Journal of Radiation Industry 1 (2) : 115~122 (2007)

Technical Paper

하나로를 이용한 ^{14}C 생산공정 개발

이종섭[1] · 이준식* · 홍선욱[1] · 박상준 · 박울재 · 손광재 · 한현수 · 류승곤[1]

한국원자력연구원, [1]충남대학교

Development of ^{14}C Production Process by Utilizing HANARO

Jong Sup Lee[1], Jun Sig Lee*, Sun-uk Hong[1], Sang-joon Park, Ul-jae Park, Kwang-Jae Son, Hyon-Soo Han and Seungkon Ryu[1]

Korea Atomic Energy Research Institute 1045 Daedeok-daero, Yuseong-gu, Daejeon 305-353
[1]Chungnam National University 79 Daehak-ro, Yuseong-gu, Daejeon 305-764

Abstract − As a radiotracer in the form of labeled compounds, a substantial amount of ^{14}C has been consumed in the nation. However the production technology of ^{14}C has not been developed domestically. Hence, both a numerical and experimental studies have been performed to evaluate the possibility of the production of this radionuclide by utilizing HANARO. From the results of the numerical study, it becomes clear that the $^{14}N(n, p)^{14}C$ reaction occurs mostly by the thermal neutrons, and the radionuclide can be produced at irradiation holes with a lower neutron flux such as IP holes at HANARO. Average production rates estimated by the computational study are 15.7, 10.7, and 4.7 mCi g^{-1} yr^{-1} at Ir-1, OR-3, and IP-15 irradiation holes, respectively. To conduct an experimental production of ^{14}C, 49 mg of aluminum nitride was irradiated for 40 days at IP-5 holes. By this experiment, approximately 9.5 μCi of $^{14}CO_2$ was recovered. To recover $^{14}CO_2$ from the irradiated target, an efficient wet process is developed. Also, optimal conditions of pelletizing and calcining of the aluminum nitride target are established. By this study, it concluded that the production of ^{14}C at HANARO is possible if the irradiation capsule is sound enough by the several years of irradiation.

Key words : Radioisotopes, ^{14}C, HANARO, Neutron irradiation

서 론

저에너지 베타선원 방출체인 ^{14}C는 ^{3}H와 함께 표지화합물 형태로 가장 많이 이용되고 있는 순수 베타 방출 방사성동위원소이다. ^{14}C는 유기화합물의 기본요소인 탄소의 동위체로서 약물 전달 시스템 (Dischino *et al*. 1997), 임상 연구 (Desroches *et al*. 1997), 환경 분야 (Walker *et al*. 2004) 등과 같은 분야에서 생리활성이나 대사추적, 환경변화추적 등의 방사성추적자로 이용되고 있다. ^{14}C는 긴 반감기 (5,370 year)를 가지고 있고 낮은 베타 에너지를 방출하며 표지화합물로 제조하여 장기간 보관하면서 필요에 따라 사용할 수 있기 때문에 사용하기가 매우 용이하다.

이러한 ^{14}C는 원자로를 이용하여 제조되는 데 다음과 같은 $^{14}N(n, p)$ 반응으로 생성된다 (Moriy *et al*. 1992).

* Corresponding author: Jun Sig Lee, Tel. +82-42-868-8416, Fax. +82-42-868-4428, E-mail. jlee15@kaeri.re.kr

핵반응:

$^{14}N_7 + ^{1}n_0 \rightarrow ^{14}C_6 + ^{1}p_1$, σ=1.81b, t(1/2)=5,370년 (1)

연구용 원자로에서 상기 반응으로 생성된 ^{14}C는 $^{14}CO_2$ 형태로 회수되어 알칼리염인 barium carbonate ($BaCO_3$)나 유기합성의 기본물질인 methane (CH_4), benzene (C_6H_6) 등과 같은 표지화합물 전구체로 만들어져 공급되며, 주 공급국으로 미국, 러시아, 영국 등을 들 수 있겠다.

국내의 경우, 2004년도 기준으로 약 28.6 Ci의 ^{14}C가 연구 및 교육 목적으로 사용된 것으로 나타나고 있다 (채 2005). ^{14}C는 대부분 표지화합물 형태로 해외에서 수입되어 사용되고 있다. 국내에서도 일부 표지화합물이 주문 생산방식으로 제조되고는 있지만, 그 생산량은 총 수입량 대비 10% 정도이며 이 또한 대부분 해외공급용으로 제조되고 있다. 이처럼 국내에서 상당한 량의 ^{14}C 표지화합물이 이용되고 있음에도 불구하고 표지화합물의 생산량이 미미한 이유 중 하나는 그 기초 원료인 ^{14}C가 국내에서 생산되지 않기 때문이다.

