'98 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

강내 조사용 ^{192}Ir 치료선원 제조

조운갑, 한현수, 박춘득, 홍순복, 최태진*
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150
* 계명대학교
대구광역시 중구 동산동 194

요 약

'하나로'를 이용하여 강내 조사용으로 사용되는 ^{192}Ir 선원의 제조법을 확립하였다. HTS (Hydraulic Transfer System)조사공에서 48시간 조사한 φ2.5 mm x t 0.25 mm의 원판형 Ir 표적 10장을 쌓아서 방사능이 1.012 Ci인 선원을 시험제조하였다. 선원 제작에 관련된 생성방사능, 중성자 자기흡수효과 인자를 이론적으로 계산하여 시험제조에 사용하였고 γ선 자기흡수효과는 실험으로 측정하여 암 치료에 요구되는 10-20 Ci 선원의 상용생산에 필요한 자료를 확보하였다. 치료용 소선원 제작에 관련된 표적제작, 중성자조사, 방사능 측정, 선원조립, 밀봉용접, 품질관리 등의 제작기술을 확립하고 선원의 안전성은 밀봉시험, 표면오염검사 등을 수행하여 확인하였다. 제조된 선원은 실제 사용되는 조사장치에 장착하여 기능시험을 수행할 것이다. 이번 실험을 통하여 강내 조사용으로 사용되는 10-20 Ci 방사능의 ^{192}Ir 선원을 안정적으로 공급할 수 있음을 확인하였으며 하나로를 이용하여 캡슐 직경 4 mm의 치료용 소선원 제작기술을 확립하였다. 개발된 ^{192}Ir 강내 조사용 선원은 국내 5-6개 병원에 공급할 것이며 이 기술을 바탕으로 직경 1.1-1.6 mm의 강내 조사용 선원도 개발할 예정이다.

1. 서 론

방사성선원을 이용한 암치료는 방사성물질의 발견이후 유럽을 중심으로 꾸준히 활용되어왔으며, 최근 원자로를 이용한 고비방사능 선원이 생산되어 선원의 원격조종에 의한 방사선치료가 활발하게 이루어지고 있다. 방사선원을 이용한 종양치료는 체외조사, 강내조사 및 체내조사로 구분된다. 강내조사는 간단한 외과수술이나 강내를 통하여 종양내에 소선원을 직접 삽입하여 치료하는 방법으로 종양주위의 정상조직의 손상을 피하고 종양부위에 다량의 방사선 조사가 가능하므로 치료효과가 높다.

치료용 소선원으로 사용하고 있는 핵종은 ^{60}Co, ^{192}Ir, ^{137}Cs 등이 있으나 이중 ^{192}Ir 은 사용하기에 적당한 반감기, 평균적으로 낮은 감마선 에너지, 높은 비방사능 등의 특성으로 인해 치료효과가 좋기 때문에 소형선원으로 높은 선량을 방출할 수 있는 근접치료용 동위원소로서 널리 이용되고 있다.[1] 국내에서는 한국원자력연구소에서 근접치료용 ^{192}Ir-seed를 개발하여 1987년 이후로 TRIGA Mk-III원자로와 하나로를 이용하여 공급하고 있다.[2] 이 기술을 바탕으로 '하나로'에서 강내 조사용 선원을 개발하였다.

국내에서 하나로가 가동됨에 따라 방사성선원 생산이 활발해지고 의료용 선원공급도 확대될 것이며 현재까지는 주로 저선량율에 의한 강내 선원에 대한 연구가 있었으나, 앞으로 미세혈관 유도아프리케이터에 의한 소선원이 방사선치료에 많이 활용될 전망이므로 고선량율의 소선원 개발이 필요하다.

