Journal of Radiation Industry 15 (3) : 167 ~ 171 (2021) https://doi.org/10.23042/radin.2021.15.3.167

방사성동위원소 생산을 위한 표적용기 제작 및 생산효율 측정

남성수* · 박울재 · 조은하 · 임재청

한국원자력연구원 동위원소연구부

Production Efficiency Measurements and Target Ampoule Design for Radioisotope Production

Seong Soo Nam*, Ul Jae Park, Eun Ha Cho and Jae Chung Lim

Radioisotope Research Division, Korea Atomic Energy Research Institute, 989-111 Daedeok-daero, Yuseong-gu, Daejeon 34057, Republic of Korea

Abstract - A new type of quartz ampoule was manufactured to reduce the contamination around the production system and to increase production efficiency during radioisotope production. The manufactured quartz ampoule has a small funnel attached to the inside to prevent overflow during the chemical process. This has the advantage of reducing losses of the irradiated target material and minimizing the contamination of production system. ^{177}Lu radioisotope was produced using a new type quartz ampoule, and it was confirmed that there was no problem with the production process. When comparing the production efficiency of ^{177}Lu with the new type quartz ampoule and the previous model, it was found that the production efficiency was usually increased by 13 to 26%. Based on these results, it is planned to apply a new quartz ampoule to neutron irradiation and radioisotope production of various nuclides.

Key words : Target ampoule, ^{177}Lu, Radioisotope production, Neutron irradiation

서 론

^{177}Lu은 치료용 선원 제조에 사용되는 방사성동위원소로, 반감기 6.71 d, 방출에너지 E_β = 176.5 keV (12.2%), 384.8 keV (9.1%), 497.8 keV (78.6%) 및 Eγ = 112.9 keV (6.4%), 208.3 keV (11.0%) 등 붕괴특성을 가지고 있다. 그리고 ^{177}Lu 생산에는 ^{176}Yb를 이용한 간접 생산과 ^{176}Lu 표적을 이용하여 직접적으로 ^{177}Lu를 생산할 수가 있다. ^{176}Yb 조사표적을 중성자 조사[^{176}Yb (n,γ) ^{177}Yb → ^{177}Lu → ^{177}Hf]로 ^{177}Lu를 생산 시에는 ^{177}Yb 단면적이 2.4 (b)으로 비교적 작고 방사화학적으로 분리하기가 어려운 반면에, 아래 그래프와 같이 ^{176}Lu 조사표적을 중성자 조사시켜 ^{177}Lu를 생산 시에는 ^{177}Lu의 단면적이 2100 (b)으로 커 ^{176}Yb (n,γ)으로 생산할 때보다 많은 양의 ^{177}Lu를 생산할 수가 있다(Pillai *et al*. 2003; IAEA-TECDOC-1340, 2003). 이때 사용되는 원료물질은 ^{176}Lu (Lu_2O_3) 농축 시료이며 사용되는 농축 시료의 양 자체가 적다 보니 생산 과정에서 미량의 용액이 표적용기 밖으로 흘러도 커다란 생산손실이 발생하고 있는 실정이다.

$$^{176}\mathrm{Lu}\,(n,\gamma)\,^{177}\mathrm{L} \xrightarrow{\beta^-} {}^{177}\mathrm{Hf}\,(\mathrm{stable})$$
$$\sigma = 2100\ \mathrm{b}$$

본 연구는 앞서 기술한 문제점을 개선하고, 방사성동위원소 생산 시 보다 안정적으로 중성자 조사 및 생산량의 손실을 최소화하기 위해 새로운 형태의 표적용기를 설계 제작하고,

* Corresponding author: Seong Soo Nam, Tel. +82-42-868-8411, Fax. +82-42-868-8448, E-mail. ssnam@kaeri.re.kr