일반적으로 원자로를 이용하여 ^{14}C를 생산할 경우, 표적으로부터 ^{14}C를 CO_2 형태로 회수하여 화학적으로 안정된 탄산염 형태로 제조하여 표지화합물을 합성하는 초기물질로 이용한다. 특히 $Ba^{14}CO_3$가 주로 이용되는데 이물질은 화학적으로 매우 안정하여 장기간 보관할 수 있다는 장점을 가지고 있다. 원자로에서 조사된 표적으로부터 $^{14}CO_2$를 발생시키고 이를 알카리염 형태로 회수하는 방법에는 습식법인 화학적 산화법(Jiang 2003)과 건식법인 고온산화법이 이용되고 있다 (Motoish 1987). 습식 산화법은 ^{14}C 생산용 표적으로 주로 이용되는 Aluminum Nitride (AlN)를 Karl Fisher법 (Dean 1972)으로 용해시킨 후 산화제를 가함으로써 표적내에 존재하는 ^{14}C를 $^{14}CO_2$로 산화시켜 회수하는 방법이다. 고온 산화법은 밀폐된 용기 내에 표적을 넣고 산소를 공급하면서 900°C 이상의 전기로를 이용하여 ^{14}C를 $^{14}CO_2$ 형태로 산화시켜 회수하는 방법이다. 하지만 이 두 경우 모두 불완전 산화에 의한 ^{14}CO가스가 발생할 우려가 있는 데, 이 경우 CO의 낮은 용해도로 인해 알칼리 포집용액의 포집 효율이 떨어지게 된다. 따라서 고온산화 촉매를 산화장치 (화학반응조 혹은 전기로) 후단에 설치하여 ^{14}CO를 $^{14}CO_2$로 변환시킴으로써 회수수율을 높이는 방법이 이용되고 있다.

발전용 원자로에서 발생하는 폐가스를 처리하기 위해 ^{14}C 회수와 관련된 연구 (안 등 2005)가 국내에서도 일부 진행된 바 있지만 표지화합물용인 고 순도 ^{14}C의 생산과 관련된 연구는 전무하였다. 따라서 본 연구에서는 고 순도 ^{14}C를 '하나로'에서 생산하기 위한 기초연구로서, 컴퓨터 모사를 통한 ^{14}C 생성량 평가 및 중성자 조사 후 표적처리를 통한 ^{14}C 회수율 평가 등의 연구를 수행함으로써 ^{14}C 국내 생산 가능성을 평가하였다. 본 논문에서는 ^{14}C 생성량에 대한 이론치와 실험치를 비교 분석하고 개발된 제조기술 현황을 발표함으로써 향후 국내 ^{14}C 생산의 기초자료로 제공하고자 한다.

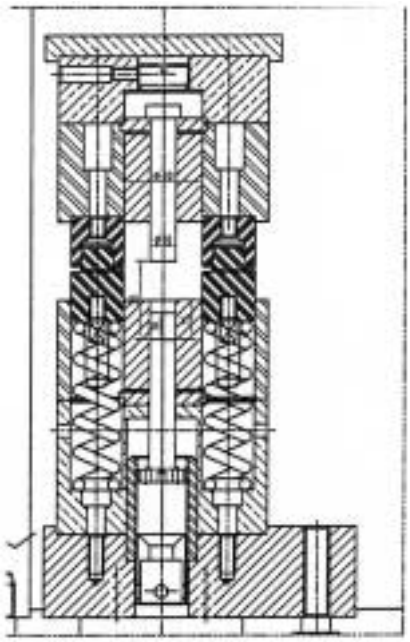

Fig. 1. Pellet molding unit that to be mounted on a hydraulic compressor to fabricate an AlN pellet.

재료 및 방법

1. 표적펠릿 제조

Aluminum Nitride (AlN) 분말을 가압성형하여 펠릿을 제조하고 고온 소결하여 '하나로'에 조사시킬 목적으로 표적을 만들었다. 펠릿제조에 사용된 AlN은 순도가 99.9%로 미국 Atlantic Equipment Engineering Co.로부터 직수입하여 입도가 100～325 mesh인 분말만을 체에 걸러 120°C 건조기에서 건조시켜 사용하였으며, 펠릿제조에는 Fig. 1과 같은 형태의 3, 16 및 20 mm 내경의 성형틀로 3종의 펠릿을 제작할 수 있도록 하였다. 또한 펠릿 제조시 성형압에 따른 밀도의 변화를 관찰하여 최적의 조건을 도출하였다. 또한, 불순물 제거 및 펠릿 안정화를 위해 1,000°C 전기로에서 소결하였다.

'하나로'를 이용한 ^{14}C 제조실험을 위하여 약 50 mg AlN을 외경 3 mm 크기의 펠릿으로 제작하였으며 이 때

Fig. 2. Production process of a target capsule for AlN pellet.

성형압은 4,000 kg_f cm^{-2}이었다. 소결은 1,000°C 고온 전기로에서 1시간 동안 10°C min^{-1}로 온도를 상승 시켰고, 초순수 질소가스(99.99%)를 약 3 l min^{-1} 속도로 소결용 초자에 불어넣어 산화를 방지하였다.

2. 중성자 조사

AlN 표적으로부터 ^{14}C의 생성량을 실험적으로 측정하기 위하여 외경이 약 3 mm인 펠릿을 '하나로' IP-5번 홀에서 2주기(총 41일) 동안 조사하였다. 소결한 3 mm 크기 펠릿을 석영관에 넣고 알루미늄 호일로 포장한 후 '하나로'에서 방사성동위원소 생산에 이용되는 내부 및 외부용기에 차례로 넣은 후 밀봉하였다(Fig. 2). '하나로' IP-5번 홀의 중성자속은 5×10^{13} n cm^{-2} s^{-1}이다. 조사된 표적은 충분한 기간 동안 저장하여 불순핵종이 완전히 감쇠되도록 하였고 펠릿의 방사능을 이온전리함으로 측정하여 방출되는 감마선이 없음을 확인하였다.

