

原子力 講座

放射線 및 放射性同位元素 —生産, 利用과 防禦(2)—



金載祿

〈韓國에너지研·同位元素室長〉

《承 前》

(4) 照射收率 (irradiation yield)

例 : Na_2CO_3 (MW = 106) 를 原子爐에서 照射하여 ^{24}Na ($T_{1/2} = 15 \text{ h}$, β , γ 放出體) 를 生産한다고 하자. ^{23}Na 의 (n, γ) 反應斷面積은 0.53 barn인 데 표적 5g을 $1 \times 10^{12} \text{n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 的 中性子束密度에서 60시간 照射할 경우 生成放射能 A는

$$A = 10^{12} \times 0.53 \times 10^{-24} \times \frac{2 \times 5}{106} \times 6.02 \times 10^{23} (1 - e^{-0.693 \times \frac{60}{15}})$$

$= 2.8 \times 10^{10} \text{ dps}$, (dps = disintegration per sec)

한편, 싸이클로트론에 의한 생산에서는 $k (\approx \frac{\Delta N}{t_{\text{irr}}}) = 6.24 \times 10^{18} i \sigma N_{\nu} x Z^{-1}$ (얇은 표적) (10) 이다. 여기서 $N_{\nu} x$ 는 단위넓이 당 target 原子数이다. 그리고 싸이클로트론에서의 照射에서는 다음과 같은 관계식들이 成立한다.

$$i = q I_0 = e Z I_0 \quad \therefore I_0 = \frac{i}{e Z} \quad \dots \dots \dots \quad (11)$$

$\therefore I_0 = 6.24 \times 10^{18} i Z^{-1}$, (6.24×10^{18} charged particle / sec)

앞에서

i ; 전류 (ampere)

I_0 ; incident particle current (particles sec⁻¹)

e ; 1.6×10^{-19} coulomb

q ; particle의 charge

Z; charge in electron unit on the particle

(eg; He^{2+} 에 대해서는 +2)

^{24}Na 는 싸이클로트론에서 $^{26}\text{Mg}(d, \alpha)^{24}\text{Na}$ 에 따라 生成된다. 22MeV D⁺이온에 대한 反應斷面積은 약 25mb이다. 0.1mm 두께의 Mg foil (MW = 24.3, $\rho = 1.74 \text{ g/cm}^3$) 은 projectile beam보다 넓다고 하고, 100 μA 로 2시간 照射할 때 ^{24}Na 의 生成放射能 A는 (단, 자연產 Mg는 ^{26}Mg 를 11% 包含한다고 본다)

$$A = 6.24 \times 10^{18} \times 100 \times 10^{-6} \times 25^{-0.693 \times \frac{2}{15}} \times 10^{-27} (0.11 \times \frac{1.74}{24.3} \times 6.02 \times 10^{23} \times 0.01) \times (1 - e^{-0.693 \times \frac{2}{15}}) = 6.53 \times 10^7 \text{ dps}$$

(5) 生產品 明細 (product specification)

RI product는 여러가지 化學形으로 되어 있다. RI catalogue에는 放射線源 (radioactive source), 無機物形態의 1次 RI, 有機物形態의 2次 RI (標識化合物) 等의 化學形, 生成物의 純度, 最大比放射能, 放射線特徵, 標識化合物에서의 標識位置 等이 明示된다.

1) 放射化學的處理 (Radiochemical processing)

照射된 표적을 純粹한 放射性化合物로 할 때 까지는 길고도 지루한 處理過程을 必要로 한다. 放射化學의 精製를 위한 分離過程들은 追跡子 準位의 實驗室이나 原子爐燃料處理에서의 그것과 類似하다. 가장 혼히 쓰는 技術은沈澱, 이온交換, 溶媒抽出, 電氣浸漬, 電氣泳動, 蒸溜 等이며 處理의 基本目的은 放射性不純物 (radioactive contaminants)을 除去하고 安定同位元素 (carrier)에 의한 희석을 最大限 防止하는데 있다.

