

Original Article

휴대용 핵종분석기를 활용한 사이클로트론실 내 차폐벽 방사화 평가

경북대학교병원 핵의학과¹, 한국방사선진흥협회², 대구가톨릭대학교 방사선학과³

김성철¹ · 권다영² · 전여령³ · 한지영³ · 김용민³

Activation Evaluation of Radiation Shield Wall (Concrete) in Cyclotron room using the Portable Nuclide Analyzer

Running Title: Activation Evaluation of Concrete in Cyclotron room

Seongcheol Kim¹, Da Yeong Gwon², Yeoryeong Jeon³, Jiyoung Han³ and Yongmin Kim³

¹Department of Nuclear Medicine, Kyungpook National University Hospital, Daegu, Korea

²R&D Team, Korean Association for Radiation Application, Jeollabuk-do, Korea

³Department of Radiological Science, Daegu Catholic University, Gyeong-buk, Korea

Purpose

There are many cyclotrons compared to the land area of the Republic of Korea. Because GMP certification is required and the nuclear medicine test does not apply for insurance, the number of examinations for nuclear medicine is decreasing. Therefore, there is a high probability of early decommissioning of the cyclotron. However, we do not unusually perform the radioactivation evaluation on concrete that can be classified as radioactive waste during the decommissioning of the cyclotron. In this study, we aim to confirm the radioactivation in the concrete surface using Handheld Radionuclide Identification Devices (RIDs).

Materials and Methods

Because there is no cyclotron being decommissioning in the Republic of Korea, it was impossible to perform the coring of concrete for radioactivation analysis. In this study, we used the KIRAMS-13 and analyzed the concrete surface in the target direction in the cyclotron room. After setting the target direction as the center, radionuclides were measured for about five months at thirty points with vertical and horizontal intervals of 30 cm. We used the RIIDEye(Detector: NaI(Tl) detector, manufacturer: Thermo) in this study and set the measurement time per point to one day (24 hours).

Results

Co-60 and Cs-137 were detected in some measurement points, and we confirmed the radioactivity of Co-60 detected at the most points. As a result, we found that the radioactivity of Co-60 was high in the diagonal direction (from the lower-left direction to the upper right direction) based on the center of the target. However, we think it is impossible to apply the corresponding results to all cyclotrons because we performed the study using only one cyclotron.

Conclusion

In thirty measurement points, we could confirm the radioactive nuclides and the relative radioactivity using the results of portable nuclides analyzer. Therefore, we expect that we can use the portable nuclides analyzer to select the coring position of concrete during the decommissioning of the cyclotron. Also, if we secure the radioactivation data for several years, we expect to make a more accurate estimate of radioactive waste during the preparation period of decommissioning of the cyclotron.

Key Words

Radioactivation, Portable nuclide analyzer, Cyclotron

• Received: October 1, 2021 Accepted: October 29, 2021

• Corresponding author: **Yongmin Kim**

• Department of Radiological Science, Daegu Catholic University,
Hayang-ro 13-13, Hayang-eup, Gyeongsan-si, Gyeong-buk,
Republic of Korea, 38430

Tel: +82-53-850-2522, Fax : +82-53-359-6762

E-mail: ymkim17@cu.ac.kr

서론

전세계적으로 사이클로트론을 10대 이상 보유하고 있는 국가별 사이클로트론수와 국가 면적당 사이클로트론 수를 분석한 결과, 국내의 경우 사이클로트론 수는 7위였으나, 면적당, 국가인구당 사이클로트론 수는 각각 3위, 4위로서 국가 면적 대비 많은 사이클로트론을 보유하고 있는 것으로 판단된다.¹⁾ 하지만, Table 1에 제시된 대구 소재 K대학교병원의 최근 10년간 주요 PET/CT 검사수 현황을 확인한 결과 사이클로트론을 사용한 방사성동위원소 의약품 제조 시 GMP (Good Manufacturing Practice, 의약품 제조 품질 관리 기준) 인증 절차 수행과 핵의학 검사 보험 미적용 등으로 인해 핵의학과 검사수가 2012년 이후로는 정체되거나 일부 검사는 감소하고 있는 추세이다(Table 1).²⁾ 선행연구를 통해 국내 사이클로트론 운영 현황 관련 설문조사를 수행한 결과, 국내 사이클로트론 운영 목적이 주로 핵의학과에서 사용하는 의료용 방사성동위원소 생산이었으며, 경제적인 사유로 인해 사이클로트론을 운영하고 있지 않으나 해체를 진행하지 않은 기관이 있는 것으로 확인되어 사이클로트론 해체를 준비해야 할 것으로 판단된다.³⁾