2. 이론

2.1. 방사능 생성량 계산

$^{191}Ir(n,\gamma)^{192}Ir$ 반응에대한 열중성자 흡수단면적은 ^{192m}Ir 생성반응의 400 barn과 ^{192}Ir이 직접생기는 반응의 540 barn을 합하여 940 barn이다. 원자로에서 생성된 ^{192}Ir은 다시 1000 barn의 높은 단면적을 가지고 열중성자를 흡수하여 ^{193}Ir(반감기 74.2일)으로 되며 이 때 ^{192}Ir의 생성수율은 다음 식으로 주어진다.[3)]

$$A = \frac{N\sigma\varphi}{3.7\times 10^{10}(1+(\sigma'-\sigma)\varphi/\lambda)}(\exp(-\sigma\varphi t)-\exp(-(\lambda+\sigma'\varphi)t)) \quad (2\text{-}1)$$

여기에서
- A : ^{192}Ir의 비방사능(Ci/g)
- N : g당 표적핵의 수
- σ : ^{191}Ir 의 열중성자 포획단면적(940 barns)
- σ' : ^{192}Ir의 열중성자 포획단면적(1000 barns)
- φ : 열중성자속 밀도 ($cm^{-2}\ s^{-1}$)
- t : 조사시간(sec)
- λ : ^{192}Ir의 붕괴상수 이다.

천연 Iridium은 62.7%의 ^{193}Ir을 포함하고 있으므로 약 110 barn의 중성자흡수단면적을 가지고 $^{193}Ir(n,\gamma)^{194}Ir$ 반응에 의해 ^{194}Ir(반감기 19.2시간)을 생성한다. ^{192}Ir 선원을 제조하기 위해서는 불순핵종인 ^{194}Ir의 방사능을 제거하기 위해 충분한 기간동안 냉각시켜야 한다.

2.2. 중성자자기흡수효과

표적핵종의 중성자 방사화단면적이 매우 큰 경우에는 표적자체의 중성자 자기흡수효과로 인해 생성방사능이 줄어 들게된다. 따라서 ^{192}Ir의 정확한 생성방사능을 얻기 위해서는 식 (2-1)에 의해 구해진 방사능은 중성자 자기흡수효과에 의해서 보정 되어야 한다. 이러한 중성자 자기흡수효과로 인한 영향은 표적의 모양과 체적에 따라 크게 달라지며 Nisle이 사용한 아래 근사식[4)]으로 중성자 자기흡수인자 f를 구할 수 있다.

$$f = \frac{1}{2\varepsilon}[1-\exp(-2\varepsilon)] \quad (2\text{-}2)$$

$$\varepsilon = \frac{2N\sigma V}{S} \quad (2\text{-}3)$$

여기에서
- f : 중성자 자기흡수인자
- N : 원자밀도(원자수/cm^3)
- σ: 흡수단면적(barn)
- V : 표적부피(cm^3)
- S : 표적의 표면적(cm^2)

3. 제작 및 실험

3.1 조사표적 제작

원판형 Ir 표적(φ2.5 mm × t 0.25 mm)는 외국의 제조회사에 주문하여 구입하였다. 표적지지대는 원판형 Ir 표적을 일정한 간격으로 조사용기 안에 고정, 배열하기 위한 지지체로 Fig. 1과 같고 Ir 표적과 알루미늄 spacer를 번갈아 끼워서 중성자 자기흡수효과를 줄이고 조사 후 취급하기 편리하도록 제작하였다. 조사용기는 표적물질을 원자로 조사공에 투입하여 고정할 수 있는 용기로 균일하게 중성자조사가 이루어질 수 있도록 내부에 원판형 Ir 표적이 장전된 표적지지대를 넣고 밀봉하여 제작하였다(Fig. 1). 표적으로 사용되는 원판형 Ir 표적은 규격을 측정하고 비금속성 망치로 두드려 평탄하게 하여 세척한 후 건조시키고, Al spacer도 규격을 측정하여 세척한다. 이렇게 준비된 Ir 표적과 Al spacer를 표적지지대에 교대로 장전한 후 알루미늄박으로 포장한다. 이 지지대를 HTS용 내부표적용기에 넣고 압접하여 밀봉한 후 기포누설시험을 실시하여 통과한 것 만 HTS용 외부표적용기에 넣고 He 분위기에서 TIG용접하였다. 용접된 조사표적은 He 누출율을 측정하여 He 누출이 1 x 10^{-8} atm.cc/sec이하의 밀봉기준을 통과한 표적만을 사용한다.[5]