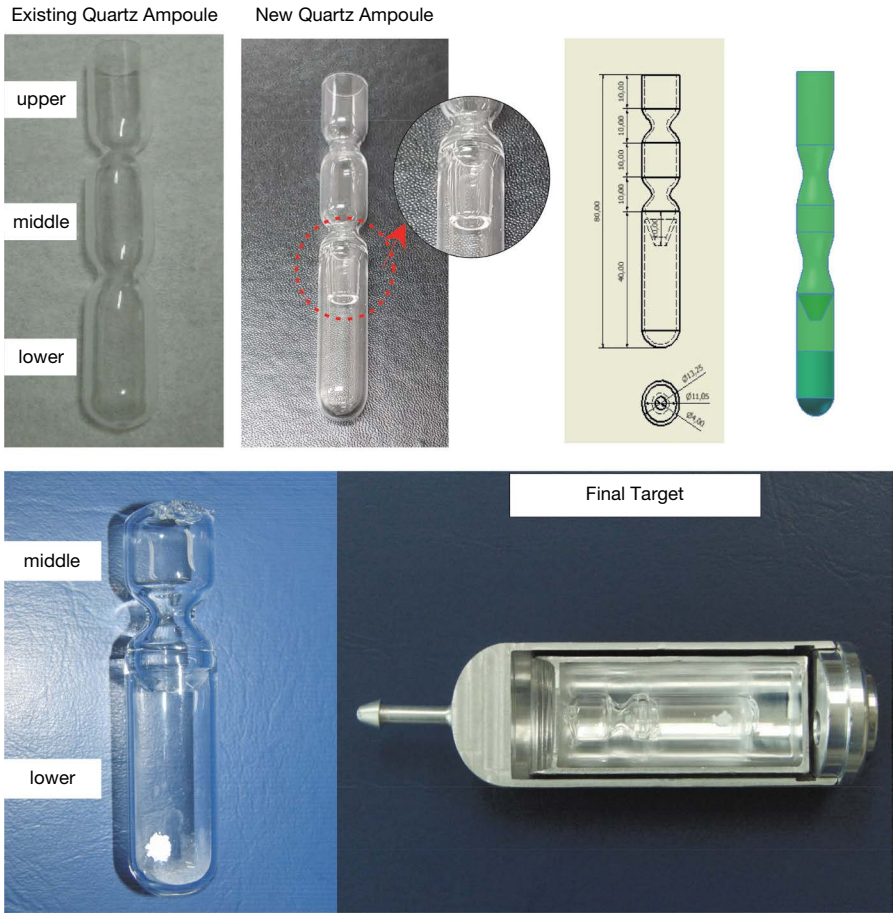


Fig. 1. Comparison of the target ampoule and the new target ampoule/Target ampoule for neutron irradiation.

^{177}Lu 생산에 적용하여 활용 가능성을 평가하고자 하였다.

표적용기 제원 및 설계

중성자 조사용으로 제작되는 표적용기는 석영재질로 이루어져 있으며, 보통 석영은 Quartz Glass로 불리고 기계적 강도 및 내화학성이 우수한 무수규산물(SiO_2)로 이루어져 있다. 순도는 99.99%, 연화점 1683도, 열팽창계수 5.5×10^{-7} deg^{-1}, 밀도 약 2.203 g cm^{-3}의 특성을 가지고 있다.

조사용 표적용기는 석영용기라고도 부르며, 이 석영용기는 땅콩형의 일자 모양이며, 형태는 상부, 중부, 하부로 이루어져 있고, 중성자 조사를 위해 알루미늄으로 제작된 내/외부용기에 넣어 중성자 조사용 표적을 만든다.

조사시료가 들어가는 석영용기의 제원을 보면, 상부 1.5 cm, 중부 2 cm, 하부 4.5 cm로 전체 높이가 8 cm이며, 두께는 1.1 mm로 제작하였고, 중요한 깔대기 모양은 하부 위쪽부분에 1 cm 정도 크기로 달려 있으며, 깔대기의 직경은 Φ 4.0 mm로 제작하였다(Fig. 1).

제작된 석영용기 속에 중성자 조사를 하고자 하는 조사시료를 상부를 통해 하부 속으로 넣은 다음 상부와 중부 사이를 일정한 열을 가하여 밀봉한다. 밀봉된 표적은 다시 알루미늄으로 제작된 1차 내부용기 및 2차 외부용기에 넣어 최종 제품을 만든다(Fig. 1).

