

노시료 전베타 분석법을 이용한 동위원소 생산시설 종사자 내부오염 스크리닝 및 감시절차 개발

윤석원*, 김미령†, 박세영*, 박민정*, 유재룡*, 장한기‡, 하위호*

*한국원자력의학원 국가방사선비상진료센터, †한양대학교 원자력공학과, ‡한국동위원소협회 방사선연구부

2013년 3월 14일 접수 / 2013년 4월 15일 1차 수정 / 2013년 5월 8일 2차 수정 / 2013년 5월 9일 채택

전베타 방사능 분석법을 이용한 내부오염 스크리닝법을 검증하였고 실제 의료용 동위원소 생산시설 종사자 내부오염을 판단하는데 적용하였다. 종사자의 작업 종료 후 첫 번째로 채취된 노시료(spot 시료)와 24시간 동안 취합된 노시료(24 h 시료)를 채취하여 측정하였다. 특정 종사자의 경우를 제외하고 대부분의 측정결과는 일반인 체내 기준치인 100 Bq kg⁻¹을 기준으로 22% 이내로 변동폭이 작았다. 측정결과 작업종료 후 수 시간 이내 종사자 노시료의 전베타 농도가 전반적으로 35% 이상 상승하는 경향이 있었다. 또한 스크리닝 결과와 작업일지를 바탕으로 작업장내부 구조상 오염을 유발하는 요인을 추정 할 수 있었으며 추가 세부 핵종별 분석법을 바탕으로 내부피폭선량을 평가해야 할 것으로 판단되었다. 한편 사업장에서 신속히 적용 가능한 내부오염평가 절차를 수립하였다.

중심어: 전베타 방사능 분석, 동위원소 생산시설 종사자, 노시료 분석, 작업종사자

1. 서론

최근 의료용 동위원소를 이용한 치료 및 진단건수가 해마다 증가하고 있으며 국내에서도 방사선 방호 관점에서 환자에게 처방 시 피폭선량은 최소화 하면서 치료효과를 극대화하기 위한 연구가 활발히 진행되고 있다. 이러한 의료용 동위원소의 일부는 수입에 의존하지만 대부분은 자체 생산시설을 갖춰 운영하고 있으며 이에 종사하는 방사선 작업종사자 역시 해마다 늘고 있다. 국내에서는 의료 및 연구목적으로 다양한 형태의 싸이클로트론을 운영하며 매일 수요에 맞는 의료용 동위원소를 자체 생산하고 있다. 해당시설에서 근무하는 방사선 작업 종사자의 경우 법정선량계를 활용한 외부피폭 선량평가가 정기적으로 실시되고 있다[1]. 또한 공기 중 오염도와 작업시간을 바탕으로 한 선량평가가 수행되고 있다. 하지만 대부분의 의료용 동위원소는 개봉 선원으로 취급되고 있으며 이들에 대한 정기적인 직간접 내부피폭선량평가가 필요한 실정이다[2]. 그러나 모든 작업자의 내부피폭선량평가를 정기적으로 수행하기에는 경제적인 측면에서 비효율적이므로 스크리닝을 통해 내부오염 여부를 판단 후 기준치 이상의 작업자에 한해 적용 할 수 있는 평가법이 더욱 효과적인 것으로 판단된다. 한정된 재원으로 운영되는 생산현장에서 이를 적용하기 위해 작업 종료직후 시료를 채취하여 오염여부를 파악할 수 있는 스크리닝 방법이 필요

할 것으로 보이며 이러한 내부오염 평가를 바탕으로 추가적인 조치를 신속히 취할 수 있는 절차가 수립되어야 할 것이다.

본 연구는 노시료 전베타 방사능 측정법을 이용한 스크리닝을 실제 의료용 동위원소 생산현장 종사자 노시료에 적용하기 위하여 검증하였다. 실제 종사자의 작업후 노시료를 수거하여 내부오염 여부를 판단하였고 작업 일지를 근거로 계측결과와 실제 오염 가능성을 비교 및 추정하였다. 또한 현장에서 신속하게 수행 가능한 내부오염 평가절차를 수립하였다.

