Journal of Radiation Industry 9(3) : 111~117(2015)

하나로를 이용한 중성자 이중 포획반응에 의한 ^{166}Ho 생성량 평가

김 종 범[1,*] · 최 강 혁[1]

[1]한국원자력연구원

The Evaluation of ^{166}Ho Product by Double Neutron Capture from HANARO Research Reactor

Jong-Bum Kim[1,*] and Kang-Hyuk Choi[1]

[1]*Radioisotope Research and Development Division, Korea Atomic Energy Research Institute, Daejeon 34057, Korea*

Abstract - In this paper, production of ^{166}Ho by double neutron capture from HANARO research reactor was evaluated. This production approach provides ^{166}Ho with high specific activity. ^{164}Dy is transmuted into $^{165g+m}$Dy by (n,γ) reaction, then $^{165g+m}$Dy is transmuted into ^{166}Dy by (n,γ) reaction. At the end of neutron irradiation, population of ^{166}Dy atoms reaches highest point. And ^{164}Dy exists as a mixture with ^{165m}Dy, ^{165}Dy, ^{166}Ho and ^{165}Ho at this point. To obtain ^{166}Ho with high specific activity, Ho isotopes from irradiated target is separated out. Then ^{166}Ho decayed from ^{166}Dy is eluted at radioactive equilibrium state. At each step, the number of relevant nuclide is calculated by the state equation. The neutron irradiation time for maximum ^{166}Dy is calculated for 283 hour. When 100 mg target of Dy_2O_3 (96.8% enriched ^{164}Dy) is used, possible activity of ^{166}Ho is 3.54 Ci (1.31×10^{11} Bq). For separation efficiency of Dy/Ho is 99.99%, ^{166}Ho/Ho is 0.62.

Key words : Double neutron capture, ^{166}Ho, ^{166}Dy, State equation, Radioactive equilibrium

서 론

방사성 의약품 분야에서 란탄계열의 방사성동위원소는 난치성 질환의 치료를 위해 이용되고 있으며 점차로 그 사용량은 증가하는 추세에 있다. 그중 반감기가 26.4시간인 ^{166}Ho은 베타선(E_{av} = 665.7 keV)과 감마선(80.57 keV)을 동시에 방출하는 핵종으로 진단과 치료가 동시에 가능한 잠재성이 큰 치료 후보 원소라고 할 수 있다. ^{166}Ho을 이용한 예는 다음과 같다. 국내에서는 금속 배위성을 갖는 생체 친화성 고분자(chitosan)를 이용하여 ^{166}Ho-chitosan 방사성의약품을 개발하였고 이를 간암 환자의 치료에 이용하였다(이 등 2001). 해외에서는 방사성 면역 치료법과 방사성 색전 치료(radioembolization)로서의 연구가 수행되고 있으며 최근에는 ^{166}Ho microsphere가 기존 방사성 색전 치료법인 ^{90}Y microsphere를 대체할 수 있을 것이라는 평가를 하고 있다(International news 2014).

^{165}Ho 표적을 이용한 중성자 포획 생산법:

$^{165}\mathrm{Ho} + \mathrm{n} \rightarrow {}^{166}\mathrm{Ho} + {}^{166m}\mathrm{Ho}$ (미량)

^{164}Dy 표적을 이용한 중성자 이중 포획 생산법:

$^{164}\mathrm{Dy} + 2\mathrm{n} \rightarrow {}^{166}\mathrm{Dy} \rightarrow {}^{166}\mathrm{Ho} + \beta^-$

일반적으로 ^{166}Ho의 생산 방법에는 ^{165}Ho 표적을 이용한 중성자 포획 생산법(^{165}Ho(n,γ))과 ^{164}Dy의 중성자 이중 포

* Corresponding author: Jong-Bum Kim, Tel. +82-42-868-8050, Fax. +82-42-862-6980, E-mail. jong@kaeri.re.kr

획 생산법(^{164}Dy(n,γ)^{165}Dy(n,γ)^{166}Dy(β^-)^{166}Ho)이 있다(De Corte *et al*. 1997; Lahiri *et al*. 2004; Choi and Kim 2015). ^{165}Ho 표적을 이용한 중성자 포획 생산방법은 농축된 ^{165}Ho에 중성자를 조사하여 ^{166}Ho을 생산하는 방법으로 ^{165}Ho와 혼재된 상태로 낮은 비방사능(specific activity)을 갖게 된다(Lahiri *et al*. 2004). 또한 부반응으로 ^{166m}Ho ($T_{1/2}=1.2\times10^3$y)이 생성되기도 한다. ^{164}Dy 표적을 이용한 중성자 이중 포획 생산법은 ^{164}Dy에 중성자를 조사하여 ^{165}Dy로 변환시킨 후 ^{165}Dy에 중성자를 조사하여 ^{166}Dy이 생성된 후 베타붕괴를 거쳐 ^{166}Ho을 생산하는 방법이다(De Corte *et al*. 1997; Lahiri *et al*. 2004). Dy과 ^{166}Ho은 화학적으로 유사하기는 하지만 다른 핵종이기에 화학적 분리가 가능하여 비방사능이 높은 순수한 Ho을 얻을 수 있다. Dy과 Ho의 경우 같은 란탄족 원소로 각각의 바닥상태 전자배치가 $[Xe]4f^{10}6s^2$, $[Xe]4f^{11}6s^2$로 존재하게 되며 자연 상태에서는 이온으로 존재하며 두 핵종 다 +3가의 산화수를 갖고 있다. 두 원소들은 +3가의 상태이지만 미세하게 전하 밀도가 다르게 되어 배위결합과 이온결합 시 결합능력의 변화가 생기게 된다. 이를 이용한 방법으로 두 원소를 분리할 수 있다(Dadachova *et al*. 1995; Cathy *et al*. 2011). 본 논문에서는 ^{166}Ho 생산 방법중 높은 비방사능을 얻을 수 있는 중성자 이중 포획방법을 이용하여 하나로 연구용 원자로의 동위원소 생산용 조사공을 이용하는 경우에 대하여 생산량에 대한 평가를 수행하였다.