또한, 사이클로트론 해체 시 target 부분의 $^{18}\text{O}(p, n)^{18}\text{F}$ 반응으로 인해 생성된 중성자로 인해 사이클로트론 부속품 및 주변 차폐벽(콘크리트 등)이 방사화되며, 이로 인해 해당 부품 및 차폐벽은 해체 시 방사성폐기물로 분류될 가능성이 높다.^{4,5)} 하지만, 현재 국내에는 극저준위방사성폐기물 처분장이 없어 방사성폐기물 모두 중저준위방사성폐기물로 처분해야 하며, 중저준위방사성폐기물 처분 비용은 200 L 드럼 기준 455만원(2009년), 1,193만원(2013년), 1,219만원(2015년), 1,373만원(2017년), 1,519만원(2019년)으로 증가하는 추세이다.⁶⁻¹⁰⁾ 따라서, 향후 해체 비용을 감소시키기 위해서는 방사성폐기물 발생량을 감소시키는 것이 중요하다. 사이클로트론 해체 시 방사성폐기물은 사이클로트론 부속품보

다 주변 차폐벽이 더 많은 비율을 차지할 것으로 예상된다. 하지만, 사이클로트론 운영 기관 대상 차폐벽 관련 설문조사를 수행한 결과, 자체차폐형과 비자체차폐형 각각 차폐벽 두께는 0.25~1 m, 1.5~1.8 m였으나, 대부분 차폐벽에 대한 운영 중 방사화 평가는 수행하지 않는 것으로 조사되었다.¹⁾ 또한, 국내의 경우 사이클로트론을 국내외 이전을 위한 해체 사례만 존재하여 실제적인 사이클로트론 해체 경험은 존재하지 않는다. 따라서, 사이클로트론 해체 시 대부분 방사성 폐기물로 처분될 차폐벽인 콘크리트 내 방사성핵종에 대해 전산모사 결과는 많으나 실측이 수행된 적은 많지 않다.¹¹⁻¹³⁾ 국외 사이클로트론 해체 사례를 통해 사이클로트론 해체 시 발생 가능한 폐기물은 크게 콘크리트 관련 폐기물과 사이클로트론 및 target 관련 폐기물로 분류할 수 있으며, HPGe 검출기를 활용하여 약 15~20 cm 깊이의 콘크리트 sample 내 방사성핵종을 분석한 결과 ^{24}Na , ^{40}K , ^{152}Eu , ^{60}Co , ^{140}La , ^{54}Mn , ^{154}Eu , ^{141}Ce , ^{134}Cs 가 검출되었다.¹⁴⁾ 또한, TRIGA Mark II 원자로 표준조사를 통해 Ordinary concrete와 Barytes concrete 내 방사성핵종을 분석한 결과는 다음과 같다(Table 2).¹⁵⁾

Table 2. 콘크리트 유형별 검출 방사성핵종

콘크리트	검출된 방사성핵종
Ordinary concrete	^{24}Na , ^{42}K , ^{46}Sc , ^{47}Ca , ^{51}Cr , ^{54}Mn , ^{55}Fe , ^{60}Co , ^{65}Zn , ^{152}Eu
Barytes concrete	^{24}Na , ^{46}Sc , ^{59}Fe , ^{60}Co , ^{65}Zn , ^{85}Sr , ^{131}Ba , ^{133}Ba meta, ^{133}Ba

이에 본 연구에서는 휴대용 핵종분석기를 사용하여 국내 제작 사이클로트론인 KIRAMS-13 Target 방향에서의 차폐벽 방사화 분포도를 확인하여 향후 사이클로트론 차폐벽 Sample coring 위치 선정 및 방사성폐기물 발생량 예측을 위한 기초자료를 구축하고자 한다.