2. 재료 및 방법

극저준위 액체섬광계수기를(Quantulus 1220, Perkin Elmer Inc., USA) 이용 하였으며 pulse shape analyzer (PSA) 기능을 이용하여 전알파/베타 방사능 측정을 위한 PSA 기준값을 90으로 설정하였다(Fig. 1). 계측 효율은 액체섬광계수기의 경우 시료에서 발생하는 소광현상에 의해 지배적인 영향을 받으므로 ²⁴¹Am과 ⁹⁰Sr 표준선원을 실제 동일 조성의 합성 소변과 혼합 후 일련의 표준시료를 제작 후 계측하여 소광곡선을 제작하였고 이를 통해 계측효율을 결정하였다(Fig. 2). 교정결과의 정확도 및 정밀도를 평가하기 위해 각 농도별 표준시료를 제작하여 농도별 선형성을 평가 하였으며 500-2,000 Bq kg⁻¹의 범위에서 인증값과 잘 일치하였다(Fig. 3). 또한 계측결과의 재현성(repeatability)을 평가하기 위해 ²⁴¹Am과 ⁹⁰Sr 표준

교신저자 : 윤석원, ysw@kirams.re.kr
서울특별시 노원구 노원길 75 한국원자력의학원 국가방사선비상진료센터 2층 보건물리팀

선원을 각각 다른양으로 혼합한 표준시료를 다수 제작하여 계측하였다. 계측상 통계적 오차를 줄이기 위해 각각의 단일 시료를 반복 계측하였으며 평가결과 인증값과 비교하여 relative bias가 10% 이내에서 잘 일치하였다(Fig. 4). 실제 다수의 알파 및 베타 방출핵종이 혼합된 표준 노시료에서 결과의 정확도를 평가하기 위해 미국표준과학연구소(National Institute of Standards and Technology, NIST)에서 시행하는 국제방사능교차분석에 참여하였다. 13개 알파방출 핵종($^{210,214,218}\text{Po}$, ^{222}Rn , ^{226}Ra , ^{230}Th , $^{234,235,238}\text{U}$, $^{238,240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{243}Cm)과 12개 베타방출핵종($^{57,60}\text{Co}$, ^{90}Sr , ^{90}Y , ^{137}Cs , $^{210,214}\text{Pb}$, $^{210,214}\text{Bi}$, $^{231,234}\text{Th}$, $^{234\text{m}}\text{Pa}$)이 혼합된 표준소변시료를 계측하였으며 전알파 방사능 측정결과는 인증농도범위에서 잘 일치 하였으며 전베타 방사능 측정결과 최소인증농도범위에 비해 -12%의 차이를 보여 전베타 측정평가기준인 15% 이내에서 일치하는 결과를 보였다(Table 1) [3,4]. 작업종사자의 spot 노시료의 무게 측정후 20 ml polyethylene 용기에 5 ml의 노시료를 분취하고 섬광체 (Ultima-Gold LLT, Perkin Elmer, Inc., USA) 15 ml를 첨가 한 후 혼합하였다. 계측은 각 시료당 10분씩 3회 반복측정 하였으며 다수의 시료를 반복 측정시 시료에 존재 할 수 있는 단반감기 핵종의 붕괴를 고려하여 측정 주기를 전체 순환계측(cycle)으로 하였다. 한편 노시료 전베타 분석결과와 핵종별 분석결과

의 상관성을 평가하기 위해 감마선분광분석을 수행하였다. 수거된 종사자의 노시료를 효율 교정된 원통형 용기 ($\emptyset 4.8 \times 5 \text{ cm}^3$)에 채워 무게를 잰후 HPGe 감마선분광분석 시스템을 이용하여 계측하였다.

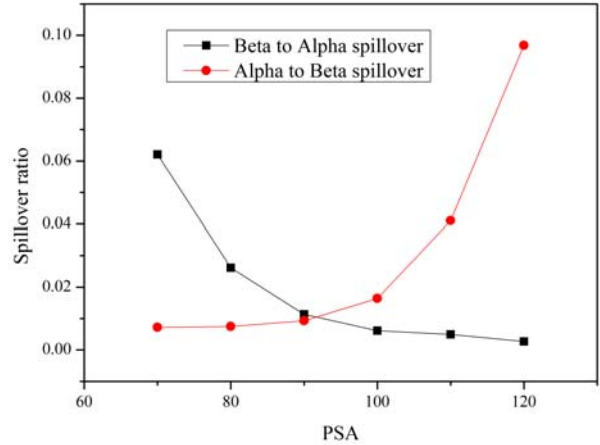


Fig. 1. Spectrum of pulse shape analysis (PSA) for alpha and beta emitting radionuclide. All spectrum were induced with certified reference materials.