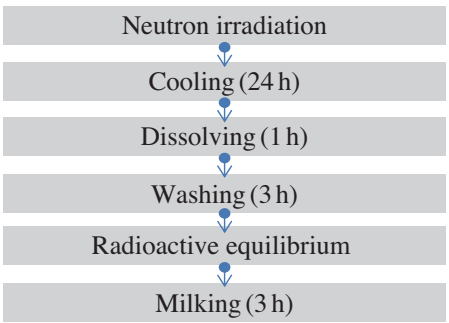


Fig. 1. ^{166}Ho production process.

Fig. 1은 하나로를 이용한 ^{166}Ho 생산 프로세스이다. 중성자 조사(Neutron irradiation)과정에서 ^{164}Dy가 (n,γ)반응을 통해 ^{165m}Dy 및 ^{165}Dy가 생성되며 이들은 다시 (n,γ)반응을 통해 ^{166}Dy으로 변환된다(De Corte *et al*. 1997). 중성자 조사 이후 약 24시간 정도의 냉각 시간이 지난 후 분말상태의 표적에서 용액으로 녹이는 과정을 약 1시간 정도 거친다. 중성자 조사가 완료되는 시점에서 ^{166}Dy은 ^{164}Dy, ^{165m}Dy, ^{165}Dy, ^{166}Ho, ^{165}Ho 등과 혼재된다. 순수한 ^{166}Ho을 얻기 위해 1차 분리와 2차 분리과정을 거친다. 1차 분리는 Dy에 혼재되어 있는 Ho을 제거하는 칼럼 분리과정으로 약 3시간 정도가 소요된다. 2차 분리는 1차 분리에서 얻어진 Dy (^{166}Dy, ^{164}Dy)에서 방사평형 후 생성된 ^{166}Ho 만을 추출하는 과정이다. ^{166}Ho의 최대 수율을 얻기 위한 과정에서 중성자 조사시간 및 방사평형 시간이 중요한 역할을 하게 된다.

재료 및 방법

1. 중성자 조사중 동위원소 생성 및 천이

^{164}Dy의 생성량은 하나로 동위원소 생산 조사공 중 하나인 IP5를 고려하여 평가하였다. IP5의 중성자 플럭스는 최대 1.072×10^{14} n·cm^{-2}·sec^{-1}에서 최소 4.250×10^{13} n·cm^{-2}·sec^{-1}이다. IP5는 중수 반사체에 위치에 있으며 중수온도는 308 K이다. 96.8%로 농축된 ^{164}Dy 화합물(Dy_2O_3) 100 mg을 표적으로 사용할 때 표적 내의 ^{164}Dy 원자 수는 3.10×10^{20}개이다. 여기서 다루고 있는 중성자 이중 포획반응에 의한 ^{166}Ho 생산의 경우 방사성 동위원소에 의한 감쇄, 생성핵종과의 중성자 포획반응 등이 일어나며 Fig. 2와 같이 표현된다. 이에 대해 정의되는 방정식은 6차 연립미분 방정식이 된다. 6차 연립미분 방정식 풀이를 위해 상태 방정식 해법을 이용하였다.

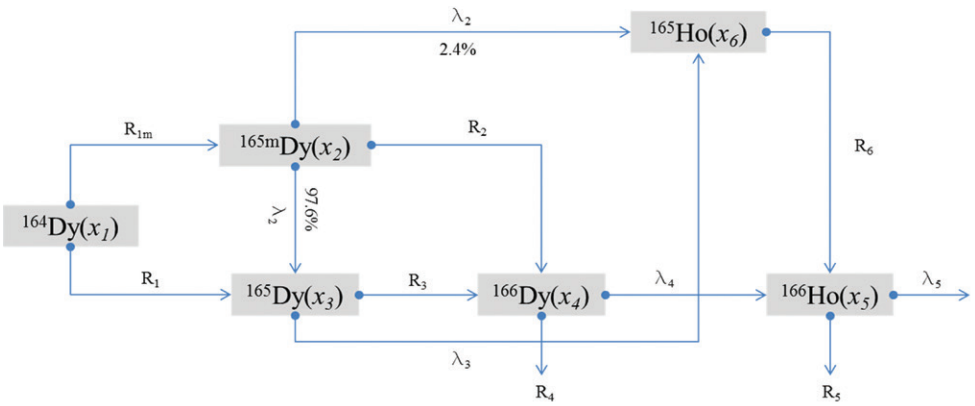


Fig. 2. ^{166}Ho production scheme by double n,γ reaction.

