



# (n, $\gamma$ )<sup>99</sup>Mo-<sup>99m</sup>Tc 제너레이터의 실용화 개발

- 신기술에 의한 아시아에서의 제조를 목표로 -

## 머리말

암등의 장기질환의 진단을 위하여, 일본을 포함하여 세계중에서 널리 사용되고 있는 방사성의약품 <sup>99m</sup>Tc(테크네튬)은, 핵분열(n, f)법으로 생긴 <sup>99</sup>Mo(방사성 몰리브덴 : <sup>99m</sup>Tc의 어미핵종)을 조사 후 농축 우라늄(<sup>235</sup>U)에서 추출단리하여, 알루미늄 나 칼륨에 흡착유지시킨 제너레이터에서 용리(밀킹)시켜 사용하고 있다. 그러나 (n, f)법은 고농축 우라늄을 원료로 하고, 고준위 방사성 폐기물이 발생하는 값비싼 방법이며, 더구나 대량소비국인 일본은 그 전량을 외국에 의존하고 있다. 일본 원자력연구소(원연)와 화학연구소(화연)은, 폐기물이 발생하지 않는 값싼 <sup>99</sup>Mo 제조법을 가능케 하는 지르코늄계 무기고분자 흡착재(PZC : Poly-Zirconium Compound)의 합성에 성공하였다. PZC는 (n,  $\gamma$ )법 <sup>99</sup>Mo-<sup>99m</sup>Tc 제너레이터용 재료로서 우수한 특성을 가지고 있으며, 이 고성능 Mo 흡착재의 개발을 계기로 아이소토프 제조연구자

의 염원이었던 (n,  $\gamma$ )법의 실현이 가능케 되었다.

더욱 더 증가하는 장기진단약 <sup>99m</sup>Tc의 수요에 부응하기 위하여, 아시아 제국에 대하여 신형 <sup>99m</sup>Tc 제너레이터의 자국생산을 가능케 하는 기술이전을 추진하여, <sup>99</sup>Mo제조와 공급에 관한 협력체제를 구축하는 것이 중요하고, 그 안정 보급을 도모하기 위해서도 복선적인 공급체제의 정비가 요망된다.

## 1. 배경

### 1. <sup>99</sup>Mo 제조 · 공급의 현황과 <sup>99m</sup>Tc의 수요

<sup>99m</sup>Tc는 반감기가 6시간 뿐이기 때문에 <sup>99m</sup>Tc의 어미 핵종인 <sup>99</sup>Mo(반감기 66시간)로서 제조 공급되고 있지만, 이 의료용 <sup>99m</sup>Tc를 이용하기 위하여 세계에서 연간 30만 Ci(104 TBq)이상의 <sup>99</sup>Mo이 수요된다(1997년 당시), 이 <sup>99</sup>Mo은 농축우라늄(<sup>235</sup>U)를 원료로 하는 핵분열(n, f)법으로 캐나다와 벨기에의 두나라에서 세계중 수요의 80% 이상

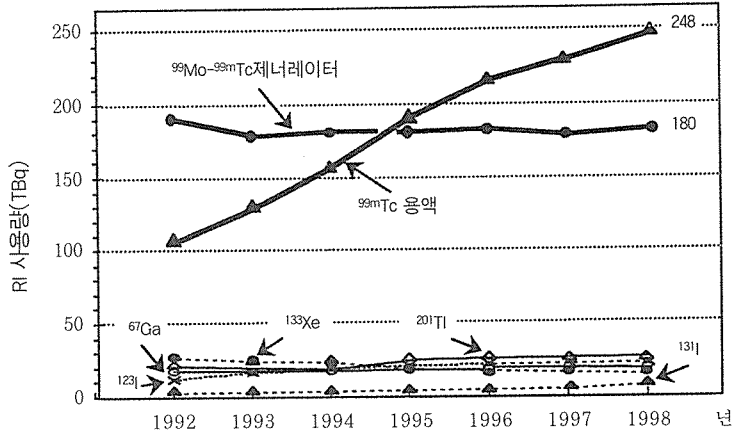


그림 1. 일본의 주요 의료용 방사성 동위원소의 추이

표 1. <sup>99</sup>Mo 제조방법의 비교

핵분열(n, f)법		방사화(n, γ)법	
원료	농축 우라늄( <sup>235</sup> U)	원료	천연Mo
장점	비방사능이 높다. 370TBq(10 <sup>4</sup> Ci)/g(Mo)	장점	원료 : 천연Mo 분리회수조작 : 불요
결점	원료 : 농축 우라늄 분리 프로세스 : 복잡 방사성폐기물의 발생 : 다량 시설·설비 : 과대 제조비용 : 높다(36/Ci)	결점	방사성 폐기물의 발생 : 없음 시설·설비 : 경소 제조비용 : 낮다(\$ 0.5/Ci) 비방사능이 낮다 94GBq(2Ci)/g(Mo)