2) 比放射能

比放射能이란 g當 放射能 또는 mole當 放射能을 말하며 방사성핵종들을 이용할 때에 중요한 概念中의 하나이다. 最大比放射能은 放射性核種이 그 元素에서 唯一한 同位元素인 경우이다. 原子爐에서의 단순 (n, γ)反應에 의해서는 最大比放射能核種을 얻을 수 없다. 例를 들어 原子爐에서 生產된 ^{24}Na 는 보통 5Ci/g 정도인 反面, 加速器生産 ^{24}Na 는 $\geq 10^3\text{Ci/g}$ 이다. 그러나 全體生成放射能은 보통 반대가 된다.

Carrier free인 放射性試料란 放射性核種이 同位元素原子에 의해 희석되지 않은 것을 말한다. $^{23}\text{Na}(n, \gamma) ^{24}\text{Na}$ 반응에 의해 原子爐에서 생산한 ^{24}Na 는 많은 양의 ^{23}Na 를 含有하므로 carrier free가 아니다. 만약 $^{26}\text{Mg}(d, \alpha) ^{24}\text{Na}$ 인 핵반응으로 加速器에서 생산했다면 ^{24}Na 의 양은 極微量이어서 그 精製를 위해서는一般的 分離方法을 適用하기 困難하다. 이 경우 isotopic 또는 non-isotopic carrier를 가해서 정제조작하지 않으면 精製가 어려울 때가 많다.

3) 放射化學的純度 (Radiochemical purity)

RI를 利用함에 있어서 반드시 고려해야 할 사항은 방사화학적순도이다. 왜냐하면 여러 元素로 된 몇가지 放射性核種들이 實驗中인 追跡子試料中에 存在하면 그 實驗結果가 모호해 질 뿐만 아니라 잘못된 結果를 얻을 수도 있기 때문이다. 放射化學의 純粹한 試料에서는 모

든 放射能이 단일 isotope으로 부터 나오는 경우, 試料를 放射性核種純度 (radionuclidic purity 또는 radioisotopic purity)가 높다고 한다. 그와 같은 純度는 半減期測定만으로도 大略 確認할 수 있다.

어떤 化合物이 RI로 標識되어 있는 標識化合物 (labelled compound)을 이용할 경우에는 그 化合物의 放射化學的純度 (radiochemical purity)를 確認해야 하며 RI純度 (radioisotopic purity)만을 確認해서는 안된다. 왜냐하면 放射能이 特定化合物中에 導入된 特定元素로 부터 放出되어야 그 追跡子化合物를 正確히 追跡하는 것이 되기 때문이다. 放射化學的純度는 GC, TLC, PC 투석, 이온교환, 용매추출 등의 조작에 의해 確認된다.

4) 放射性崩壊 特性

放射性崩壊樣式 (decay mode), 崩壊에너지, 반감기 等은 RI利用에 必要한 데이다. 이와 같은 데에는 혼히 nuclear decay scheme으로 표시된다.

5) β 에너지 吸收過程

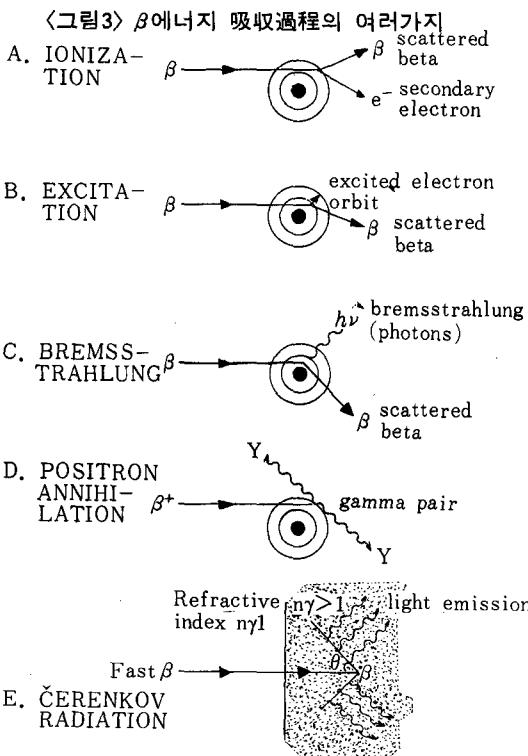
電子線 (electron beam)의 높은 에너지는 원자의 軌道電子 및 原子의 電磁場 (electromagnetic field)과의 相互作用으로 因하여 吸收된다.

