

## 無擔體 鐵-59製造에 關한 研究

原子力研究所 放射化學研究室

朴 青 植

(1965. 5. 11 受理)

### Preparation of Carrier-free Fe-59 by Korean TRIGA Mark II Reactor.

by

Keung Shik Park

Atomic Energy Research Institute, Seoul

(Received May 11, 1965)

#### Abstract

Possibility on carrier-free Fe-59 preparation by Korean TRIGA Mark II reactor was investigated, namely average cross section on  $\text{Co}^{59}(n, p) \text{Fe}^{59}$  reaction, separation by anion exchange resin and radiochemical purity. Radiochemical purity of Fe-59 separated was checked by the method of  $\gamma$ -ray spectrometry with 256-multichannel pulse height analyzer and of half life determination. This method permits Fe-59 preparation with radiochemical purity of  $>99.9\%$ .

#### 要 約

우리나라 研究用 原子爐 TRIGA Mark II 에 依한 無擔體의 Fe-59 를 製造할 目的으로 分離法과 放射化學的 純度 및 核反應斷面積을 檢討하였다. 分離된 Fe-59 를  $\gamma$ -ray spectrometry 와 半減期測定에 依하여 純度を 定한 結果 99.9%以上이었다.

#### I. 序 言

Fe-59 는 농축된 안정동위원소 Fe-58 을 熱中性子照射하여 만들어지고<sup>1)</sup> 있으나 現在 우리나라에서는 Fe-58 의 제조공란과 구득공란으로 자연철화합물을 열중성자 조사하여  $\text{Fe}^{58}(n, \gamma) \text{Fe}^{59}$ ,  $\text{Fe}^{54}(n, \gamma) \text{Fe}^{56}$  反應에 依한 Szilard Chalmers 方法을 利用하여 高比放射能의  $\text{Fe}^{55+59}$  2) 를 製造하고 있는 것이다. 그러나 Szilard Chalmers 過程에 依한 製法은 生成核種이 Fe<sup>55</sup> 과 Fe<sup>59</sup> 의 混合物로 存在할뿐더러 比放射能이 10mc/gr 程度에 지나지않아 人體나 生體實驗에는 많은 제한과 불편을 가져오고 있다. 더욱이 原子爐內部的 溫度上昇이나 여러가지 放射線에 依하여 target 物質이 分解<sup>3)</sup>할 우려가 있는 것이다. 그러므로 無擔體 Fe-59 의 製法으로는 爐內 速中性子에 依한  $\text{Co}^{59}(n, p) \text{Fe}^{59}$  反應이 考慮되는 것이며, Cobalt

금속이나 산화물을 target 로 쓰면 分解의 우려가 없이는 것이다. 이  $(n, p)$  反應의 結점으로서 Threshold Reaction 이므로 Fe-59 의 生成量이 많지 않으므로 爐內의 速中性子分布를 알아야하며, 同一한 照射條件으로  $\text{Ti}^{46}(n, p) \text{Sc}^{46}$  (Table I) 反應을 이르켜 速中性子束을 測定하여,  $\text{Co}^{59}(n, p) \text{Fe}^{59}$  反應의 斷面積을 求하였다.

#### 2. 實 驗

##### 2.1 Target 및 照射

Target 物質로는 Johnson Mathey 製인 Spectrographically Standardized Co-metal 과 Titanium Sponge 를 使用하였다. Cobalt 와 Titanium 各 1 gram 을 한 container 에 넣어 central thimble<sup>11)</sup>(central tube 上部부분

Table I Neutron Irradiation of Titanium.

Ti Isotope	Abundance(%)	Reaction	Produced R. I.	Half-life	Cross Section (millibarn)	$E_t$	$E_{eff}$
Ti-46	7.93	(n, p)	Sc-46	84 d	8.0 <sup>a</sup>	1.61	5.5
Ti-47	7.32	(n, p)	Sc-47	3.4 d	14.5 <sup>b</sup>	-0.17	3.7
Ti-48	73.99	(n, p)	Sc-48	1.83 d	0.42 <sup>c</sup>	3.28	7.2
Ti-49	5.46	(n, p)	Sc-49	57.2 min.	2.3 <sup>d</sup>	1.24	5.1
Ti-50	5.25	(n, p)	Sc-50	1.7 min.	0.05 <sup>d</sup>	5.61	9.5
Ti-50	5.25	(n, $\gamma$ )	Ti-51	5.79 min.	0.14 <sup>e</sup>	—	—

