



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2013년12월10일
(11) 등록번호 10-1339295
(24) 등록일자 2013년12월03일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
G21G 1/06 (2006.01)

(21) 출원번호 10-2012-0071739

(22) 출원일자 2012년07월02일

심사청구일자 2012년07월02일

(56) 선행기술조사문헌

KR1020110059369 A

JP2000284096 A

JP2004531875 A

(73) 특허권자

한국원자력연구원

대전광역시 유성구 대덕대로989번길 111(덕진동)

(72) 발명자

정성희

대전광역시 유성구 구즉로 16 한마을아파트 111동 1506호

최성호

대전광역시 유성구 유성대로 1646 한남대 대덕밸리 캠퍼스

(뒷면에 계속)

(74) 대리인

특허법인이룸

전체 청구항 수 : 총 4 항

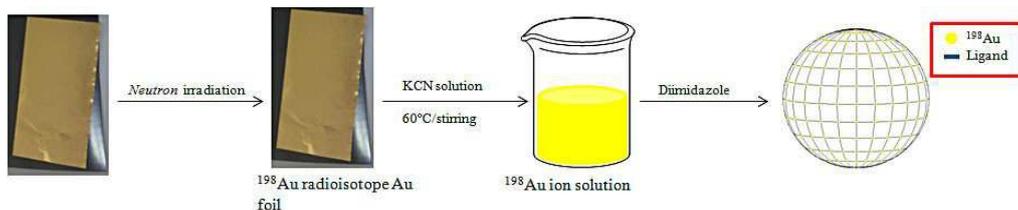
심사관 : 오규환

(54) 발명의 명칭 리간드-금속 골격을 갖는 방사성 동위원소 나노구조체의 제조방법 및 활용

(57) 요약

본 발명은 리간드-금속 골격을 갖는 방사성 동위원소 나노구조체의 제조방법 및 상기 제조방법으로 제조된 방사성 동위원소 나노구조체에 관한 것으로, 본 발명에 따른 리간드-금속 골격을 갖는 방사성 동위원소 나노구조체 제조방법은 제조과정이 단순하기 때문에 방사성 동위원소 나노구조체를 대량생산하는데 사용할 수 있으며, 또한 상기 제조방법으로 제조된 나노구조체는 나노크기의 구형 입자이며 반응기가 없기 때문에 유체에서 분산이 용이할 뿐만 아니라 물리적, 화학적으로 안정한 구조이기 때문에 정유, 화학, 시멘트, 농업, 수자원, 해양 등의 분야에서 방사성 동위원소 추적자로 이용할 수 있다. 또한 의료 분야에서 진단 및/또는 치료용 나노구조체로 사용 가능하며, 나노물질의 위해성 평가용 재료로도 적용될 수 있다. 이외에도 방사성 동위원소를 사용하는 다양한 분야에 적용 가능할 것으로 기대된다.

대표도 - 도1



(72) 발명자

김중범

대전광역시 유성구 가정로 306-6 타운하우스 5-105

문진호

대전광역시 동구 은어송로 100 은어송마을5단지아파트 507동 905호

오민석

대전광역시 유성구 유성대로 1646 한남대 대덕밸리 캠퍼스

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호

527160-12

부처명

기획재정부

연구사업명

주요사업 중 창의연구사업

연구과제명

RI 산업응용 계측용 리간드 기반 방사성 나노입자 개발

기여율

1/1

주관기관

한국원자력연구원

연구기간

2012.01.01 ~ 2012.12.31

특허청구의 범위

청구항 1

- a) 금(¹⁹⁷Au)에 중성자를 조사(irradiation)하여 방사성 동위원소 금(¹⁹⁷Au)을 제조하는 단계;
- b) 상기 방사성 동위원소 금(¹⁹⁷Au)을 용액에 용해하여 방사성 동위원소 금(¹⁹⁷Au) 이온을 제조하는 단계; 및
- c) 상기 방사성 동위원소 금(¹⁹⁷Au) 이온에, 1,1'-카보닐디이미다졸(1,1'-Carbonyldiimidazole), 1,1'-티오카보닐디이미다졸(1,1'-Thiocarbonyldiimidazole), N,N'-비스(이미다졸)디메틸실란(N,N'-Bis(imidazole)dimethylsilane), 및 2,6-비스((1H-이미다졸-1-일)메틸)나프탈렌(2,6-bis((1H-imidazole-1-yl)methyl)naphthalene)으로 이루어진 군으로부터 선택되는 이미다졸 리간드를 1:1 내지 1:3의 몰비율로 혼합하는 단계를 포함하는, 리간드-금속 골격을 갖는 방사성 동위원소 금(¹⁹⁷Au)나노구조체의 제조방법.

청구항 2

삭제

청구항 3

삭제

청구항 4

제 1 항에 있어서,

상기 용액은 시안화칼륨(potassium cyanide) 용액인 것을 특징으로 하는, 방사성 동위원소 금(¹⁹⁷Au)나노구조체의 제조방법.

청구항 5

삭제

청구항 6

제 1 항 또는 제 4 항의 제조방법으로 제조된, 리간드-금속 골격을 갖는 방사성 동위원소 금(¹⁹⁷Au)나노구조체.

청구항 7

제 6 항에 있어서,

상기 금(¹⁹⁷Au)나노구조체는 방사성 동위원소 추적자(radioisotope tracer)로 사용되는 것을 특징으로 하는, 방사성 동위원소 금(¹⁹⁷Au)나노구조체.

명세서

기술분야

[0001] 본 발명은 리간드-금속 골격을 갖는 방사성 동위원소 나노구조체의 제조방법 및 활용 등에 관한 것이다.

배경기술

[0002] 동위원소(Isotope) 중에서 방사능을 갖는 것을 방사성 동위원소 또는 라디오아이소토프(radioisotope, RI)라고

한다. 300종 가량 되는 천연 동위원소 중에서 방사성 동위원소는 약 40종인데, 그 중 대부분은 탈륨보다 큰 원자번호를 갖는 원소의 동위원소이다. 최근에는 천연 방사성 동위원소 외에, 약 1,000종의 인공 방사성 동위원소가 제조되고 있으며, 그 분포는 거의 모든 원소에 이르고 있다. 일반적으로 인공 방사성 동위원소는 안정된 원소 또는 화합물을 원자로나 입자가속기로 조사함으로써 만들어지며, 물질이나 생체 내에서 원소나 화합물의 행동을 추적하기 위한 목표로서의 이용, 물질이나 생물에 대한 방사선의 조사효과로서의 이용, 공업용 또는 계측용 방사선원으로서의 이용, 방사능을 이용한 물질분석의 응용 등에 널리 사용되고 있다. 이중 원소나 화합물의 행동을 추적하기 위하여 사용되는 방사성 동위원소를 방사성 동위원소 추적자(*radioisotope tracer*)라 하며, 방사성 추적자 기술을 이용하여 정유, 화학, 시멘트 등의 산업공정의 분석을 고급화할 뿐 아니라 환경, 의학, 농업, 자원탐사 등의 분야에서도 획기적 기술 도약을 이끌어 낼 수 있다.