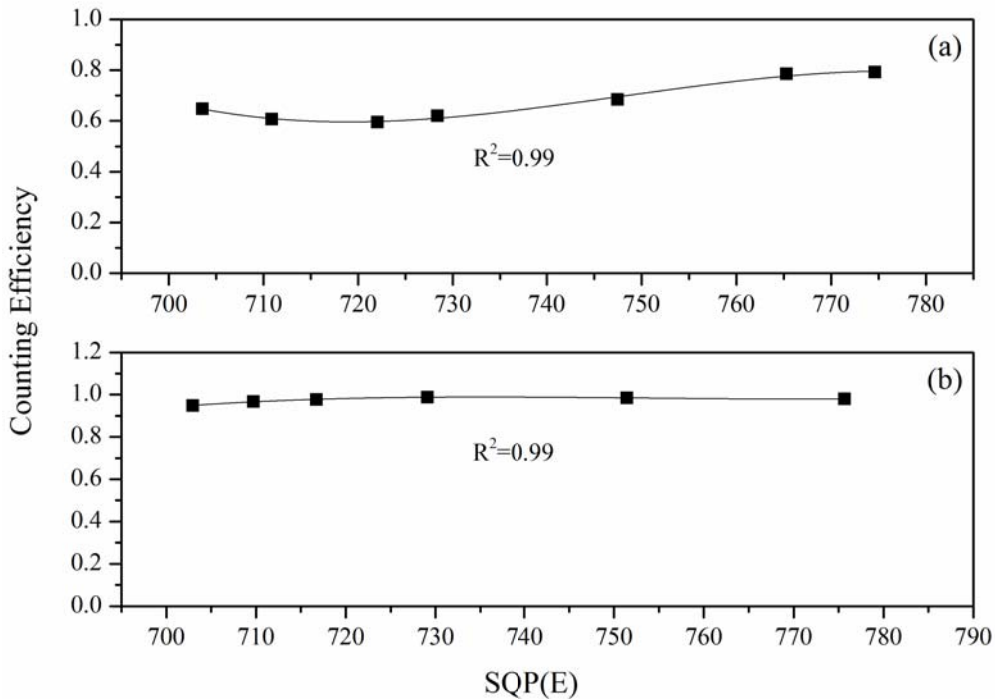


Fig. 2. Counting efficiency correction curve according to quenching parameter of spiked alpha and beta reference samples ((a) ^{241}Am and (b) ^{90}Sr).

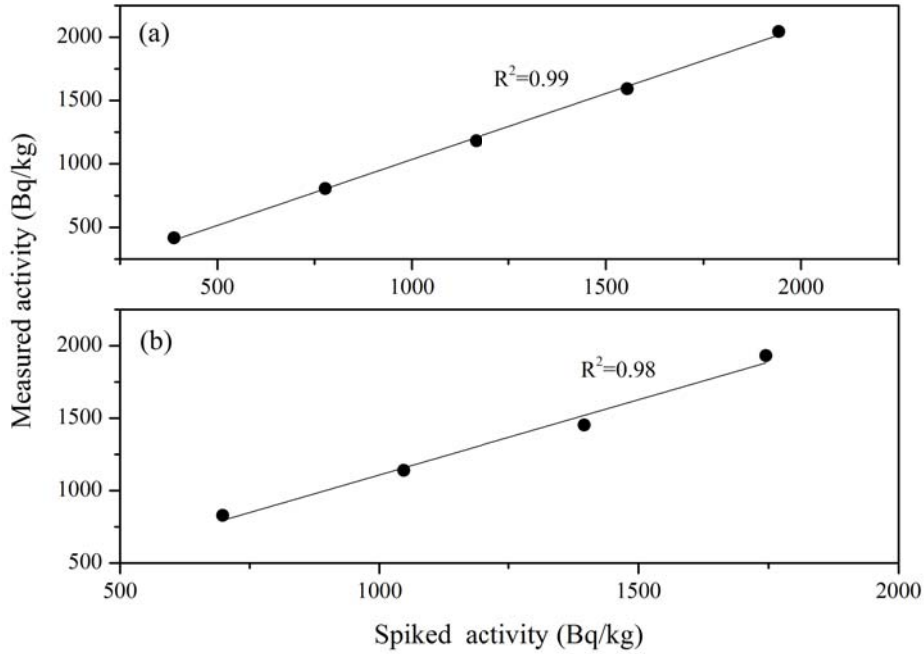


Fig. 3. Measurement results of spiked alpha and beta reference samples ((a) ²⁴¹Am, (b) ⁹⁰Sr).

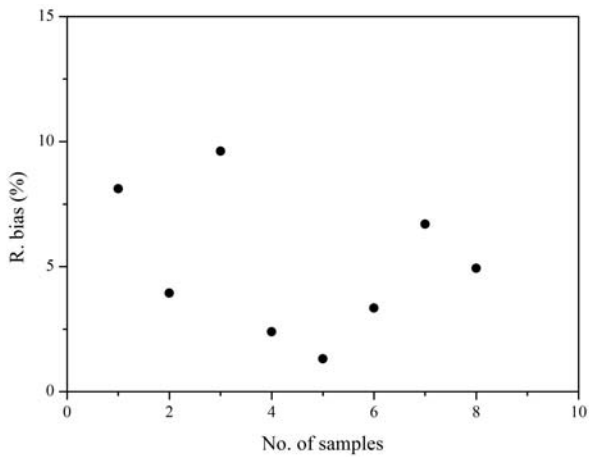


Fig. 4. Relative bias results of spiked alpha and beta reference samples for repeatability.

