つの方法が考えられた。

- (1) 電解抽出擴散法
- (2) 粉末冶金法
- (3) 溶融—鑄造—變形加工法

しかしいずれにせよ人荷する Co^{60} の量が僅少であり、かつ放射性物質であるために、汚染を少くし遠隔操作ができるような方法が望ましい。1950 年 8 月入手した $^{60}CoCl_2$ の水溶液の添書は下記の通りであり、第 1 回入手の量は約 20 mc であつた。

すなわち、 Co^{60} 含有水溶液は、 $CoCl_2 + 0.151 N$ acid, Total solids 10.0 mg/ml, Non volatile materials 5.0 mg/ml, Co 4.9 mg/ml, Specific activity 0.427 mc/mg, 分光分析値 Al, Cu, Fe, Mg, Mn, Ni, Si, Sr それぞれ trace または weak である。

結局上記方法および入手した Co^{60} 溶液から比較検討して第 1 の方法を採用することにした。

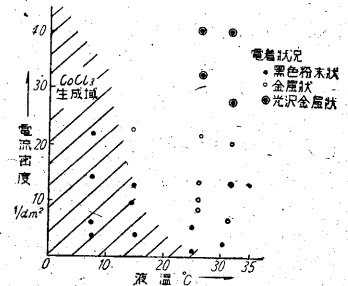
(2) 合金の選擇 醫療用に使用する合金であるためにその条件として次のようなことが考えられる。

(1) 耐蝕性が良好であること、(2) Co^{60} を含有した場合に金屬間化合物を作らずに均一相であること、(3) 醫療用に要求される放射能の強さは 0.5~2 mc であること、(4) 針に對しては強度の高くしかも延性に富んだものであつて、板に對してはその逆に柔軟性のある合金であること これらの条件をみたすものとして針に對しては Ni-Fe- Co^{60} 三元系合金が適當であると考えた。したがつてあらかじめ Ni-Fe 合金を作り針状に加工しておき、これに Co^{60} を電着させた後擴散法により合金させるのである。板に對しては、この合金でもよいが特に柔軟性を要求する場合には Pt- Co^{60} 二元系合金が好ましい。後に文献 (9) によつてわかつたのであるが、アメリカの Wilber B. Driver Co. から賣り出されている Cobanic と稱する Co^{60} を含有する放射性合金も Ni-Fe- Co^{60} 合金であつて、コバルトを 40% を含有している。しかしこれは合金を線に仕上げた後から原子爐で irradiate するのであるから放射能は自由に調節することができる。著者らが行う場合には與えられた比放射能の $Co^{60}Cl_2$ を用いて上記の諸条件を満たす合金を作らなければならないので苦心を要した。

(3) 素材の加工 電解ニッケル (64.7%) と電解鐵 (35.3%) をタンマン爐で合金に溶解し、針の場合には丸棒 8 mmφ、板の場合には 10 mm × 50 mm × 20 mm のスラブに鑄造し、鑄造組織を破壊するために水素氣流中で 1000°C × 4 hrs の焼鈍を行つた後に、壓延および線引加工を行つて、線は 0.8 mmφ、板は 0.3 mm に仕上げた。加工の途中で上記の焼鈍を 1 回行つた。線および板とも長さ 50 mm に切断し、要求される仕上げ長さ 15 mm であるが、餘分の部分は電解操作の時の握みの部分とした。

