

하나로를 이용한 근접치료용 Ir-192 Seed의 제조

조운갑, 한현수, 박울재, 이영구, 전상수
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

시험가동중인 다목적연구용 '하나로'를 이용하여 근접치료용으로 사용되는 ^{192}Ir seed 제조실험을 하였다. '하나로'의 특성을 고려하여 제작된 조사표적용기에 표적용 Ir seed를 넣고 밀봉한 후 He 누출시험을 통과한 표적만 원자로의 HTS 조사공에서 중성자 조사시켰다. HTS 조사공의 평균 열중성자속은 측정결과 원자로출력 15 MWt일 때 $2.54 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2\cdot\text{sec}$ 였다. 5회에 걸쳐 5개의 조사표적을 사용하여 총 200개의 ^{192}Ir seed를 제조, 실험하였으며 2시간 조사후 14일간 냉각시킨 Ir seed의 γ -ray spectrum을 분석한결과 ^{192}Ir 외의 불순핵종은 검출되지 않았다. Ir seed당 방사능은 이온전리함을 사용하여 측정하였으며 방사능 측정결과 개별 ^{192}Ir seed의 방사능값은 평균 방사능값으로부터 $\pm 5\%$ 이내오차의 방사능 균일도를 갖는 것이 확인되었다.

1. 서 론

RI를 이용한 암치료는 크게 근접치료와 원격치료로 구분된다. 근접치료는 간단한 외과수술을 통하여 암조직사이에 소선원을 삽입하여 치료하는 방법이다. 이 방법은 암조직에 방사선을 직접 조사하여 선량을 높이는 반면 이웃의 정상조직에 대해서는 피폭선량을 급속히 낮출 수 있어서 치료효과를 향상시킬 수 있다. 치료용 소선원으로 사용하고 있는 핵종은 ^{226}Ra , ^{60}Co , ^{192}Ir , ^{137}Cs , ^{198}Au , ^{125}I 등이 있으나 이중 ^{192}Ir 은 적당한 반감기(74.2일)와 평균적으로 낮은 감마선 에너지등의 특성을 갖는 근접치료용으로는 이상적인 동위원소로서 삽입치료효과가 좋고 취급자의 방사선피폭량을 줄일수 있기 때문에 널리이용되고 있다.¹⁾ 국내에서는 1987년부터 동위원소실에서 TRIGA Mk-III원자로를 사용하여 ^{192}Ir 를 공급해 왔으나 1995년말에 TRIGA Mk-III원자로가 가동을 정지함에 따라 ^{192}Ir 를 비롯한 모든 동위원소는 새로이 건조된 '하나로'에서 제조,공급할 예정이다. 1995년초에 가동을 시작한 열출력 30MW의 다목적연구용 원자로인 '하나로'는 TRIGA Mk-III 원자로보다 열출력과 열중성자 밀도가 각각 15배, 10배이상 높고 표적조사가 수중에서 이루어지는 등의 특징이 있다. 이러한 '하나로'의 다양한 특성을 고려하면서 안전성을 만족시키는 조사표적을 제작하여 근접치료용으로 사용되는 ^{192}Ir seed 제조실험을 행하였다.

2. ^{192}Ir 의 핵반응 및 핵적특성

^{192}Ir 은 원자로에서 천연 Iridium을 (n, γ)반응시켜 만든다. 천연 Iridium 금속은 37.3 %의 ^{191}Ir 과 62.7 %의 ^{193}Ir 으로 구성되어 있다. $^{191}\text{Ir}(n, \gamma)^{192}\text{Ir}$ 반응에 대한 열중성자 흡수단면적은 ^{192m}Ir 생성반응의 400 barn과 ^{192}Ir 이 직접생기는 반응의 540 barn을 합하여 940 barn이다. ^{192}Ir 도 1500 barn의 높은 단면적을 가지고 열중성자를 흡수하여 ^{193}Ir 을 생성한다. ^{192}Ir 은 95.3 % 정도가 74.2일의 반감기를 가지고 β^- 붕괴를 통하여 안정동위원소인 ^{192}Pt 로 되고 4.7 % 정도의 ^{192}Ir 은 전자포획을 통하여 안정동위원소인 ^{192}Os 으로 된다. 이때 0.67 MeV(46 %)의 최대에너지를 갖는 β^- 선과

