

동

향

125I 생산을 위한 회분-루포식 장치 제작 및 시험

박을재, 홍순복, 류권모,
조운갑, 한현수

한국원자력연구소
동위원소·방사선응용연구팀

1. 서론

방사성 요오드 핵종은 초기에 가속기나 싸이클로트론 의하여 소량 생산되어 실험목적에만 이용되었으나 1938년 방사성 요오드를 사용하여 갑상선의 생리 작용을 연구하고 그 후 종양 치료에 이용하면서 방사성 의약품으로 널리 쓰이기 시작하였다.^(1,2)

할로겐 원소는 거의 모든 유기물과 치환이 용이하고 그 생성물의 수율과 안정도가 높기 때문에 표지화합물합성에 많이 이용되며 그 중 요오드가 대표적인 예이다. 방사성 요오드 핵종으로는 ¹²³I, ¹²⁴I, ¹²⁵I, ¹²⁸I, ¹³¹I, ¹³²I 가 있으며 가속기로는 ¹²³I, ¹²⁴I를 생산할 수 있고 원자로에서는 ¹²⁵I, ¹²⁸I, ¹³¹I, ¹³²I를 생산할 수 있으며, ¹²³I, ¹²⁵I, ¹³¹I이 핵의학 분야에서 널리 사용된다. ¹²³I은 방출에너지(159keV)가 낮아 감마카메라의 영상도 좋고 환자의 내부 피폭량도 적어서 진단용으로 가장 좋으나 가속기에 의해서 생산되고 반감기(13.3시간)가 짧아 사용비용이 많이 든다. ¹³¹I은 갑상선 진단용, 악성 종양 치료용, 표지용 등에 널리 사용되고 대량 제조도 비교적 용이하다.⁽³⁾

¹²⁵I는 낮은 감마에너지(35keV)와 긴 반감기(60.2 일)로 인하여 주로 표지용으로 사용되며 체외 진단용 시약 제조와 근접치료용 소선원 제작에 사용된다. 국내에서도 생활 수준 및 문화의 발달에 따라 수요는 계속 증가하고 있으며 전량 수입되는 대표적인 핵종이다.

1995년 열출력 30MW인 높은 중성자속의 연구용 원자로가 준공되면서 시작된 중장기 원자력연구개발사업의 지원으로 상용생산을 목표로 1999년 ¹²⁵I 핵종 개발을 본격적으로 착수하였

고, 현재 표적의 중성자 조사 장치를 제작하여 시험 중에 있다.

2. ¹²⁵I 제조를 위한 중성자 조사방법의 선택

원자로에서 ¹²⁵I 핵반응은 그림 1과 같으며 사용되는 표적 물질로는 농축 ¹²⁴Xe 가스, 천연 Xe 가스, 고체 Xe 화합물(XeF₂) 등이 있다.⁽⁴⁾ 고 품위, 고 방사능의 ¹²⁵I를 생산하기 위해서는 Xe 표적으로부터 생성된 ¹²⁵I의 분리 및 정제과정도 중요하지만 우선 적절한 조사 조건의 선택이 무엇보다도 중요하다.

¹²⁵I 생산 방법은 Xe 가스의 중성자 조사방법에 따라 회분식(batch), 순환루프식(circulating loop), 회분-루프식(batch-operated loop) 등

으로 분류할 수 있다. 회분식 중성자 조사방법은 중국, 인도, 이스라엘 등의 국가에서 채택하고 있는 방법으로 실험 목적이거나 적은 양의 ¹²⁵I를 생산하거나, 다량의 천연 Xe 가스 조사시 적당한 방법이다. 지르칼로이나 알루미늄과 같은 재질의 조사용기에 일정양의 Xe 가스를 액체질소 온도 하에서 채운 후 밀봉한 후 중성자 조사한다. 이 방법은 ¹²⁵I가 생성됨에 따라 불순핵종인 ¹²⁶I이 대량 생성되므로 1% 미만으로 유지하기 위해선 장시간의 냉각기간이 필요하다.