[0003] 이러한 방사성 추적자 기술을 효과적으로 이용하기 위해서는 방사성 동위원소 추적자를 제조하는 기술이 매우 중요하다. 사용하는 분야에 따라 약간의 차이가 있겠지만, 방사성 동위원소 추적자의 경우, 외부에서 가해지는 압력, 온도, 화학적 처리 등과 같은 외부 환경에 영향을 받지 않고 원자핵 스스로 방사선을 방출하여 다른 종류의 원자핵으로 변환하는 특성이 요구된다. 또한, 고온 및/또는 고압 유체에 사용하기 위해서는 화학 및 물리적 안정성은 물론 유체와 유사한 밀도를 가져야 유체와 혼합되어 방사성 추적자로 사용할 수 있다. 일반적으로 이용되고 있는 방사성 동위원소 물질인 ¹⁹⁸Au, ⁶³Ni, ¹⁰⁸Ag, ⁶⁴Cu, ⁶⁰Co 등은 금속으로 밀도 및 비중이 매우 커서, 고온 및 고압의 산업공정 유체에 사용할 수 없다. 따라서, 고온 및/또는 고압의 유체에 방사성 동위원소 추적자를 사용하기 위하여 다양한 연구들이 진행되고 있다.

[0004] 대한민국 등록특허 제10-1091416호에는 고온 및 고압에서 안정적인 나노 크기의 감마선을 방출하는 코아-셸 구조를 갖는 나노 구조체에 대하여 개시된 바 있으며, 또한 코아-셸 구조를 갖는 2핵종 나노 구조체에 대해 개시된 바도 있다(J.-H. Jung, *et al.*, Nuclear Engineering & Technology, (2012) in press). 그러나 코아-셸 구조를 갖는 나노 구조체의 경우, 나노입자 제조, 실리카 코팅, 유기물 처리, 및 중성자 조사 등의 다단계를 거쳐야 하기 때문에 제조 공정이 복잡할 뿐만 아니라, 실리카 코팅용 용액으로부터 나노입자를 원심분리를 통해 분리해야하는 장시간의 단계가 필요하므로, 대량으로 합성하기에는 한계가 있다.

[0005] 한편, 방사성동위원소 ⁶⁸Ga³⁺ 양이온은 DOTA 및 NOTA 등의 리간드와 착물화 시킨 후, 이 착물을 단백질과 결합시켜 PET 이미징용 방사성동위원소 추적자로 사용하고 있다(E. Boros, *et al.*, J. Am. Chem. Soc., (2010) 132: 15726-15733). 그러나 상기 리간드의 경우, 착물화 중합(coordination polymerization)을 할 수 없어 고온 및 고압의 산업공정 환경에 적합한 구형의 나노 구조체를 제조할 수 없다는 단점을 가지고 있다.

[0006] 이와 같이, 방사성 추적자 기술을 고온 및/또는 고압의 산업공정 환경에서 효과적으로 이용하기 위해서는, 물리적, 화학적으로 안정할 뿐만 아니라 제조가 용이하여 대량생산이 가능한 방사성 동위원소 추적자의 제조를 위한 대안 기술의 개발이 요구되고 있는 실정이다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0007] 본 발명은 상기와 같은 종래 기술상의 문제점을 해결하기 위해 안출된 것으로, 물리적, 화학적으로 안정하며 유체에서 분산이 용이한 나노 크기의 구형이며, 반응기가 없는 방사성 동위원소 나노구조체 및 상기 나노구조체를 대량생산할 수 있는 제조방법 등을 제공하는 것을 그 목적으로 한다.

[0008] 그러나 본 발명이 이루고자 하는 기술적 과제는 이상에서 언급한 과제에 제한되지 않으며, 언급되지 않은 또 다른 과제들은 아래의 기재로부터 당업자에게 명확하게 이해될 수 있을 것이다.

과제의 해결 수단

[0009] 본 발명은 a) 중성자를 조사(irradiation)하여 방사성 동위원소 금속을 제조하는 단계; b) 상기 방사성 동위원소 금속을 용액에 용해하여 방사성 동위원소 금속 이온을 제조하는 단계; 및 c) 상기 방사성 동위원소 금속 이온에 이미다졸 리간드를 혼합하는 단계를 포함하는, 리간드-금속 골격을 갖는 방사성 동위원소 나노구조체의 제조방법을 제공한다.

[0010] 본 발명의 일 구현예로, 상기 방사성 동위원소 금속은 ⁶⁸Ga, ⁶⁴Cu, ⁶⁷Cu, ¹⁹⁸Au, ¹⁸⁶Re, ¹⁴⁰La, ⁸³Rb, ¹⁷⁷Lu, ⁵²Mn, ¹³⁷Cs, ²⁴Na, ⁴⁶Sc, ⁸²Sr, ⁸⁵Sr, ⁸⁹Sr, ²⁴¹Am, ⁶⁵Zn, ¹⁹²Ir, ⁶⁸Ge, ⁵⁵Fe, ⁴⁷Ca, ⁶⁰Co, ⁵⁷Cr, ²⁰¹Tl, ^{99m}Tc, 및 ¹⁰³Pd로 이루어

어진 군으로부터 선택되는 것을 특징으로 한다.

- [0011] 본 발명의 다른 구현예로, 상기 이미다졸 리간드는 1,1'-카보닐디이미다졸(1,1'-Carbonyldiimidazole), 1,1'-티오키아보닐디이미다졸(1,1'-Thiocarbonyldiimidazole), N,N'-비스(이미다졸)디메틸실란(N,N'-Bis(imidazole)dimethylsilane), 1,4-비스((1H-이미다졸-1-일)메틸)벤젠(1,4-Bis((1H-imidazole-1-yl)methyl)benzene), 및 2,6-비스((1H-이미다졸-1-일)메틸)나프탈렌(2,6-bis((1H-imidazole-1-yl)methyl)naphthalene)으로 이루어진 군으로부터 선택되는 것을 특징으로 한다.
- [0012] 본 발명의 또 다른 구현예로, 상기 용액은 시안화칼륨(potassium cyanide) 용액인 것을 특징으로 하나, 이에 한정되지 않는다.
- [0013] 본 발명의 또 다른 구현예로, 상기 방사성 동위원소 금속 이온에 이미다졸 리간드를 혼합하는 단계는 금속 이온과 이미다졸 리간드의 몰 비율(mole ratio)이 1:1 내지 1:3인 것을 특징으로 한다.
- [0014] 또한 본 발명은 상기 리간드-금속 골격을 갖는 방사성 동위원소 나노구조체의 제조방법으로 제조된 리간드-금속 골격을 갖는 방사성 동위원소 나노구조체를 제공한다.
- [0015] 본 발명의 일 구현예로, 상기 나노구조체는 방사성 동위원소 추적자(radioisotope tracer)로 사용되는 것을 특징으로 한다.