0.604, 0.468, 0.308 MeV의 에너지를 갖는 γ 선을 방출한다. 원자로에서 생성된 ^{192}Ir 은 다시 중성자를 흡수하여 ^{193}Ir 으로 되며 이 때 ^{192}Ir 의 생성수율은 다음식으로 주어진다.²⁾

$$A = \frac{N\sigma\phi}{3.7 \times 10^{10} (1 + (\sigma' - \sigma)\phi/\lambda)} (e^{-\lambda t} - e^{-(\lambda + \sigma)\phi t})$$

- 여기에서
- A : ^{192}Ir 의 비방사능(Ci)
 - N : g당 표적핵의 수
 - σ : ^{191}Ir 의 열중성자 포획단면적(940 barns)
 - σ' : ^{192}Ir 의 열중성자 포획단면적(1500 barns)
 - ϕ : 열중성자속 밀도 ($\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$)
 - t : 조사시간(sec)
 - λ : ^{192}Ir 의 붕괴상수 이다.

천연 Iridium은 62.7%의 ^{193}Ir 을 포함하고 있으므로 약 110 barn의 중성자흡수단면적을 가지고 $^{193}\text{Ir}(n, \gamma)^{194}\text{Ir}$ 반응에 의해 ^{194}Ir 을 생성한다. ^{194}Ir 은 안정상태로 되기위하여 1.92, 2.25 MeV 등의 매우높은 에너지를 갖는 β^- 선을 방출하면서 붕괴하기 때문에 취급과 차폐에 많은 주의가 요구되는 핵종이다.³⁾ ^{192}Ir seed를 제조하기 위해서는 ^{194}Ir 의 방사능을 제거하기위해 충분한 기간동안 냉각시키는 것이 필요하다. Iridium은 열중성자 흡수단면적이 높아서 중성자 자기차폐효과를(neutron self-shielding effect)을 고려하여야 하지만 이번 실험에서 사용된 Ir seed는 직경 0.3 mm, 길이 2.8 mm의 크기로서 중성자 자기차폐효과인자는 계산결과 약 0.9918정도로 이번실험에서는 무시할만한 양이다.⁴⁾

3. 실험

3.1 조사표적 제작

원자로에서 중성자조사할 Ir seed는 길이 3 mm, 외경 0.5 mm 의 크기로 직경 0.3 mm,길이 2.8 mm의 원통형 Ir 금속표면을 0.1 mm 두께의 백금을 입힌 것으로 Iridium만의 무게는 약 4.45 mg정도이다. 이 Ir seed를 원자로에서 중성자 조사하기 위하여 Al-1050으로 제작한 내부표적용기, 외부표적용기를 사용하였다(그림 1). 이 내부표적용기에 Ir seed를 10개, 20개, 40개씩 넣고 압접하여 밀봉한 후 에틸렌글리콜을 사용한 기포누설시험을하여 통과한 내부표적용기는 HTS용 외부표적용기에 2개씩 넣고 He 분위기에서 TIG용접하였다. 용접된 조사표적은 He 누출률을 측정하여 He 누출이 1×10^{-8} atm.cc/sec이하의 밀봉기준을 통과한 표적만을 원자로에서 중성자 조사시켰다.⁵⁾

3.2 중성자 조사

가. HTS 조사공의 특성

완성된 조사표적의 중성자 조사는 '하나로'의 HTS(Hydraulic Transfer System)조사공을 사용하였다. HTS는 펌프를 이용하여 원자로수조물로 조사표적을 이송하는 장치이며 HTS 조사공에는 조사리그가 설치되어있다. 이 조사리그는 알루미늄으로 제작된 2중관(외관두께 : 5.2 mm, 내관두께 : 3.6 mm)의 구조로 되어있으며 표적조사중에 발생하는 열은 조사공과 리그외벽사이의 간격으로 원자로수조내의 냉각수가 자연순환되어 제거되도록 설계되어있다.⁶⁾