하나로(HANARO) 조사를 통한 생산량 비교 분석

1. 석영용기 분석

^{177}Lu 생산용 최종 표적은 내부 및 외부 이중 알루미늄으로 구성되었고, 재질은 고순도의 Al-1050을 사용하였으며, 제작된 내부표적에 석영용기를 넣고 밀봉하여 최종 방사성동위원소 생산용 조사표적을 제작하였다. 그리고 기존의 내부표적 속에 들어가는 석영용기를 새로운 형태의 석영용기로 제작하여 생산 효율을 높이고자 하였다. 기존의 석영용기는 위부분을 절단 후 용기 속에 일정량의 용액을 넣고 온도를 올려서 석영용기 속에 있는 시료를 용해하고 증류시킬 때 석영용

기 안에서 발생하는 기포가 석영용기 밖으로 흘러내려 생산량 감소 및 생산 장치의 오염이 발생하고 있다. 그러나 이번 새로운 석영용기는 이를 보완하고자 석영용기 안쪽에 깔대기 모양을 새로 추가하여 기포가 깔대기에 걸려 석영용기 밖으로 흘러넘치는 것을 방지하였다. 석영용기가 소형이고 사용되는 시료 또한 소량을 사용하기 때문에 조그마한 기포가 흘러 넘쳐도 생산량 감소로 이어질 수 있다. 그러나 새로 제작된 석영용기는 용기 속에 깔대기가 있어 생산 시 발생하는 기포의 흘러넘침을 방지하여 생산량 감소 및 장치 오염 없이 보다 안정적으로 생산을 할 수 있다.

2. 석영용기를 이용한 방사성동위원소 생산 시험

새로운 석영용기 사용을 위해 방사성동위원소인 ^{177}Lu을 생산하였다. 생산에 사용된 조사시료는 0.2 mg (Lu_2O_3, 농축도 74.1%)이며 (Table 1), 하나로 (HANARO) 조사공에서 중성자 조사를 하였고, 평균 Flux: 1.81×10^{14} n·cm^{-2}·s^{-1}, 중성자 조사기간 2~14 d, Cooling time 21~ 157 hr 후 생산을 하였다 (Fig. 2, Table 2).

Table 1. ^{176}Lu raw material concentration

Description	Isotope	^{177}Lu
	Enrichment	74.10%
	Element weight	50mg
	Form	Oxide (Lu_2O_3)
Isotopic distribution	Isotope ^{175}Lu	 ^{176}Lu
Content (%)	25.9	74.1

하나로 원자로 가동을 감안하여 ^{177}Lu 생산은 2014년도 및 2018년도에 중성자 조사를 하였고, 중성자 조사된 표적은 땅콩 모양의 석영용기로 하부와 중부 사이를 커팅 후 깔대기 모양이 있는 하부에 HCl 용액 1.0 mL를 주입 후 온도를 80~90°C 올려 조사시료를 녹여 주었다. 이때 사용되는 용액 및 온도에 의해 기포가 발생하나, 새로 제작된 석영용기에는 용기 안쪽에 깔대기가 있어 위쪽으로 올라오는 기포가 용기 밖으로 흘러넘치지 않도록 막아주는 역할을 하여 용액의 흘러넘침이나 장치의 오염 없이 ^{177}Lu을 생산할 수 있었다.

결 과

기존의 석영용기는 생산 시 용액의 증류과정에서 발생하는 기포 일부가 석영용기 밖으로 흘러넘치고 그로 인해 장치의

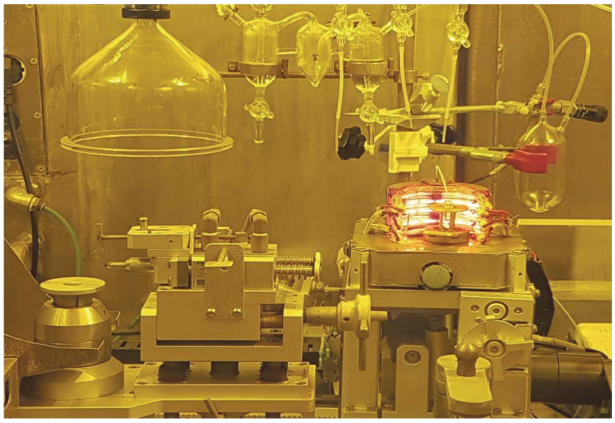


Fig. 2. ^{177}Lu Production using target ampoule.

