

모듈식 자동 방사성핵종 분리기를 이용한 의료용 $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ Generator에서 생성된 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 추적자 정제

권용대, 정근호, 최상도, 강문자, 이완로, 김희령, 조영현, 최근식, 이창우
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
kyddragon@kaeri.re.kr

1. 서론

^{235}U 와 ^{239}Pu 의 핵분열 생성물인 테크네튬(^{99}Tc)은 ^{99}Mo 의 베타선 붕괴 반응에 의해 생성되며, 생성수율이 ~6% 정도로 높다. ^{99}Tc 는 순수 베타방출체로서 $E_{\text{max}} = 294\text{keV}$ 이고 반감기가 긴 핵종($T_{1/2} = 2.13 \times 10^5 \text{y}$)이므로, 중·저준위 방사성폐기물처분시설 부지주변의 지하수 이동을 통한 방사성핵종 누출 여부를 평가하기 위한 주요 환경 감시 지표핵종중 하나이다. 환경 중의 ^{99}Tc 은 주로 핵실험이나 원자력 시설의 운영에 의해 인공적으로 생성되며, 현재 많은 나라에서 방사성 생태학적인 연구를 진행해왔다.[1,2] 하지만 ^{99}Tc 의 환경상태에서 농도는 매우 낮으므로 시료의 방사능 준위를 고려하여 정제 및 농축 과정을 거치게 된다. 이러한 화학적 분리과정에는 반드시 회수율 측정이 필요하다. 회수율에 사용하는 추적자로는 Re(Rhenium), $^{95\text{m}}\text{Tc}$, $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 등 여러 종류가 있으나 ^{99}Tc 의 과대평가 및 상용화 등의 이유로 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 의 사용이 일반화 되고 있다.[3] 테크네튬-99는 Eichrom사의 TEVA 수지를 사용하여 중력흐름(gravimetric flow)에 의한 칼럼분리 방식으로 선택적으로 분리하는 방식이나, 이 방법은 너무 많은 시간과 인력을 요구한다.

본 연구에는 의료용 $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ Generator에서 생성된 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 을 자체 개발한 “모듈식 자동 방사성핵종 ^{99}Tc 분리기(MARS Tc-99)”를 사용하여 순수한 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 추적자를 짧은 시간동안 최소 부피상태로 분리하기 위한 방법을 개발하였다.(그림 1, 2) [4,5]

2. 실험 및 결과

본 실험에 사용한 추적자 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 은 의료용 $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ Generator에서 0.9% NaCl용액으로 용출하였다. Generator의 칼럼에 붙어 있는 ^{99}Mo 는 반감기가 67h이고, 붕괴 시 13%는 ^{99}Tc 가 되며 87%는 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 을 거쳐 ^{99}Tc 가 된다.(그림 3) 그리고 용출액에는 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 뿐만 아니라 ^{99}Mo , ^{99}Tc , ^{103}Ru 등 여러 가지 불순물이 포함되어 있을 수 있다. 불순물이 포함된 용출액의 경우 질량분석기로 측정하면 ^{99}Tc 분석결과가 과대평가되기 때문에 순수한 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 의 분리가 필수적이다. 따라서 용출액은 정제과정이 요구된다. 본 실험에서는 불순물을 정제하기 위해 음이온 교환수지로 TEVA Resin(Eichrom Ind. U.S.A)을 사용하였다. ^{99}Tc 의 경우 TcO_4^- 의 화학적 형태로 음이온으로 존재하며, 음이온 교환수지를 사용해 Tc-99의 베타핵종 분석에 방해로 일으키는 기타 방사성 핵종(^{99}Mo , ^{103}Ru) 제거시킬 수 있다. 불순물 제거에 사용되는 TEVA Resin의 특성은 TcO_4^- 에 대해서 0.1M HNO_3 용액 상태에서 최대로 흡착되며, 8M HNO_3 일 때 약 10000배 정도 흡착력이 떨어진다. 이러한 특성을 이용하여 Conditioning구간에 0.1M HNO_3 용액 20mL를 흘려주어 TcO_4^- 가 잘 흡착되는 조건을 만들고 Loading 구간에 의료용 $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ Generator에서 용출된 용액을 준비된 칼럼에 통과시켜 TEVA Resin에 흡착시킨다. Rinsing구간에서 0.1M HNO_3 용액 30mL를 흘려주어 칼럼 내에 남아 있는 불순물을 모두 제거하였다. Elution구간에서는 8M HNO_3 용액 20mL를 흘려주어 흡착된 TcO_4^- 만을 용출하였다. 정제 과정에 사용한 MARS Tc-99의 운영프로그램은 LabView로 구성되었으며, 펌프 Calibration 창에서 연계된 펌프유량(ml/min)이 최소자승법에 의해 계산되어 실행창에 연계된다. 실행창의 구성은 Conditioning, Loading, Rinsing, Elution, Cleaning으로 구성되어 있으며, 각 스텝에서 각각의 부피와 유량을 독립적으로 입력할 수 있다. 본 실험에서는 5가지 구간중 Loading 구간과 Elution구간의 유량속도를 변화시켜 추적자 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 의 분리특성을 평가하였다.