의료용 동위원소 생산시설에서 근무하는 방사선작업종사자 6명의 뇨시료를 주말을 제외한 2주간 매일 채취하여 계측하였다(Table 2). 본 연구에 참가한 전체 작업종사자중 4명은 각각 다른 의료용 동위원소 생산작업에 관여하며 2명은 동위원소 생산작업과 관련없는 싸이클로트론 시설 운영업무를 수행한다. 동위원소 생산시설과 싸이클로트론 시설은 별도의 공간에서 운영된다. 섭취된 방사성핵종의 체내 순환시간을 고려하여 작업 종료후 2시간 후 첫 spot 시료를 채취하였다. 이후 24시간 동안 spot 시료를 각기 다른 용기에 채취하였으며 시료의 채취일시를 기록하였다. 이후 시료를 실험실로 이동하여 시료의 순무게를 기록하고 계측하였다. 또한 계측 완료한 spot 시료를 당일 계측후 모두 혼합하여 24 h 시료로 별도 계측하였다. 각 작업자의 당일 작업내용을 2주간 제출받아 작업내용과 계측결과의 상관성을 추정하였다.

Table 1. Intercomparison Results of Gross Alpha and Beta Radioactivity for Urine Bioassay.

Nuclide	Reference Value		Reported Value		Difference (±%)
	Massic Activity (Bq g ⁻¹)	Relative Expanded Uncertainty (% _{k=2})	Massic Activity (Bq g ⁻¹)	Relative Expanded Uncertainty (% _{k=2})	
Gross-Alpha Minimum	17.20	1.41	21.4	49.7	24.3
Gross-Alpha Maximum	21.90	1.12	21.4	49.7	-2.4
Gross-Beta Minimum	577.74	2.93	514.5	11.5	-10.9
Gross-Beta Maximum	584.19	4.23	514.5	11.5	-11.9

Table 2. Production Isotopes and Working Areas of Radiation Workers in Medical Isotopes Production Facilities.

Number	Sex	Isotope	Working Area
Worker 1	male	¹⁸ F, ²⁰¹ Tl	Production facilities
Worker 2	male	¹²³ I	Production facilities
Worker 3	male	²⁰¹ Tl	Production facilities
Worker 4	male	¹⁸ F	Production facilities
Worker 5	male	Cyclotron operating	Cyclotron facilities
Worker 6	male	Cyclotron operating	Cyclotron facilities

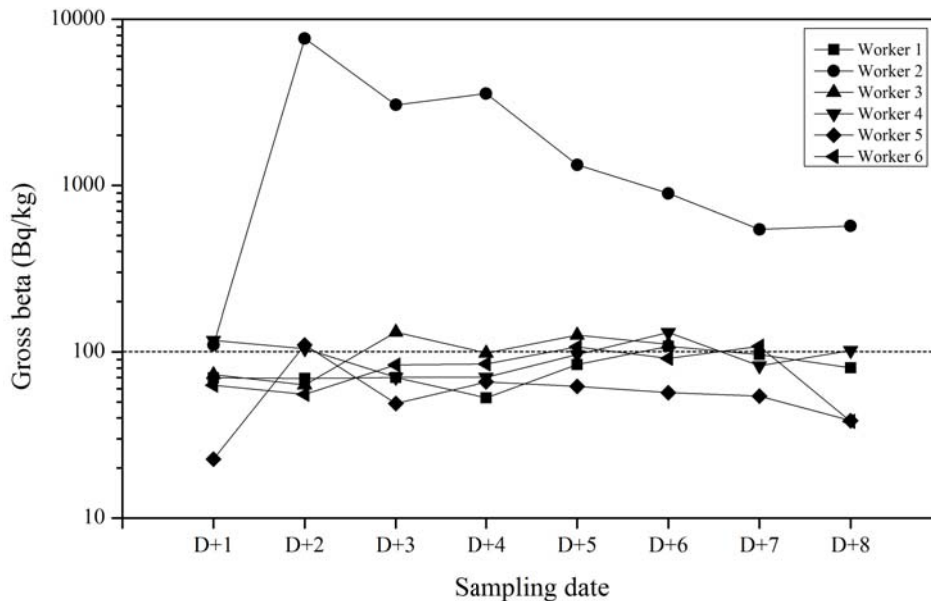


Fig. 5. Variation of gross beta activity for 24h urine samples from radiation workers. Dotted line is the upper limit of gross beta activity of normal persons.