Table 1. 최근 10년간 주요 PET/CT 검사수 현황

	2011	2012	2013	2014	2015	2016	2017	2018	2019	2020
Test 1 ¹⁾	51	60	46	36	22	11	7	16	13	9
Test 2 ²⁾	5,043	3,896	3,826	3,574	1,003	1,262	1,350	1,254	1,395	1,014
Test 3 ³⁾	423	343	355	331	355	342	362	189	207	143
Test 4 ⁴⁾	74	131	147	55	1	2	0	0	0	0
Test 5 ⁵⁾	59	60	43	25	3	1	0	0	0	0

1) F-18 FDG PET/CT Brain

2) F-18 FDG PET/CT Torso

3) F-18 FDG PET/CT Whole Body

4) RTP PET/CT 부분(Abdoman&Pelvis)(조영제미사용)

5) RTP PET/CT 부분(Chest)(조영제미사용)

실험 재료 및 방법

현실적으로 국내 운영 중인 모든 사이클로트론실의 차폐벽의 방사성핵종 분석은 불가능하며, 현재 해체를 진행하고 있는 사이클로트론이 존재하지 않아 실제 차폐벽을 sampling 하는 것은 불가능하다. 이에 본 연구에서는 대구 K 대학교 병원에 설치된 KIRAMS-13 사이클로트론실 내 Target 방향의 콘크리트 표면 30개 지점에서의 방사성핵종을 분석하고자 하였다. Target 방향(중심, 13)의 콘크리트 분석지점은 상하 및 좌우간격을 30 cm로 하여 총 30개 지점에서 실험을 진행하였다 (Fig. 1).

콘크리트 내 방사성핵종을 측정하기 위한 30개 지점을 선정한 후 휴대용 핵종 분석기를 활용하여 2019년 9월 3일부터 2020년 1월 14일까지 각 지점별 24시간 (1일)동안 측정하였다(Table 3).

결 과

본 연구에서 사용한 RIIDEye (Thermo) 장비는 측정 후 text 파일과 스펙트럼 파일을 제공하고 있다(Fig 2). 모든 측정지점에서의 text 파일과 스펙트럼을 분석하여 측정지점별 검출 방사성핵종을 분석한 결과, 30개의 측정지점 중 장반감기 방사성핵종인 Co-60과 Cs-137이 검출된 지점은 각각 21개, 14개 지점이었다(Table 4). 또한, Co-60과 Cs-137이 동시에 검출된 지점은 8개 지점이었다.

가장 많은 지점에서 검출된 Co-60의 순계수와 측정시간을 활용하여 Co-60의 방사능을 계산한 결과, Target 중심을 기준으로 우측 상방향에서 좌측 하방향인 대각선 방향으로 방사능이 높은 것으로 확인이 되었다 (Fig. 3).