\* Thermal Neutron Cross Section (barn) a. b. c., Durham (1960)<sup>1)</sup> d. Table IV<sup>2)</sup>

Neutron Irradiation of Cobalt

Co Isotope	Abundance(%)	Reaction	Produced R. I.	Half-life	Cross Section (millibarn)	$E_t$	$E_{eff}$
Co-59	100	(n, $\gamma$ )	Co-60	5.2 y	36 <sup>a</sup>	—	—
Co-59	100	(n, p)	Fe-59	45 d	0.3 <sup>a</sup>	0.79	5.4

\* Thermal Neutron Cross Section a. Rochilin (1959)<sup>3)</sup>

터 밑으로 5.5m 의 (位置)에서 26 hr. 照射하였다.

확된 Fe-59 는 5N HCl 로 Cobalt fraction 을 씻어낸 후 물로 溶離하였다.

## 2.2 分 離

陰이온交換樹脂<sup>6)</sup>를 利用하여 生成된 Fe-59 를 分離하였다. 照射한 Cobalt metal 을 진한 질산에 녹여 蒸發乾固한후 진한 염산을 加하여 다시 蒸發乾固하여 鹽化物로 한 다음 5N HCl 에 녹여 Diaion SA-100 (100~200 mesh) anion exchanger 에 通過시켰다. 樹脂에 흡

## 2.3 放射化學的純度 및 化學收量

分離된 Fe-59 의 一定量을 取하여 256 Multichannel Pulse Height Analyzer 로 찍은  $\gamma$ -ray spectrum<sup>7)</sup> (Fig. 1)과 4 $\pi$   $\beta$ - absolute counting<sup>8)</sup>에 依하여 activity 를 測定하였다.