작업종사자 뇨시료의 경우 개인과 채취일자에 따른 특성이 존재하여 별도의 전처리를 거치지 않는 경우 시료의 색소나 탁도가 높아지기 때문에 일부 시료에서 화학적 소광현상이 매우 높은 경우가 있었다. 시료의 소광현상이 높을수록 외부선원에 spectral quenching parameter가 낮은 쪽으로 이동 될 수 있으며 이로 인해 실제 시료의 방사능농도 측정결과가 과대평가 될 수 있으므로 총 0.5 미만 측정효율을 갖는 8개(2.7%)의 데이터는 배제하였다.

과거 발표된 연구결과에 따르면 방사성물질 취급 작업과 관계없는 일반인 90명을 대상으로 수행한 체내 전베타 방사능 기준위 조사결과 11.2-91.6 Bq kg⁻¹으로 일정한 범위에서 개인의 생활 습관에 따라 변동이 있었다 [5]. 또한 미국질병통제예방센터(Centers for Disease Control and Prevention, CDC) 에서 실시한 일반인 체내 전베타 방사능 측정 결과 20-100 Bq kg⁻¹의 범위를 보였으며 일반적으로 생활 습관에 따라 체내 ⁴⁰K 으로 인해 일정한 범위의 전베타 방사능 농도 기준위가 존재한다고 보고 한 바 있다. 이는 방사선방호측면에서 체내 피폭을 유발하기에는 매우 미미한 수준이므로 보수적으로 내부오염 여부 판단시 적절한 기준치가 될 것으로 생각된다 [6,7]. 이러한 연구결과를 바탕으로 본 연구에서는 일반인

체내 전베타 스크리닝 기준위 최대값을 100 Bq kg⁻¹으로 설정하였으며 이 범위 이내의 변동기준위는 고려하지 않았다.

3. 결과 및 논의

3.1 측정 결과

24h 시료 측정 결과 평균 전베타 방사능 농도는 Worker 2를 제외한 나머지 5명의 경우 22.6-131 Bq kg⁻¹으로 일반인 기준위를 기준으로 22% 이내 변동범위에서 유사한 분포를 보였다. 그러나 Worker 2의 경우 110-7,670 Bq kg⁻¹의 범위를 보여 다른 종사자에 비해 매우 높은 결과를 보였고 전체 경향은 D+2일부터 D+3일까지 가장 높은 농도를 보였으며 시간이 경과하며 차츰 감소하는 경향을 보였다(Fig. 5). 이는 해당 종사자의 경우 조사 초반 특정이벤트가 발생 했던 것으로 추정되며 작업내용을 고려하여 세부적인 내부피폭선량평가가 수반되어야 할 것으로 판단된다. 한편 spot 시료 결과에 비해 대부분 기준치 미만의 농도를 보였으며 이는 당일 spot 시료의 계측 종료 후 모두 혼합하여 계측함으로써 발생하

는 시간에 따른 붕괴에 기인 한 것으로 판단된다. 즉 대부분 단반감기 핵종에 의한 내부오염시 계측 대기 시간이 길어질수록 시료 내에서 방사성 핵종의 붕괴에 따른 농도 감소가 영향인 것으로 파악 된다. 이를 통해 본 연구에서 수행한 전베타 방사능 분석법으로 작업자의 1차 스크리닝 이후 평가결과를 바탕으로 세부 핵종별 분석이 수반된다면 더욱 효율적인 내부오염 감시가 가능 할 것으로 보인다.

spot 시료 계측 결과 평균 농도는 416 Bq kg⁻¹ 이며 범

위는 18.2-12,362 Bq kg⁻¹으로 매우 넓은 분포를 나타냈다. 이는 6인의 참가자 중 Worker 2의 내부오염 발생에 따른 변동 폭으로 보인다. Table 3과 Fig. 6는 Worker 1의 한 주간 일회 소변농도 변동을 나타내었으며 해당 종사자와 같이 전반적으로 특정 작업 이후 수 시간 내에서 전베타 방사능 농도가 35% 상승하는 경향을 보였고 이를 바탕으로 방사성 동위원소 취급에 의한 영향이 존재 하는 것으로 판단된다.

Table 3. Gross Beta Activity Variation for 4 days according to Sampling Time of Spot Urine Samples from Worker 1.

Sample No.	Measurement date	Gross beta activity (Bq kg ⁻¹)	Expended Uncertainty (k=2)
1	13-01-14 14:54	128	26.4
2	13-01-14 17:05	66.7	19.1
3	13-01-14 22:55	64.4	19.1
4	13-01-15 11:20	83.7	17.1
5	13-01-15 12:46	129	32.9
6	13-01-15 20:08	157	29.2
7	13-01-15 23:36	123	26.3
8	13-01-16 7:35	109	25.2
9	13-01-16 11:30	118	25.7
10	13-01-16 13:20	143	27.5
11	13-01-16 20:03	102	23.5
12	13-01-17 11:55	87.1	21.9
13	13-01-17 13:31	85.0	21.5
14	13-01-17 16:33	112	24.9
15	13-01-17 22:48	80.8	21.9
16	13-01-18 8:58	74.6	20.9