3.2. 표적의 중성자 조사

일반적으로 사용되는 강내조사용 ^{192}Ir 방사능은 10-20 Ci 이나 시험용 선원은 1-2 Ci를 생산하기로 하고 생성방사능식(2-1식)을 사용하여 중성자 자기흡수인자 등을 고려하여 중성자 조사시간을 결정했다. 27.6mg인 원판형 Ir 표적을 하나로의 HTS 조사공(열중성자 속은 3.39 x 10^{13} n/cm^2/sec, 출력 20 MW)에서 48시간 조사시키면 조사종료시점(EOB : End of Bombardment)에서 표적당 203 mCi 정도의 방사능을 얻을 수 있어서 시험선원을 제조하기 위한 타당한 조사시간을 48시간으로 하였으며 총 12개의 원판형 Ir 표적을 조사시켰다.

3.3 방사능 및 γ선 자기흡수효과 측정

중성자 조사된 원판형 Ir 표적의 방사능 측정은 CRC-35R 이온전리함(Capintec)을 사용하였다. 이온전리함의 교정을 위해서는 Cs-137 교정용선원을 사용하였다. 중성자 방사화된 12개의 원판형 Ir 표적 각각의 방사능을 측정한 후 평균값을 구하여 계산에 의해서 예측한 생성방사능과 비교하였다. ^{192}Ir로부터 방출되는 γ선의 에너지는 400 KeV 정도로 비교적 낮은 반면에 iridium의 밀도는 높기 때문에 ^{192}Ir 표적에서 방출되는 γ선의 일부분은 표적 자체에서 일부 흡수되고 나머지만 외부로 방출되는 γ선 자기흡수효과가 나타난다. ^{192}Ir 방사선원의 실제적인 사용을 위해서는 이 γ선 자기흡수효과를 고려하여 선원을 제조해야만 한다. γ선의 자기흡수효과를 구하기 위하여 두께 2.15 mm의 SUS 캡슐에 원판형 Ir 표적을 한 장씩 쌓아가면서 방사능의 변화를 측정하였다. 이 방법으로 Ir 표적자체에 의해서 흡수되는 γ선의 자기흡수효과의 보정인자를 구할 수 있었다.

3.4. 선원 설계

선원의 크기 및 캡슐 구조 : 선원제조기술의 한계로 인하여 강내 조사용 선원의 크기를 φ2.5 mm x t 2.5 mm 의 원주형으로 하고 선원캡슐의 크기는 φ4.0 mm x L 5 mm 로 설계하였다. 선원캡슐의 앞부분은 반구로 내부 반경 1.0 mm 과 외부 반경 2.0 mm 로 구성되어 있으며, 조직선량에 영향을 미치는 선원캡슐의 두께는 0.7 mm로 용기벽의 어느 방향에서나 동일한 두께를 유지하여 선량분포가 등방성을 이룰 수 있도록 설계하였다.

선원의 방사능: 원격 강내조사는 외래 통원치료를 위하여 개발되므로 선량률은 분당 0.2 Gy이상 고선량율이 요구되어 ^{60}Co 선원 대체용으로 국내생산이 가능한 ^{192}Ir 선원을 사용할 경우 10-20 Ci 정도가 타당하다.

선원 재료 : 캡슐 및 연결고리 SUS 316으로 제작하였고 연결 스프링 부분은 탄성유지를 위하여 SUS 304를 사용하였다.