Fig. 2와 같은 천이도는 제어이론(control theory)에서 활용되는 블록선도와 같은 형태이며, 상태 방정식(state equation 또는 state space equation) 해법을 이용하여 풀 수 있다(Katsuhiko 1999). 이중 포획반응의 문제를 상태 방정식으로 정의하여 해를 구하는 방법은 연립미분 방정식으로 해를 구하는 고전적인 방법에 비해 많은 장점을 갖는다. 또한 상태 방정식을 통한 방법은 이중 포획의 문제뿐만 아니라 일반적인 방사성 핵종의 천이 해석에도 적용될 수 있다. 상태 변수에 의한 표기법은 다음 식(1)과 같이 된다.

$$\dot{X} = AX + BU \tag{1}$$

식(1)에서 X는 상태 변수 $x_1, x_2, x_3, x_4 .. x_n$ 등으로 구성된 상태 벡터(state vector), A는 n×n의 정방행렬인 상태 방정식(state matrix), U는 입력 벡터라 한다(Katsuhiko 1999). Fig. 2와 같이 블록선도로 표시되는 경우 직관적인 방법에 의해 상태 방정식으로 변환 시킬 수 있다. 여기서 상태 벡터 요소(element)의 수는 상태 천이도에 나타난 핵종의 수와 같다. Table 1과 같이 Fig. 2에 나타난 핵종의 원자에 대해 상태 변수를 정의하고, 상태 변수의 정의를 각 핵종의 원자수로 설정한다.

상태 행렬은 식(2)와 같이 6×6 정방행렬로 표시된다. a_{11}은 x_1(t)에 의해 유발된 생성되는 변화율 인자이다. x_1(^{164}Dy)의 시간에 따른 천이는 중성자 흡수에 의해 x_2(^{165m}Dy)로 변하거나 x_3(^{165}Dy)로 변화된다. Fig. 2에서 보면 a_{11}은 상태 변수 x_1이 시간당 감소되는 값과 같다. 즉 $a_{11} = -(R_{1m} + R_1)$이다. 마찬가지로 a_{22}의 값은 Fig. 2의 상태도에서 ^{165m}Dy에서 빠져가는 분기점의 합인 $a_{22} = -(\lambda_2 + R_2)$이다. 같은 방법으로 a_{33}에서 a_{66}까지의 값을 정의할 수 있다. a_{21}의 경우 x_1에서 천이되어 x_2로 가는 것을 의미하며 $a_{21} = -R_{1m}$이다. 반면 a_{12}는 x_2에서 천이되어 x_1으로 가는 것이며 이에 대한 값은 0이다.

$$A = \begin{bmatrix} a_{11} & a_{12} & a_{13} & a_{14} & a_{15} & a_{16} \\ a_{21} & a_{22} & a_{23} & a_{24} & a_{25} & a_{26} \\ a_{31} & a_{32} & a_{33} & a_{34} & a_{35} & a_{36} \\ a_{41} & a_{42} & a_{43} & a_{44} & a_{45} & a_{46} \\ a_{51} & a_{52} & a_{53} & a_{54} & a_{55} & a_{56} \\ a_{61} & a_{62} & a_{63} & a_{64} & a_{65} & a_{66} \end{bmatrix} \tag{2}$$

Fig. 2의 반응에서 식(1)의 B 및 U의 값은 0이다. B와 U가 0이 아닌 경우는 식(3)과 같은 경우로서 상태 방정식이 강제입력을 갖는 경우이다. 예를 들어 어떤 용기에 포함된 방사성 동위원소의 원자수를 x, 붕괴상수가 −A이고 용기에 외부에서 방사성 동위원소가 시간당 u개의 원자수가 유입되면 관계식은 식(3)과 같이 된다. 식(3)을 상태 변수가 1개인 상태 방정식으로 생각하면 B는 1, U는 u인 1×1 행렬이 된다.

$$\frac{dx}{dt} = Ax + u \tag{3}$$

Table 1. Definition of state vector

Nuclide	^{164}Dy	^{165m}Dy	^{165}Dy	^{66}Dy	^{166}Ho	^{165}Ho
Number of atoms	x_1(t)	x_2(t)	x_3(t)	x_4(t)	x_5(t)	x_6(t)