연속루프식은 ORNL에서 사용한 방법으로 중성자속 영역에서 ¹²⁴Xe를 연속적으로 조사시킨 후 생성된 ¹²⁵Xe를 원자로 조사공 밖의 용기에서 붕괴시켜 ¹²⁵I를 분리하는 방법이다. Charcoal, stainless steel, aluminium wool 등이 ¹²⁵I의

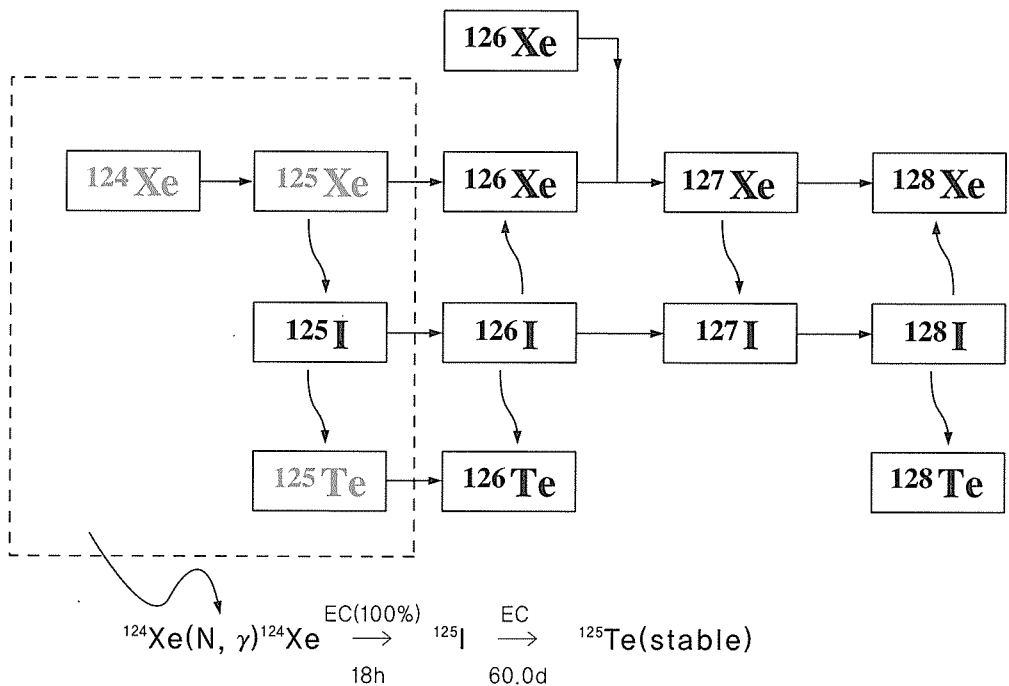


그림 1 Xe 가스의 중성자조사에 의한 ¹²⁵I의 생성 핵반응

흡착 매질로 사용된다. 이 방법은 중성자속 영역에서 생성된 ^{125}Xe 의 체류시간이 매우 짧으므로 ^{126}I 의 생성을 막을 수 있고 순수한 ^{125}I 만을 얻을 수 있다는 장점이 있다.⁽⁵⁾

회분-루프식은 회분식과 순환루프식을 방법을 복합한 것으로 조사용기와 붕괴용기가 별도로 존재한다. 냉각 트랩에서 응축된 Xe을 상온으로 기화시켜 조사용기로 이송하고 일정기간동안 (16 - 18 시간) 조사한다. 중성자 조사가 끝나면 붕괴용기로 Xe을 이송시켜 ^{125}I 로 붕괴시키고 다시 Xe을 조사용기로 이송하는 작업을 수 차례 반복함으로써 고 품위, 고 방사능의 ^{125}I 를 얻을 수 있다.