발명의 효과

- [0016] 본 발명에 따른 리간드-금속 골격을 갖는 방사성 동위원소 나노구조체 제조방법은 제조과정이 단순하기 때문에 방사성 동위원소 나노구조체를 대량생산하는데 사용할 수 있으며, 또한 상기 제조방법으로 제조된 나노구조체는 나노크기의 구형 입자이며 반응기가 없기 때문에 유체에서 분산이 용이할 뿐만 아니라 물리적, 화학적으로 안정한 구조이기 때문에 정유, 화학, 시멘트, 농업, 수자원, 해양 등의 분야에서 방사성 동위원소 추적자로 이용할 수 있다. 또한 의료 분야에서 진단 및/또는 치료용 나노구조체로 사용가능하며, 나노물질의 위해성 평가용 재료로도 적용될 수 있다. 이외에도 제조 과정 중 나노구조체의 입자 크기 조절을 통하여 이미징 측정용, 기타 산업용 등으로 광범위하게 사용이 가능하다. 예를 들면, 수자원 오염예방, 가축 질병 진단 및 치료를 위한 원자력 기술의 표준화, 가축질병 퇴치를 위한 감마카메라를 이용한 방사선 측정, 식품조사에서는 X선, 전자빔 등 대체 조사기술의 사용, 토양 및 대지 이용에서는 심각한 토양침식 지역 파악을 위한 특수방사성동위원소 분석 등에 활용이 가능하다.

도면의 간단한 설명

- [0017] 도 1 은 리간드-금속 골격을 갖는 방사성 동위원소 나노구조체 제조방법을 간략히 나타내는 모식도이다.
- 도 2 는 본 발명에 사용한 이미다졸 리간드의 화학적 구조를 나타내는 도면이다.
- 도 3 은 입도분포측정기를 이용하여 방사성 동위원소 나노구조체를 확인한 결과를 나타내는 도면이다.
- 도 4 는 광학 현미경을 이용하여 방사성 동위원소 나노구조체를 확인한 결과를 나타내는 도면이다.
- 도 5 는 주사전자현미경을 이용하여 방사성 동위원소 나노구조체를 확인한 결과를 나타내는 도면이다.
- 도 6 은 투과전자현미경을 이용하여 방사성 동위원소 나노구조체를 확인한 결과를 나타내는 도면이다.
- 도 7 은 에너지 분산형 분석기를 이용하여 방사성 동위원소 나노구조체를 확인한 결과를 나타내는 도면이다.
- 도 8 은 X-선 회절분석을 이용하여 방사성 동위원소 나노구조체를 확인한 결과를 나타내는 도면이다.
- 도 9 는 열중량분석기를 이용하여 방사성 동위원소 나노구조체를 확인한 결과를 나타내는 도면이다.
- 도 10 은 UV-Vis 분광분석기를 이용하여 방사성 동위원소 나노구조체를 확인한 결과를 나타내는 도면이다.
- 도 11 은 중성자방사화분석기를 이용하여 방사성 동위원소 나노구조체를 확인한 결과를 나타내는 도면이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0018] 본 발명은 a) 중성자를 조사(irradiation)하여 방사성 동위원소 금속을 제조하는 단계; b) 상기 방사성 동위원소 금속을 용액에 용해하여 방사성 동위원소 금속 이온을 제조하는 단계; 및 c) 상기 방사성 동위원소 금속 이온에 이미다졸 리간드를 혼합하는 단계를 포함하는, 리간드-금속 골격을 갖는 방사성 동위원소 나노구조체의 제

조방법을 제공한다.

[0019] 일반적으로 금속 착물에서는, 금속이온에 따라 리간드 결합이 생성된다. 따라서, 본 발명자들은 도 1에 나타난 바와 같이, 금속에 실험용 원자로에서 방출하는 중성자(neutron)를 조사(irradiation)하여 방사성 동위원소 금속을 제조하고, 제조된 방사성 동위원소 금속을 용액에 용해하여 방사성 동위원소 금속 이온을 제조하였다. 상기 용액의 종류는 방사성 동위원소 금속을 용해시킬 수 있는 용액이라면 제한이 없으나, 바람직하게는 시안화칼륨(potassium cyanide) 용액이다.

[0020] 상기 방사성 동위원소 금속의 종류는 방사능을 갖는 금속 동위원소라면 제한이 없으나, 바람직하게는 ⁶⁸Ga, ⁶⁴Cu, ⁶⁷Cu, ¹⁹⁸Au, ¹⁸⁶Re, ¹⁴⁰La, ⁸³Rb, ¹⁷⁷Lu, ⁵²Mn, ¹³⁷Cs, ²⁴Na, ⁴⁶Sc, ⁸²Sr, ⁸⁵Sr, ⁸⁹Sr, ²⁴¹Am, ⁶⁵Zn, ¹⁹²Ir, ⁶⁸Ge, ⁵⁵Fe, ⁴⁷Ca, ⁶⁰Co, ⁵⁷Cr, ²⁰¹Tl, ^{99m}Tc, 및 ¹⁰³Pd로 이루어진 군으로부터 선택될 수 있다. 또한, 상기 방사성 동위원소 금속을 1M의 시안화칼륨 용액에 용해시키는 단계는 방사성 동위원소 금속의 용해도를 높이기 위하여 60°C에서 교반하여 용해시킬 수 있으나, 이에 제한되지는 않는다. 또한 시안화칼륨 용액에 동위원소 금속이 용해될 수 있는 농도는 온도, 시간에 따라 변경될 수 있기 때문에, 시안화칼륨 용액과 동위원소 금속의 농도비는 상기 동위원소 금속이 모두 용해될 수 있는 농도비라면 제한이 없다.