선원의 조립 및 연결 : 전체적인 구성은 캡슐, 연결고리, 연결 스프링으로 되어 있으며 Fig. 2와 같다. 선원캡슐과 이송케이블의 연결부위는 φ0.6 mm 의 SUS 304를 이용하여 외경 3.7 mm 스프링이 연결 홈에 나사식으로 삽입 연결되어 선원이송 중 풀림을 방지하도록 하였고 이송케이블과 연결고리도 동일한 방법을 사용하였다. 연결고리에 직경 1.4 mm의 수고리를 선원운송 장비의 암고리로 연결하여 유도관(내경 5 mm)내에서는 이송 및 이탈이 될 수 없도록 고안하였다.

3.5 선원 조립

핫셀 밖에서 각 부품의 칫수를 확인하고 분리되어 있는 연결고리와 스프링을 반 시계 방향으로 돌려 연결한다. 캡슐을 용접장비에 수평으로 고정하고 중성자 조사된 원판형 Ir 표적을 저장용기로부터 인출하여 진공 흡입장치를 이용하여 이온전리함에서 방사능을 측정한 후 캡슐의 안쪽에 쌓는다. 이때 점검용 핀을 원판 투입구에 삽입하여 원판이 정상적으로 장전되었는가를 확인한다. 용접하기 위해 캡슐이 수평으로 유지되게 고정하고 뚜껑을 덮은 후 회전시켜 캡슐이 정 위치에 놓였는지 확인한다. TIG 용접기에 전원을 넣고 용접조건에 맞추어 용접한 후 용접부위를 육안으로 검사한다. 오염검사가 끝난 캡슐을 나사부분이 위로 향하도록 용접 장비에 고정시킨 후 연결고리가 부착된 assembly의 spring 끝 부분을 나사부분 위에 올려 밀착시킨 후 선원 고정용 장비를 반시계 방향으로 회전시키면서 아래 방향으로 눌러 주면 스프링은 캡슐의 나사와 결합되어 조립이 완성된다. 조립이 완성되면 용접장치로부터 분리하여 각각의 연결 부분이 완전히 결합되었는지 육안으로 확인한다.

3.5 품질관리

제작된 선원 부품의 규격은 캘리퍼스로 측정하였다. 밀봉이 완료된 방사선원의 표면을 에탄올에 적신 Whatman paper No.10으로 완전히 닦아서 HPGe Detector(Oxford)가 연결된 다중파고분석기로 방사능을 측정하여 방사능누출 허용기준인 200 Bq이하인지를 검사하였다.[6] 표면 오염검사가 끝난 선원을 ethylene glycol이 채워진 진공발생용 플라스크에 넣고 뚜껑을 덮은 후 100 mmHg로 감압시켜 선원 표면에서의 기포 발생여부로 밀봉시험을 수행하였다.

4. 실험결과 및 토의

최종 제조된 선원의 방사능은 원자로의 가동 상황, 조사공 위치, 중성자 자기흡수효과 등으로 인해 원자로에서의 생성량에 변화가 있으며 제품 조립시에도 사용되는 표적의 수, 표적자체의 γ 선 자기흡수효과 및 제품캡슐의 차폐 등을 고려하여 선원을 제조하여야 한다. 시험용 선원 제조 실험에서는 원판형 Ir 표적당 200 mCi 정도의 방사능을 얻기 위하여 하나로의 HTS 조사공을 이용하여 20 MW 출력에서 48시간동안 조사시켰다. 측정된 원판형 Ir 표적의 평균 방사능은 209.4 mCi로서 계산에 의해 구한 값 203 mCi와 비교적 잘 일치하여 계산에 의하여 생성 방사능 값을 비교적 정확히 예측할 수 있음을 알 수 있었다. 원판형 Ir 표적 각각의 개별방사능 값은 평균방사능 209.4 mCi부터 ±5 % 이내오차의 방사능 균일도를 보여주었다. 원판형 Ir 표적(φ2.5 mm x t 0.25 mm) 10개를 포개어 원주형의 선원(φ2.5 mm x t 2.5 mm)을 만들었을 경우 γ 선 자기흡수효