3. ^{14}C 회수실험

조사된 표적으로부터 ^{14}C를 CO_2형태로 산화시켜 회수할 목적으로 Fig. 3과 같이 반응조, 촉매관, 열교환기, 회수용기로 구성되어 있는 장치를 제작하였다. 본 실험에서는 AlN 펠릿을 $SnCl_2$-H_3PO_4 용액 30 ml가 든 반응조에서 100°C 이상으로 가열하여 용해시킨 후 산화제인 중크롬산 용액 20 ml를 가해 $^{14}CO_2$를 생성시키고, 약 750°C 산화구리(CuO) 촉매관과 열교환기를 통과시켜 2단의 2.5 M 수산화나트륨 용액으로 포집하여 회수하였다. AlN 펠릿 용해에 이용된 Sn(II)-H_3PO_4 용액은 $SnCl_2$ (Aldrich Chemical Co.) 2 g과 H_3PO_4 (Fisher Scientific Co. 85~90%) 30 ml를 반응용기에 넣고 열을 가해 $SnCl_2$를 용해시켜 만들었는데, 실험에 이용하기 전에 초순수 질소가스(99.99%)를 10 cc min^{-1} 유속으로 10분 이상 흘려

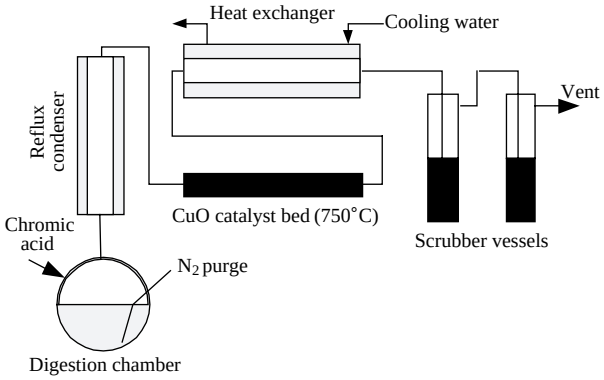

Fig. 3. Wet processing system for the production of $^{14}CO_2$ from irradiated AlN Pellet.

용액 내에 존재할 수 있는 CO_2를 제거하였다. 중크롬산 용액은 $K_2Cr_2O_7$ 12 g을 증류수 20 ml에 넣어 열을 가해 potassium chromate 용액을 만든 후 이를 진한 황산(98%) 1 l와 섞어 제조하였다. 이 중 회수실험에는 용액 20 ml를 취해 사용하였다. 회수용액으로 이용한 2.5 M 수산화나트륨 용액의 제조에는 순도가 99.998%인 NaOH (Aldrich Chemical Co.)를 고순도 질소를 흘려 물에 용해된 CO_2를 제거한 증류수에 녹여 이용하였는데, 2단의 회수용기에는 각각 30 ml를 채웠다.

4. 방사능 측정

일차 및 이차 포집용액에 포집된 $^{14}CO_2$의 방사능량과 반응조 용액 내에 남아있는 $^{14}CO_2$의 방사능량을 측정하기 위하여 액체섬광계수법을 이용하였다. 방사능량 분석에 이용한 액체섬광계수기는(liquid scintillation counter) Perkin Elmer, Model TriCarb-2900TR이었다. 측정용 칵테일 용액은 $^{14}CO_2$가 녹아있는 수산화나트륨 용액과 Ultima Gold량의 조성비를 변화시키며 방사능량을 측정한

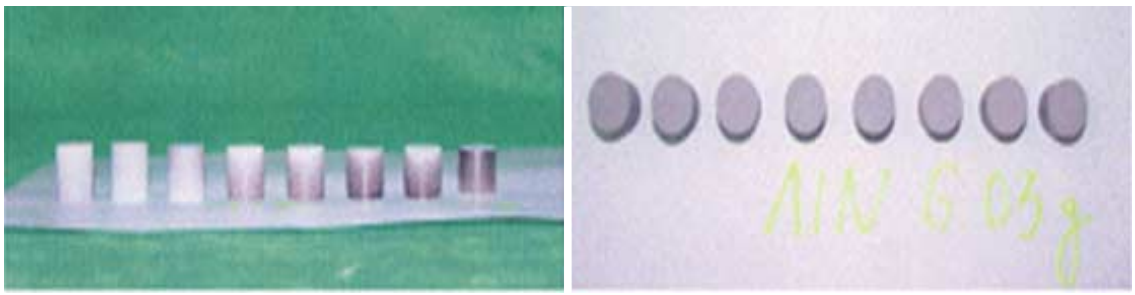

Fig. 4. Fabricated pellets (16 mm diameter), left to light: made by higher pressure.

결과 Ultima Gold 15 ml와 0.05 ml $^{14}CO_2$ 용액의 조성비에서 최적의 방사능량 측정이 가능하였다. 또한 제조된 칵테일 용액은 측정 전에 잘 섞어 상온에서 2시간 동안 방치하여 발생한 기포를 완전히 제거한 후 사용하였다.

결과 및 고찰

1. 펠렛 성형 및 소결

원자로에서 ^{14}C로 변환되는 원소는 질소($^{14}N_7$)로서, 자연에 존재하는 질소의 99.63%에 이른다. 따라서 원자로를 이용한 핵반응으로 $^{14}C_6$를 생산하기 위한 표적물질로 다양한 질소화합물이 이용될 수 있다. 그러나 이러한 질소 화합물 중 원자로를 이용한 ^{14}C의 생산에는 열 및 화학적으로 안정한 물질을 사용하여야 한다. 질소 화합물 중 그 구조가 간단하고 안정한 물질인 Aluminum nitride (AlN)가 가장 보편적으로 이용되고 있다. AlN은 열분해 온도가 2,200°C로 고온 전기로에 이용되는 등 매우 안정한 물질로 팽창계수도 상대적으로 작아 중성자 조사에 따른 열변형이나 열분해가 일어나지 않는 구조를 가지고 있다.