[0021] 이후 상기 제조된 금속 이온에 이미다졸 리간드를 혼합하여 착물화 반응을 진행시켜, 리간드-금속 골격을 갖는 방사성 동위원소 나노구조체를 제조하였다. 상기 이미다졸 리간드의 종류는 벤젠 고리를 갖는 유기화합물이라면 제한이 없으나, 바람직하게는 1,1'-카보닐디이미다졸(1,1'-Carbonyldiimidazole), 1,1'-티오카보닐디이미다졸(1,1'-Thiocarbonyldiimidazole), N,N'-비스(이미다졸)디메틸실란(N,N'-Bis(imidazole)dimethylsilane), 1,4-비스((1H-이미다졸-1-일)메틸)벤젠(1,4-Bis((1H-imidazole-1-yl)methyl)benzene), 및 2,6-비스((1H-이미다졸-1-일)메틸)나프탈렌(2,6-bis((1H-imidazole-1-yl)methyl)naphthalene)으로 이루어진 군으로부터 선택될 수 있다. 또한, 상기 방사성 동위원소 금속 이온에 이미다졸 리간드를 혼합하는 단계는 금속 이온과 이미다졸 리간드의 몰 비율(mole ratio)을 1:1 내지 1:3으로 하여 혼합할 수 있으나 이에 한정되지 않는다.

[0022] 본 발명의 일 실시예에서는, 상기 방법으로 제조된 구조체의 특성을 분석하여 제조된 구조체가 나노크기의 구형 구조체이며, 리간드-금속 골격을 가지고 있는 것을 확인하였다(실시예 4 참조). 또한 제조된 리간드-금속 골격을 가지는 나노구조체는 합성 물질이 아닌 금속과 기본구조가 벤젠 고리인 유기화합물 리간드를 이용하여 제조되었기 때문에, 제조된 구조체가 고온 및/또는 고압에 안정적인 것을 알 수 있다.

[0023] 따라서 본 발명은 상기 리간드-금속 골격을 갖는 방사성 동위원소 나노구조체의 제조방법으로 제조된 리간드-금속 골격을 갖는 방사성 동위원소 나노구조체를 제공한다. 상기 나노구조체는 방사성 동위원소 추적자(radioisotope tracer)로 사용될 수 있으나, 이에 한정되지는 않는다.

[0024] 이하, 본 발명의 이해를 돕기 위하여 바람직한 실시예를 제시한다. 그러나 하기의 실시예는 본 발명을 보다 쉽게 이해하기 위하여 제공되는 것일 뿐, 하기 실시예에 의해 본 발명의 내용이 한정되는 것은 아니다.

[0025] [실시예]

[0026] **실시예 1. 이미다졸 리간드의 합성**

[0027] 방사성 동위원소에 결합시킬 이미다졸 리간드들(imidazole ligand)의 구조는 도 2에 나타내었다. 상기 이미다졸 리간드들 중, 1,1'-Carbonyldiimidazole, 1,1'-Thiocarbonyldiimidazole, 및 N,N'-Bis(imidazole)dimethylsilane은 구매하여 사용하였고, 1,4-Bis((1H-imidazole-1-yl)methyl)benzene 및 2,6-bis((1H-imidazole-1-yl)methyl)naphthalene은 시판품이 없어 직접 합성하였다.

[0028] 1,4-Bis((1H-imidazole-1-yl)methyl)benzene을 합성하기 위하여, 250mL 반응용기에 100mL DMF를 첨가하고 10mmol의 이미다졸(imidazole) 680mg을 첨가한 후, 상기 용액에 440mg의 NaH(60% in oil, 11mmol)를 혼합하고 상온에서 2시간 동안 교반을 수행하면, 수소(H₂) 가스가 발생하고, 무색에서 연한 노란 색이 나타나 나트륨(sodium)이 치환된 이미다졸 염을 수득하였다. 이 용액에 0.88g a,a'-dichloro-p-xylene(5 mmol)을 첨가하고 완전히 녹을 때까지 반응시켜 준 후, 진공 건조를 시켜 용매인 DMF를 제거하였다. 상기 건조된 이미다졸 염에 Dichloromethane(MC)과 증류수를 혼합하여 첨가하고, 분리된 유기층의 용매를 제거하여 유기 이미다졸 리간드를

합성하고, 핵자기공명분광법(nuclear magnetic resonance, NMR)으로 확인하였다. 그 결과는 하기와 같다.

[0029] ^1H NMR (ppm): CH 7.74 imidazole, CH 7.11 1-benzene, CH₂ 5.46 methylene FT-IR: 3200 cm^{-1} Aromatic C-H (broad Peak), 2700 cm^{-1} C-H, GC-MAss (FID): m/z: 238.12

[0030] 2,6-bis((1H-imidazole-1-yl)methyl)naphthalene을 합성하기 위하여, Ice bath 안에 250mL 반응용기를 장착한 후, 100ml Dichloromethane(MC)을 첨가하고, 상기 용액에 0.2g 2,6-Bis(hydroxymethyl)naphthalene(1mmol) 및 0.012ml Thionyl chloride(1mmol)를 첨가하고 2시간 동안 교반하였다. 그리고 상기 교반된 용액을 분별 깔때기에 증류수와 같이 첨가하여 유기층을 분리한 후, 다시 용매인 100ml Dichloromethane(MC)을 넣어주고 완전히 용해시켰다. 이후 용해된 용액에 0.014mg imidazole(2 mmol)을 첨가하고 2시간 동안 교반한 후, 용매를 제거하여 유기 이미다졸 리간드를 합성하고 핵자기공명분광법(nuclear magnetic resonance, NMR)으로 확인하였다. 그 결과는 하기와 같다.

[0031] ^1H NMR (ppm): CH 7.74 imidazole, CH 7.47 2-naphthalene, CH₂ 5.46 methylene, FT-IR: 3200 cm^{-1} Aromatic(triple Peak) C-H, 2700 cm^{-1} C-H, GC-MAss (FID): m/z: 288.14.

[0032] **실시예 2. 방사성 동위원소 KAuCN_2 용액의 제조**

[0033] 방사성 동위원소 1.0M KAuCN_2 용액을 제조하기 위하여, 17mg 금 호일(^{197}Au)에 실험용 원자로에서 방출하는 중성자를 조사하여 방사성동위원소 ^{198}Au 호일을 제조한 후, 60°C에서 방사성동위원소 ^{198}Au 호일 17mg을 1.0M 시안화칼륨(potassium cyanide, KCN) 용액에 반응시켜 1.0M KAuCN_2 용액을 제조하였다.