그와 같은 過程들을 그림 3에 要約 表示하였다. 加速器로 부터의 電子와 β 崩壊의 電子를 區別하기 위하여 後者를 β 粒子라고 부르고 있다.

(가) Bremsstrahlung (制動輻射)

Bremsstrahlung은 β 粒子가 原子核에 接近했을 때 核의 \oplus 電場에 이끌려 回折되어 減速되어 電磁波가 發生한다. 이 電磁波를 Bremsstrahlung이라고 한다. 이때 β 粒子의 에너지減少 程度는 發生하는 電磁波의 量에 該當된다. Bremsstrahlung 發生에 기인한 β 粒子의 에너지損失은 β 에너지의 크기와 吸收體의 原子番號에 比例한다.

(나) 陽電子消滅 (positron annihilation)



陽電子도 이온화 励起, bremsstrahlung, cerenkov放射線 等 陰電子와 같은 方式으로 物質과作用하여 吸收된다. 陽電子의 運動에너지는 吸收體에 의해 減少되므로 陽電子와 陰電子의 質量은 電子波로 轉換된다. 이 過程을 陽電子消滅(positron annihilation)이라고 하며 陽電子 存在確認을 위한 特異한 手段이 되고 있다.

陽電子質量은 0.51MeV이며 消滅하는 粒子의 運動에너지는 實際로 zero이기 때문에 消滅過程에 대한 에너지는 1.02MeV이다. 에너지保存을 위해 적어도 두 個의 photon이 같은 에너지를 가지고 反對方向으로 發生되어야 한다. 이 0.51MeV의 photon을 消滅放射線(annihilation radiation)이라고 한다. γ spectrum上 0.51MeV의 γ 線은 그核種으로 부터의 陽電子放出을 立證한다.

(d) Cerenkov 放射線

物質속에서 光速度 c 는 折率 n_r 에 의존된다. 즉, $c = Cn_r^{-1}$ (12)

$$n_r(H_2O) = 1.33$$

$$n_r(p, g) = 1.50 \text{ (pg; plexiglass)}$$

대개 0.6MeV보다 큰 에너지를 가진 β 粒子는 물에서 빛의 속도보다 빠르다. 粒子速度 (V_p)가 $V_p > c$ 이면 電磁波가 發生한다.

Cerenkov放射線은 높은 放射性 溶液에서 볼 수 있는 푸른 빛 (bluish light)이며 물에 담겨 있는 原子爐燃料棒 周圍에서도 볼 수 있다. 따라서 그와 같은 放射線은 β 粒子의 檢出에도 利用된다.

6) 永續放射平衡과 一時放射平衡

放射性崩壊로 생기는 娘核種(daughter nuclide)도 역시 방사성이면 일정한 반감기로 放射性崩壊하는 연속적 放射性崩壊(successive radioactive decay)가 일어나게 된다.

$$X_1 \xrightarrow{\lambda_1} X_2 \xrightarrow{\lambda_2} X_3 \xrightarrow{\lambda_3} X_4 \dots \quad (13)$$