을 제조하고 공급하고 있다. 일본의 경우는 국내의 <sup>99</sup>Mo(<sup>99m</sup>Tc) 필요량(세계 수요의 약 1/10) 전량을 해외에 의존하고 있으며, 연간 매주 캐나다에 공급을 받고 있다. 그림 1과 같이 일본의 의료용 방사성 동위원소의 최근 추이에서 알 수 있는 바와 같이, <sup>99m</sup>Tc의 수요는 모든 의료용 방사성 동위원소량의 80% 이상이며, 더구나 그 수요는 해마다 증가하고 있다.

## 2. <sup>99</sup>Mo 제조방법의 비교

<sup>99</sup>Mo 제조법으로는, 현재 세계중에서 사용되고 있는 농축우라늄을 원료로 하는 (n, f)법과 천연 Mo를 원료로 하는(n, γ)법의 두가지 방법이 있는데, 그것들의 주요한 특징을 비교하여 표 1에 나타낸다.

(n, f)법은 농축 우라늄의 핵분열 반응을 이용하여 <sup>99</sup>Mo을 제조하기 때문에 <sup>99</sup>Mo의 분리 프로세스



가 복잡하고, 고준위 방사성폐기물이 발생하여 시설 및 설비 시스템의 규모가 커지고,  $^{99}\text{Mo}$  제조비용이 1Ci(37GBq)당 36달러로 값이 비싸다는 등, 의료용일지라도 기술면·경제성·환경면을 고려하면 결코 바람직한 방법이라고는 말할 수 없다.

한편, (n,  $\gamma$ )법의 경우는, 천연 Mo 화합물(통상, 산화 몰리브덴  $\text{MoO}_3$ 을 사용)이 원료이며, 농축 우라늄을 사용하지 않기 때문에 IAEA의 사찰을 받을 필요가 없고,  $^{99}\text{Mo}$ 의 분리 프로세스는 불요, 방사성폐기물이 발생하지 않고, 시설이나 설비 시스템이 작고 간결하다.  $^{99}\text{Mo}$  제조비용이 1Ci당 0.5달러로 (n, f) 법에 비하면 약 1/100정도등, 기술면·경제성·환경면 등에서 그 실현을 꾀할 가치가 있는 방법이다.

이와 같이 장점이 있는 (n,  $\gamma$ )법이, 왜 지금까지 실용화 되지 않았을까? 그것은, 지금까지 높은 흡착능력을 가진 Mo 흡착재를 개발하지 못하였기 때문이라고 생각된다. (n,  $\gamma$ )법을 실현시키기 위해서는, 천연 Mo 화합물을 원료로하는 (n,  $\gamma$ )법의 최대 문제점인  $^{99}\text{Mo}$ 의 비방사능의 낮음(1~2Ci/g(Mo):(n, f)법에 대하여 약 1만분의 1)을 해결하기 위한 고성능 Mo 흡착재를 개발하는 것이 필요하다. 한편, (n, f)법의 고비방사능인  $^{99}\text{Mo}$  경우는, Mo 흡착력이 낮은 알루미늄을 사용할 수 있기 때문이다.

### 3. 지금까지의 (n, $\gamma$ )법 실현에 대한 시도

상기한 바와 같이 (n,  $\gamma$ )법은 많은 장점이 기대되기 때문에, 그 실현을 도모하기 위한 많은 노력을 해 왔다. 그 대표적인 예로서는, 용매 추출법과 Mo 겔생성법(겔 제너레이터)의 두가지이며, 그 중에서도 실용성이 높다고 보는 겔 제너레이터는, 특히 호주나 중국 및 베트남을 중심으로 IAEA의 지원으로 그 실용화가 검토되어 왔다. 그러나 적정

한 몰리브덴산지르코늄  $\text{Zr}(\text{MoO}_4)_2$  겔을 생성시키기 위해서는 엄밀한 조건관리가 필요하다는 것과, 프로세스가 길고 번잡하다는 것 등 실용화를 저지하는 기술적인 문제가 남아있다.