더불어 장반감기 핵종인 ^{14}C를 생산하기 위해 표적을 장기간에 걸쳐 조사하여야 하는 데 AlN의 경우, 물질밀도가 3.2～3.3 g cm^{-3}로 매우 높고, 최소한의 부피를 가진 표적형태인 펠릿으로 성형할 수 있어 방사화된 분말을 취급하지 않아도 된다는 장점도 가지고 있다.

장반감기 핵종인 ^{14}C를 생산하기에 앞서 최소 부피의 표적제조와 분말 형태의 방사성물질의 취급을 피하고, 중성자 조사에 앞서 불순물을 제거하여 부가적인 핵반응 발생 여지를 없애기 위해 AlN을 펠릿 형태로 가공 및 소결하였다. 우수한 품질의 펠릿을 제조하기 위하여, 제조 시 성형압과 소결 조건 등을 변화시켜 펠릿의 밀도 및 질소함량 등을 측정함으로써 최적의 제조조건을 구하였다.

최적의 펠릿 성형조건을 알아보기 위해 16 mm 성형틀에서 다양한 성형압으로 펠릿을 제조하고, 제조된 펠릿의 밀도를 분석하여 펠릿의 단위면적당 미치는 힘과 밀도의 상관관계를 알아보았다. Fig. 4는 제조된 16 mm 펠릿을 보여주는 사진으로, 왼쪽에서 오른쪽으로 갈수록 높은 성형압으로 제조한 것으로 단위무게 당 펠릿의 크기가 작아지고 있다. 이 사실을 통해 성형틀을 통한 펠릿의 제조 시 성형압이 높을수록 펠릿의 밀도가 높아지고 있음을 확인할 수 있었다. 또한 Fig. 5는 펠릿제조 시의 압력과 밀도를 측정한 것으로 성형압이 약 4,000 kg$_f$ cm^{-2}까지는 그 밀도가 점진적으로 증가하지만 그 이상에서는 펠릿의 밀도가 약 2.0 g cm^{-3} 정도로 그 증가세가 둔화됨을 알 수 있다. 성형압이 5,000 kg$_f$ cm^{-2}에 달할 때의 밀도는 4,000 kg$_f$ cm^{-2}일 때의 밀도와 큰 차이를 보이지 않았다. 하지만 4,000 kg$_f$ cm^{-2} 이상의 성형압을 이용할 경우 펠릿에 균열이 생기는 등 문제가 발생하였다. 따라서 본 실험 조건 상 안정된 펠릿을 최소부피로 성형할 수 있는 최적의 성형압은 약 4,000 kg$_f$ cm^{-2}인 것으로 판단하였다.

고품질의 $^{14}CO_2$ 제조를 위한 가장 중요한 요소 중 하나는 비방사성 CO_2의 혼입을 막는 것이다. 이러한 CO_2의 혼입은 제조한 $^{14}CO_2$의 비방사능(Specific Activity)을 떨어뜨려 열악한 품질의 제품을 만드는 원인이 된다. 실제로 발전용 원자로에서 발생하는 상당량의 $^{14}CO_2$가 포집되지만 표지용으로 사용할 수 없는 이유도 $^{14}CO_2$와 함께 포집된 비방사성 이산화탄소 때문이다. 따라서 표지용 $^{14}CO_2$ 제조 시, 표적에 포함되어 있는 불순물이나 제조공정 중 공기로부터 유입되는 이산화탄소는 철저히 차단되어야 한다. 본 연구에서는 성형된 AlN 펠릿을 고온 소결함으로써 제조과정이나 원료에 포함되어 있는 불순물, 특히 산화되어 CO_2를 발생시키는 유기물을 제거하였다. 소결은 1,000°C에서 1시간 동안 진행하였는데, 고순도의 질소가스를 분당 3 l min^{-1}의 유속으로 소결 용기에 불어넣어 공기의 유입을 막았다. AlN의 경우

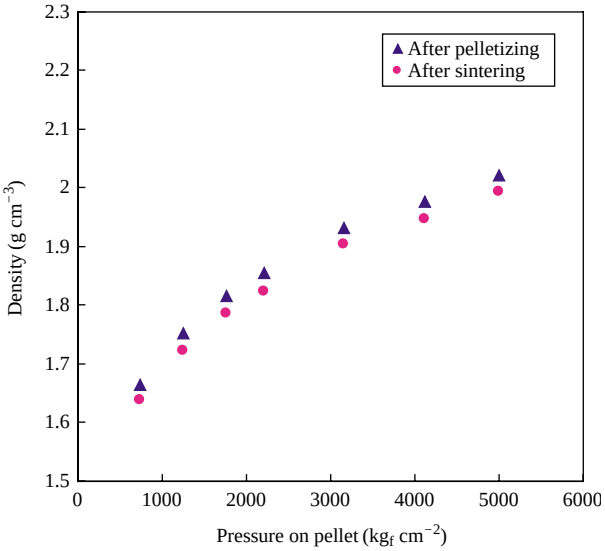

Fig. 5. Changes of pellet density by the compression pressure and sintering process.