이런 경우 daughter atom X_2 의 生성속도는

$$\frac{dN_2}{dt} = N_1 \lambda_1 - N_2 \lambda_2 \quad (14)$$

N_1, N_2 는 각기 parent와 daughter atom 수이며 λ_1, λ_2 는 각기 parent와 daughter atom의 崩壊정수이다.

$$\text{한편 } N_1 = N_1^0 e^{-\lambda_1 t} \quad (15)$$

(15)를 (14)에 넣어

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1^0 e^{-\lambda_1 t} - \lambda_2 N_2 \quad \text{또는}$$

$$\frac{dN_2}{dt} + \lambda_2 N_2 = \lambda_1 N_1^0 e^{-\lambda_1 t} \quad (16)$$

(16)에 $e^{\lambda_2 t}$ 를 곱하면

$$e^{\lambda_2 t} \cdot \frac{dN_2}{dt} + \lambda_2 N_2 e^{\lambda_2 t} = \lambda_1 N_1^0 e^{(\lambda_2 - \lambda_1)t} \quad \text{또는}$$

$$\frac{d}{dt}(N_2 e^{\lambda_2 t}) = \lambda_1 N_1^0 e^{(\lambda_2 - \lambda_1)t} \quad (17)$$

$$\left. \begin{aligned} \frac{d}{dt}(N_2 e^{\lambda_2 t}) &= e^{\lambda_2 t} \frac{dN_2}{dt} + N_2 \frac{d}{dt} e^{\lambda_2 t} \\ &= e^{\lambda_2 t} \frac{dN_2}{dt} + N_2 \lambda_2 e^{\lambda_2 t} \end{aligned} \right\}$$

(17)을 積分하여

$$\int \frac{d}{dt}(N_2 e^{\lambda_2 t}) dt = \lambda_1 \int N_1^0 e^{(\lambda_2 - \lambda_1)t} dt$$

$$N_2 e^{\lambda_2 t} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1^0 e^{(\lambda_2 - \lambda_1)t} + C \quad \dots \dots \dots \quad (18)$$

(18)에 $e^{-\lambda_2 t}$ 를 곱하면

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1^0 e^{-\lambda_1 t} + C \cdot e^{-\lambda_2 t} \quad \dots \dots \dots \quad (19)$$

적분상수 C 는 $t = 0$ 때 N_2 가 어떤一定值인 N_2^0 = N_2^0 라고 표시함으로써만決定되며 그때 (19)式은 $t = 0$ 이므로

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1^0 + C, \quad N_2 = N_2^0 \text{이므로}$$

$$C + \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1^0 = N_2^0 \quad \therefore C = N_2^0 - \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1^0 \quad \dots \dots \dots \quad (20)$$

(20)에 (19)을 넣어 정리하면 N_2 에 對한 解를 시간의 함수로 얻게 된다.

$$\begin{aligned} \text{즉, } N_2 &= \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1^0 e^{-\lambda_1 t} + \left(N_2^0 - \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1^0 \right) e^{-\lambda_2 t} \\ &= \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1^0 (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) + N_2^0 e^{-\lambda_2 t} \quad \dots \dots \dots \quad (21) \end{aligned}$$

그런데 처음에는 N_1 만이 나타날 것이며 상수 $N_2^0 = N_3^0 = 0$ 이므로 (21)식은

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1^0 (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \quad \dots \dots \dots \quad (22)$$

$\lambda_1 \ll \lambda_2$ 인 경우 관측시간이 N_1 의 반감기에 비하면 극히 짧은 것임으로

$N_1 = N_1^0$ 이며

(22)식은

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2} \cdot N_1 (1 - e^{-\lambda_2 t}) \quad \dots \dots \dots \quad (23)$$

(23)식에 의하면 N_2 는 daughter 핵종의 반감기에 따라 증가함을 나타내고 있다.