## II. 개발 : (n, $\gamma$ )법의 실현을 목표로

### 1. 고성능 Mo 흡착재의 개발

기술면·경제성·환경면등의 관점에서 장점이 많은 (n,  $\gamma$ )법을 실현시키기 위해서는, (n,  $\gamma$ )법의 최대 문제점인 낮은  $^{99}\text{Mo}$ 의 비방사능에서도 이용할 수 있는 고성능 Mo 흡착재의 개발이 필요하였다. 따라서 원연과 화연에서는, Mo 흡착능력으로서 250mg(Mo)/g(흡착재) 이상의 목표를 설정하여 개발한 결과 4염화지르코늄( $\text{ZrCl}_4$ )과 이소프로필알코올(iso-PrOH)의 가열축합반응으로 합성되는 지르코늄계 무기고분자 흡착재 PZC를 개발할 수 있게 되었다. 이 PZC는 (n,  $\gamma$ )법 실현에 필요로 하는 목표치 이상인 280~300mg(Mo)/g(흡착재)의 Mo 흡착능력을 가지고 있다는 것, 또  $^{99m}\text{Tc}$  용지성도 안정하여 양호하다는 것, 높은 방사화학순도의  $^{99m}\text{Tc}$ 를 용리할 수 있다는 것등, (n,  $\gamma$ )  $^{99}\text{Mo}$ - $^{99m}\text{Tc}$  제너레이터용의 Mo 흡착재로서의 우수한 특성을 가지고 있다.(그림 2 및 사진 참조)



사진 PZC

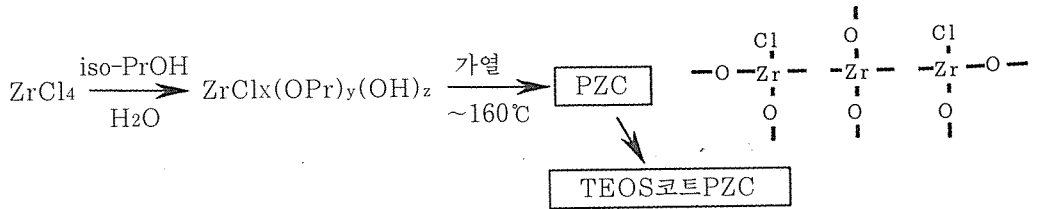


그림 2. Mo 흡착제 PZC의 합성 프로세스

이 Mo 흡착제 PZC는, -Zr-O-Zr-Cl 결합을 기본 골격구조로 한 무기폴리머이며, Mo를 함유한 용액중에서 Cl(염소)가 가수분해 반응으로  $\text{MoO}_4^{2-}$  (몰리브덴산 이온 : 2가음이온)과 치환하여, Zr-MoO<sub>4</sub>로서 대량의 Mo(<sup>99</sup>Mo)이 PZC에 강고하게 화학흡착한다. PZC에 화학흡착한 <sup>99</sup>Mo는 그 딸핵종인 <sup>99m</sup>Tc를 생성하지만, Tc는 Mo과 달

라서 TcO<sub>4</sub><sup>-</sup>(과테크네튬산)의 1가음이온이기 때문에 PZC의 Zr과의 결합에서 쉽게 떨어져서, 생리식염수에 쉽게 용리(밀킹)된다. 이 생리식염수중에 용해한 <sup>99m</sup>Tc를 진단용의 시약과 반응시켜, 환자에 투여하여 장기등의 질환을 진단한다. 이 PZC의 Mo 흡착 및 Tc 용리메카니즘을 그림 3에 나타낸다.