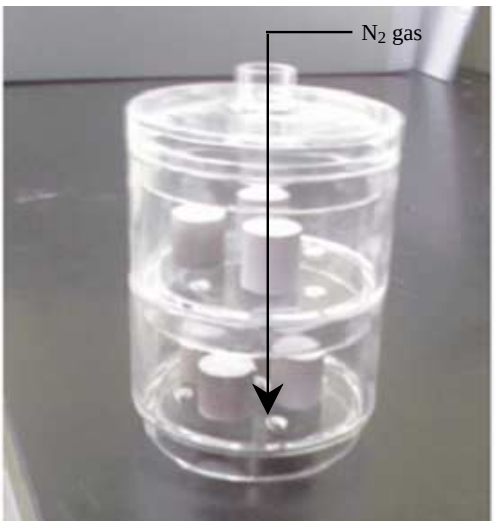

Fig. 6. Quartz cell for the sintering of AlN Pellet at high temperature.

고온 소결에 의해 그 형태는 변하지 않지만 800°C 이상에서 산소가 존재할 경우 산화되어 일부가 알루미나(Al_2O_3)로 바뀌게 된다. 이를 방지하기 위해 소결 시 산소를 제거하고 불활성 기체인 질소만을 잔류시킬 수 있도록 소결용 용기를 제작하였다. 이 용기는 석영유리로 제작되어 고온에서 견딜 수 있으며 Fig. 6에서 보는 바와 같이 석영관을 통해 질소가스를 용기 상부에서 바닥으로 공급한 후 펠릿이 적치되어 있는 천공판을 통해 다시 상부로 방출될 수 있도록 제작하였다. 한 시간 소결에 따른 펠릿의 무게 및 부피감소를 측정하여 본 결과(Fig. 5), 소결 전 밀도와는 상관없이 평균적으로 약 1.6% 정도 밀도가 감소하였다. Fig. 7은 소결 전/후 펠릿의 상태를 관찰한 것으로, 펠릿의 표면이 산화되어 옅은 색의 알루미나로 바뀌었음을 알 수 있다. 이러한 소결과정을 거치게 되면 약 1.6%의 질량 손실이 있지만 고순도의 $^{14}CO_2$를 생산할 수 있기 때문에 소결과정을 거치는 것이 바람직하다.

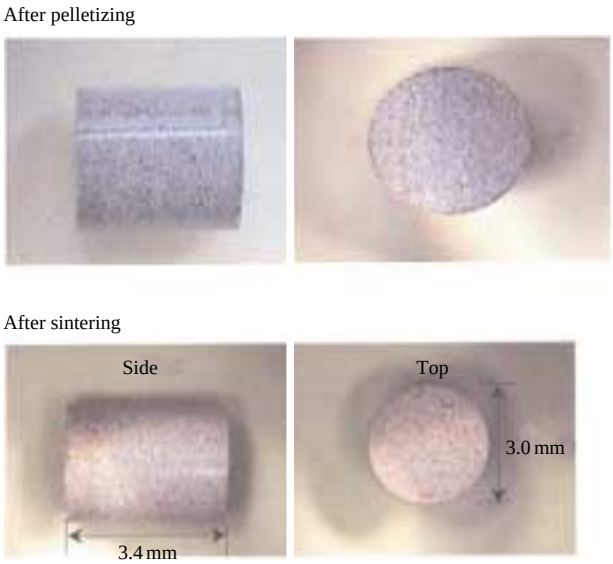

Fig. 7. AlN pellets after pelletizing and sintering.

동일한 성형압 조건에서 펠릿 크기와 밀도의 관계를 알아보기 위하여 16 mm 펠릿 제조 시 최적 성형압인 4,000 kg$_f$ cm^{-2}에서 직경 3 mm인 펠릿을 제조하였다. 이 때 3mm 펠릿의 평균 밀도는 약 1.97 ± 0.03 g cm^{-3}로 16mm 펠릿의 평균 밀도인 1.976 g cm^{-3}과 거의 같다. 따라서 본 연구실험 조건에서 성형압이 같을 경우 펠릿의 밀도는 크기와는 상관이 없음을 알 수 있었다.

2. ^{14}C 생성량 평가

'하나로'에서의 ^{14}C 생산실험에 앞서 각 조사공 별 생성량을 MCNP 코드를 이용하여 수치 해석을 수행함으로써 중성자 조사와 관련한 안전성을 검증하였다. Fig. 8은 $^{14}N(n, p)^{14}C$ 반응을 나타낸 것으로 일반적인 (n, p) 반응과 달리 반응 문턱(threshold) 에너지가 없고 전 에너지 구간에서 중성자와 반응한다는 점을 알 수 있다. 이 반응의 Maxwell 평균 단면적과 공명 적분은 1.827 barns이고, 고속 핵분열 평균 단면적은 0.820 barns이다(Young 1990).

계산에 이용한 표적형태는 실린더형 펠릿으로 직경 및 높이가 각각 25 및 23 mm이며 밀도는 2.0 g cm^{-3}, 순

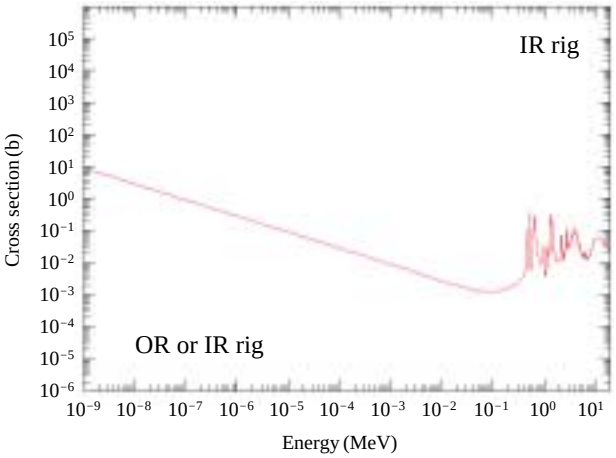

Fig. 8. Cross-section of $^{14}N(n, p)^{14}C$ reaction.