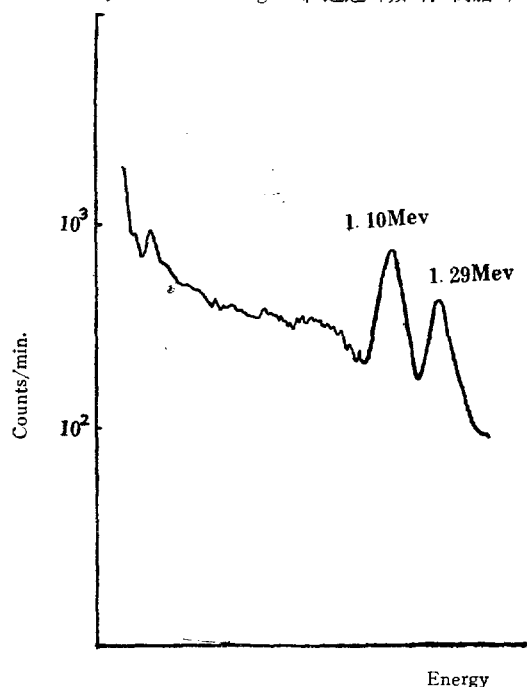


Fig. 1 Gamma-ray spectra of Fe-59.  
3'' x 3'' NaI(Tl) Crystal

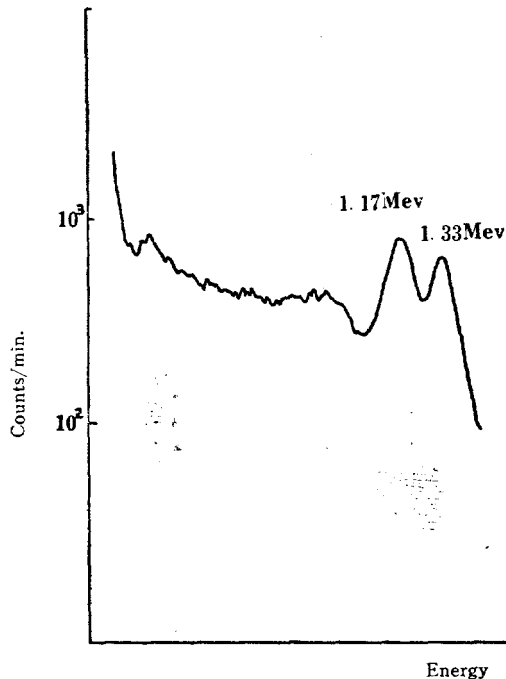


Fig. 2 Gamma-ray spectra of Co-60.  
3'' x 3'' NaI(Tl) Crystal

Fe-59 中에 極微量의 Co-60 이 存在할 可能性이 있으므로 Fe-59 의  $\gamma$ -ray spectrum 과 decay curve 를 調査 하였다. 卽 美國 National Bureau of Standard (NBS) 에서 만든 Co-60 의 1.17 Mev photopeak (Fig. 2) 와 分離된 Fe-59 의 1.10 Mev photopeak 를 比較(Fig. 4) 하였으며 6 個月間 減衰曲線을 그렸다. (Fig. 3)

化學收量을 求하기 爲하여 照射한 Cobalt target 용액에 一定量의 Fe carrier 를 加하여 isotopic exchange 가 되도록 한후 上記와 같은 方法으로 分離하여 分離된 Fe 를 重量法으로 定量하였다. 定量한 Fe 를 absolute counting 하여 Fe-59 의 全生成量을 求하였다.

2.4  $Co^{59}(n, p) Fe^{59}$  反應斷面積<sup>1)</sup>

TRIGA Mark II 爐 central thimble 에서  $Co^{59}(n, p) Fe^{59}$  의 平均反應斷面積이 어느정도인가를 알기 爲해서 우선 比較的 지금까지 실험치가 잘 알려져 있고 effective energy 가 비슷한  $Ti^{46}(n, p) Sc^{46}$  反應<sup>9)</sup> (Table I) 을 같은 조건으로 이르게서 生成된  $Sc^{46}$  을 測定(Fig. 5) 하므로써 effective neutron flux<sup>10)</sup> 를 求하였다.

3. 結果 및 考察

Central thimble<sup>11)</sup> 에서 26 hr. 照射하여  $5.4\mu\text{c/gr}$  Co 의 Fe-59 生産이 可能한 것으로 高比放射能, 放射化學的 純度로 미루어보아  $(n, p)$  反應은 Szilard Chalmers process 보다 優位라고 할 수 있다.

Anion exchanger 에 依한 Co-Fe 分離法<sup>6)</sup> 은 一般化學的 濃度에서 溶離曲線이 이미 잘 알려져 있는 바와 같

이 極微濃度의 Fe-59 分離時에도 分離가 잘 되었고 복잡한 조작이 必要치 않아서 방사선차폐를 爲한 remote control 이 간편하게 이루어질 수 있다. 樹脂로부터 녹

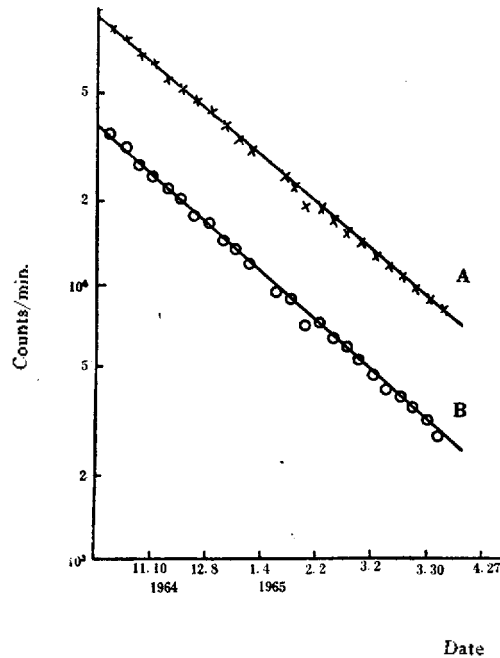


Fig. 3 Decay curve of separated Fe-59, 2''x2'' NaI (TI)  
I. Total gamma counting  
II. Gamma counting at 1.17Mev(Channel with 25)