[0034] **실시예 3. 리간드-금속 골격을 갖는 방사성 동위원소 나노구조체의 제조**

[0035] 방사성 동위원소 추적자를 제조하기 위하여, 리간드-금속 골격을 갖는 방사성 동위원소 나노구조체를 제조하였다. 실시예 1의 방법으로 준비한 이미다졸 리간드들을 각각 에탄올(ethanol)에 용해시킨 후, 실시예 3의 방법으로 제조한 방사성 동위원소 1.0M KAuCN_2 용액에 서서히 첨가하면서, 3,000 내지 4,000rpm으로 교반시켜 배위 중합(coordination polymerization)을 수행하여 방사성 동위원소 나노구조체를 제조하였다. 리간드-금속 골격을 갖는 방사성 동위원소 나노구조체 제조방법의 개략적인 모식도는 도 1에 나타내었다.

[0036] **실시예 4. 리간드-금속 골격을 갖는 방사성 동위원소 나노구조체의 특성 분석**

[0037] **4-1. 입도분포측정기를 이용한 방사성 동위원소 나노구조체의 확인**

[0038] 실시예 3의 방법으로 제조된 리간드-금속 골격을 갖는 방사성 동위원소 나노구조체의 크기를 분석하기 위하여, 에탄올/물 혼합 용매 중에 분산되어 있는 방사성 동위원소 나노구조체를 입도분포측정기(Electrophoretic Light Scattering Spectrophotometer, ELS)를 이용하여 분석하였다. 그 결과는 도 3에 나타내었다.

[0039] 도 3에 나타난 바와 같이, 응집현상이 일어난 부분(약 2,000nm의 크기)을 제외하고는 평균 직경 200~300nm의 나노구조체가 제조된 것을 확인할 수 있었다.

[0040] **4-2. 광학 현미경을 이용한 방사성 동위원소 나노구조체의 확인**

[0041] 실시예 3의 방법으로 제조된 리간드-금속 골격을 갖는 방사성 동위원소 나노구조체를 확인하기 위하여, 에탄올/물 혼합 용매 중에 분산되어 있는 방사성 동위원소 나노구조체를 광학현미경(optical microscope, OM)을 이용하여 관찰하였다. 그 결과는 도 4에 나타내었다.

[0042] 도 4에 나타난 바와 같이, 방사성 동위원소 나노구조체가 발광하는 것을 확인할 수 있었으며, 이를 통하여 나노구조체가 금속을 포함하고 있음을 확인하였다.

- [0043] 4-3. 주사전자 현미경을 이용한 방사성 동위원소 나노구조체의 확인
- [0044] 실시예 3의 방법으로 제조된 리간드-금속 골격을 갖는 방사성 동위원소 나노구조체를 확인하기 위하여, 건조된 방사성 동위원소 나노구조체를 주사전자현미경(scanning electron microscope, SEM)을 이용하여 관찰하였다. 그 결과는 도 5에 나타내었다.
- [0045] 도 5에 나타난 바와 같이, 평균 직경이 3 μ m 정도인 구형의 구조체를 확인할 수 있었으며, 이를 통하여 리간드-금속 골격을 갖는 방사성 동위원소 나노구조체에 포함되어 있는 금속의 성질로 인하여, 용매를 제거하는 과정에서 응집되었다는 것을 확인할 수 있었다.
- [0046] 4-4. 투과전자 현미경 및 에너지 분산형 분석기를 이용한 방사성 동위원소 나노구조체의 확인
- [0047] 실시예 3의 방법으로 제조된 리간드-금속 골격을 갖는 방사성 동위원소 나노구조체를 확인하기 위하여, 방사성 동위원소 나노구조체를 투과전자현미경(transmission electron microscope, TEM) 및 에너지 분산형 분석기(energy dispersive X-ray fluorescence spectroscopy, EDAX)를 이용하여 분석하였다. 그 결과는 도 6 및 도 7에 나타내었다.
- [0048] 도 6에 나타난 바와 같이, 10nm 이하의 리간드-금속 골격을 갖는 구형의 방사성 동위원소 나노구조체가 제조되었다는 것을 확인할 수 있었다. 또한, 도 7에 나타난 바와 같이, 나노구조체 내에 금이 포함되어 있다는 것을 확인할 수 있었다. 상기 결과를 통하여 리간드-금속 골격을 갖는 구형의 방사성 동위원소 나노구조체가 성공적으로 제조되었다는 것을 확인하였다.
- [0049] 4-5. X-선 회절분석을 이용한 방사성 동위원소 나노구조체의 확인
- [0050] 실시예 3의 방법으로 제조된 리간드-금속 골격을 갖는 방사성 동위원소 나노구조체를 확인하기 위하여, 방사성 동위원소 나노구조체를 X-선 회절분석(X-ray Diffraction, XRD)을 이용하여 분석하였다. 그 결과는 도 8에 나타내었다.
- [0051] 도 8에 나타난 바와 같이, 각 해당 peak인 1,2,3 번의 2 θ 와 d-value 값의 결과를 통하여, 특정 원소에 대한 원소방출법으로 상기 d-value 값들을 통해 특정원소에 대한 해당 peak 값이 나오지 않은 것으로 보아 구조체나, polymer 상태임을 확인할 수 있었고, 이를 통하여 리간드-금속 골격을 갖는 방사성동위원소 나노구조체가 제조되었다는 것을 확인할 수 있었다.
- [0052] 4-6. 열중량분석기를 이용한 방사성 동위원소 나노구조체의 확인
- [0053] 실시예 3의 방법으로 제조된 리간드-금속 골격을 갖는 방사성 동위원소 나노구조체를 확인하기 위하여, 방사성 동위원소 나노구조체를 열중량분석기(thermogravimetric analyzer, TGA)을 이용하여 분석하였다. 그 결과는 도 9에 나타내었다.
- [0054] 도 9에 나타난 바와 같이, 114 $^{\circ}$ C 정도부터 무게 손실이 일어나기 시작하였고, 최대 손실은 667.5 $^{\circ}$ C에서 발생하였고, 그 이후로는 무게가 유지되었다. 최대 무게 손실량은 약 49%로서, 손실이 일어나지 않은 50%는 금 성분에 의해서라는 것을 확인할 수 있었다. 상기 결과를 통하여, 방사성 동위원소 나노구조체는 열에 안정적인 것을 확인할 수 있었다.
- [0055] 4-7. UV-Vis 분광분석기를 이용한 방사성 동위원소 나노구조체의 확인
- [0056] 실시예 3의 방법으로 제조된 리간드-금속 골격을 갖는 방사성 동위원소 나노구조체를 확인하기 위하여, 방사성 동위원소 나노구조체를 UV-Vis 분광분석기(UV-Visible Spectrophotometer)를 이용하여 UV 스펙트럼을 분석하였다. 그 결과는 도 10에 나타내었다.
- [0057] 실시예 3의 방법으로 제조된 리간드-금속 골격을 갖는 방사성 동위원소 나노구조체를 확인하기 위하여, 방사성 동위원소 나노구조체를 UV-Vis 분광분석기(UV-Visible Spectrophotometer)를 이용하여 UV 스펙트럼을 분석하였

다. 그 결과는 도 10에 나타내었다.