자동 방사성핵종 분리장치의 효율성 및 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 의 정제과정의 특성을 파악하기 위해 다음의 실험을 하였다. 유량의 속도에 따른 칼럼의 특성을 평가하기 위해서 먼저 Elution구간의 속도를 1.5mL/min으로 고정하였다. 그리고 Loading, Rinsing, Cleaning구간의 속도를 1mL/min 간격으로 9mL/min까지 증가시키면서 20mL 바이알에 5~10mL간격으로 용출액을 받았다. 실험결과 유량 속도를 9mL/min으로 하여도 칼럼을 통과한 용액에서 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 이 용출되지 않았다. 이것은 중력흐름 칼럼방식 보다는 9배나 빠르며 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 을 포함한 시료를 9mL/min의 속도로 Loading할 수 있음을 확인하였다. 두 번째 실험에서는

Loading구간의 속도를 5mL/min으로 고정하고 Elution구간의 속도를 0.5mL/min 간격으로 3mL/min까지 증가시키면서 20mL 바이알에 5~10mL간격으로 용출액을 받았다. 분당 2mL/min 이상이 되었을 경우 FWHM이 점차 증가하였고 그래프 끝부분에 미세한 tail이 생겨났다. 미세한 tail부분의 ^{99m}Tc 손실은 분석결과 1%미만으로 평가되었고 Elution구간의 최적의 속도는 1~2mL/min으로 확인하였다. ^{99m}Tc 및 불순물의 농도는 HPGe 감마핵종 분석기를 이용하여 측정하였다. 정제된 ^{99m}Tc 은 불순물이 완전히 제거되었음을 감마 스펙트럼으로부터 확인하였다.

본 실험실에서 개발한 MARS Tc-99의 장치를 사용하여 의료용 $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ Generator에서 용출된 추적자 ^{99m}Tc 을 매우 짧은 시간동안 최소부피로 분리할 수 있었다. 또한 추적자 ^{99m}Tc 의 정제과정에 필요한 시약의 양 및 각 구간별 분당 유량 속도를 명확하게 설정하였고, 장치의 불순물 제거 효율성은 매우 우수하게 평가되었다. 개발된 실험 장치 및 확립된 실험 절차는 원자력시설 주변 환경감시 활동에 점진적으로 적용될 것으로 기대된다.



그림 1. 의료용 $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ Generator

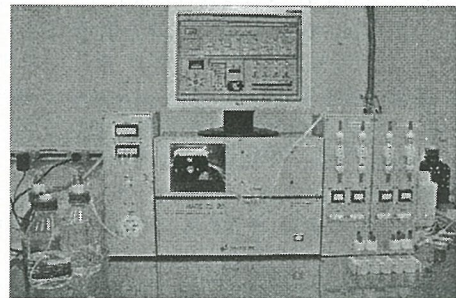


그림 2. MARS Tc-99 equipment

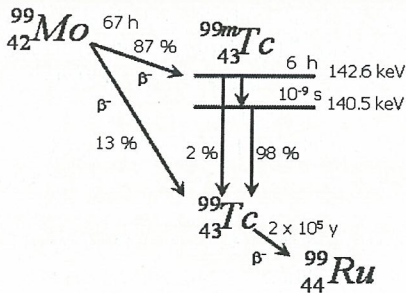


그림 3. Decay scheme of ^{99}Mo

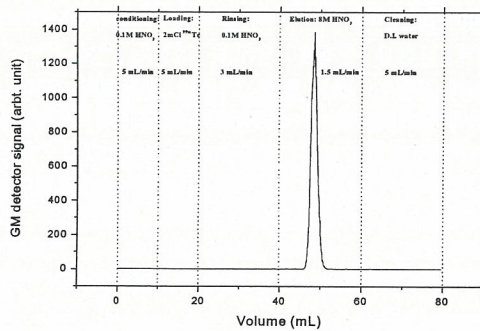


그림 4. Elution profile of ^{99m}Tc measured by GM counter of MARS Tc-99

[1] V. Smith, M. Fegan, D. Pollard, S. Long, E. Hayden and T. P. Ryan, "Technetium-99 in the Irish marine environment" Journal of Environmental Radioactivity. 56, pp.269-284

[2] Xiaolin Hou, Mikael Jensen, Sven P. Nielsen, "Use of ^{99m}Tc from a commercial as yield tracer for the determination of ^{99}Tc at low levels" Applied Radiation and Isotopes Vol.65 pp.610-618(2007)

[3] R. Seki and M. Kondo, "An improved method for technetium determination in environmental samples" Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 263(2), pp.393-398 (2005)

[4] 정근호, 최상도, 권용대, 강문자, 이완로, 김희령, 최근식, 이창우 "모듈식 자동 방사성핵종 Tc-99 분리기 설계 및 제작", 2008 한국방사성폐기물학회지, pp.419-420

[5] 권용대, 정근호, 최상도, 강문자, 이완로, 김희령, 최근식, 이창우 "모듈식 자동 방사성핵종 테크네튬-99 분리기 운영 프로그램 개발", 2008 한국방사성폐기물학회지, pp.381-382