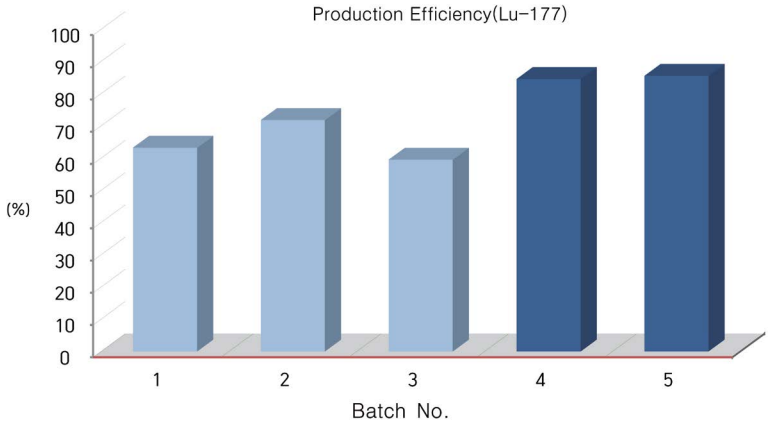
Table 2. ^{177}Lu production and production efficiency comparison

^{177}Lu Production using existing quartz ampoule										
Batch No.	Neutron irradiation hole	Flux (n·cm^{-2}·s^{-1})	Irradiation time (d)	Cooling time (hr)	Raw materials (mg)		Measurement of production (Ci)			
					Lu_2O_3	Lu	Measurement of ampoule before solution injection (Ci) (EOB) ①	Measurement of ampoule before solution injection (Ci) Production date ②	Final production ③	Production rate (%) ③/②
1	IP-15 (C)	1.81×10^{14}	13.0	157 hr	0.50	0.441	6.87	3.48	2.20	63.2
2	IP-15 (C)	1.81×10^{14}	14.0	21 hr	0.50	0.441	7.20	6.58	4.73	71.8
3	IP-15 (C)	1.81×10^{14}	11.0	25 hr	0.50	0.441	8.25	7.40	4.40	59.5

① Radioactivity concentration (EOB) after neutron irradiation.
② Radioactivity concentration in quartz ampoule before ^{177}Lu production.
③ ^{177}Lu final radioactivity concentration.
※ Use of CRC-15R (CAPINTEC)

Table 3. ^{177}Lu production efficiency

^{177}Lu Production using new type quartz ampoule										
Batch No.	Neutron irradiation hole	Flux ($n \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1}$)	Irradiation time (d)	Cooling time (hr)	Raw materials (mg)		Measurement of production (Ci)			
					Lu_2O_3	Lu	Measurement of ampoule before solution injection(Ci) (EOB) ①	Measurement of ampoule before solution injection(Ci) Production date ②	Final production ③	Production rate (%) ③/②
4	IP-15 (C)	1.81×10^{14}	10.5	156 hr	0.61	0.533	8.5	4.32	3.65	84.5
5	IP-4 (D)	3.65×10^{13}	2.0	120 hr	0.21	0.185	1.4	0.83	0.71	85.5



