

<원저>

의료용 Re-186 오염폐기물의 규제해제를 위한 방사능측정

- Measurement of Specific Radioactivity for Clearance of Waste Contaminated with Re-186 for Medical Application -

¹⁾고려대학교 보건과학연구소·²⁾고려대학교 바이오융합공학과
³⁾동신대학교 방사선학과·⁴⁾고려대학교 보건환경융합과학부

김창범¹⁾·이상경²⁾·장성주³⁾·김정민⁴⁾

— 국문초록 —

방사선 진료기술의 발전에 따라 의료분야에서 발생하는 방사성폐기물이 급속히 증가하고 있다. 최근의 경향을 보면, 갑상선암 진료 목적의 I-131을 비롯하여 PET/CT 조영제로 사용하는 F-18, 핵의학검사에 폭 넓게 적용하는 Tc-99m 등의 방사성동위원소 사용이 일반화 되고 있다. 사용과정에서 이러한 핵종에 오염된 방사성폐기물이 발생하게 되는데, 일정기간 보관한 후에 방사능이 규제해제(Clearance) 수준으로 감소하면 소각 등의 방법으로 자체처분하게 된다. 국제원자력기구(IAEA)에서는 10 μ Sv/y의 개인선량 및 1man-Sv/y의 집단선량과 함께 핵종별 농도에 근거하여 방사성폐기물의 규제해제기준을 제시하였다.

이 연구에서는 IAEA의 핵종별 방사능농도기준에 따른 규제해제 시점을 확인하기 위하여, Tc-99m과 방사화학상 유사한 성질을 가지고 있는 Re-186 관련 방사성폐기물을 수집하여 방사능을 측정하였다. Re-186은 반감기가 3.8일로 방사성의약품으로는 비교적 길고, 베타선 및 감마선을 방출하여 방사성의약품 치료와 영상에 모두 사용된다.

Re-186 사용과 관련하여 발생하는 오염된 일회용장갑(Poly Glove)의 방사능측정을 위하여 다중과고분석기(Multi Channel Analyzer; MCA)를 이용하였으며, 이를 위하여 표준물질을 제작하여 MCA를 교정한 이후 감마방사능 측정 절차에 따라 수행하였다.

측정결과를 근거로 방사능 감쇠 유도식을 산출하여 이론식과 대비하여 고찰하였는바, Re-186 핵종의 유도반감기(3.6일)는 이론적 반감기(3.8일)에 비해 다소 짧은 것으로 나타났다. 따라서 측정결과에 근거한 유도반감기를 적용한다면, 다소 줄어든 기간 동안 Re-186 핵종 폐기물을 보관하였다가 자체처분을 할 수 있을 것으로 확인하였다. 이 연구 결과는 현재 추진하고 있는 국제표준화기구(International Organization for Standardization) 국제표준에 포함될 예정이다.

중심 단어: Re-186, 방사성폐기물, 방사능측정, 규제해제, 다중과고분석기

1. 서 론

Re-186의 반감기는 3.8일로, 의료용으로 사용하는 다른 방사성핵종과 비교할 때 상대적으로 반감기가 길지 않으며

방사성독성이 없다는 측면에서, 단기간 경과하면 관련 폐기물을 자체처분의 방법으로 쉽게 처리할 수 있다는 장점이 있다. 따라서 대부분의 선진국에서는 이러한 방사성폐기물, 즉 반감기가 비교적 짧은 개봉선원에 오염된 방사성

Corresponding author: Kim Jung-Min, School of Health and Environmental Science, Korea University, 145, Anam-ro, Seongbuk-gu, Seoul, 02841 Korea / Tel: +82-2-3290-5685 / E-mail: minbogun@korea.ac.kr

Received 13 November 2017; Revised 28 November 2017; Accepted 10 December 2017

폐기물을 대상으로 방사능농도가 일정 수준 이하로 감쇠될 때까지 격리보관한 후 소각 등의 방법으로 처분하고 있다. 이러한 자체처분은 국제원자력기구(International Atomic Energy Agency; IAEA) 규정(개인선량($10\mu\text{Sv}/\text{y}$) 및 집단선량($1\text{man-Sv}/\text{y}$))[1]을 근거로 평가하여 적용하고 있으며, 국내의 경우에는 1997년부터 이 기준[2-4]을 바탕으로 관련규정을 개발하여 적용하고 있다.