Table 2. Nuclear reaction data

Symbol	Value	Description
Φ_0	9.87×10^{13} n·cm^{-2}·s^{-1}	Thermal neutron flux at IP5
Φ_e	5.32×10^{11} n·cm^{-2}·s^{-1}	Epithermal flux at IP5
R_{1m}	1,697b[1)]	σ_0 of ^{164}Dy(n,γ)^{165m}Dy
	424b[1)]	I_0 of ^{164}Dy(n,γ)^{165m}Dy
R_1	1,063b[1)]	σ_0 of ^{164}Dy(n,γ)^{165}Dy
	104b[1)]	I_0 of ^{164}Dy(n,γ)^{165}Dy
R_2	2,000b[1)]	σ_0 of ^{165m}Dy(n,γ)^{166}Dy
	900b[1)]	I_0 of ^{165m}Dy(n,γ)^{166}Dy
R_3	3,134b[1)]	σ_0 of ^{165}Dy(n,γ)^{166}Dy
	22,000b[1)]	I_0 of ^{165}Dy(n,γ)^{166}Dy
R_4	15.13b[2)]	σ_0 of ^{166}Dy
R_5	48.95b[2)]	σ_0 of ^{166}Ho
R_6	58.1b[1)]	σ_0 of ^{165}Ho(n,γ)^{166}Ho
	636b[1)]	I_0 of ^{165}Ho(n,γ)^{166}Ho
λ_2	9.242×10^{-3} [1)]	Decay constant of ^{165m}Dy (T_h = 1.25 m)
λ_3	8.26356×10^{-5} [1)]	Decay constant of ^{165}Dy (T_h = 2.33 h)
λ_4	2.3596×10^{-6} [1)]	Decay constant of ^{166}Dy (T_h = 3.40 d)
λ_5	7.18168×10^{-6} [1)]	Decay constant of ^{166}Ho (T_h = 26.81 h)

[1)]De Crte *et al*. 1997, [2)]B. Pritychenko and S.F. Mughabghab 2013

방사성 핵종의 천이, 중성자 핵반응, 중성자 이중 포획반응과 같은 방사성동위원소의 외부 유입이 없는 공정에서는 BU값은 0이다. 식(1)을 전술한 방법에 의해 상태 행렬 전체를 표시하면 식(4)와 같이 된다.

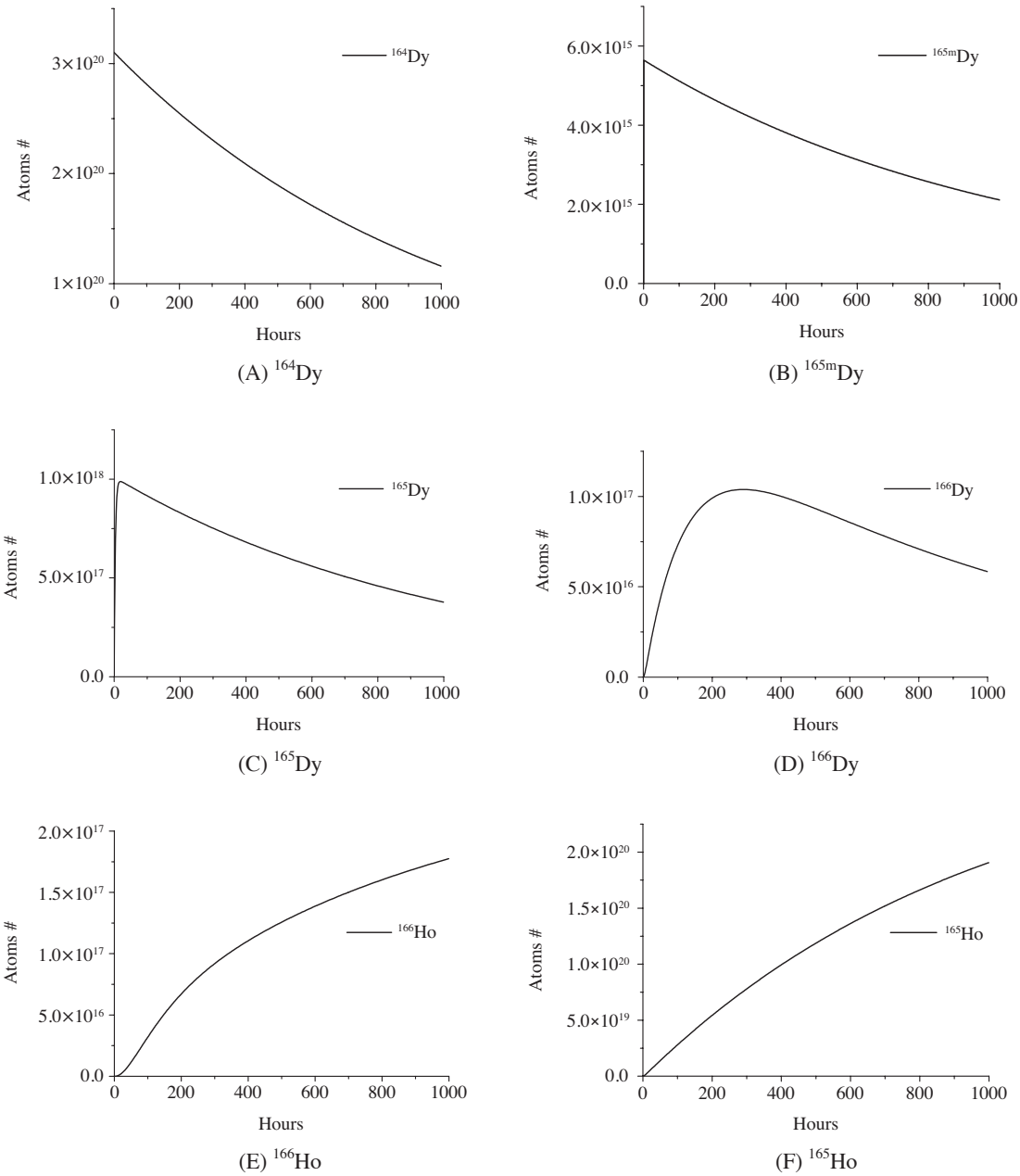
$$\frac{d}{dt}\begin{bmatrix} x_1(t) \\ x_2(t) \\ x_3(t) \\ x_4(t) \\ x_5(t) \\ x_6(t) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -(R_{1m}+R_1) & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ R_{1m} & -(\lambda_2+R_2) & 0 & 0 & 0 & 0 \\ R_1 & 0.976\lambda_2 & -(\lambda_3+R_3) & 0 & 0 & 0 \\ 0 & R_2 & R_3 & -(\lambda_4+R_4) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \lambda_4 & -(\lambda_5+R_5) & R_6 \\ 0 & 0.024\lambda_2 & \lambda_3 & 0 & 0 & -R_6 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} x_1(t) \\ x_2(t) \\ x_3(t) \\ x_4(t) \\ x_5(t) \\ x_6(t) \end{bmatrix} \tag{4}$$