즉, daughter atom의 최대값은 $t = \infty$ 인 때이며 이때

$$N_2 \lambda_2 = N_1 \lambda_1 \quad \dots \dots \dots \quad (24)$$

어느 시간 후에는 daughter atom수가一定하게 되며 그 때에는 daughter atom의崩壊速度가 parent atom의崩壊速度와 같아지게 된다.

그때에도 parent atom수와 daughter atom수는 같지 않으며 N_2 는 N_1 에 비해 매우 작다. $A_1 = A_2$ 인條件을 永續放射平衡이라 한다. 永續放射平衡의 예는 ^{238}U ($T_{\frac{1}{2}} = 4.5 \times 10^9$ y) 와 ^{234}Th ($T_{\frac{1}{2}} = 24.1$

d) 및 ^{137}Cs ($T_{\frac{1}{2}} = 30$ y) 와 ^{137m}Ba ($T_{\frac{1}{2}} = 2.6$ m) 등이다.

어느 경우에는 parent atom의 반감기가 daughter atom반감기보다 길지만, 관측하는 동안에 몰라볼 수 있을 만큼 길지 않은 경우도 있다.

(22)식을崩壊정수 대신 반감기로, 또 원자수 대신 放射能으로 표시하면

$$\begin{aligned} A_2 &= \frac{\frac{T_1}{\frac{1}{2}, 2}}{\frac{T_1}{\frac{1}{2}, 1} - \frac{T_1}{\frac{1}{2}, 2}} A_1^0 \\ &\quad (e^{-0.693t/T_{\frac{1}{2}, 1}} - e^{-0.693t/T_{\frac{1}{2}, 2}}) \quad \dots \dots \dots \quad (25) \end{aligned}$$

$t \ll T_{\frac{1}{2}, 1}$ 이면 첫 exponential항은 1에 가까워지며, A_2 는 $(1 - e^{-0.693t/T_{\frac{1}{2}, 2}})$ 에 比例하여 커지게 된다. $t > T_{\frac{1}{2}, 2}$ 이면 두번째 exponential항은 첫번째 항보다 매우 작아져서 A_2 는 $e^{-0.693t/T_{\frac{1}{2}, 1}}$ 에 比例하여 줄어들게 된다.

이렇게 되었을 때

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1 \quad \dots \dots \dots \quad (26)$$

이 成立되며, 이 식은 一時放射平衡을 나타낸다. 일시방사평형의 예는 ^{140}Ba ($T_{\frac{1}{2}} = 12.8$ d) 와 ^{140}La ($T_{\frac{1}{2}} = 40$ h) 이다.

그림 4 및 그림 5에 永續放射平衡과 一時放射平衡을 각각 나타내었다.

6. 標識化合物 (Labelled Compounds)

1) 定義

어느 化合物의 한 原子 또는 原子團을 RI로 標識(label)한 화합물을 말한다.

2) 種類

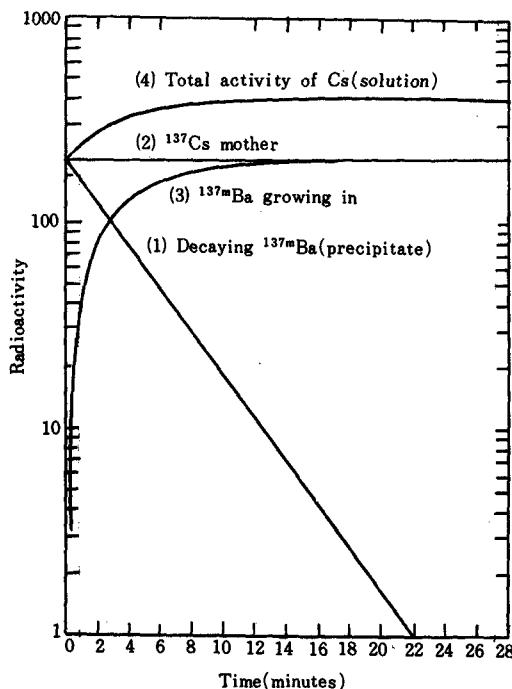
(가) 完全 標識化合物

어느 화합물중의 원자 또는 원자단을 그 원자 또는 원자단의 RI로 바꾸어 넣은 것을 말한다.