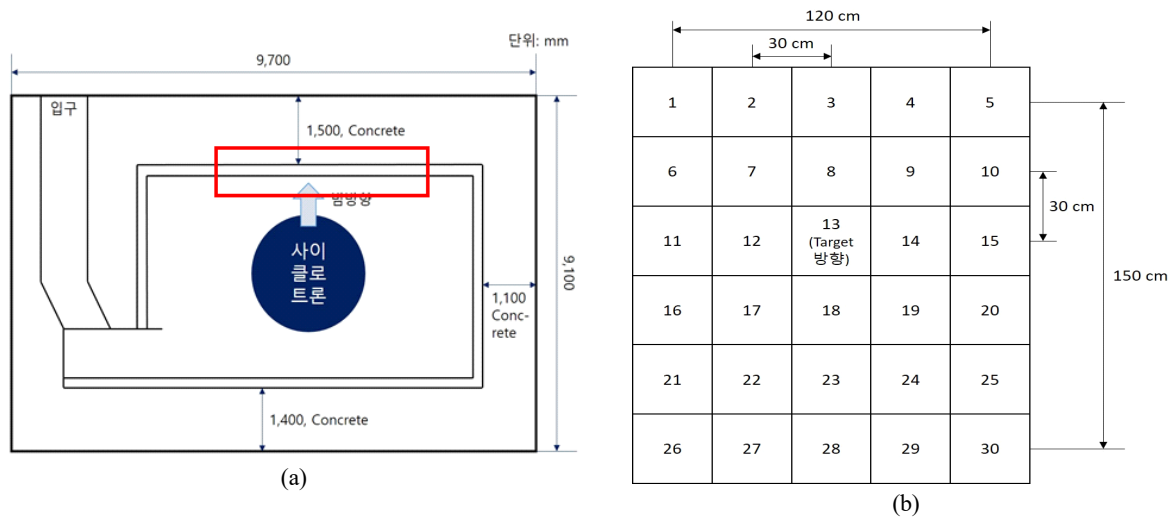


Fig. 1. (a) 사이클로트론실 내 차폐벽 측정 위치, (b)차폐벽(콘크리트) 방사성핵종 측정 지점

Table 3. 휴대용핵종분석기 사양

Model (Manufacturer)	RIIDEye (Thermo)	
Specifications	- Detector : 2"×2" NaI(Tl) Scintillator - Energy Range : 20 keV ~ 3 MeV - Spectrum Channel : 1,024 - Size : 32 cm x 25 cm x 15 cm	

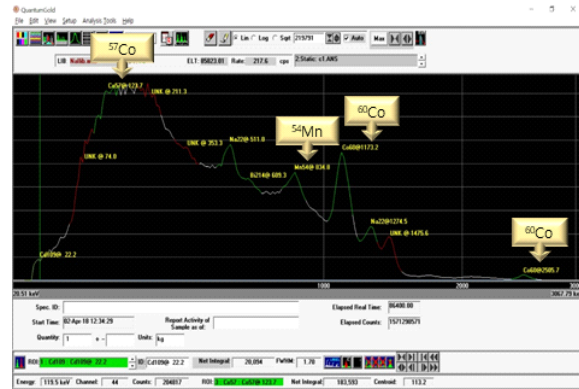
File: 13.ANS Date: October 08, 2019 16:51:03
LT: 86,400.00 RT: 87,066.27 DT: 0.8 %

Library: REMTECH.MDB

Library efficiencies were ignored

NUCLIDES FOUND WITH HIGH PROBABILITY

Co60	5.270 Y	B-	Corr. Coeff. =	0.936
NUCLIDE	RAD CENTER	GROSS	NET	ROI
ENERGY	INT (keV)	(cnts)	(cnts)	ASSIGNMENT
1173.2	99.9	1191.74	421596 ± 649	61070 ± 20899 Co60@1173.2
1332.5	100.0	1322.57	342113 ± 585	82000 ± 19362 Co60@1332.5