[0058] 4-8. 중성자방사화분석기를 이용한 방사성 동위원소 나노구조체의 확인

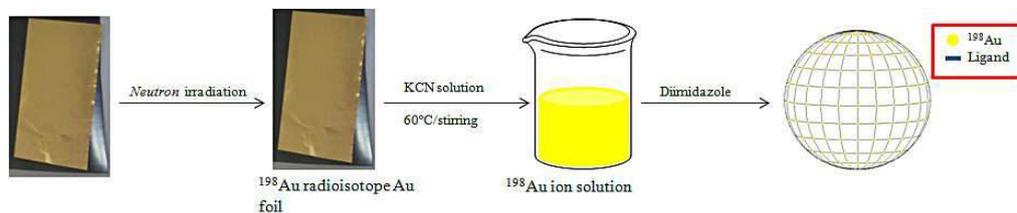
[0059] 실시예 3의 방법으로 제조된 리간드-금속 골격을 갖는 방사성 동위원소 나노구조체를 확인하기 위하여, 방사성 동위원소 나노구조체를 중성자방사화분석기(HPGe detector, NAA, 25% relative efficiency, FWHM 1.85keV at 1170, 1332keV of ⁶⁰Co)를 이용하여 중성자 조사 후 감마선 스펙트럼을 분석하였다. 그 결과는 도 11에 나타내었다.

[0060] 도 11에 나타난 바와 같이, ¹⁹⁸Au는 최소 412KeV, 최대 1087KeV의 감마선 에너지를 갖는 동위원소로서, 감마선 스펙트럼을 통하여 리간드-금속 골격을 갖는 방사성동위원소 나노구조체가 성공적으로 제조됨을 확인하였다.

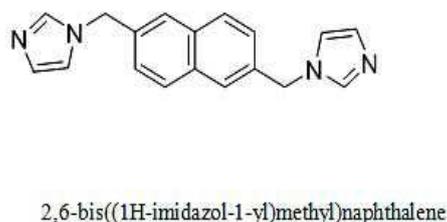
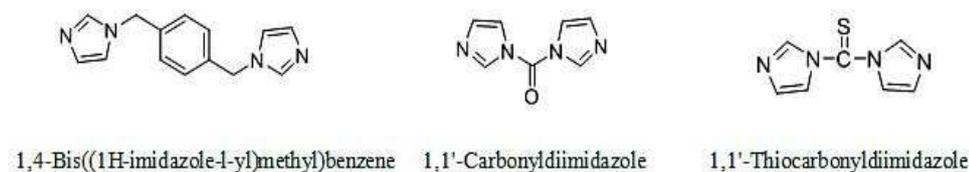
[0061] 진술한 본 발명의 설명은 예시를 위한 것이며, 본 발명이 속하는 기술 분야의 통상의 지식을 가진 자는 본 발명의 기술적 사상이나 필수적인 특징을 변경하지 않고서 다른 구체적인 형태로 쉽게 변형이 가능하다는 것을 이해할 수 있을 것이다. 그러므로 이상에서 기술한 실시예는 모든 면에서 예시적인 것이며 한정적이 아닌 것으로 이해해야 한다.