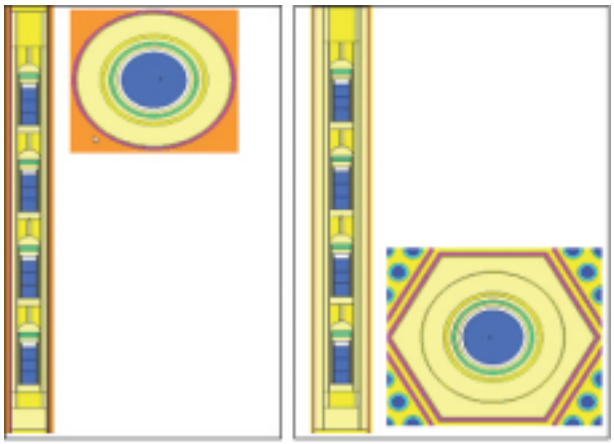

Fig. 9. Model of OR-rig, IP-rig, and IR rig for the computation, four target capsules in a rig.

도는 99.99%로 가정하였다. '하나로'에서 동위원소 생산에 이용되는 조사공은 CT, IR, OR 및 IP 등이 있지만, 실제 ^{14}C 생산에서는 각 조사공의 빈 위치에서 순환 조사하여야 하고 조사공 내에서도 다른 동위원소 생산용 표적과 함께 조사하여야한다. 하지만 본 계산에서는 모델을 단순화하여 하나의 조사공에 AlN 표적캡슐을 4개 장전한 것으로 가정하였고, 표적캡슐의 형태는 '하나로'에서 동위원소 생산용으로 이용되는 캡슐로 가정하였다. 이 캡슐은 2중 밀봉구조로 되어있는 데, 표적펠릿이 들어가는 내부 알루미늄캔에 펠릿을 3개씩 장입하는 것으로 가정하였다. 이 캡슐을 장전한 IR-1과 OR-3 그리고 IP-15 모두에 각각 4개의 조사캡슐이 들어가 Fig. 9과 같은 형태가 된다. 계산에 반영되지 않은 반사체 영역의 조사공은 모두 알루미늄 더미 플러그가 장전되어 있는 것으로 가정하였다. '하나로'의 운전상황은 출력 30 MW에서 노심의 유효증배계수와 연소 효과를 20%로 설정하여 계산하였다.

표적을 IP-15, OR-3 및 IR-1 위치에서 각각 조사하였을 때 예상되는 $^{14}N(n, p)^{14}C$ 총 반응율의 계산결과는 Fig. 10과 같이 나타낼 수 있다. Fig. 10에 나타낸 조사캡슐의 위치는 리그에 장전되는 순서에 따라 하단부터 1번에서 4번까지 표시하였다. 각 표적캡슐 내 장입된 3개 펠릿도 그 위치에 따라 다른 반응율을 가지나 그 편차가 크지 않아 평균값으로 나타내었다. 따라서 펠릿 3개에 대한 평균 총반응율은 각 조사캡슐의 총 포화 방사능에 해당한다. 계산 결과를 분석해 보면, 모델로 선택한 조사공에서의 핵반응은 대부분 열중성자(thermal neutron, <0.625 eV) 에 의해 발생된다는 점을 알 수 있다. 또한 각 조사공 내에서도 열중성자속이 가장 높은 2번째 캡슐위치에서의 반응율이 가장 높게 나타나고 있다. 따라

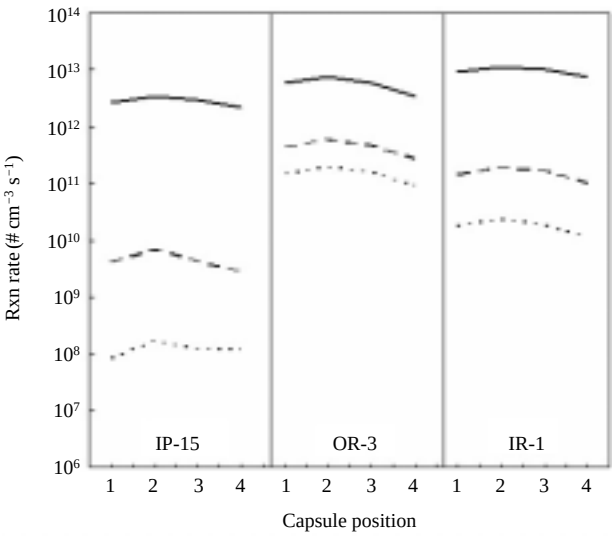

Fig. 10. Total Reaction Rate (# cm^{-3} s^{-1}) of $^{14}N(n, p)^{14}C$ Reaction in Irradiation Holes of HANARO (solid line: by thermal, dashed line: by epithermal, dotted line: by fast neutrons; capsule position 1→4: rig bottom→top)

서 열외중성자(epithermal neutron, 0.625 eV～1 MeV) 및 속중성자(fast neutron, >1 MeV)에 의한 ^{14}C의 생성 방사능량은 열중성자에 의한 생성량과 비교하여 무시가 가능하다고 할 수 있겠다. 이렇게 열중성자에 의해 ^{14}C가 주로 생성된다는 점은 '하나로'를 이용한 ^{14}C 생산에 있어 상당히 중요한 사실로, 장기간 조사할 경우 중성자속이 상대적으로 낮은 조사공에서도 ^{14}C를 생산할 수 있다는 것을 의미한다. 실제 중성자 속이 높은 '하나로'의 조사공은 재료시험이나 대량 소비되는 ^{192}Ir 등과 같은 방사성동위원소를 생산하는 데 이용되기 때문에 ^{14}C를 생산할 공간이 없다.