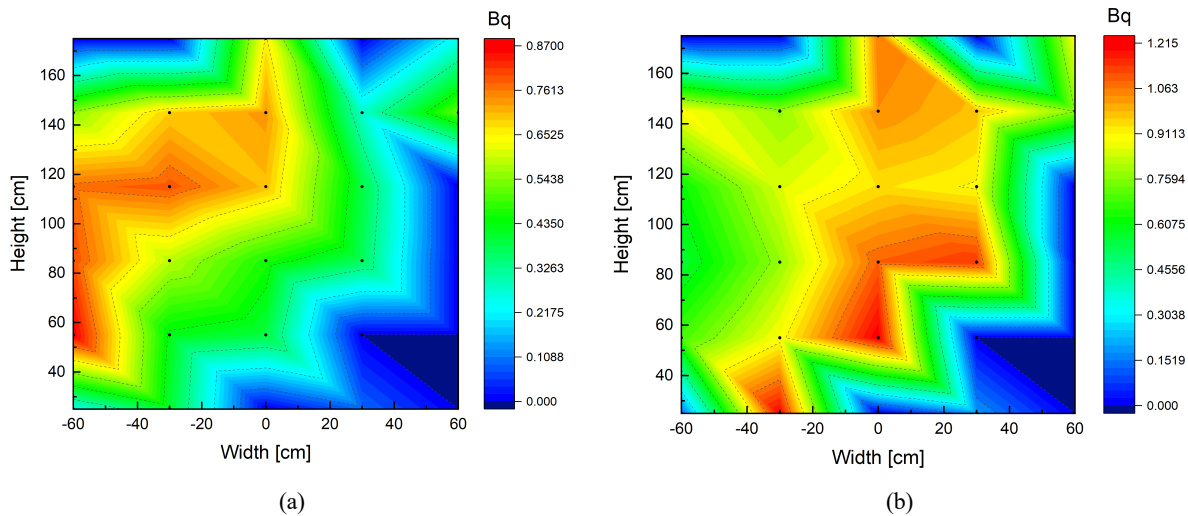


Fig. 3. (a) Co-60 (1.17 MeV)의 측정지점별 방사능 분포도

(b) Co-60 (1.33 MeV)의 측정지점별 방사능 분포도

본 연구에서 측정한 사이클로트론 차폐벽의 부피는 총 4,050,000 cm³으로써 이를 200 L드럼으로 환산 시 약 21개의 드럼이 산출되어 2019년 방사성폐기물 처분비용 기준으로 약 3억 2천만원의 비용이 필요하다. 하지만, Fig. 4와 같이 사이클로트론 차폐벽 중 방사능이 높은 영역을 선정하여 방사성폐기물로 처분 시 총 부피는 2,430,000 cm³으로써 200 L드럼으로 환산 시 약 13개의 드럼이 산출되어 2019년 방사성폐기물 처분비용 기준으로 약 2억원의 비용이 필요하므로 비용이 약 37.5% 감소시킬 수 있음을 확인하였다.

1	2	3	4	5
6	7	8	9	10
11	12	13 (Target 방향)	14	15
16	17	18	19	20
21	22	23	24	25
26	27	28	29	30

Fig. 4. Co-60 (1.17 MeV, 1.33 MeV)의 측정지점별 방사능 분포에 따른 방사능이 높은 영역

고 찰

2000년대 이후 국내 사이클로트론 도입이 활성화되면서 전국에 약 40여대의 사이클로트론이 설치되어 있다. 그러나 최근 요양급여 범위 축소 및 대형병원의 핵의학과 검사수 감소에 따른 방사성동위원소 의약품 수요 감소, 방사성의약품 제조를 위한 GMP 인증 등으로 인해 사이클로트론의 조기 해체를 원하는 기관이 있을 것으로 예상된다.

본 연구에서는 사이클로트론 해체 시 가장 많은 방사성폐기물이 발생할 것으로 예상되는 콘크리트벽의 방사화 정도를 확인하고자 2017년 6월 운영을 중단한 대구 K대학교병원의 사이클로트론실의 Target 방향의 콘크리트벽 30개의 지점에서의 방사성핵종을 분석하였다. 콘크리트 차폐벽은 깊이 따라 방사화 정도가 상이하므로 Coring을 수행하여 깊이별 방사화 정도를 확인해야하지만, 본 연구에서는 운영 단계의 사이클로트론 대상 실험을 진행하였으므로 Coring은 불가능하여 깊이별 방사화는 확인하지 못하였다. 휴대용 핵종분석기를 활용하여 사이클로트론 Target 방향의 콘크리트 벽 표면에서의 방사성핵종 분석 결과 Co-60, Cs-137, Cd-109 등의 핵종이 검출되었으며, 장반감기 방사성핵종 중 가장 많은 지점에서 검출된 Co-60의 방출에너지별 측정위치에 따른 방사능을 확인한 결과 Target 중심 방향에서 우측 상부에서 좌측 하부에서 방사능이 높은 것으로 확인되었다. 하지만 이는 국내에서 설치 및 운영 중인 모든 사이클로트론을 대상으로 한 실험이 아니므로 해당 결과를 모든 사이클로트론에 적용하는 것은 어려움이 있을 것으로 판단된다. 또한, 사이크로