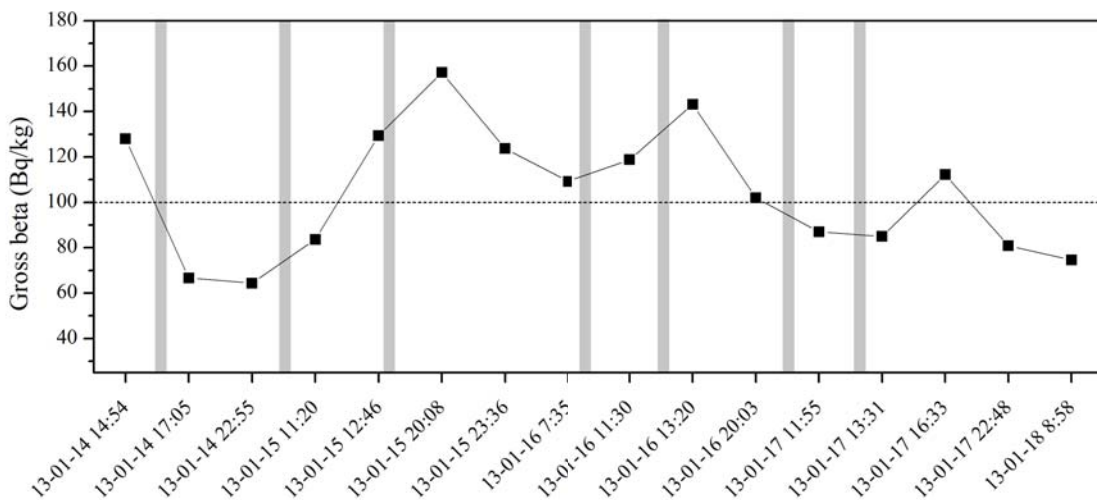


Fig. 6. Variation by sampling time of spot urine samples from Worker 1. Dotted line is the upper limit of gross beta activity of normal persons. Grey colored bars indicate specific radioisotope production works being performed.

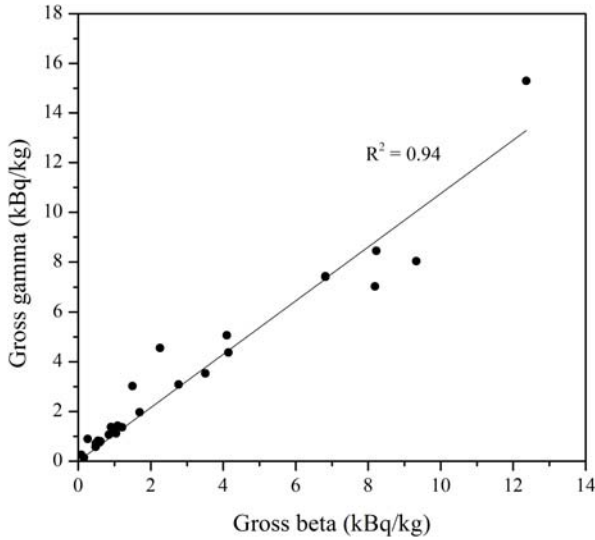


Fig. 7. Comparison results of gross beta and gamma measurement.

종사자에 대한 전베타 방사능 측정법의 검증을 위해 동일 시료의 감마선분광분석 결과와 비교 하였다. 전체 종사자중 가장 높은 결과를 보인 Worker 2의 2주간 수집된 spot 시료를 감마선분광분석 시스템을 이용하여 계측 하였을 때 ^{18}F , ^{123}I , ^{131}I , ^{201}Tl 이 검출되었으며 본 연구의 계측 결과와 높은 상관관계를 보였다($R^2=0.94$, Fig. 7).

또한 일부 종사자의 경우 동위원소 생산시설과 관련 없는 종사자의 경우에도 기준치를 초과하는 결과를 보였다. spot 시료에 대한 감마선분광분석 측정 결과 동위원소를 직접 취급하는 종사자가 아님에도 불구하고 ^{131}I 이 검출되었으며 이러한 결과를 바탕으로 세부적인 작업 환경상 내부오염 유발 원인에 대한 대책이 수립되어야 할 것으로 보인다.