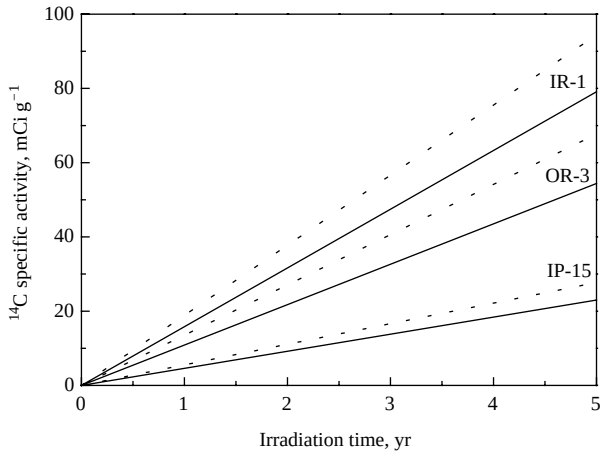

Fig. 11. Estimated ^{14}C specific activities in irradiation holes of HANARO, dot line: maximum activity to be obtained; solid line: average activity.

계산된 총반응율을 바탕으로 조사기간에 따른 AlN 단위무개 당 ^{14}C 생성 방사능량을 계산하면, Fig. 11과 같이 나타낼 수 있다. 각 조사공 별로 장전된 총 12개의 펠릿 내 ^{14}C의 방사능량을 평균한 값과 최대 값을 표시하였다. Fig. 11의 결과에 따르면 IR-1 조사공의 경우 3년간 연속 조사할 경우 AlN pellet 단위 그람 당 최대 약 57 mCi, 평균 47 mCi 정도의 방사능을 얻을 수 있을 것으로 판단되며,OR-3의 경우에 최대 39 mCi, 평균 32 mCi, 그리고 IP-15의 경우는 최대 16 mCi, 평균 14 mCi 정도의 방사능을 얻을 수 있을 것으로 예상된다.

3. ^{14}C 회수공정

지름이 3 mm인 펠릿을 '하나로' IP-5번 홀에서 2주기(총 41일) 동안 조사한 후 충분한 시간동안 저장하여 여타 감마선 방출 핵종이 없음을 확인한 후 ^{14}C 회수장치를 이용하여 실험을 실시하였다. '하나로'에서 2 주기 동안 조사하는 과정에서 IP-5번 홀에는 ^{99}Mo, ^{166}Ho, ^{32}P 등과 같은 핵종을 생산하기 위한 표적들이 주기적으로 장전되지만 중성자 속에 큰 영향을 미치는 이리듐과 같은 표적은 장전되지 않았다. 생산 후, 반응조에 남은 용액 및 1차, 2차 포집용액의 ^{14}C의 방사능량을 액체섬광계수기를 이용하여 측정하였으며, 그 결과는 Table 1과 같다. 반응용기내의 용액에 남은 ^{14}C 방사능량은 총 0.07±0.03 μCi로 포집용액에 들어있는 방사능량인 9.46 μCi와 비교하여 1%가 안 되는데, 이는 본 습식공정 및 산화촉매를 이용한 공정이 효율적이었음을 증명하는 것이다. 1차 및 2차 포집용액에 흡수된 $^{14}CO_2$ 방사능량을 비교하여 보면 2차 용액의 방사능량은 1차 포집용액의 약 8.3%이다. 2차 용액을 거쳐 환경으로 방출되는 량을 추정하기 위하여 1차 포집 후 2차로 넘어오는 비율인 8.3%를 동일하게 적용하면 대략 0.06 μCi 정도가 포집되지 않고 환경으로 방출될 것으로 예상된다. 따라서 본 장치를 사용할 경우 생성된 ^{14}C의 98.6% 이상을 $^{14}CO_2$로 회수할 수 있다. 물론 대량의 생산에 적용할 경우, 환경으로 방출되는 량을 최소화하기 위하여 추가적인 포집장치가 필요할 것으로 판단된다.

Table 1. Radioactivity of ^{14}C in reaction vessel and trap solutions measured by LSC.

Solutions	Radioactivity (μCi)
Solution in reaction vessel (50 ml)	0.07±0.03
1st trap solution (30 ml)	8.76±0.03
2nd trap solution (30 ml)	0.73±0.02

'하나로'에서 중성자 조사를 통해 생산한 ^{14}C량과 동일한 조건을 가정하여 Monte-Carlo 전산코드로 예측한 생성량을 계산하여 보면, IP-5에서 생산 가능한 ^{14}C의 평균치는 약 8.92 μCi이고 최대치는 10.2 μCi이다. 이에 반해 실제 생성된 량은 약 9.5 μCi이므로 결국 예상 생성량의 오차범위 안에 예측되었다고 할 수 있다. 따라서 향후 ^{14}C 생산 시 생성량 예측에 본 전산코드를 유용하게 이용할 수 있을 것으로 판단된다.