트론 차폐벽인 콘크리트에서 장반감기 방사성핵종이 검출되었으므로 향후 국내 운영 중인 사이클로트론을 대상으로 실험을 진행해볼 필요성이 있을 것으로 판단된다.

결론

본 연구에서는 휴대용 핵종분석기 Screening을 통해 콘크리트 차폐벽 내 방사화가 진행되고 있음을 확인하였으며, 표면 방사성핵종을 분석한 결과 기존의 콘크리트 내 방사성핵종 분석 결과와 유사하게 나타남을 확인할 수 있었다. 또한, 휴대용 핵종분석기를 활용하여 각 지점별 상대적 방사능 정도를 확인할 수 있어 향후 사이클로트론 해체 과정에서 주변 차폐벽에 대한 방사화 가능성이 높은 지점에 대한 Coring 위치 선정 시 휴대용 핵종분석기를 활용할 수 있을 것으로 판단된다. 또한, 사이클로트론 운영 기관의 여건상 운영 중 차폐벽 방사화 측정(휴대용 핵종분석기를 활용한 Screening, 금속 또는 콘크리트 Sample 활용)이 가능하여 해당 자료를 다년간 구축한다면, 사이클로트론 해체 시 해당 자료를 바탕으로 방사성폐기물량을 예측하거나 향후 콘크리트 차폐벽 방사화 측정 지점을 선정하는데 기초자료로 활용될 수 있을 것으로 예상된다.

요약

최근 사이클로트론 시설의 GMP 인증 및 핵의학과 검사 보험 미적용 등으로 인해 핵의학 검사수가 감소함에 따라 사이클로트론도 조기에 해체될 가능성이 높다. 이에 본 연구에서는 사이클로트론 해체 시 방사성폐기물 발생량과 관련성이 높은 사이클로트론 차폐벽 내 방사성핵종을 확인하였다. 국내에는 해체가 진행 중인 사이클로트론이 없으므로 사이클로트론 차폐벽 Coring이 불가능하고, 국내 모든 사이클로트론에 대한 실험을 수행하는 것은 현실적으로 불가능하다. 따라서, 대구 K대학교 병원 내 KIRAMS-13이 설치된 사이클로트론실에서 Target 진행 방향을 중심으로 총 30 곳에서 방사성핵종을 분석하였다. 본 연구에서 활용한 장비는 Thermo사의 RIIDEye이며, 측정 지점별 측정시간은 24시간으로 설정하였다. 측정 결과 일부 측정 지점에서 장반감기 방사성핵종인 Co-60과 Cs-137이 검출되었다. 또한, 가장 많은 측정 지점에서 검출된 Co-60의 방출에너지별 방사능을 확인한 결과, target 방향을 중심으로 우측 상부에서 좌측 하부로 이어지는 대각선 방향으로 방사능이 높은 것을 확인하였다. 따라서, 향후 사이클로트론 해체 전 차폐벽 coring 위치

선정 시 휴대용 핵종분석기를 활용할 수 있을 것으로 예상된다. 하지만, 본 연구는 하나의 사이클로트론에 대한 실험 결과이므로 다수의 사이클로트론에 대한 추가 연구가 필요할 것으로 예상된다. 또한, 본 연구 결과는 휴대용 핵종분석기를 사용한 연구결과로서 HPGe를 활용한 추가 연구를 수행하여 일치성을 확인하는 추가 연구가 필요할 것으로 판단된다. 최종적으로 다년간의 각 기관별 콘크리트 표면에서의 방사화 자료가 구축된다면, 사이클로트론 해체 준비 시 보다 정확한 방사성폐기물량을 예측할 수 있을 것으로 판단된다.