과를 알아보기 위하여 원판형 Ir 표적 각각의 방사능을 측정한 다음 1장씩 쌓아가면서 방사능을 측정한 결과를 Fig. 3에 나타내었다. 10장의 원판형 Ir 표적을 포개어 만든 원주형 선원의 방사능을 측정한 결과 개별 표적이 갖는 방사능을 합한 값의 73 %였다. 이 결과로부터 10개의 원판형 Ir 표적을 쌓아서 최종 제품인 원주형 선원을 제작할 때의 γ 선 자기흡수효과를 정량적으로 확인할 수 있었으며 선원생산에 γ 선의 자기흡수효과의 보정인자를 활용할 수 있을 것이다. 강내 조사용 선원제조에 사용된 원판형 Ir 표적(φ2.5 mm x t 0.25 mm)에 대한 중성자 자기흡수효과에 대한 계산값은 f = 0.624 이고 원주형의 Ir 표적(φ2.5 mm x t 2.5 mm)을 사용할 경우는 f = 0.239 이다. 즉, 같은 형태 및 크기의 선원을 제조할 때 얇은 원판형의 Ir 표적을 여러 장 포개는 방법으로 선원을 제조하면 최종 제품의 비방사능을 크게 높일 수 있다. 선원의 방사능 누출검사에서 밀봉시험 조건에서는 선원표면에서 기포가 발생되지 않아 10^{-6}cc/sec이상의 누출구멍이 없는 것으로 확인되었다. 표면오염 측정 결과 ^{192}Ir의 선원의 누출 방사능은 31.4 Bq 정도로 의료용 제품에의 사용허가기준인 200 Bq이하로서 선원의 안전성을 확인할 수 있었다.

5. 결 론

하나로를 이용하여 강내 조사용으로 사용되는 ^{192}Ir 선원을 시험 제조하였다. 사용된 선원은 HTS 조사공에서 48시간 조사한 10개의 디스크로 제조하였고 이온전리함에서 측정한 방사능은 1.012 Ci 이었다. 시험선원 제조과정에서 표적의 중성자 자기흡수와 감마선 자기흡수효과에 의한 방사능 감쇠율을 측정함으로서 상용생산에 대비한 기본자료를 확보하였고 이 것을 바탕으로 중성자 조사기간을 조절하여 ± 5 % 이내의 오차로서 사용자가 요구하는 10-20 Ci 선원을 일상 제조할 수 있음을 확인하였다. 선원의 안전성은 밀봉시험, 표면오염검사 등을 통해 확인되었고 앞으로 실제 사용되는 조사장치에 장착하여 기능시험을 수행할 것이다. 이번 실험을 통하여 강내 조사용으로 사용되는 10-20 Ci 방사능의 ^{192}Ir선원을 안정적으로 공급할 수 있음을 확인하였으며 하나로를 이용하여 캡슐 직경 4mm의 치료용 소선원 제작기술을 확립하였다. 앞으로 제작될 ^{192}Ir 강내 조사 선원은 오래된 ^{60}Co 대체선원으로 국내 5-6개 병원에 공급할 것이며 개발된 기술을 바탕으로 직경 1.1-1.6 mm 의 치료용 선원도 개발할 예정이다.