식(4)의 상태 방정식의 해는 식(5)와 같이 표시된다. 여기서 X(0)는 상태 벡터의 초기 값이며, e^{At}는 행렬지수이며 행렬지수의 정의는 식(6)과 같이 된다.

$$X = X(0)e^{At} \tag{5}$$

$$e^{At} = I + At + \frac{1}{2!}A^2t^2 + \cdots \frac{1}{k!}A^kt^k + \cdots \tag{6}$$

식(6)은 다수의 행렬연산과 factorial연산을 포함하므로 이를 직접 계산하기는 어렵다. 일반적으로 상태 방정식은 행렬



(A) ^{164}Dy (B) ^{165m}Dy

(C) ^{165}Dy (D) ^{166}Dy

(E) ^{166}Ho (F) ^{165}Ho

Fig. 3. State space model analysis result.

지수 함수를 제공하는 상용 수학연산 프로그램을 통하여 수행한다. Table 2는 상태 방정식 연산에 사용된 각각의 parameter 값이다. Westcott g factor (g), thermal flux (Φ_0), thermal neutron cross section (σ_0), epithermal neutron flux (Φ_e), resonance integral (I_0)을 포함한 반응율(R_s)은 식(7)과 같다(ASTM 1997). 중성자 이중 포획반응에 관계된 핵종들의 Westcott g factor는 1에 가깝다(Mughabghab *et al*. 2003; Pritychenko and Mughabghab 2013). 따라서 IP5 매질온도인 308 K에서의 non-1/v 영향은 무시할 수 있으며, g = 1로 간주할 수 있다.

$$R_s = \Phi_0 g\sigma_0 + \Phi_e g\sigma_0[f_1 + w'/g + I_0/g\sigma_0] \quad (7)$$

$$I_0 = \int_{0.55eV}^{\infty} \sigma(E)\frac{dE}{E} \quad (8)$$

$$f_1 = \int_{0.13eV}^{0.55eV} \left(\frac{kT_0}{E}\right)^{1/2} \frac{dE}{E} \quad (9)$$

$$w' = \frac{1}{\sigma_0} \int_{0.13eV}^{0.55eV} \left[\sigma(E) - g\sigma_0\left(\frac{kT}{E}\right)^{1/2}\right] \frac{dE}{E} \quad (10)$$

Fig. 3은 LaBVIEW를 이용하여 초기 값을 $x_1(0) = 3.10 \times 10^{20}$, $x_2(0) = x_3(0) = x_4(0) = x_5(0) = x_6(0) = 0$로 설정하고 계산한 결과이다.