주요한 불순핵종으로 작용하는 ^{126}I 의 생성은 중성자속 및 조사시간에 의해 좌우되므로 고 품질의 ^{125}I 를 생산하기 위해선 높은 중성자속에서 짧은 시간동안(^{125}Xe 의 반감기 이하) 조사가 이루어져야 한다. 상기 3가지의 조사방법 중 가장 효과적인 것은 연속루프식을 이용한 방법이나 하나로에 적용하기엔 시설 설치가 어려워 고려하지 않았다. 또한 회분식 조사방법은 냉각기간 중 상당한 양의 ^{125}I 가 붕괴되어 비방사능이 감소하고 이로 인해 경제성도 낮아지므로 대량생산에는 적합하지 않다. 현재 하나로의 주변 여건 및 경제성을 고려해 볼 때 회분-루프식 조사방법이 ^{125}I 의 상용생산에 타당한 것으로 판단되어 이 방법에 따라 생산 장치를 제작하였다.

3. 회분-루프식 장치제작

3.1 장치 설계

본 연구에서는 상용생산에 적합하고 고품위 ^{125}I 를 제조할 수 있는 회분-루프형 ^{125}I 생산장치

를 설계 제작하였다. (그림2) "고압가스안전관리법"과 "압력용기구격집"에 따라 설계하였고 사용하고자 하는 Xe 가스는 약 5 ~ 10 g 정도이며, 사용압력은 10 기압 이하로 조사용기에 대한 무용부피의 비율이 5%를 넘지 않도록 하였다. Xe 가스 주입은 붕괴영역에 설치된 액체질소에 의하여 Xe 가스를 응축하는 방법을 사용하였다.

붕괴용기 내의 액체질소 극저온 펌프 및 이송라인에 수분에 의하여 성애가 서리지 않도록 2중 구조에 의한 단열을 하고, 극저온 펌프의 액체질소의 레벨을 계속해서 감지할 수 있도록 하였다. 진공배관의 연결은 삽입형 연결부를 사용하여 간편하게 사용할 수 있도록 하였으며, 붕괴영역은 원자로의 수조 안으로 잠수되기 때문에 부력을 견딜 수 있는 무게로 설계하였다. 상부 덮개는 분리한 후 쉽게 원격조절밸브를 조절하여 Xe 가스를 제어할 수 있도록 하였다.

Xe 가스가 흐르는 모든 튜브와 밸브의 연결부는 금속성인 진공용 피팅을 사용하여 Xe의 가스의 오염을 줄이고, 상부 커버와 중하부 챔버 사이는 누출 방지를 위해서 바이톤 계열의 O-ring을 사용하였다. 각 튜브와 챔버의 크기는 무용부피를 최대한 줄이면서도 견고하게 설계하였다.

3.2 장치 구성

회분-루프형 ^{125}I 생산장치는 크게 중성자 조사 후의 Xe 가스 이송을 담당하는 가스취급영역 (Gas Handling Part), 생성된 ^{125}Xe 가 ^{125}I 로 붕괴되는 붕괴영역 (Decay Part) 및 Xe 가스가 중성자 조사되는 조사영역 (Irradiation Part)로 구성된다.