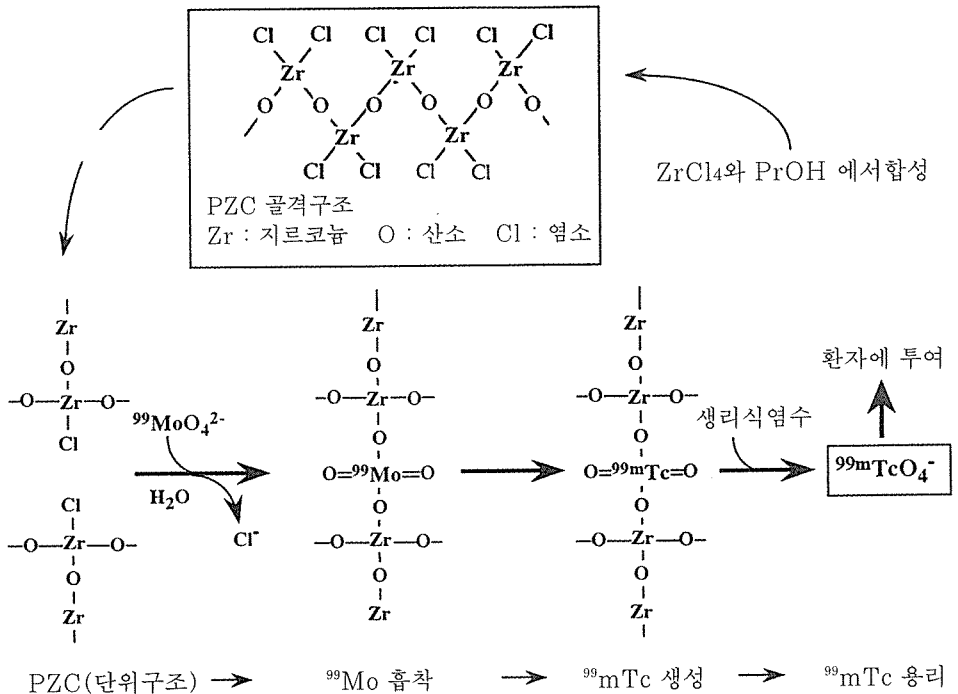


그림 3. PZC의 Mo흡착 · Tc용리 메카니즘



## 2. PZC법 <sup>99m</sup>Tc 제너레이터의 특성

PZC의 Mo흡착량은 온도의 영향은 받지 않지만, Mo 흡착속도는 온도가 높을수록 빠르고, 90℃에서는 약 3시간에서 포화흡착에 이른다. 또 흡착시킬 Mo 용액의 pH에 영향이 있으며, PZC 1g당 중성에서는 280mg(Mo)의 흡착용량이 있지만, pH가 낮아짐에 (pH 2~4) 따라 흡착용량은 증대하여 340mg(Mo)의 흡착용량을 가진다.

다음으로, <sup>99m</sup>Mo를 흡착한 PZC에서의 Tc 용리율은, 평균 80%전후에서 안정되며, 더욱이 Tc 용리를 반복해서 양호한 재현성을 얻을 수 있어서, 현행의 알루미늄을 사용하는 (n, f)법과 거의 같은 정도의 Tc 용리 특성을 가지고 있다. <sup>99m</sup>Tc 용리 프로파일을 그림 3에 나타낸다. 이 <sup>99m</sup>Tc 프로파일에서, <sup>99m</sup>Tc를 용리회수가 가능하며, 종래의 알루미늄 법에 대하여 기술적 장점의 하나이다.

그리고, PZC에 Mo(<sup>99</sup>Mo)를 포화흡착시키면, Mo에 의한 PZC 고분자의 가교가 일어나고 그 구조체가 강고하게 되는데, Mo의 과잉 때문에 끝결합의 <sup>99</sup>Mo가 PZC 구조체중에 잔류하여, 그 때문에 <sup>99m</sup>Tc 용리시에 방사성의약품기준 0.15mCi(<sup>99</sup>Mo) / Ci(<sup>99m</sup>Tc)를 상회하는 <sup>99</sup>Mo의

탈리 현상이 일어난다. 이 대책으로는, PZC에 Mo(<sup>99</sup>Mo)를 포화흡착시킨 후, ZrO<sup>2+</sup>를 함유한 수용액으로 처리함으로써 <sup>99</sup>Mo탈리를 방사성의약품 기준의 1/100이하로 할 수 있게 되어, 고방사 화학순도의 <sup>99m</sup>Tc를 얻게 되었다(그림 5).

다음에, 시판제너레이터의 <sup>99</sup>Mo 보유차량의 최고준위 (약 500mCi)인 경우의 10배 이상의 흡수선량에 상당하는 선량을 Mo 흡착 PZC에 주어도, Mo나 Zr(PZC의 주성분)의 탈리현상은 볼 수 없었고, 외관적으로도 방사선 조사 손상은 없었다. 이것은 Mo 흡착 PZC의 골격 구조가 -Zr-O-Mo-O-Zr- 로 구성된 무기물질이며, 높은 내방사선성을 가지고 있기 때문이다.