참고문헌

1. Roger A. Potish et al., "Technological basis of radiation therapy", Chap. 6, Lea & Febiger(1984)
2. 조운갑 외 4인, "하나로를 이용한 근접치료용 Ir-192 seed의 제조", 본학회 '97 춘계학술발표회 논문집(II), p 373, (1997)
3. Hisashi Katoh et al., "Production of Radioisotopic Gamma Radiation Sources in JAERI", JAERI/M-8810(1980)
4. R.G. Nisle, Nucleonics, 18, No.3, 86(1960)
5. 김재록 외 13인, "방사성동위원소 생산 및 이용연구", Chap. 3, KAERI/RR-1362/93(1994)
6. ANSI, American National Standard for Leak-Testing Radioactive Brachytherapy Sources, N44.2-1973 (1973)

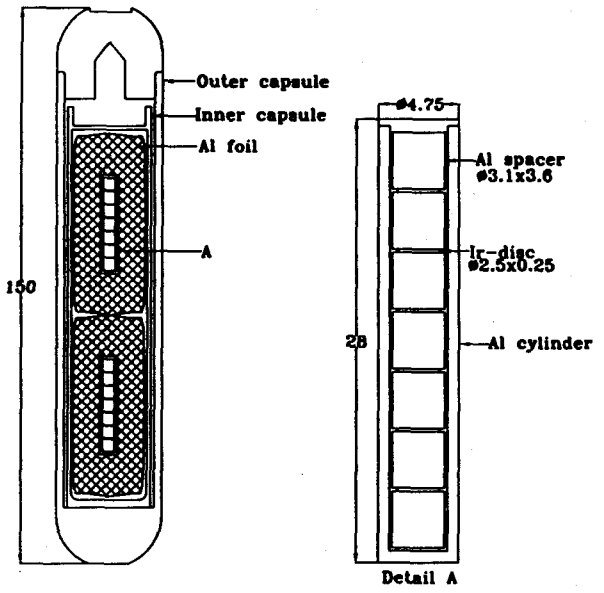

Fig. 1. Schematic drawing of irradiation target

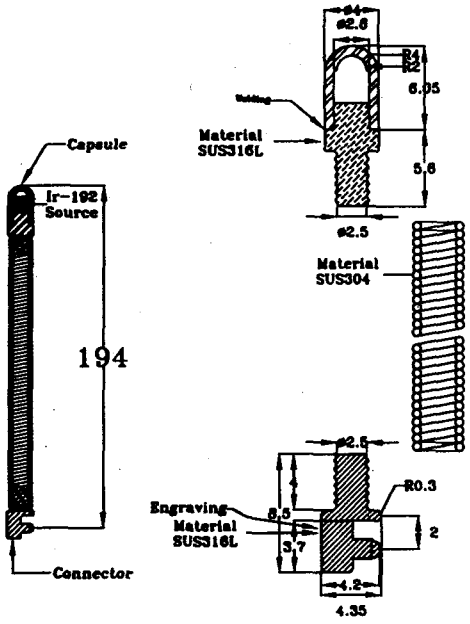

Fig. 2. Drawing of Ir-192 source for RALS

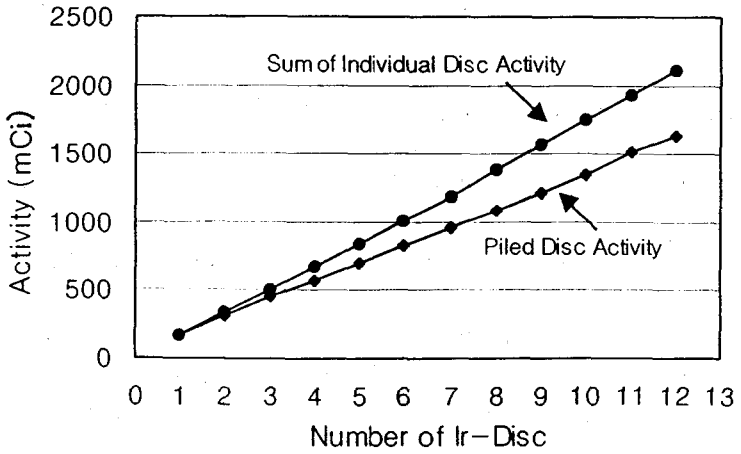

Fig 3. γ -ray Self-Absorption Effect of Ir-192 Sources