참고문헌

1. Database of Cyclotron for Radionuclide Production, IAEA, IAEA Website, Available at: https://nucleus.iaea.org/sites/accelerators/Pages/Cyclotron.-aspx#InplviewHashd5afe566-18ad-4ac0-8aeb-ccf833dbc282=Paged%3DTRUE-p_ID%3D879-PageFirstRow%3D31
2. Woo-Young Jung, Dong-Oh Shim, Jae-Min Choi. Long-Term Trend Analysis in Nuclear Medicine Examinations. J. Nucl Med Technol. Vol. 23 No. 1. pp. 15-28. 2019.
3. Gwon DY, Kim YM, Jeong K-Y, Jung N-S, Lee H-S. "Regulation Improvement of Cyclotrons in the Republic of Korea through Analysis of Radioactivation and Questionnaire on Operation Status." Indian Journal of Public Health Research and Development. 2018;9(8): 675-680. DOI: 10.5958/0976-5506.2018.00811.2
4. Jang DG, Kim JM, Kim JH. "Design of the shielding wall of a cyclotron room and the activation interpretation using the Monte Carlo simulation." Journal of Instrumentation. 2017;12(1) DOI: 10.1088/1748-0221/12/01/T01003
5. Fujibuchi T., Nohtomi A., Baba S., Sasaki M., Komiya I., Umedzu Y., Honda H., "Distribution of residual long-lived radioactivity in the inner concrete walls of a compact medical cyclotron vault room." Annals of Nuclear Medicine. 2014;29(1): 84-90. DOI: 10.1007/s12149-014-0918-6
6. 지식경제부. 방사성폐기물 관리비용 및 사용후핵연료관리부담금 등의 산정기준에 관한 규정. 지식경제부 고시 제 2008-227호. 2008.
7. 산업통상자원부. 방사성폐기물 관리비용 및 사용후핵연료관리부담금 등의 산정기준에 관한 규정. 산업통상자원부 고시 제 2013-63호. 2013.

8. 산업통상자원부. 방사성폐기물 관리비용 및 사용후핵연료관리부담금 등의 산정기준에 관한 규정. 산업통상자원부 고시 제 2015-132호. 2015.
9. 산업통상자원부. 방사성폐기물 관리비용 및 사용후핵연료관리부담금 등의 산정기준에 관한 규정. 산업통상자원부 고시 제 2017-195호. 2017.
10. 산업통상자원부. 방사성폐기물 관리비용 및 사용후핵연료관리부담금 등의 산정기준에 관한 규정. 산업통상자원부 고시 제 2019-217호. 2019.
11. Jang DG, Lee DY, Kim JH. "Radioactivation Analysis of Concrete Shielding Wall of Cyclotron Room Using Monte Carlo Simulation" *Journal of the Korean Society of Radiology*. 2017;11(5) DOI: <https://doi.org/10.7742/jksr.2017.11.5.335>
12. Jung Dong Gun. "Evaluation of the Safety of Workers through Analysis of the Neutron Activation of the PET Cyclotron". Doctoral thesis. Catholic University of Pusan. 2017.
13. Lee Jaeho. "Development of Reduction Technique and Evaluation of Radioactive Concrete Waste in Cyclotron Facility". Master's thesis. Hanyang University. 2017.
14. J.J. Sunderland, C.E. Erdahl, B.R. Bender, L. Sensoy, G.L. Watkins. "Considerations, Measurements, and Logistics associated with Low-energy Cyclotron decommissioning". 14th International Workshop on Targetry and Target Chemistry AIP Conf.Proc. 2012. DOI: 10.1063/1.4773931.
15. Tomaž Žagar, Matjaž Ravnik. "Measurement of neutron activation in concrete samples". International Conference Nuclear Energy in Central Europe 2000. 2000.