Table 3. Number of nuclide at the end of irradiation

Nuclide	^{164}Dy	^{165m}Dy	^{165}Dy	^{66}Dy	^{166}Ho	^{165}Ho
Atoms#	2.318×10^{20}	4.218×10^{15}	7.551×10^{17}	1.038×10^{17}	9.105×10^{16}	7.708×10^{19}

Table 4. Number of atoms after cooling process (24 hours) and melting (1 hour)

Nuclide	^{164}Dy	^{165m}Dy	^{165}Dy	^{66}Dy	^{166}Ho	^{165}Ho
Atoms#	2.3179×10^{20}	0	4.5050×10^{14}	8.3982×10^{16}	6.2195×10^{16}	7.7837×10^{19}

^{166}Ho의 비방사능을 높이기 위해 중성자 조사 중에 생성된 ^{166}Ho은 제거과정을 거치고 ^{166}Dy으로부터 milking하여 사용한다. 따라서 ^{166}Ho의 생성량을 극대화하기 위해서는 중성자 조사 시간을 ^{166}Dy의 농도가 최대가 되는 시간으로 설정하여야 한다. Fig. 3을 보면 중성자 조사 시간에 따라 ^{166}Dy의 원자수가 증가한 후 다시 감소하는 추세가 됨을 알 수 있다. 따라서 이중 포획반응에서 최적의 조사시간이 존재함을 알 수 있다. 이 최적의 조사시간은 중성자 플럭스에 의존한다. Fig. 3에 의하면 ^{166}Dy의 원자수가 최대가 되는 시간은 중성자 조사 시작 후 296시간이 되는 때이다. 이때의 각 핵종의 원자 수는 식 (4) 및 (5)에서 t = 296 h 값일 때 상태 변수 값으로 Table 3과 같이 된다.

2. 냉각, 용해 및 1차 분리

표적 물질은 알루미늄 재질의 캡슐에 삽입되어 조사되는데 고속중성자에 의한 ^{27}Al(n,α)^{24}Na반응에 의해 반감기 15.02 h의 ^{24}Na가 발생한다. 또한 ^{24}Na외에도 표적시료에 포함된 기타핵종에 의해 불순물 방사성 핵종이 발생한다. 이로 인해 중성자 조사후 다음 공정을 위해 방사선 준위가 취급 가능한 수준으로 감쇄될 때까지 기다려야 하는 냉각 시간이 필요하다. Cooling 이후 표적시료를 분리공정을 위해 녹여서 용액으로 변환한다. 녹이는데 필요한 시간은 약1시간 정도이며 공정 관점에서 보면 cooling과 같은 대기과정과 같다. Cooling 및 melting 공정 중에 변화된 핵종의 원자수를 구하기 위해 다시 상태 방정식을 이용한다. 이를 위해 식(4) 및 (5)의 상태 방정식에 초기 값 vector를 X(0) = [2.3179×10^{20}, 4.2182×10^{15}, 7.5512×10^{17}, 1.0383×10^{17}, 9.1051×10^{16}, 7.7079×10^{19}]로 하고 중성자 플럭스 값을 0으로 하여 t = 25 h에서의 상태 변수 값을 계산하였다. Table 4는 24시간 cooling 및 1시간 melting 공정후의 각 핵종의 원자수이다.

용해된 표적물질에는 ^{166}Dy, ^{164}Dy, ^{165}Dy, ^{166}Ho, ^{165}Ho 등이 포함되어 있으며, 이때 Ho 대비 ^{166}Ho의 분율은 매우 낮다. 이는 중성자 조사시 생성된 $^{165m+g}$Dy로부터 ^{165}Ho의 원자수가 지속적으로 생성 및 축적되어 ^{166}Ho에 비해 많은 ^{165}Ho원자수가 있기 때문이다. ^{166}Ho의 비 방사능을 높이기 위해 1차 컬럼 분리를 통해 Ho를 제거한다. 높은 비방사능의 ^{166}Ho를 위해서는 1차 분리 단계에서 Ho 제거효율이 높을수록 좋다. 1차 컬럼 분리 후의 농도는 Table 5와 같다.

Table 5. Number of atoms after 1st separation

Nuclide	1st separation eff. 99%	1st separation eff. 99.9%	1st separation eff. 99.99%
^{164}Dy	2.3179×10^{20}	2.3179×10^{20}	2.3179×10^{20}
^{165m}Dy	0	0	0
^{165}Dy	1.8471×10^{14}	1.8471×10^{14}	1.8471×10^{14}
^{166}Dy	8.1871×10^{16}	8.1871×10^{16}	8.1871×10^{16}
^{166}Ho	5.9589×10^{14}	5.9589×10^{13}	5.9589×10^{12}
^{165}Ho	7.7838×10^{17}	7.7838×10^{16}	7.7838×10^{15}

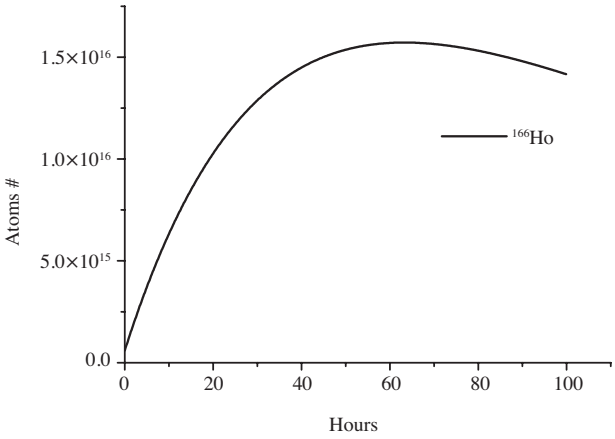


Fig. 4. Concentration of ^{166}Ho vs. time.