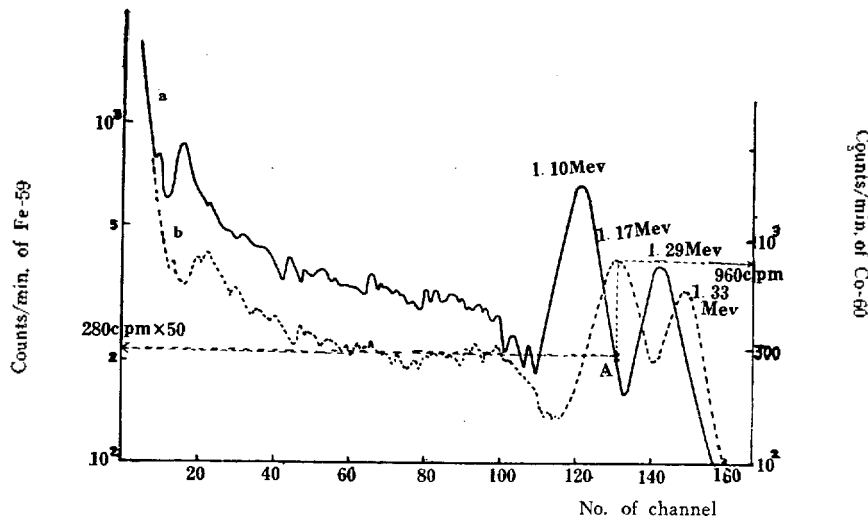


Fig. 4 Gamm-ray spectrum of Fe-59 and Co-60 Standard. 3''x3''NaI(Tl) Crystal. Solid line: Fe-59. Dot line: NBS Co-60.

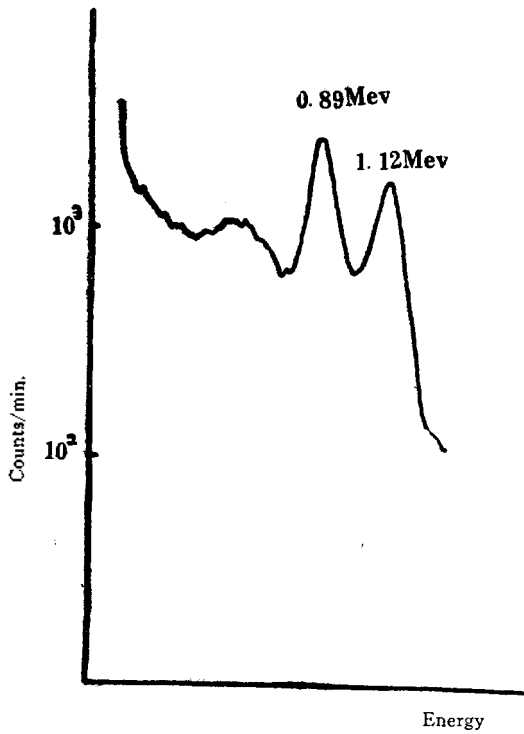


Fig. 5 Gamma-ray spectrum of Sc-46.  
3'' x 3'' NaI(Tl) Crystal

아 나오는 少量의 有機物質은 過酸化水素로 쉽게 파괴시킬 수 있었으므로 製品에는 別로 問題가 되지 않았다. 分離된 Fe-59의  $\gamma$ -ray spectrum (Fig. 1)에는 Co-60의 photo peak는 전혀 나타나지 않으므로 放射化學적으로 純粹한 것으로 生覺되나,  $\gamma$ -ray spectrum의 detection limit를 求하기 爲해서 美國 NBS 표준 Co-60 (Fig. 2)의 1.17 Mev 에 해당하는 channel 수를 Fe-59  $\gamma$ -ray spectrum에 적용시켜 (Fig. 4 point A) counting error 범위내에 1.17 Mev peak가 있다고 假定하여 計算한 결과 99.9% 以上の radiochemical purity를 갖고 있다고 할 수 있다.

卽 다시 말하면 Fig. 4 curve a, b에서 보는 바와같이 curve a는 分離된 Fe-59의  $\gamma$ -ray spectrum (Fig. 1과 같음)이고 curve b는 NBS Co-60 standard의  $\gamma$ -ray spectrum (Fig. 2와 같음)이며, 같은 channel 위에서 서로 비교하기 爲하여 그린 것이다.