3.2 내부오염 스크리닝 및 내부피폭선량평가 절차

종사자 뇨시료에 대한 전베타 방사능 측정법은 에너지의 구별 없이 시료에 존재하는 전체 방사능 농도를 측정하기 때문에 시료의 오염핵종 판별이 계측결과만으로 판단하기에는 무리가 있고 이로 인해 시료내 방사성 핵종의 정량분석이 어렵다는 단점이 있다. 또한 오염 핵종의 물리적 반감기가 매우 짧은 경우 계측결과에 대한 핵종별 붕괴보정이 반드시 수행 되어 평가해야 하지만 작업자의 뇨시료가 단일 핵종에 의한 오염이 아닐 경우에 최종 결과에 대한 붕괴보정이 어려운 것이 단점이다. 하지만 본 연구에서 활용된 뇨시료 전베타 방사능 분석의 경우 감마선분광분석법과 비교하여 적은 시료량과 신속한 측정이 가능하다는 점과 액체섬광계수기의 비교적 높은 계수 효율로 인해 최소검출가능농도(MDA)를 낮출 수 있는 것이 장점으로 판단된다.

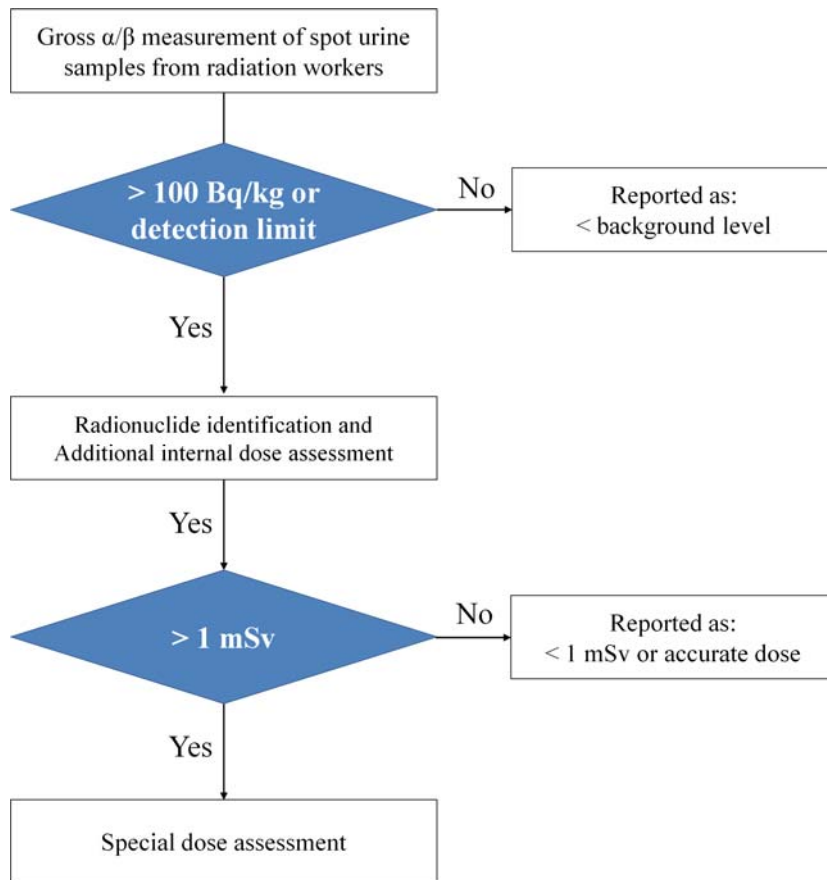


Fig. 8. Flow chart of internal contamination assessment for radiation workers.

또한 대부분의 방사성의약품으로 합성되는 의료용 동위원소의 경우 비밀봉 선원으로 취급 되고 있으며 이는 생산 또는 취급과정에서 종사자의 내부피폭을 유발 할 수 있는 위험성이 존재 한다. 이는 현행 작업종사자의 외부 피폭 뿐만 아니라 내부피폭선량평가의 주기적인 감시가 반드시 수행되어야 할 것으로 보인다. 하지만 작업자에 대한 방사선방호 측면에서 내부오염감시를 효과적으로 하기 위해서는 현장에서 쉽게 적용 될 수 있어야 하고 결과를 신속하게 파악 할 수 있는 것이 더욱 효율적일 것이다. 전베타 측정법의 경우 내부오염 평가를 신속히 수행 할 수 있어 작업자에 대한 방사선 방호 측면에서 효과적으로 현장에서 수행 될 수 있을 것으로 보인다.

노시료 전베타 측정법을 이용하여 해당 사업장에서 신속하게 적용 할 수 있는 내부오염 평가 절차를 수립하였다(Fig. 8). 작업 종료후 체내 순환시간을 고려하여 작업 종료후 작업자의 노시료를 채취후 액체섬광계수기를 이용한 전알파/베타 방사능 측정을 수행한다. 측정결과 spot 시료의 전베타 농도가 일반인 기저준위 기준치인 100 Bq kg⁻¹ 미만시 「기저준위 미만」으로 처리하며 기준치 초과시 해당 작업자의 작업내용을 바탕으로 내부오염 가능 핵종의 파악과 해당 핵종에 맞는 개별 분석법 수행이 적절 할 것으로 판단된다. 다만 일반인 기저준위 기준치는 개인의 생활 습관에 따라 변동 가능성이 있으므로 종사자 개인별 기저준위 조사가 선행되어 이를 기저준위 기준치로 활용한다면 내부오염 여부 판단에 더욱 신뢰할 만한 결과를 낼 수 있을 것으로 판단된다.