3. 방사평형 및 밀킹

비방사능이 높은 ^{166}Ho을 얻기 위해 중성자 조사과정에서 발생한 Ho를 분리해내는 1차 분리과정을 거치고 Dy만 남은 상태에서 ^{166}Dy의 방사평형으로 생성된 ^{166}Ho을 밀킹(milking)하는 2차 분리를 하게 된다. 이때 ^{166}Ho의 농도가 최대가 되는 시간을 계산하기 위해 1차 분리 이후의 값을 초기 값으로 하고 ϕ = 0으로 하여 시간에 따른 상태 변수 값을 구하였다. 이 조건은 ^{166}Dy로부터 생성되는 ^{166}Ho가 최대가 되는 값을 찾기 위한 과정이다. Fig. 4와 같이 ^{166}Ho의 최

대 농도점은 1차 분리 이후 약 62시간이 경과한 때가 되며 이때의 방사능은 1.12×10^{11} Bq정도이다. ^{166}Ho/Ho는 1차 컬럼분리 단계에서 제거 효율이 99%인 경우 2.0%, 99.9%인 경우 16.5%, 99.99%인 경우 62%이다. 즉 1차 분리 단계에서의 제거 효율이 비방사능에 직접적인 영향을 미치는 것을 알 수 있다.

Table 6. ^{166}Ho/Ho vs. separation efficiency

Separation efficiency	99%	99.9%	99.99%
Atoms	1.5718×10^{16}	1.5612×10^{16}	1.5602×10^{16}
Activity (Bq)	1.1288×10^{11}	1.1212×10^{11}	1.1205×10^{11}
% (^{166}Ho/Ho)	2.0%	16.5%	62%

결 과

이중 포획반응 중에 ^{164}Dy, ^{165}Dy 등은 매우 높은 중성자 흡수 단면적을 가지고 있기 때문에 핵변환으로 인한 표적물질의 연소(burn-up)가 큰 편이다. 이를 계산해보면 ^{164}Dy의 최대 생성시간인 296시간 조사에서 연소로 인한 ^{164}Dy의 감소율(^{164}Dy(t = 296 h)/^{164}Dy(t = 0))은 약 23.6%이다. ^{166}Dy는 열중성자 흡수면적이 큰 물질로 중성자 흡수로 인한 ^{166}Dy 원자수가 감소한다. 본 조사조건에서는 약 3.1%가 감소되는 것으로 계산되었다. 기존 ^{166}Ho 생산에서는 ^{166}Dy의 열중성자 흡수로 인한 ^{166}Dy 감소량을 무시할 수 있는 수준으로 여겨졌으나 이는 낮은 중성자 플럭스(1×10^{13} n·cm^{2}·s^{-1}) 및 단시간 조사(1시간 조사) 조건으로 인한 것으로 판단된다 (SEKINE and BABA 1980). 중성자 흡수 단면적, 연소도, 중성자 플럭스 등은 방사능 값에 영향을 주는 데 비해, 1차 분리 시의 분리효율은 비방사능에 큰 영향을 준다. Table 5 및 6에 의하면 비방사능을 높이기 위해서는 Dy 및 Ho 분리 성능을 높이는 것이 중요하다는 것을 알 수 있다. Lahiri *et al*. (2004)에 의하면 Aminex-A5 column을 사용하여 95%의 용출 효율로 Ho를 분리하였으며, 이때 Ho용출액 중 Dy 분율은 0.1%이다. 상기 조건을 고려하여 생산하는 경우 ^{166}Ho의 최종 방사능은 100 mg의 Dy_2O_3 표적에 대해 3.10 Ci (1.12×10^{11} Bq)이다.

고 찰

중성자 이중 포획반응에서 ^{166}Ho의 생성량에 큰 영향을 주는 핵반응 인자는 ^{164}Dy(n,γ)$^{165g+m}$Dy 반응의 열중성자 흡수 단면적과 ^{165}Dy (n,γ)^{166}Dy 반응의 열중성자 반응 단면적이다. ^{164}Dy(n,γ)$^{165g+m}$Dy 반응율을 $N_1\Phi\sigma_1$, ^{165}Dy(n,γ)^{166}Dy 반응율을 $N_2\Phi\sigma_2$라 할 때 두 번째 반응의 원자수는 첫 번째 반응율에 비례하기 때문에 결과적으로 이중 포획반응에 의한 ^{166}Dy 원자수는 $N_1\Phi_2\sigma_1\sigma_2$에 비례하는 값이 된다. 즉 이중포획 반응에 의한 ^{166}Dy생성 원자수는 중성자 플럭스의 자승에 비례한다. 따라서 (n,γ)반응에 비해 약간의 중성자 플럭스 차이에 대해 생성량이 큰 영향을 받는다. 하나로 조사공에서 중성자 선속은 노심에서의 거리에 따라 다르고 수직공의 높이별로 차이가 있기 때문에 표적 조사 위치를 고려한 정확한 선속 값이 필요하다. 다음으로 고려해야 할 부분은 중성자 flux의 self shielding 문제를 들 수 있다. 중성자 반응 단면적이 매우 큰 경우 self shielding에 의해 표적재료의 가운데 부분은 중성자 플럭스가 낮아진다. 열중성자 플럭스를 Φ_0라 하고 self shielding에 의한 감소율을 shielding factor라 정의하고 G_t로 표기할 때 실제 반응율은 $G_t\Phi_0\sigma$가 된다 (ASTM 1997). MCNPX로 계산한 96.8% 농축의 표적에 대한 self shielding factor를 MCNPX로 계산한 결과 직경 0.1 mm wire일 때 G_t값이 0.98, 1 mm일 때 0.80으로 나타났다. Self shielding을 줄이기 위해서는 G_t값을 고려하여 충분히 작은 두께로 표적을 제작하는 것이 필요하다.