(4) 電解條件 入手した Co^{60} 水溶液はわずかに

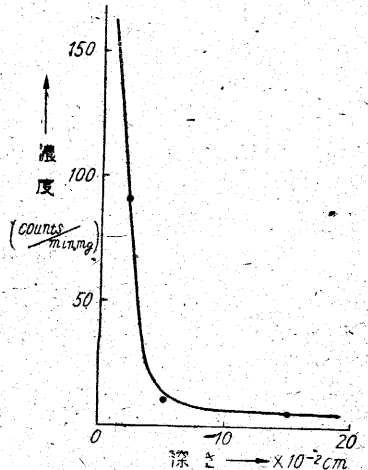
10cc であるので、電解液中に陽陰極 2 本を入れることができないので、特に白金容器を 20 mmφ × 50 mm に製作し陽極とした。こゝに Co^{60} 水溶液を入れ、電解緩衝劑として酸性弗化アンモニウム 5% を添加して電解液とした。陰極として上記素材を dil. HCl, NaOH でよく洗滌した後 Co^{60} を電着させた。この電着液が 12°C 以下ではいかなる電流密度で行つても $^{60}Co^{+++} Cl_8^{(10)}$ を生じて暗綠色を呈し、電流効率はほぼ 0 になる。液温 12°C 以上でも電流密度の低い場合には黑色粉末状の析出となり、20~30 Amp/dm² では金屬コバルトの色澤を見せ、40 Amp/dm²、液温 25~



第 4 圖 Co^{60} 電着の液温と電流密度

40°C では光澤ある析出となる (第 4 圖)。これが最適条件である。電解初期は Co^{60} の放射能に對する電流効率は數% 程度であつて、これは Co^{60} が "irradiated" であるために不純物としての異種金屬の析出が行われていると考えられる。上記電流密度で約 150 時間電流を通じた後にはじめて Co^{60} の析出が (放射能測定により) 急激に顯著になる。析出量は電解の途中ローリツェン檢電器によつて調節した。電解槽は壁厚 45 mm の Pb 製容器に入れて放射線を遮蔽し、これをそのまま恒温槽に入れた。液温および電流密度の調節は、40 cm の厚さのコンクリート壁をはさんで約 5 m 隔つた操作机に計器類をおいて行つた。

(4) 擴散焼鈍處理 所定の放射能を持つて電着を終つたものは仕上の寸法に切断し、次に水素氣流中で酸化をふせぎながらエレマ爐によつて 1000~1200°C で 10~20 時間の燒鈍を行つた。その結果表面に電着している Co^{60} は素材の針または板の内部に擴散侵入して行く。この程度の擴散處理では、表面から内部への濃度勾配がまだかなり急であり、均一濃度になつていないが、外周部の

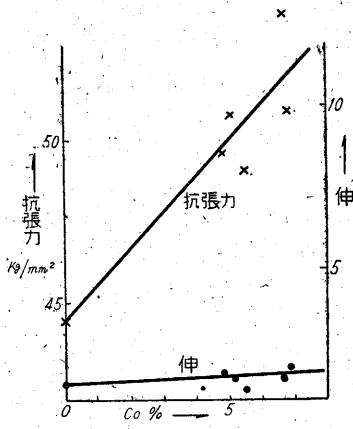


第 5 圖 Ni-Fe(64.7%) 合金中の Co^{60} の擴散

Co⁶⁰はもはや剥離するようなことはない。均一濃度にするにはさらに長時間の擴散處理を必要とするが、實際實施することが困難であるためこの程度で止めている。

これと同一の條件で Ni-Fe 合金針に Co を電着させ、1000°C×16 hrs 擴散焼鈍した場合の引張強さおよび伸びの變化を第5圖に示した。針の伸びはほとんど變化していないが、引張強さは約 43 kg/mm² から約 51 kg/mm² (6本の平均値)まで約 18%の増加を示している。これは外周部に Co が合金したことによる影響であつて、針に強靱性を與える目的をも達していることがわかる。

Co⁶⁰を含有した針を HCl と HNO₃ の混合液に浸漬して、表面から微量ずつ溶解し、その放射能を G.M. 管によつて相對的強度を測定し、Co⁶⁰の擴散を測定して第6圖の濃度曲線を得た。このように通常微量分析ではほとんど顯出不可な微量の Co の存在が顯出されて、R.I. を用いた實驗の特質ともいえる。