도면

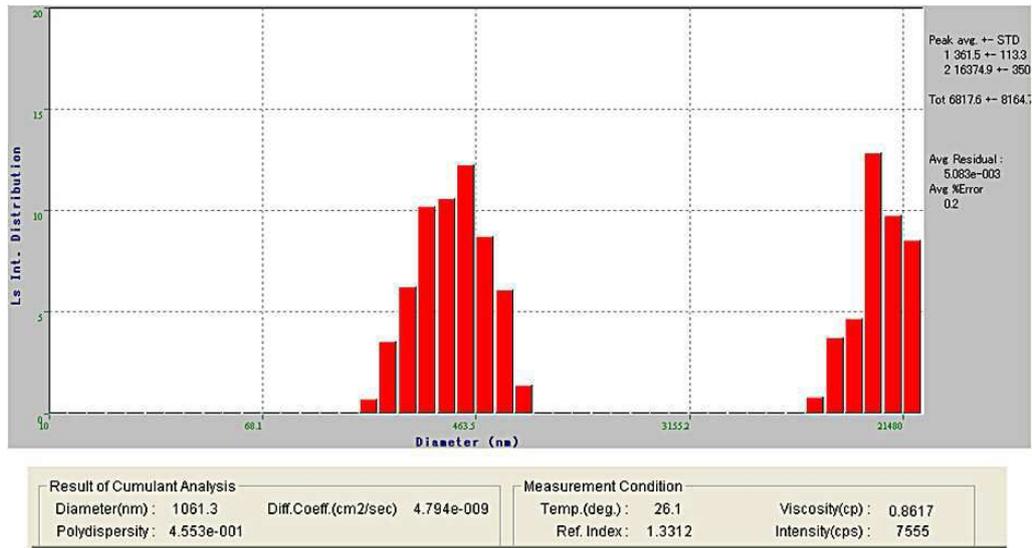
도면1



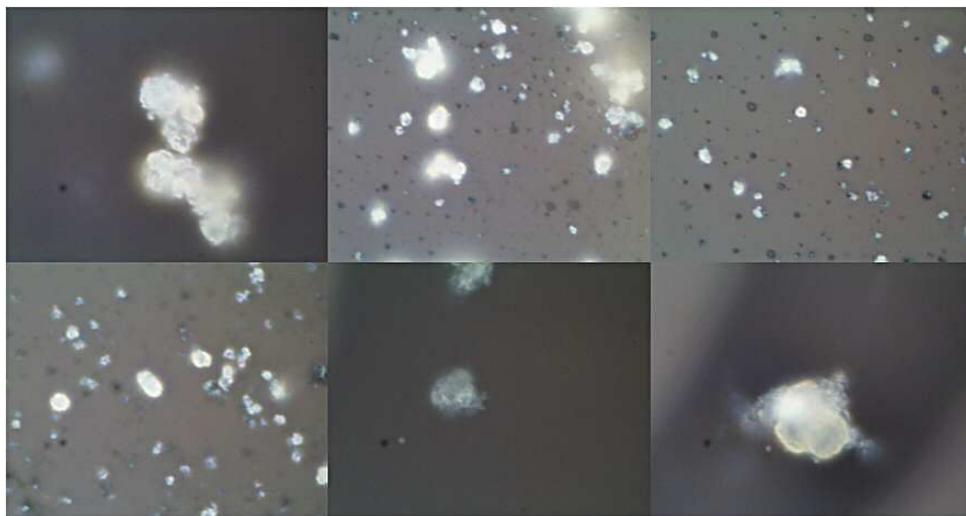
도면2



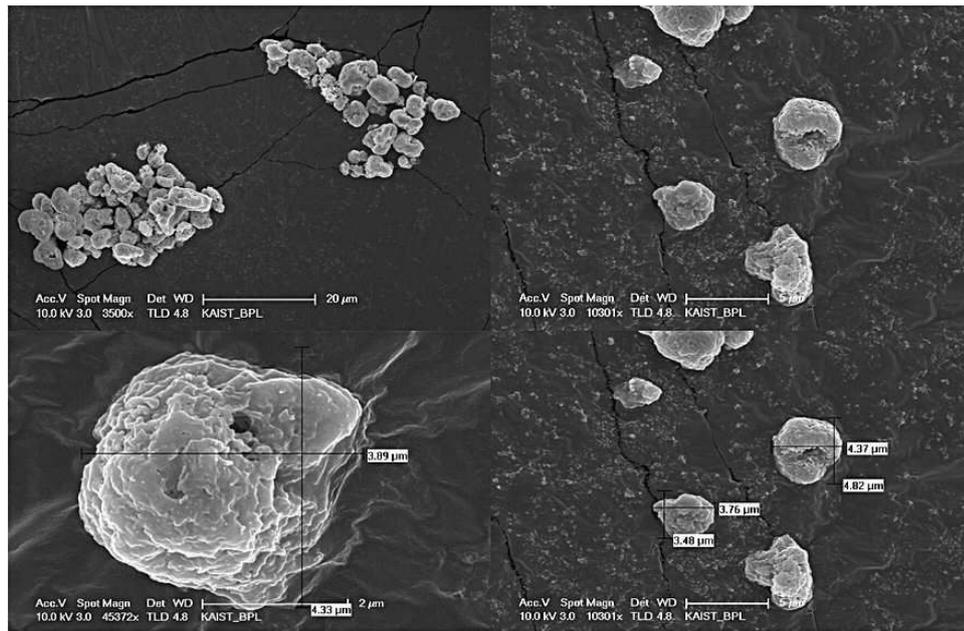
도면3



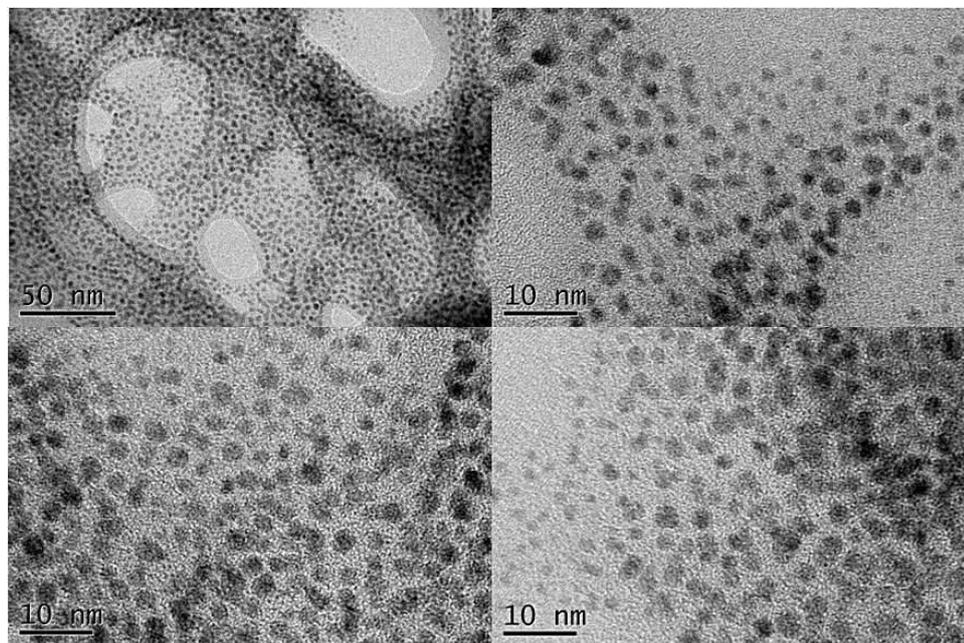
도면4



도면5

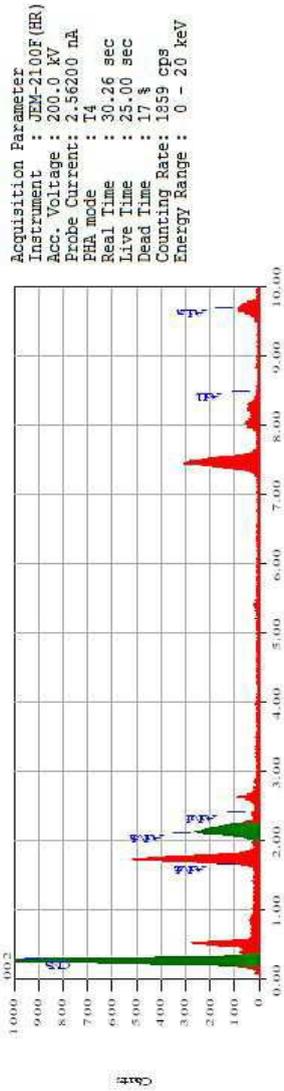
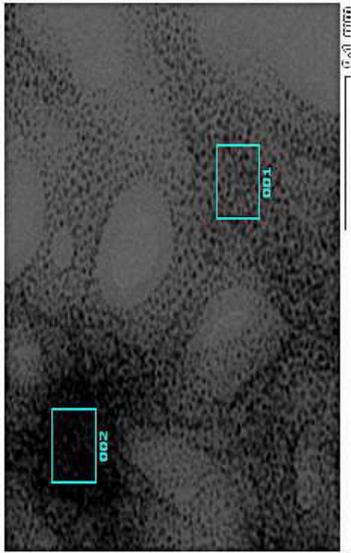


도면6



도면7

Title : BF
 Instrument : JEM-2100F(HR)
 Volt : 200.00 KV
 Mag. : x 400
 Date : 2011/12/16
 Pixel : 256 x 256