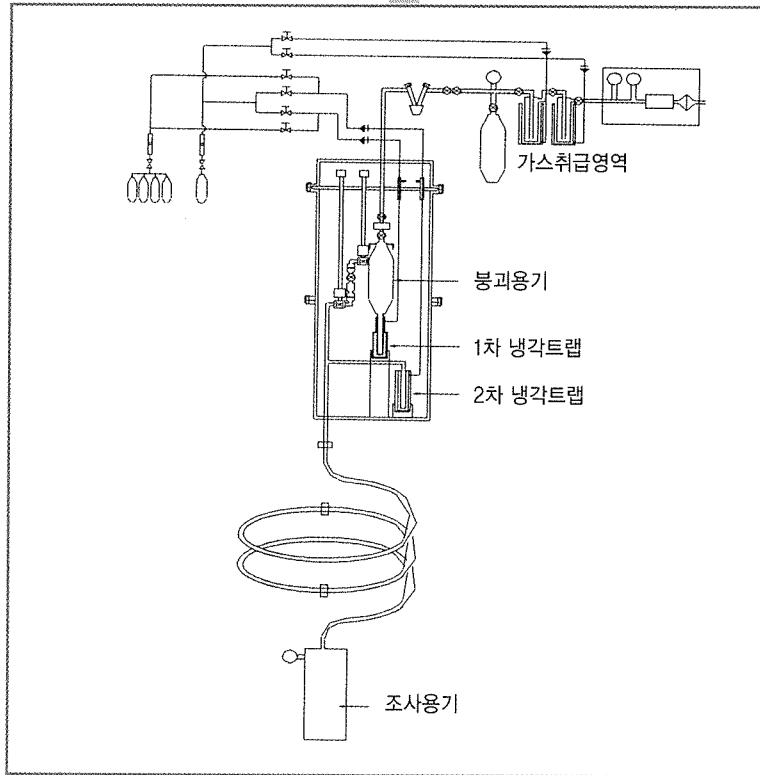


그림 2. 회분-루프식 ¹²⁵I 조사장치

3.2.1 가스취급영역(사진1)

붕괴영역 및 조사영역의 내부 가스를 배기 시키고 Xe 가스를 공급하는 부분으로 유연 튜브에 의하여 붕괴용기와 연결된다. 액체질소 라인은 삽입형 유연 진공보온배관으로 이루어져 있으며 액체질소 레벨은 온도 감지 방식으로 수동으로 제어할 수 있도록 하였다. Xe 가스 포집 후 냉각 트랩 내의 액체질소는 상온의 질소가스를 불어 넣어 제거할 수 있도록 하였다. 가스취급영역의 구성요소는 다음과 같다.

○ 진공펌프 : 확산 펌프(2×10^{-6} torr 이상,

액체질소 트랩, 피라니 게이지, 이온 게이지, charcoal 필터 장착)

- 액체질소 냉각 트랩 : 잔류 Xe 가스제거, 트랩의 부피는 각각 1 l
- 드라이아이스 냉각 트랩
- 진공단열배관 : 10 A
- 액체질소 조절밸브 및 electronics
- Xe 가스 실린더
- 유연 Xe 가스 호스($\phi 10$)
- 유연 진공단열배관($\phi 10$)
- Panel 이송 장비

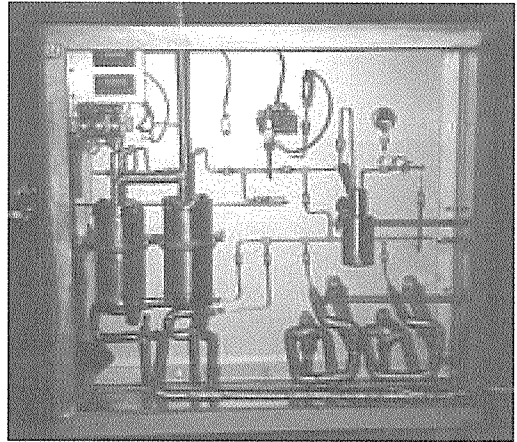
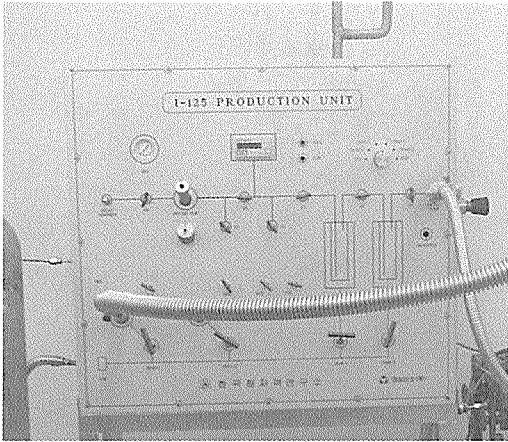