나. HTS 조사공의 열중성자속 측정

조사표적이 중성자조사되는 지점의 열중성자속을 측정하기 위하여 순도 99.9845 %의

Au-wire, Au가 0.1124 % 섞인 Au-Al wire, Fe-wire등을 사용하여 HTS조사공의 열중성자속을 측정하였다. Au-wire 5 mg, Fe-wire 1.5 mg, Au-Al wire 10.0 mg을 각각알루미늄 은박지에 싸서 외부표적용기내 내부표적용기 사이의 겹친부분에 넣고 Ir seed와 함께 조사시켰다(그림 1). 조사시간은 Au-wire 5 mg, Fe-wire 1.5 mg에 대하여 각각 90분, 150분, Au-Al wire 10.0 mg에 대하여 260분으로 하였고 조사된 시료를 30일이상 냉각시킨 후 반도체검출기를 부착한 감마선 다중 파고분석기(Multi-Channel Analyzer)로 Fe-59, Au-198의 γ 선 스펙트럼을 측정하여 이 측정치로부터 열중성자속을 계산하였다(표 1).

다. 표적의 방사화

조사된 ^{192}Ir seed의 방사능은 사용하는 시점에서 요구되는 방사능보다 충분히 높게 방사화시켜야 한다. 일반적으로 시술에 요구되는 방사능은 1-2 mCi/seed 이므로 이번 실험에서 측정된 열중성자속과 하나로의 운전출력등을 기준으로 예상생성방사능을 계산한 결과에 의하여 중성자 조사시간을 결정했다. 하나로의 HTS 조사공을 이용하여 5회에 걸쳐 Ir seed 20개 표적 2개를 각각 90분(표적 1), 150분간(표적 2), 40개 표적 2개를 각각 130분(표적 3), 200분간(표적 4), 80개 표적 1개를 260분간(표적 5) 조사시켜 총 200개의 Ir seed 를 방사화시켰다. 이렇게 방사화된 표적을 ^{194}Ir 의 방사능을 제거하기위하여 조사표적 1번부터 5번까지 각각 12일,12일,13일,11일,17일 정도 냉각시킨 후 방사능을 측정하였다.

3.3 방사능 측정

미리 보정된 CRC-12 이온전리함을 ^{192}Ir 방사능측정이 가능하도록 스위치를 선택한 후 바이알에 조사된 Ir seed를 넣어 이온전리함에서 시간간격을 두고 각각의 방사능을 측정하였다. 조사표적 1번부터 4번까지는 개별 Ir seed의 방사능을 모두 측정하였고 조사표적 5번의 80개의 Ir seed는 내부용기 상, 하에서 각기 10개씩만 개별방사능을 측정하고 나머지는 10개씩 측정하여 평균값을 구하였다. 방사능값의 편차는 개별 방사능값에서 평균방사능을 뺀 값으로 평균방사능에 대한 백분율로 나타내었다(표 2).

3.4 품질관리

HTS 조사공에서 2시간동안 조사시킨 Ir seed를 14일간 냉각시킨 후 HPGe(Li) detector를 사용하여 4000초간 스펙트럼을 측정하여 불순핵종의 함량을 분석하였다. 14일간 냉각시킨 Ir seed의 방사능도 HPGe(Li) detector에 근접하여 측정하기에는 방사능이 너무 높으므로 계측기 dead time 이 2 % 이하가 되도록 Ir seed와 HPGe(Li) detector를 1.5 m정도의 거리를 두고 수평으로 배치한 후 스펙트럼을 구하였다(그림 2).

4. 실험결과 및 토의

HTS의 열중성자속 측정 : Au를 90분, 150분, 260분 조사시킨 시료로부터 평균 열중성자속 2.54×10^{13} n/cm².sec을 얻었으며 ^{192}Ir 핵종생성 수율계산을 위한 열중성자속은 이 값을 사용하였다. Fe를 90분, 150분 조사시킨 시료로부터는 평균 열중성자속 3.01×10^{13} n/cm².sec을 얻었으나 Fe-58은 중성자 흡수단면적이 1.28 barn이고 동위원소 존재비도 0.29 %로 Au-197의 중성자흡수 단면적 98.8 barn, 동위원소 존재비 100 %에 비해 너무낮아 중성자흡수단면적이 940 barn인 ^{192}Ir 생산에는 Au-197 시료를 사용하여 얻은 열중성자속이 보다 신뢰성이 있는 것으로 판단되었다.