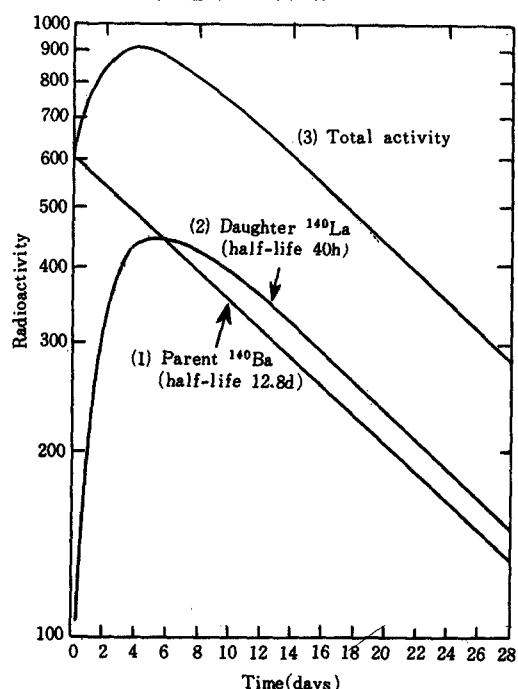
예 : 식초산(CH_3COOH)의 완전표지화합물은 $\text{CH}_3^{14}\text{COOH}$ 이다.

(나) 不完全 標識化合物

〈그림4〉 永續放射平衡



〈그림5〉 一時放射平衡



어느 화합물중의 원자 또는 원자단을 그 원자 또는 원자단의 RI가 아닌 제3의 원소(방사성)로 바꾸던가, 방사성인 다른 원자단을 도입하여 원래의 화합물과 화학적으로 같지 않은 표지화합물을 말한다.

예 : 올레산($\text{CH}_3(\text{CH}_2)_7\text{CH}=\text{CH}(\text{CH}_2)_7\text{COOH}$)의 不完全 표지화합물로서 ^{131}ICl 이 부가된 $\text{CH}_3(\text{CH}_2)_7\text{CHCl}^{131}\text{ICH}(\text{CH}_2)_7\text{COOH}$

3) 표지화합물의 필요조건

○ 표지한후 可能한한 원래의 化學的性質이 그대로 保存되어야 한다.

○ 표지위치를 알 수 있어야 하며, 추적자로 이용하는 동안 안정해야 한다.

○ 도입한 RI의 반감기 및 에너지는 적당해야 한다.

○ 불완전표지화합물을 생체에 이용하는 경우, 새 원자 또는 원자단의 도입으로 毒性을 띠게 되거나, 전혀 다른 생물학적 거동을 나타내어서는 안된다.

4) 불완전표지화합물의 특성

원래는 완전표지화합물로 해서 이용해야 하나, 다음과 같은 경우에 부득이 그 유사물질인 불완전표지화합물을 만들어 추적자로 이용한다.

○ 적당한 에너지와 반감기를 가진 RI가 없다.

○ 적합한 RI는 있으나, 표지가 어렵다.

○ 표지까지도 가능하긴 하나, 비용이 너무 많이 듈다.

따라서 유사물질을 만들어 이용하려면 원래의 화합물형태를 너무 많이 바꾸면 안되므로 가능한 한 방사능계측에 충분히 만큼의 RI만을 도입(분자당 1개 또는 1개이하의 RI)하고, 이렇게 하여 얻은 불완전표지화합물이 원래의 화합물과 같은 행동을 한다는 사실을 입증한 후에 사용해야 한다. ^{131}I 로 표지한 인혈청(人血清) 일부분은 역시 대표적인 不完全標識化合物이며 微量標識하여 얻는다.