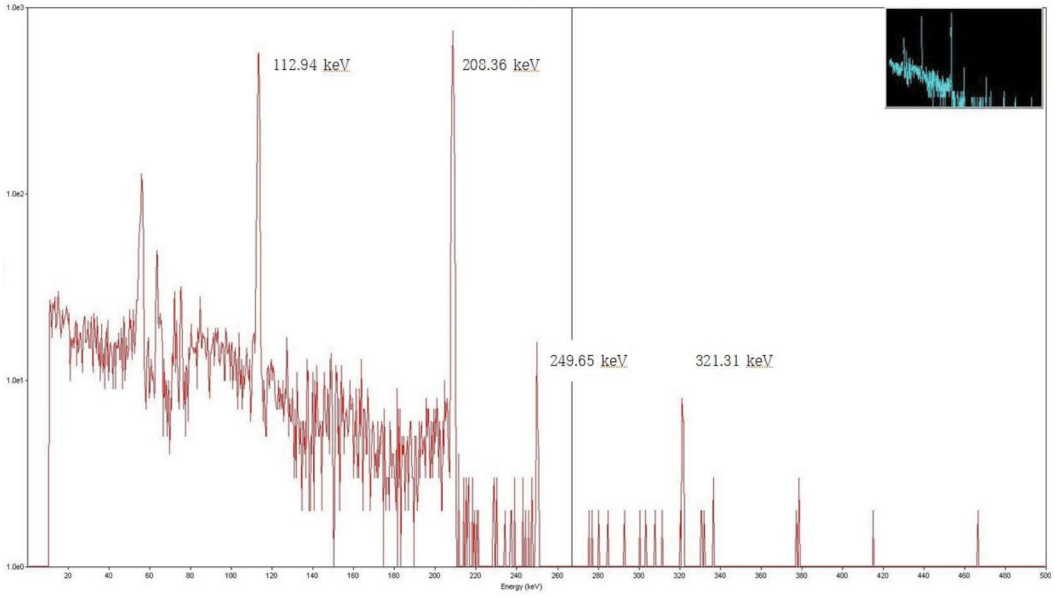


Fig. 3. MCA Measurement result.

오염이 발생하였으나, 새로운 형태의 석영용기를 제작하여 생산 시에는 기포의 흘러넘침 및 장치의 오염이 발생하는 현상을 줄이고 또한 안전하게 동위원소를 생산하는 데 문제가 없음을 확인하였다. 특히 새로운 형태의 석영용기에는 석영용기

안쪽에 깔대기 모양의 커버가 붙어 있어 생산 시 기포가 용기 밖으로 흘러넘치지 않도록 막아주는 역할을 하여 생산량 감소 없이 생산을 할 수 있었다. 그리고 두 종류의 석영용기로 생산한 생산량을 비교해 보면, 기존 석영용기로 ^{177}Lu를 생산 시 No.1의 회수율은 63.2%, No.2의 회수율은 71.8%, No.3의 회수율이 59.5%로 생산량(회수율)은 59.5~71.8%지만, 새로운 석영용기로 생산한 ^{177}Lu 회수율은 No.4가 84.5%, No.5가 85.5%로 생산량(회수율)은 84.5~85.5%로 새롭게 만든 석영용기가 기존 석영용기보다 평균 13.7~26% 많게 생산되는 것을 알 수 있었고, Table 2에 ^{177}Lu 생산량 및 생산효율을 정리하였다.

또한 ^{177}Lu 생산 후 방사성핵종순도 확인을 위해 생산용액 미량을 증류수를 이용하여 수 uCi 정도 되도록 희석하여 MCA 계측을 하였고, ^{177}Lu에 대한 주요 γ 방출에너지인 112.94 keV, 208.36 keV, 249.65 keV, 321.31 keV에 대한 에너지 값을 확인할 수 있었다.

결 론

본 연구는 방사성동위원소 생산 시 기포 발생으로 인한 장치 오염 및 생산효율 저하 등의 문제점을 개선하고, 보다 안정적으로 중성자 조사 및 생산량 손실을 최소화하기 위해 새로운 형태의 석영용기를 설계 제작하였고, 새롭게 제작된 석영용기를 이용해 ^{177}Lu 생산에 적용하였다. 새로운 석영용기는 기존 용기에 비해 ^{177}Lu 생산 시 발생하는 오염을 줄이고 보다 많은 생산량을 확보하였으며, 생산된 ^{177}Lu 용액의 품질 측정을 위한 MCA 계측(Fig. 3) 또한 좋은 결과 값을 얻을 수 있었다(Browne and Richard. Table of Radioactive Isotopes).

결과에서 생산 효율이 100% 미만인 것은 처리과정에서 사용하는 실린지나 필터링할 때 미량의 용액이 필터에 남아 있어 완전 회수가 어렵고, 이러한 점을 감안하면 85~90%는 이상적인 생산량이라 할 수 있다.

앞으로, 이러한 결과를 바탕으로 새로운 석영용기를 이용해 다양한 핵종의 방사성동위원소 조사 및 생산에 이용할 계획이다.

참 고 문 헌

Browne E and Richard B. Table of Radioactive Isotopes. Firestone.

IAEA-TECDOC-1340. 2003. Lutetium-177. Manual for reactor produced radioisotopes. 124-128.

Pillai MRA, Chakraborty S, Das T, Venkatesh M and Ramamoorthy N. 2003. Production logistics ^{177}Lu for radionuclide therapy. *Appl. Radiat. Isot.* **59**:109-118.

Received: 30 August 2021
Revised: 29 September 2021
Revision accepted: 30 September 2021