조사시간의 결정 : 사용되는 시점에서 요구되는 방사능량이 1-2 mCi/seed이고 ^{194}Ir 등 불순핵종의 방사능을 제거하기 위해 10일이상의 냉각기간을 거쳐야함을 고려할 때 계산결과에의한 조사시간은 사용자의 요구방사능량에 따라 1-3시간 범위가 타당한 것으로 나타났다. 이는 HTS 조사공에서 '하나로' 운전출력 15 MWt을 기준한 값으로 '하나로'의 운전출력 변동에 따라 조사시간은 증감될 수 있다.

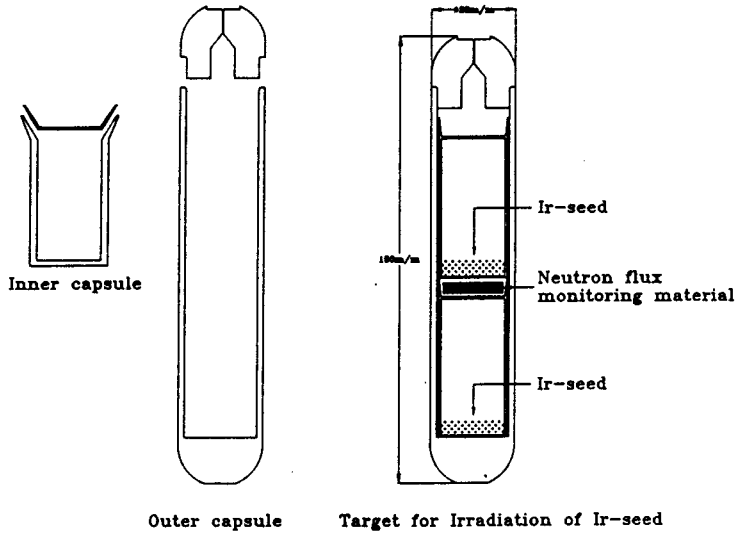


그림 1. Iridium-seed 제조를 위한 '하나로' HTS 조사공용 표적

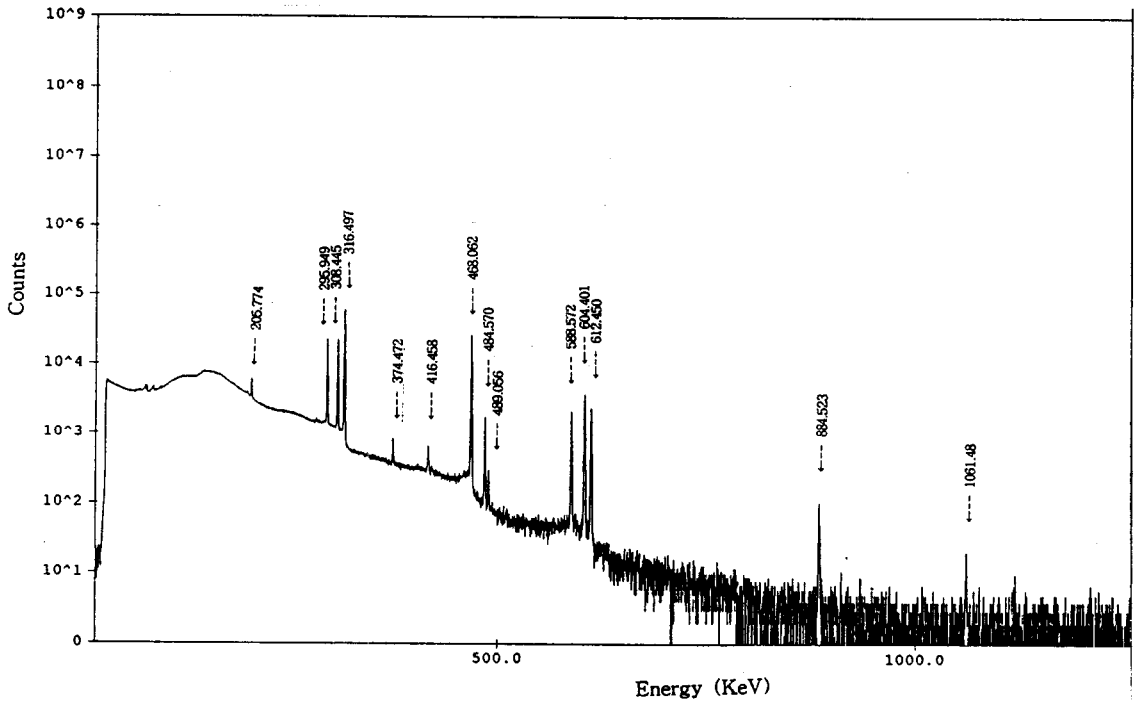


그림 2. 제조된 ^{192}Ir -seed의 γ -ray spectrum (2시간 조사, 14일 냉각 후 측정)

표 1. HTS의 열중성자속 측정

시험표적	무게 (mg)	조사시간 (분)	열중성자속 (n/cm ² .sec)	평균열중성자속 (n/cm ² .sec)
Au-wire	5.0	90	2.68 x 10 ¹³	2.543 x 10 ¹³
Au-wire	5.0	150	2.52 x 10 ¹³	
Au-Al wire	10.0	260	2.43 x 10 ¹³	
Fe-wire	1.5	90	3.00 x 10 ¹³	3.005 x 10 ¹³
Fe-wire	1.5	150	3.01 x 10 ¹³	

표 2. HANARO에서의 Ir-Seed 시험생산

시험표적	조사시간(분)	냉각기간(일)	조사시료수	평균 방사능 (mCi)	편 차 (mCi, %)