사진 1. 가스취급장비(좌: 전면, 우: 후면)

3.2.2 붕괴영역(사진 2)

붕괴영역은 붕괴용기와 냉각 트랩이 장착된 곳으로 중성자 조사시 실제 원자로 안으로 들어가는 부분이므로 누설 방지는 필수적이다. 붕괴용기는 냉각 트랩으로부터 삽입과 제거가 용이하고 열접촉을 좋게 하기 위하여 BeCu 주름관을 사용하였다. Xe 가스가 지나가는 모든 부분, 즉 밸브, 필터, 튜브 등의 연결부의 누출방지는 플라스틱이나 바이톤 계열의 실(seal)이 Xe 가스를 오염시킬 수 있고 방사선에 약하므로 Ni을 도금한 Cu를 실로 하는 피팅을 사용하였다. 상부 프렌지의 경우 Xe 가스가 접촉하는 부분이 아니기 때문에 바이톤 계열의 O-ring을 사용하였다. 밸브 조작을 비롯한 모든 조작은 수동으로 이루어지며 다음과 같은 장비로 구성된다.

- 본체: 스테인리스 304 / 316L, ϕ 300 A, L 1 m, 2중 O-ring 포함
- 붕괴용기(냉각 트랩 포함) : 스테인리스 304, 내부 부피 350 ml
- 2개의 액체질소 냉각 트랩

- 2개의 원격조절 밸브
- 진공밸브(1/4", 1/2")
- 진공단열배관 : 3중 배관
- Xe 가스 필터 : 1/2"
- 연결튜브 : 1/8", EP grade

3.2.3 조사영역(사진 3)

Xe 가스의 중성자 조사가 이루어지는 부분으로 붕괴영역과 연결되는 스테인리스 튜브와 조사용기로 구성되어 있다.

- 튜브 : 스테인리스 304, 1/16" (ID)
- 조사용기 : 1400cc (ϕ 53.5 mm, 2t, L 760mm), 스테인리스 304
- 압력 게이지

4. 제작된 장치의 성능 시험

천연 Xe 가스를 이용하여 제작이 완료된 회전-루프형 125I 생산 장치의 성능을 시험하였다. 시험방법은 우선 폐닐 부분의 가스 취급라

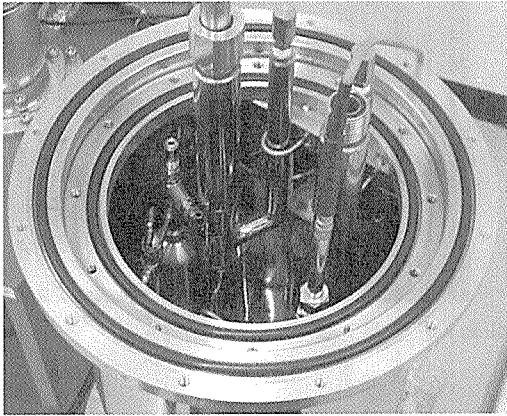


사진 2. 붕괴영역(좌 : 상부, 우 : 본체)

인, 붕괴용기, 조사용기 등을 $-1.02 \text{ kg}_f/\text{cm}^2$ 로 진공 배기 시키고 Xe 가스를 $0.02 - 2.52 \text{ kg}_f/\text{cm}^2$ 사이의 게이지 압력으로 충전하였다. 이때 충전 부피는 366 ml 이었다. 2차 냉각트랩 주위에 액체질소를 투입한 후 중간 밸브를 열어 냉각트랩으로 Xe을 이송시켰다. 서서히 기화시키면서 조사용기 쪽으로 Xe을 보낸 후 다시 붕괴용기의 1차 냉각 트랩에 회수하였다. 진공도 및 이송시 압력변화는 패널에 있는 디지털 게이지 및 조사용기에 부착된 다이어프램 게이지로 동시에 확인하였다. 실험결과 Xe 가스의 충전량 및 붕괴용기와 조사용기 사이의 필터장착 유무에 따라 약간의 차이는 보였지만 이송율은 95%를 상회하였다. 특히 필터를 부착하지 않았을 경우 99% 이상이 붕괴용기로 이송하였으며 이송시간은 10분 내외이었다. 이 결과를 통해 설계용량이었던 5-10 g 정도의 Xe 가스 조사가 가능한 것으로 평가되었다. 또한 질소가스를 이용한