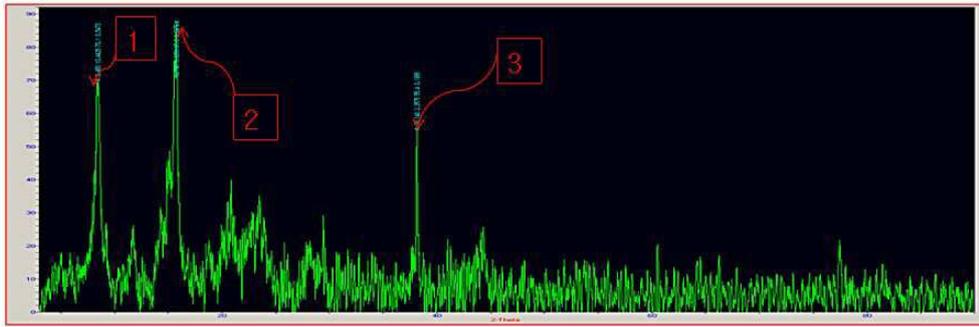
Acquisition Parameter
 Instrument : JEM-2100F(HR)
 Acc. Voltage : 200.0 KV
 Probe Current : 2.56200 nA
 PHA mode : 14
 Real Time : 30.26 sec
 Live Time : 25.00 sec
 Dead Time : 17 \$
 Counting Rate : 1859 cps
 Energy Range : 0 - 20 keV

Thin Film Standardless Standardless Quantitative Analysis

Fitting Coefficient : 0.8234

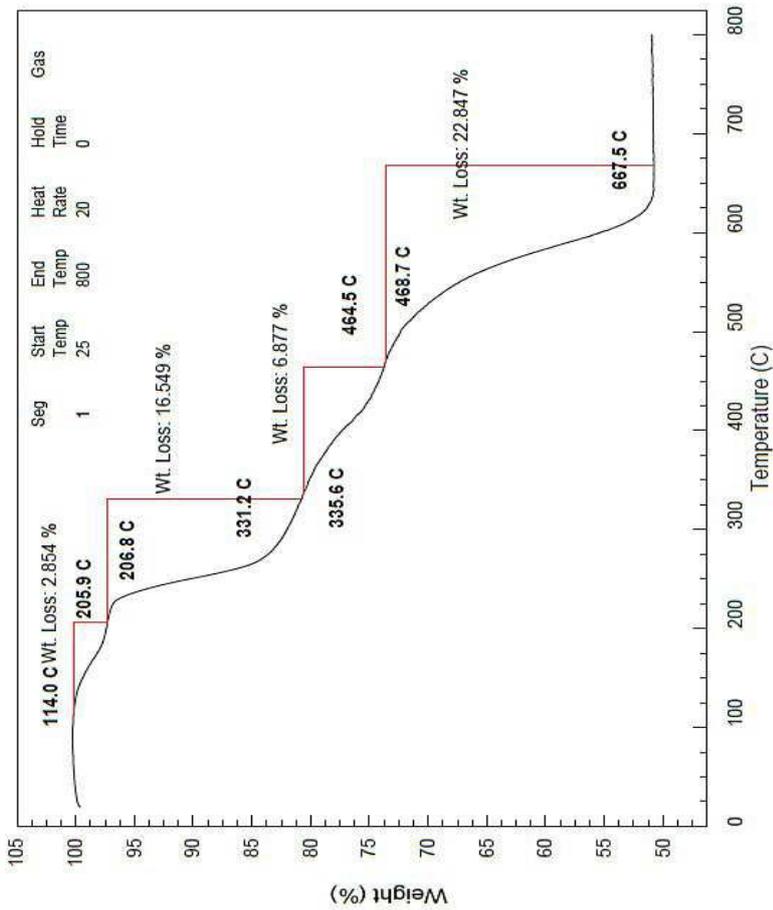
Element	(keV)	Mass\$	Counts	Error\$	Atom\$	Compound	Mass\$	Cation	K
C K* (Ref.)	0.277	82.7	10726.0	0.0	98.7				1.0000
Au M*	2.120	17.3	2478.5	0.1	1.3				0.9032
Total		100.0			100.0				

도면8

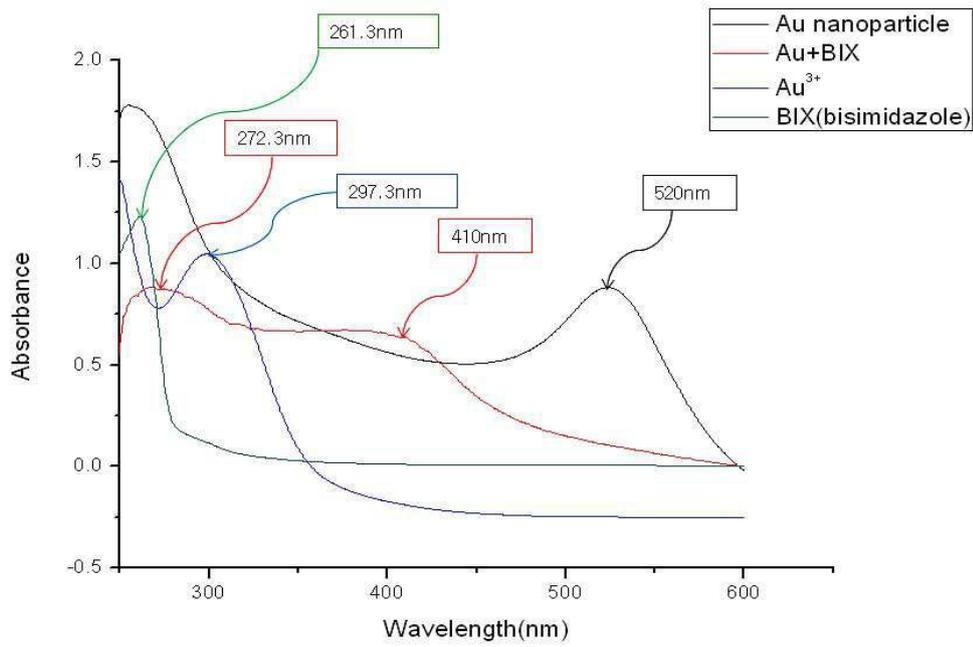


	2θ	d-value	intensity	FWHM
1	8.460	10.4426	70.1	0.5473
2	16.740	5.6259	87.6	0.2979
3	38.140	2.3575	55.4	0.1866

도면9



도면10



도면11