결 론

지금까지 하나로 조사공을 이용한 중성자 이중 포획반응에 의한 Ho 생산을 평가해보았다. 이중 포획반응을 통한 생산 시 ^{164}Dy의 최대 생성량 도달시간이 296시간 (12.3일)이므로 하나로 운전주기인 1주기 (28일) 운전에 맞추어 생산공정의 구성이 가능할 것으로 판단된다. $^{165g+m}$Dy(n,γ)^{166}Dy 반응 및 ^{165}Ho(n,γ)^{166}Ho반응은 열중성자 흡수 단면적 외에 큰 resonance integral 값을 갖는다. 이 때문에 노심에 가까운 조사공을 사용할 경우 epithermal neutron flux에 대한 영향을 고려해야 하며, 이를 위해 각 조사공에서 epithermal neutron flux에 대한 정확한 측정이 필요하다. 아울러 Dy 및 Ho 핵반응 데이터에 대한 자료가 충분하지 않아 정확한 생성량 계산 값에 어려움이 있었으며, 정확한 생성량 평가를 위해 관련 반응의 지속적인 핵반응 데이터의 확보와 측정실험이 필요한 것으로 보인다.

사 사

본 연구는 한국원자력연구원 주요사업인 동위원소생산 및 융합기술과제 지원으로 수행되었습니다 (525140-15).

참 고 문 헌

이종태, 김은경, 원종윤, 이도연, 이종두, 유내춘, 박경배, 유형식. 2001. Holmium-166 키토산 복합체의 간동맥 주입에 의한 간세포암치료의 기초와 임상연구, 대한방사선의학회지 **44**:441-451.

ASTM Test Method : E262-97. 1997. Standard Test Method for Determining Thermal Neutron Reaction and Fluence Rates by Radioactivation Techniques.

Choi KH and Kim JB. 2015. The Assessment of Production of n.c.a. Ho-166 through Double (n,γ) reaction. HANARO symposium.

Cutler CS, Wilder SL and Embree ME. 2011. Separation method for carrier free radiolanthanices., US/0277592 A1.

Dadachova E, Mirzadeh S, Lambrecht RM, Hetherington EL and Knapp FF Jr. 1995. Separation of Carrier-Free ^{166}Ho from Dy_2O_3 Tragets by partition chromatography and electrophoresis. **199**(2):115-123.

De Corte F, Steinnes E, De Neve P and Simonits A. 1997. Importance of double neutron-capture as a second-order reaction interference. *J. Radioanal. Nucl. Ch.* **215**(2):279-282.

International news. 2014. Are Holmium microspheres a next generation embolic for radioembolization?, BIBA Publishing.

Lahiri S, Volkers KJ and Wierczinski B. 2004. Production of ^{164}Dy(n,γ)^{165}Dy(n,γ)^{166}Dy(β-)^{166}Ho and separation of ^{166}Ho, *Appl. Radiat. Isotopes*. **61**:1157-1161

Mughabghab SF. 2003. Thermal Neutron Caputre Cross Sections and Resonance Integrals and G-factors. IAEA.

Ogata K. 1999. Modern Control Engineering, 3rd ed. pp. 68-131, Prenctice Hall.

Pritychenko B and Mughabghab SF. 2013. Neutron Thermal Cross sections, Westcott Factors, Resonance Integrals, Maxwellian Averaged Cross Sections and Astrophysical Reaction Rates Calculated from the ENDF/B-VII.1, JEFF-3.1.2, JENDL-4.0, ROSFOND-2010, CENDL-3.1 and EAF-2010 Evaluated Data Libraries, BNL Report.

SEKINE T and BABA H. 1981. Reactor-neutron-capture cross sections of ^{165}Dy isomers. *J. Inorg. Nucl. Chem.* **43**:1107-1113.

Yucel H and Karadag M. 2005. Measurement of thermal neutron cross section and resonance integral for ^{165}Ho(n,γ)^{166g}Ho reaction by the activation method. *Annals of Nuclear Energy* **32**:1-11.

Received: 3 July 2015
Revised: 13 July 2015
Revision accepted: 15 July 2015