공압시험으로 누설 시험을 통해 장치의 건전성을 평가하였다. 최고사용압력이 $10 \text{ kg}_f/\text{cm}^2$ 이므로 "고압가스 안전관리법"에 의하여 $12.5 \text{ kg}_f/\text{cm}^2$ 이상의 압력을 걸어 30분간 누설 및 변형을 확인한 결과 시험 도중 압력변화는 없었으며 장비 및 용기의 변형도 발생하지 않았다.

5. 결론

하나로를 이용한 ^{125}I 의 생산을 위하여 제조방법에 대한 자료를 분석한 후 주변여건 및 경제성을 고려하여 대량생산에 적합한 회분-루프식 증성자 조사 장치를 제작하였다. 생산 장치의 건전성 평가를 위해 압력 및 성능 시험을 수행하였으며, 시험 결과 이송률은 붕괴용기 대 조사용기 대비 95% 이상의 Xe이 이송되는 것으로 나타났고 충전되는 Xe 가스의 양도 5 - 10 g 범위로 나타났다. 이 장치를 사용하여 농축표적을 조사하

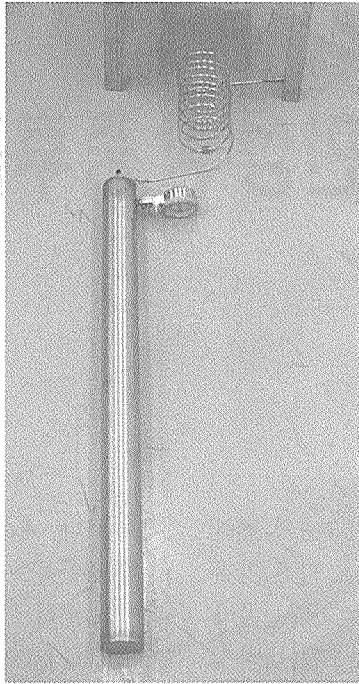


사진 3. 시험용 조사 용기 및 가스 라인

였을 경우 수 Ci 대의 ^{125}I 를 대량 생산할 수 있을 것으로 평가되었고 중성자 조사 후 조사용기에 서의 Xe의 무용부파도 적어 고품위 ^{125}I 를 생산 할 수 있을 것으로 판단된다.

추후 추가의 보완 실험 및 안전성 시험을 거친

후 하나로에 설치하여 시험생산에 돌입할 예정 이며, 현재 중성자 조사 후 생성된 ^{125}I 만을 효과 적으로 분리할 수 화학처리방법 및 최종제품의 품질관리방법 등에 관한 연구 개발이 진행 중이 다. **KRIA**

참 고 문 헌

1. S. Hertz and A. Roberts, "Applications of Radioactive Iodine in the Therapy of Grave's Disease", J. Clin. Invest., 21, 624, 1942
2. S.M. Seidrin, L.D. Marineli, and E. Oshry, "Radioactive Iodine Therapy: Effect on Functioning Metastases of Adenocarcinoma of the Thyroid", J. Amer. Med. Ass., 132, 838, 1946
3. 한현수 외 25인, "방사성동위원소 제조 및 이용기술개발 연구", KAERI/RR-2042/99, 95, 1999
4. IAEA, "Radioisotope and Quality Control", Technical reports series no. 128, 229, 1971
5. P. S. Baker and M. Gerrard, Iodine-125, ORNL-IIC-3, 1972