1	90	12	상 10	1.25	+0.05/-0.05 (+4.0/-4.0)
			하 10	1.30	+0.02/-0.02 (+1.5/-1.5)
2	150	12	상 10	2.24	+0.08/-0.07 (+3.6/-3.1)
			하 10	2.08	+0.04/-0.02 (+1.9/-0.9)
3	130	13	상 20	1.70	+0.04/-0.05 (+2.4/-2.9)
			하 20	1.57	+0.05/-0.07 (+3.2/-4.4)
4	200	11	상 20	2.33	+0.05/-0.10 (+2.1/-4.3)
			하 20	2.28	+0.07/-0.08 (+3.1/-3.5)
5	260	17	상 40	3.09	+0.09/-0.06 (+2.9/-1.9)
			하 40	3.04	+0.09/-0.03 (+2.9/-1.0)

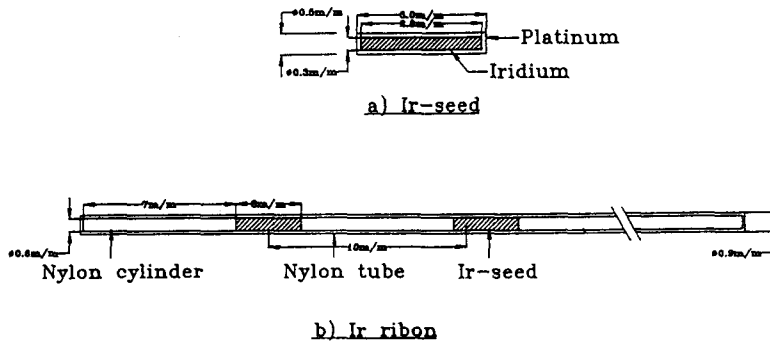


그림 3. Iridium-seed와 Iridium-seed ribbon

Ir-192 seed 의 방사능 측정 : ^{192}Ir seed는 근접치료를 위한 의료용으로 사용됨으로 사용하는 시점에서 개별 ^{192}Ir seed의 방사능이 최대한 균일할 것이 요구된다. 이번실험에서 제조한 ^{192}Ir seed의 방사능은 측정결과 표 2.에서 보는 것과 같이 개별 ^{192}Ir seed의 방사능이 평균방사능 값으로부터 $\pm 5\%$ 이내의 오차를 유지하는 방사능 균일도를 갖는 것이 확인되었다.