第6圖 Co含有による針の抗張力・伸の變化

(5) 仕上げメッキ Co⁶⁰はβ線(0.3 Mev)をも放射しており醫療には不都合であるから、これを吸収する目的とあわせて耐蝕性をさらに完全にするために金メッキを行つた。宮川博士⁽⁴⁾の實測によれば Co⁶⁰のβ線を完全に吸収する必要な Al の厚みは 80 mg/cm² である。β線の吸収能は物質の比重に比例するから Au では 11 mg/cm² となる。したがつて金メッキの厚さは 0.06 mm で充分である。しかも Au をこの厚さにメッキすることは非常に困難であつて實際には 0.04 mm 程度であつた。これを radioautograph にとつて試験した結果はほぼ醫療に差支えない程度であつた。しかし醫療に使用した結果金では軟かすぎて磨耗しやすい傾向があり、かつγ線による二次放射を最小にする意味からも、今後は硬くて耐蝕性がよく原子番號の低いクロムのメッキに代える豫定である。

5. 結 言

この研究はその完成を非常に急がれた。あらかじめ豫備實驗を行つていたが、Co⁶⁰Cl₂ を入手してから約2ヶ月でもかくも製品を完成した。その後當研究所から多額の研究費の補助を受け施設の改善を行い、今日までに

約 40 mc に相當する針と板とを國立東京第一病院と東大醫學部に提供した。

本品の醫療的効果については、宮川博士⁽⁴⁾の研究が發表されている。すなわち單純性血管腫、海綿狀血管腫および子宮癌に對して Co⁶⁰ の照射を行い、その結果は、單純性血管腫に對しては幼児に特に有効であり、効果はラジウムとほぼ同様であつた。海綿狀血管腫には例外なく奏効した。子宮癌の治療成績はラジウムと同じであるが、ラジウム針に比して細く作られるから針穿刺が非常に容易である。

R.I. を取扱う場合には人體障害を起さないように萬全の取扱注意が必要である。この問題に關しては R.I. の安全取扱法⁽¹¹⁾を詳細に述べたアメリカの National Bureau of Standard から出されたパンフレットがある。當研究所に設けた R.I. 實驗室もこれに準據して作られた未だ完成していないが semi hot (10~50 mc) の放射能も取扱えるよう設計した。

今後アメリカから Co⁶⁰ の針がかなり多量に輸入されることになつてゐるが、多分そのままのうちに醫療に供し得ないと思う。使えるように加工することが必要であらう。また Co 針の輸入が困難な場合には Co⁶⁰Cl₂ から本方法によつて針や板の供給を今後も續ける豫定である。

この研究に當つては東大中泉教授と東京第一病院宮川博士との御授助と御指導はもとより、この間のはげしい作業に勞をいとわず終始協力いただいた佐々木吉方、小林淳二の二君、またカウンターおよびスケラーの製作を御指導下さつた江口助教授の諸氏に深甚の謝意を表す次第である。この研究は東大生産技術研究所の中間工業試験費と文部省科學試験研究費によつて行われたものである。(26.10.2 受)

文 献

- (1) Myers, W. G., Application of artificially radioactive isotope in therapy, I. Cobalt⁶⁰, Am. J. Roentgenol. & Rad. Therapy 19 8. 60. 816~823.
- (2) Radioisotope for International Distribution. U.S.A.E.C
- (3) Siri, Isotopic Tracer and Nuclear Radiation.
- (4) 宮川, 田坂: 日本醫學放射線學會雜誌 11 (1951), 3. 4 號 29~34.
- (5) 山崎文男: 科學 20 (1950), 224.
- (6) Grosdorff, I.E., R.C.A. Rev. I. No. 13 (1946).
- (7) 加藤正夫: 日本醫學放射線學會雜誌 11 (1951), 3. 4 號 34
- (8) 加藤, 武谷: 日本金屬學會 昭和 26 年 4 月講演.
- (9) Mechan, J., Edward & Rosenbaum, Am. J. Roentgenol. & Rad. Therapy 1951, 65, 255~264.
- (10) Mellor, Comp. Treat. on In. Theor. Chem. Vol XIV. 653.
- (11) Safe Handling of Radioactive Isotope.

(追記) 本誌 10 月號 4 ページに掲載の本研究所の紹介記事で、“末廣賢太郎氏の奇蹟的快癒も本品を使用した成果である”とあるは入院中の末廣先生が宮川博士と Co⁶⁰ の治療効果について話しているところへ新聞記者が訪問してこれを新聞記事としたものによつたのであつて、その後宮川博士から誤報であることをうかがひましたので訂正いたします。