## 3. PZC 법 <sup>99m</sup>Tc 신형 제너레이터의 구성

PZC는, 이상에서 기술한 바와 같은(n, γ)<sup>99</sup>Mo-<sup>99m</sup>Tc 제너레이터에 적합한 화학적·물리적 특성을 가지고 있다. 따라서 <sup>99</sup>Mo(n, γ)반응으로 얻어지는 <sup>99</sup>Mo의 비방사능을 고려한 PZC의 사용법(특히 PZC량)과 PZC제너레이터의 구조를 확립해야 하는데, 현행의 (n, γ)법 <sup>99m</sup>Tc 제너레이터와 거의 제너레이터로 된다. 이 소형 제너레이터의 구성을 그림 6에 나타낸다.

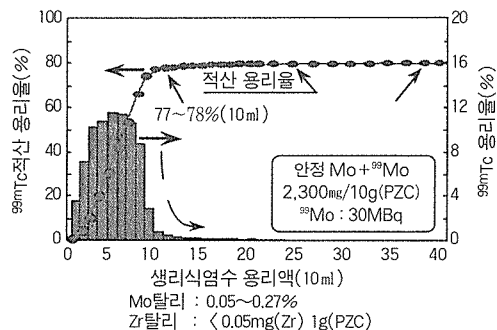


그림 4. PZC 제너레이터의 <sup>99m</sup>Tc 용리 프로파일 : PZC(TEOS 코트) 10g인 경우

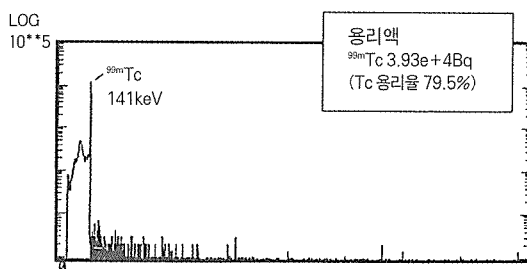


그림 5. PZC 제너레이터 용리액의 γ선 스펙트럼

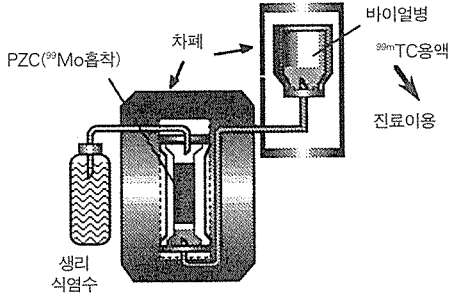


그림 6. 신형 <sup>99m</sup>Tc제너레이터구성

### III. 아시아에서의 레조를 목표로

이상 기술한 바와 같이, PZC 법으로 (n, γ)법의 이용이 가능하게 되었다. 앞으로 (n, γ)을 보급하기 위한 요건으로서는, 특히 <sup>99</sup>Mo의 안정적인 제조와 공급을 가능토록 하는 것이 중요한 점이다. 표 2에 나타난 MoO<sub>3</sub>의 조사량에서, <sup>99</sup>Mo의 일본 및 세계의 수요를 (n, γ)법으로 조달하는 경우는, 각각 매주 1kg 및 10kg 정도의 조사가 필요하다.

표 2 (n, γ)법에 의한 Mo 조사량 설정조건

#### 설정조건

<sup>99</sup>Mo의 수송 : [일본] 3만Ci(103TBg), [세계]30만Ci(104TBg) 1997년

Mo 표적 : 천연 MoO<sub>3</sub>(3산화 몰리브덴)

조사조건 : 열중성자속 2×10<sup>14</sup>n/cm<sup>2</sup>·S, 7일 연속조사

핵반응 단면적 : σ=0.132b

생성 <sup>99</sup>Mo 비방사능 : 2Ci/g(Mo)

#### Mo표적의 조사량(2배의 여유를 둠)

일본 수요 : 1년간 50kg, 매주 1kg(MoO<sub>3</sub> 용적 200cc/주)

전세계 수요 : 1년간 500kg, 매주 10kg(MoO<sub>3</sub> 용적 2,000cc/주)