품질관리 : Ir seed를 HTS 조사공에서 2시간동안 조사시켰을 때 ^{192}Ir 와 ^{194}Ir 의 생성방사능은 계산에 의하면 각각 2.569 mCi, 50.602 mCi로 ^{194}Ir 의 방사능이 ^{192}Ir 방사능의 약 19.7배 정도이다. 이를 10일동안 냉각시키면 ^{192}Ir 의 방사능은 2.339 mCi, ^{194}Ir 의 방사능은 3.572×10^{-3} mCi로서 ^{194}Ir 의 방사능이 ^{192}Ir 의 방사능의 약 0.153 %로 줄어든다. 이 결과로부터 이번실험에서 제조된 Ir seed는 방사능을 측정하기전에 10일 이상씩의 냉각기간을 가졌으며 실제 사용자에게 Ir seed를 공급할 때에는 2주일 정도의 냉각기간을 가지면 ^{194}Ir 의 방사능으로 인한 문제점은 없을 것으로 판단된다. HTS 조사공에서 2시간동안 조사시킨 Ir seed를 14일간 냉각시킨 후 HPGe(Li) detector를 사용하여 4000초간 스펙트럼을 측정한 결과 대표적인 불순핵종인 ^{194}Ir 의 γ 선은 나타나지 않았다(그림 2).

Ir seed의 제조/공급 : 이번실험에서 제조된 200개의 ^{192}Ir seed중 일부를 실제로 병원에 공급하여 환자치료에 이용되도록 하였다. 병원에 공급할 때는 내경 0.6 mm, 외경 0.9 mm의 나일론관에 원하는 방사능을 갖는 ^{192}Ir seed를 seed 중심부에서 다음 seed중심부까지의 거리를 1cm로하여 배열하고 seed사이에는 나일론줄을 넣어서 간격을 유지한 후 리본형태로 공급한다(그림 3). ^{192}Ir seed는 리본형태 이외에도 다양하게 사용할 수 있으며 '하나로'에서 대량생산공급이 가능한 ^{192}Ir seed의 방사능은 1-50 mCi/seed 정도로 판단된다.

5. 결 론

'하나로'를 이용하여 근접치료용으로 사용되는 ^{192}Ir seed를 제조하였다. HTS 조사공의 열중성 자속은 Au를 사용한 측정결과가 ^{192}Ir 방사화의 기준값으로 타당함을 보였으며 열출력 15 MWt에서 2.54×10^{13} n/cm².sec 이었다. '하나로'의 HTS 조사공을 사용한 ^{192}Ir seed 제조시 적정조사시간은 사용시점에서의 요구 방사능량을 1-2 mCi로 가정할 때 1-3시간 정도였다. 조사된 Ir seed는 ^{192}Ir 핵종에 대한 ^{194}Ir 불순핵종의 비율 0.2 % 이내로 유지하기 위하여 10일 이상의 냉각기간이 필요하다. 제조된 ^{192}Ir seed의 방사능은 평균 방사능값으로부터 $\pm 5\%$ 이내오차의 방사능 균일도를 유지하였으며 최종제품의 품질관리결과 불순핵종인 ^{194}Ir 는 검출되지 않았다. 이번 실험을 통하여 '하나로'를 이용하여 근접치료용으로 사용되는 ^{192}Ir seed를 안정적으로, 균일한 방사능을 유지하면서 공급할 수 있음을 확인하였으며 '하나로'를 이용한 ^{192}Ir seed 제조방법을 확립하였다.

참고문헌

1. Roger A. Potish et al., "Technological basis of radiation therapy", Chap. 6, Lea & Febiger(1984)
2. Hisashi Katoh et al., "Production of radioisotopic gamma radiation sources in JAERI", JAERI/M-8810(1980)
3. Phil Larabie, "Iridium-192 Production", Materials Evaluation, 1022-1026, September(1992)
4. R.E. Nisle, Nucleonics, 18, No.3, 86(1960)
5. 김재륙 외 13인, "방사성동위원소 생산 및 이용연구", Chap. 3, KAERI/RR-1362/93(1994)
6. 한국원자력연구소, "하나로 안전성분석보고서", Vol III, Chap. 11-2, KAERI/TR-710/96(1996)