세부 핵종별 내부오염평가 결과 International Atomic Energy Agency (IAEA)에서 권고하는 IDEAS guideline에 따라 정밀 선량평가 기준치인 1 mSv 초과시 내부피폭선량평가 절차를 수행 하는 것이 적절할 것으로 보인다[8]. 내부오염 평가 절차의 단계적 수행을 신속하게 적용함으로써 작업종사자의 작업장 피폭 위해도를 감소시킬 수 있을 것으로 기대한다.

4. 결론

액체섬광계수법을 이용한 노시료 전베타 방사능 스크리닝법을 검토하였으며 검토 결과를 바탕으로 실제 의료용 동위원소 생산시설에서 근무하는 방사선 작업종사자의 작업직후 노시료를 채취하여 스크리닝을 수행 하였다. 일반인 노시료 전베타 방사능 측정결과를 바탕으로 기저준위를 설정 하였으며 기준치를 근거로 내부오염 스크리닝 절차를 수립하였다. 측정 결과 비정상적 내부오염 발생 여부를 신속하게 파악 할 수 있었으며 작업환경요인

로 인한 내부오염을 파악 할 수 있었다. 기존 감마선분광 분석법과 비교하여 높은 상관관계를 보여 측정법의 유효성을 검증하였다. 하지만 핵종별 정량분석에는 한계가 있었고 다수의 핵종에 의한 내부오염시 측정결과에 대한 붕괴보정이 어렵다는 단점이 있었다. 이러한 평가절차를 토대로 향후 해당 사업장에서 신속하게 적용 가능한 내부오염 평가 절차를 수립하여 동위원소 생산시설 작업종사자에 대한 신속한 내부오염 평가법을 적용 할 수 있을 것으로 기대된다.

감사의 글

본 연구는 「RI 생산시설의 주요 핵종에 대한 내부피폭 측정 절차 및 방안 수립 (51112-2012)」 과제의 일환으로 수행되었습니다.

참고문헌

1. 식품의약품안전청. 의료기관 방사선관계종사자 내부 피폭 실시기준 개발. 연세대학교. 2003.
2. 교육과학기술부 고시. 개인 피폭방사선량의 평가 및 관리에 관한 규정. 제2009-37호. 2009.
3. Pan V. Analysis of EML QAP data from 1982-1992 : Determination of operational criteria and control limits for performance evaluation purposes. EML-564. U.S. DOE Report. 1995.
4. International Organization for Standardization. Proficiency testing by interlaboratory comparisons. ISO/IEC Guide 43-1. 1997.
5. YOON S. Optimization of gross alpha/beta measurement method of urine samples and background level survey of Korean public. 17th Topical Meeting of the Radiation Protection & Shielding Division of ANS. 2012.
6. Piraner O, Jones RL. Urine gross alpha/beta analysis by liquid scintillation counting for terrorism preparedness. Centers for Disease Control and Prevention. 2009.
7. Sandia National Laboratories. Optimization of screening for radioactivity in urine by liquid scintillation. SAND 2007-5312. Sandia National Laboratories Report. 2007.
8. International Atomic Energy Agency. Intercomparison exercise on internal dose assessment. IAEA-TECDOC-1568. IAEA. 2007.

Gross Beta Screening and Monitoring Procedure using Urine Bioassay for Radiation Workers of Radioisotope Production Facilities

Seokwon Yoon^{*}, Mee-Ryeong Kim[†], Seyoung Park^{*}, Min-Jeong Pak^{*}, Jaeryong Yoo^{*}, Han-Ki Jang[‡], and Wi-Ho Ha^{*}

^{*}National Radiation Emergency Medical Center, Korea Institute of Radiological and Medical Sciences,

[†]Department of Nuclear Engineering, Hanyang University,

[‡]Radiation Research Division, Korea Radioisotope Association

Abstract - The internal contamination screening method using gross beta measurement was performed for radioisotope workers. 24 h and spot urine samples from workers of medical isotope production facilities were collected and measured. Most of the results were similar with the background level of gross beta activity except for a specific worker. Gross beta activity was slightly increased in several hours after finishing work. And the environmental factor of production facilities causing internal contamination were estimated based on screening results. The additional detailed internal dose assessment must be followed after the screening for protection of workers. Moreover, a procedure was established to apply a simple internal contamination assessment for radiation workers.

Keywords : Gross beta measurement, Radioisotope production facilities, Radiation workers, Urine bioassay