#### <sup>99</sup>Mo 제조를 위한 협력 네트워크

(n, γ)법의 경우는 (n, f)법에 비하면 생성 <sup>99</sup>Mo의 비방사능이 매우 낮기 때문에, 저장할 수 없다. 그런 이유로, <sup>99</sup>Mo의 안정공급을 하기 위해서는 MoO<sub>3</sub> 표적의 조사를 매주 안정하게 할 필요가 있다는 것, 수송에 시간이 걸리지 않는 자국이나 가까운 곳에서의 제조가 요망된다. 따라서 원자로의 정기검사나 예기치 못한 트러블 등을 고려하면,

(n, γ)법 <sup>99</sup>Mo의 안정적인 제조와 공급의 체계를 (n, f)법 이상으로 확실하게 해 두어야 한다.

일본을 포함하여 근린 아시아지역의 원자로 보유상황과 <sup>99</sup>Mo제조 현황을 표 3에 나타낸다. 이들 각국의 원자로 및 Hot Lab 등의 시설과 연구자·기수자의 네트워크를 구축하는 것이 각 국내에서의 (n, γ)<sup>99</sup>Mo 제조와 <sup>99m</sup>Tc 의료진단의 보급이라는 관점에서 필요할 것이다.



표 3. 원자로와 <sup>99</sup>Mo 제조의 각국 상황

국명	원자로	<sup>99</sup> Mo제조량	제조방법	비고
호주	HIFAR(10MW)	200~300Ci/주	(n, f)법 (n, γ)법	자국제조·소비 제조중지
중국	(4기)	5,500×29.6GBq (4,400Ci/연 : '96) [85Ci/주]	(n, f)법 (n, γ)법	겔 제너레이터
인도네시아	RSG-GAS(30MW) TRIGA-II BANDUNG (2MW)	100~200Ci/주	(n, f)법	중국, 말레이시아로 수출
일본	JMTR JRR-3M	20Ci/주 200Ci/주	(n, f)법 (n, γ)법	제조중지 캐나다에서 수입(2,000~3,000Ci/주)
한국	HANARO(30MW)	계획중 2,000Ci/주	(n, f)법	현재 일본에서 수입(약 10Ci/주)
말레이시아	PUSPATI(2MW)	조사능력부족	(n, γ)법	추출법중지 현재 인도네시아에서 수입(약 3Ci/주)
필리핀	PPR-1(1-3MW)	노정지중	(n, γ)법	'96현재 약 6Ci/주를 수입
태국	TRR-1(2MW)	조사능력부족	(n, γ)법	제조중지, 수입
베트남	TRIGA-Type(0.5MW)	0.9Ci/연('96)	(n, γ)법	겔 제너레이터

#### IV. 맺음말

현재로서는, PZC 제너레이터의 기술적인 기본 과제는 거의 완전히 해결하여, 그 실용성의 화증도 얻었다. 앞으로는 실용화를 위한 공학적인 검토와 기술의 확립을 꾀하여, 국내에서는 방사성의료품의 후생성노동성인가를 얻을 것, 또 현행의 (n, f) 법대신에 (n, γ)법의 세계적인 보급을 도모하는 것이 목적으로 된다. PZC법은, 종래의 (n, f)법 대신에 장래의 <sup>99m</sup>Tc 제너레이터의 주류로 되는 요건을 갖추어있다.

지금까지, PZC법 (n, γ)<sup>99</sup>Mo-<sup>99m</sup>Tc 제너레이터 개발에 관한 여러 가지 대책을 하여 왔지만, 금년

부터 새롭게 아시아 원자력 협력 포럼(FNCA, 멤버국 : 일본, 인도네시아, 필리핀, 한국, 중국, 태국, 말레이시아, 베트남, 호주)으로 미 PZC법의 실용화와 보급을 목표로 한 프로젝트를 진행시킨다. 이들 중에서, PZC에 의한 (n, γ)법의 실용화에 특히 강한 의욕을 보이고 있는 인도네시아(BATAN 연구소)와는, 이미 작년부턴 화연이 공동연구를 시작하고 있다. 앞으로, 근린아시아 제국과의 국제협력프로젝트를 통하여 <sup>99</sup>Mo 제조공급체계·네트워크등을 정비하여, 일본의 기술로 (n, γ)법의 보급을 실현함으로써, 각국의 방사선 의료에 공헌하고자 한다. **KRICA**