Curve a에서는 Co-60의 1.17 Mev 에 해당하는點 A에서 어떤 peak도 나타나지 않고 있으나 A點에서의 통계적인 계수오차 범위내에 Co-60의 1.17 Mev peak가 들어 있다고 假定한다면 curve a의 A點에서 counting error인 118 counts/min.가 Fe-59 fraction속에 들

어 있는 Co-60이 기여하는 count 수라고 假定할 수가 있는 것이다. 또한 curve b에서 볼 것 같으면 NBS 2.2 x 10<sup>9</sup> dps의 Co<sup>60</sup> 1.17 Mev photopeak의 높이는 960cpm에 해당하므로, A點의 118cpm Co<sup>60</sup>은 268 dps에 해당한다고 볼 수 있다. 故로 Fe-59 生成量인 2.04 x 10<sup>6</sup> dps 中에는 268 dps의 Co-60이 存在하고 있으니까 0.1% 以下라고 할 수 있다. 故리므로 分離된 Fe-59는 99.9% 以上の 순도를 가진다고 생각할 수가 있다.

또한 6個月間에 걸친 減衰曲線 (Fig. 3)을 그려서 檢討한 결과 上記의  $\gamma$ -ray spectrometry로 순도결정한 것과 좋은 일치를 보여주고 있다.

Pile neutron에 의한 (n, p)反應의 反應斷面積의 檢討는 放射性同位元素製造時 重要하므로, Rochilin<sup>5)</sup>의 실험치 0.3mb과 비교, 再檢討하는 意味에서 上記한 實驗에서 얻은 값을 다음式에 代入하여 計算하였다.

$$A = N_0 \bar{\sigma}_{Eff} \Phi_{Eff} (1 - e^{-\lambda t}) \quad (1)$$

$N_0$  = Number of nuclide in target material

$\Phi_{Eff}$  = Total effective neutron flux

$\bar{\sigma}_{Eff}$  = Total average cross section

$\lambda$  = Decay constant of produced nuclide

$t$  = Irradiation time

$A$  = Activity produced

Ti<sup>43</sup>(n, p) Sc<sup>46</sup>反應에 依해서 生成된 Sc<sup>46</sup> activity를  $\gamma$ -ray spectrometry로 測定한 결과 1.4 x 10<sup>5</sup> dps 이므로, Table I의 斷面積 8mb을 式 (1)에 代入하여 計算하면  $\Phi_{Eff} = 1.8 \times 10^{12}$  n/cm<sup>2</sup>·sec였다. 또한 Co<sup>59</sup> (n, p) Fe<sup>59</sup>反應에 依하여 生成된 Fe<sup>59</sup>의 Activity는 2.0 x 10<sup>6</sup> dps (5.4  $\mu$ c)였으므로 (1)式에 代入하여 計算하면  $\bar{\sigma}_{Eff} = 0.4$ mb 이었다.

附 記: 本實驗中 여러가지로 助言해 주신 原子力研究所 實驗核物理研究室 金棋鉉 博士와 放射化學研究室 金永國先輩께 謝意를 表하는 바이며, 오랜동안 定期的으로 放射能測定을 하여준 盧錫周君의 勞苦에 感謝하는 바이다.

參 考 文 獻

- 1) ORNL-3633 TID-4500
- 2) 原子力研究所彙報 第2卷 p. 56
- 3) JAERI R.I. 製-60-4
- 4) J.C. Roy et al., CRC-1003(1960)
- 5) Rochilin, *Nucleonics*, 17, No. 1, 54 (1959)
- 6) Kraus A. et al., *Proceedings of the First International Conference on the Peaceful Use of Atomic Energy, Geneva*, Vol. 7, pp. 113 (United Nations)

- 7) R. L. Heath. *Scintillation Spectrometry* (Philips Petroleum Co., 1964)
- 8) L. Yaffe et al., *Meteology of Radionuclides* (I. A. E. A., 1960)
- 9) Mellish, C. E., *A. E. R. E. R.*-3251
- 10) *A. E. R. E.* 1/R 2630, BMI-1486
- 11) *Directory of Nuclear Reactor*, Vol. III (I. A. E. A., 1959), pp. 239
- 12) K. S. Park, "Preparation of Co-58", *AERI*, C/R-6 (1963)