한편, IAEA는 2004년 핵종별 방사능농도에 근거한 새로운 규정[5]을 발간하면서 방사선피폭의 관점에서 방사선원의 규제범위에 대해 다음과 같이 제시하면서, 250 여종의 방사성핵종에 대한 규제해제의 기준을 정량적으로 제시하였는데, 우리나라는 2015년부터 기존의 개인 및 집단선량 기준과 병행하여 이 방사능농도기준도 함께 적용[2, 3]하고 있다.

규제제외(Exclusion) : 기준의 범위에서 벗어난 것으로 정의하며, 요건 적용을 통해서 관리되지 않는 방사선피폭에 대해 적용한다. 구체적으로 인체에 포함되어 있는 K-40, 지구표면에서의 우주선 등 자연기원 방사선원에 기인한 것이다.

규제면제(Exemption) : 방사선원이 어떤 기준에 부합 만족함을 근거로 행위에 대한 규제로부터 자유롭게 하는 것이다. 방사성핵종을 이용한 상품 등이 이에 해당한다.

규제해제(Clearance) : 규제관리 상태에 있던 방사선원을 규제관리로부터 배제하는 것을 의미한다.

이와 같은 IAEA 방사능농도기준은 해당 방사성핵종의 독성 및 위해도에 따라 0.01, 0.1, 1, 10, 100, 1,000, 및 10,000 Bq/g 등 7개 군으로 분류하고 있는데, 자체처분이 가능한 일자를 명확하게 평가할 수 있다는 장점이 있으나, 방사능농도를 측정하기 위한 고가의 장비를 별도로 구비하여야 하는 경제적인 부담이 있을 수 있게 된다.

국내에서는 방사성폐기물 자체처분 관련 규정의 시행과 관련하여, 방사성폐기물 발생시점의 방사능농도를 보수적으로 평가하여 이론적인 핵종 감쇠식에 따라 폐기물을 일정 기간 보관 및 관리하고 있다. 하지만, 직접측정의 방법이 아닌 보수적인 농도평가와 이론식을 적용함에 따라 필요이상으로 다소 긴 기간 동안 폐기물을 보관하게 되어, 장기간 적체되는 폐기물이 발생할 수 있다. 이러한 현실은 곧바로 방사성폐기물 보관시설의 공간 부족을 초래할 수 있어 의료기관의 방사선안전관리 현장에서의 어려움이 우려되고 있는 실정이다.

이 연구에서는 Re-186에 오염된 방사성폐기물에 대하여 적용 가능한 방법 및 절차에 따라 방사능을 측정하여 감쇠식을 유도하고, 측정에 영향을 미치는 인자 등을 고찰하면

서 자체처분을 위한 적정 보관기간을 평가하고 이를 이론식과 비교 및 고찰하고자 한다.

II. 대상 및 방법

1. 측정대상

Re-186에 오염되어 발생하는 방사성폐기물로는 유리병, 주사기, 장갑 등이 있지만, 높은 측정효율을 얻기 위하여 측정대상은 방사선작업종사자가 사용하였던 일회용장갑(Poly Glove, 이하 “장갑”)으로 국한하였다.

방사성동위원소 Re-186는 주로 원자로에서 생산하며, 반감기 3.8일로 최대 에너지 1.07 MeV 베타선(19%)과 137KeV 감마선(9%)을 방출[6]한다. Tc-99m과 방사화학상 유사한 성질을 가지고 있어 Tc-99m과 결합할 수 있는 다양한 ligand를 가지고 있다는 점에서 주목받고 있다. 주로 베타선을 방출하지만, 일부 감마선도 방출하여 방사성의약품 치료와 영상에 모두 사용된다. 뼈 전이 통증치료에 주로 사용되며 Re-186 HEDP와 각종 종양에 사용되는 Re-186(V) DMSA 등이 대표적인 방사성의약품이다.

2. 방사성폐기물의 수거

방사성핵종 Re-186에 오염된 장갑은 방사선작업종사자가 착용하였던 것으로 사용과정에서 수거하여 다음 절차[7-9]에 따라 보관하였다.