^{14}C에 대한 국내 수요량인 약 2.5 Ci yr^{-1}을 생산하기 위한 조건을 평가하기 위하여 본 전산코드로 조사기간에 따른 생산량을 계산하였다. '하나로'에서 이용되는 조사캡슐 1개당 최대 100 g의 AlN을 충전하고 생성 방사능량의 90%를 회수한다고 가정할 경우, 1년 조사(210일) 시, IR-1 조사공에서는 캡슐 당 약 0.67 Ci yr^{-1}를 생산할 수 있다. 따라서 국내 수요를 충족시키기 위해서는 총 4개의 캡슐을 1년간 조사하여 처리하여야 한다. 하지만 '하나로'의 조사공이 한정되어 있어 ^{14}C 생산에 IR 조사공 1개를 할애할 수 없는 것이 현실이므로 그 대안으로 '하나로'의 매 운전주기마다 각 조사공별로 빈 위치에 표적을 장전하여 순환 조사를 하는 것이 바람직할 것으로 판단된다. 현재 표적이 장전되지 않는 위치나 리그에는 더미가 장전되어 운전 중임을 고려하면 중성자 속에 큰 영향을 미치지 않는 AlN 표적을 장기간 조사하는 것은 안전성만 확보된다면 큰 문제가 없을 것으로 판단되므로 장기간 조사에 따른 안전성 검토가 필요하다. 다만 AlN 표적이 조사되는 동안 핵반응 및 방사선에 의한 열 발생량은 여타 단 반감기 핵종 생산에 따른 열 발생량에 비해 크지 않기 때문에 발열로 인한 조사캡슐의 건전성 저하와 같은 문제는 없을 것으로 판단된다.

결 론

본 연구를 통하여 ^{14}C 생산을 위한 습식공정을 계발하였고, 생성량에 대한 수치적 해석을 통해 향후 생산에 필요한 데이터를 축적할 수 있었다. 또한 본 연구를 통해 ^{14}C 생산용 AlN 펠릿에 포함된 불순물 제거와 열적 안정성을 높일 수 있는 성형 및 소결 조건을 확립하였다. '하나로' 각 조사공 별 ^{14}C 생성량 예측은 Monte-Carlo 코드를 이용하여 수행한 결과 $^{14}N(n, p)^{14}C$ 반응은 대부분 열중성자에 의해 일어난다는 점과 중성자속이 낮은 조사공에서도 ^{14}C를 생산할 수 있다는 점을 알 수 있었다. '하나로'의 각 조사공 별로 ^{14}C의 예상 평균 생성량은 IR-1은 15.7, OR-3는 10.7, IP-15는 4.7 mCi g^{-1} yr^{-1}이다. 시험생산은 IP-5에서 49 mg의 AlN 펠렛을 이용하여 40일간 진행되었고, 개발한 조사장치를 이용하여 9.5 μCi의 $^{14}CO_2$를 생산하였다. 동일 조건에서의 예상 생성량은 8.92 μCi ~ 10.2 μCi로 거의 일치하였다. 이러한 수치해석과 실험을 통해 '하나로'를 이용하여 AlN 표적을 다년간에 걸쳐 여러 조사공에서 순환 조사할 경우 연간 수 Ci의 ^{14}C를 생산할 수 있다는 결론을 얻었다. 수 Ci의 ^{14}C 생산하기 위한 선행 조건으로 다년간의 중성자 조사에 따른 캡슐의 건전성을 평가하여야 할 것이다.

사 사

이 연구는 과학기술부에서 시행하는 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었으며, 지원에 감사드립니다.

참 고 문 헌

안홍주, 이홍래, 이정진, 표형열, 한선호, 지광용. 2005. Recovery of ^{14}C in the cement weste form, 한국방사성폐기물학회 춘계학술발표회 논문집, pp. 284-288.

채화묵. 2006. 방사선 이용통계, 과학기술부, 한국방사성동위원소협회.

Bingsheng J, Zuoyong C and Maoliang L. 2003. Manual for Reactor Produced Radioisotopes, IAEA-TECDOC-1340, pp. 61-64.

Bollman DH. 1972. Rapid technique for dissolution of nitrides. *Analytical Chemical* **44**(4):887-888.

Desroches JJ, Lahaie RG, Picard M, Morasis J, Dumont A, Gaudreau C, Picard D and Chartrand R. 1997. Methodological validation and clinical usefulness of carbon-14-urea breath test for documentation of presence and eradication of helicobacter pylori infection. *J. Nucl. Med.* **38**:1141-1145.

Dischino DD, Chen SH, Golik J, Walker DW and Henry SL. 1997. Synthesis of the monosodium salt of carbon-14 labeled paclitaxel (Taxol®) 2′-ethyl carbonate 7-phosphonooxymethyl ether. *A Potential Prodrug of Paclitaxel*. **39**(2): 173-179.

Moriy T. and Motoishi S. 1992. Production of carbon-14 and preparation of same key precursors for labeling organic molecules, JAERI-M 92-028, pp. 367-374.

Motoish S, Ohnoma G and Yamamoto A. 1987. Production of C-14, JAERI-memo 57-173.

Walker CB, April GA, Stensel DH and Strand SE. 2004. A biological method for synthesizing ^{14}C-vinyl chloride. *J. Label. Compd. Radiopharm*. **47**:903-910.

Young P, Hale G and Chadwick M. 1990. 7-N-14 LANL EVAL, Pendfb6/N-14:103.

Manuscript Received: August 16, 2007
Revision Accepted: September 13, 2007