- 1) Re-186 방사성핵종 사용일정을 확인하여 수거계획을 수립한다.
- 2) 방사능에 오염된 장갑을 수집하여 전용 차폐용기에 저장한다.
- 3) 방사성폐기물을 발생시간에 따라 확인하여 분류한다.
- 4) 폐기물을 종류별 기준에 따라 의료용 폐기물수거 전용 비닐봉지로 수거한다.
- 5) 의료용 방사성폐기물 전용 수거박스에 포장하면서 박스번호, 발생 및 수거일자, 포장일자, 오염핵종, 폐기물 종류 및 발생부서명을 기입한다.
- 6) 일반 의료용 폐기물과 혼동되지 않도록 박스 표면에 방사능표지를 부착한다.
- 7) 방사성폐기물 관리일지에 박스번호, 발생 및 수거일자, 발생량, 폐기물 종류, 작업자 등을 기록한다.
- 8) 방사성폐기물 저장시설로 이동하여 보관한다.

3. 방사성폐기물의 방사능측정

Fig. 1과 같이 다중과고분석기(Multi-channel Analyzer; MCA)를 이용하여 Re-186에 오염된 장갑을 측정하였다. 측정을 위하여 20 ml 바이알, 90 ml U8용기, 500 ml, 1 L Marinelli Beaker에 대한 교정을 수행하였다. Re-186은 저에너지 감마선을 방출하므로 기존 효율교정 선원과 달리 별도의 표준물질을 이용하여 저에너지 측정 MCA로 측정하였다. MCA 교정을 위한 표준물질은 한국표준과학연구원(KRISS)에서 제작하였으며, 자체적으로 교정하여 다음과 같이 시료를 측정하였다.

- 1) 방사성폐기물은 전자저울(AJH-2200E-D, Vibra, Japan)을 이용하여 총 3회 무게를 측정하고 고유의 코드를 할당한다(핵종 - 발생일자 - 일련번호).
- 2) 방사성핵종 Re-186에 오염된 장갑을 90ml 용기에 수거한다(적용효율: 90ml U8용기).
- 3) MCA의 자연 방사능(Natural Background)을 확인한다.
- 4) 측정에너지 적용범위는 50keV~10MeV이었으며, MCA의 불감시간(Dead Time)이 3% 이하일 때 측정한다.



Fig. 1 MCA(HPGe Detector, Canberra, USA)

III. 결 과

Re-186에 오염된 방사성폐기물의 방사능을 측정하였다. 대상 폐기물은 장갑이었으며, 발생할 때마다 수거하여 측정하였다. 방사능측정은 방사성폐기물이 발생한 시점과 자체 처분이 가능하다고 판단되어 인출하는 시점, 그리고 그 중간에 해당하는 시점 등 총 3번 실시하였다. 각각의 폐기물 방사능측정 결과를 바탕으로 유도식을 도출하여 자체처분이 가능한 시기를 산출하였고 이를 평균하여 나타내었다. 시료의 측정과정에서 방사성 폐기물을 임의로 희석시키거나 또는 다른 물질과 혼합하는 등의 인위적인 처리는 하지

않았다.

Table 1은 방사성핵종 Re-186에 오염된 장갑에 대한 시간경과에 따른 비방사능 측정결과이며, Table 2는 방사능측정과 관련하여 산출한 평균 비방사능, 평균 저장기간을 보여준다. Re-186에 오염된 장갑은 해당 핵종의 취급과정에서 방사선작업종사자가 사용하던 것이었다. IAEA Clearance 농도기준 1,000Bq/g을 적용하면 자체처분까지 11.96일이 소요됨을 확인할 수 있었다.

Table 1 Result of specific radioactivity measurement for Re-186 radioactive waste

Elapsed day	Radioactivity(Bq/g)	Uncertainty(%)	MDA
0	7183.33	4.60	4.82
10	1255.27	4.50	0.58
20	173.02	4.50	0.35
30	39.17	5.20	0.35
40	22.08	4.80	0.28
50	1.83	10.01	0.05

Table 2 Radioactivity measurement according to the incident types of Re-186 radioactive waste

Radionuclide	Re-186
Type of radioactive waste	Poly Glove
No. of sample (n)	10
(Mean) Specific radioactivity (Bq/g): $m \pm \sigma$	$7.18 \times 10^3 \pm 5.12 \times 10^2$
(Mean) storage period to clearance level (day)	11.96

1. 측정모델 유도 및 보관기간

방사성 핵종에 따른 자체처분 가능 보관일자를 산출한 결과 Re-186 핵종 폐기물의 처분 가능일은 약 12일 정도 소요되는 것으로 나타났다. 이러한 결과를 바탕으로 폐기물 발생일자와 시간경과에 따른 방사능 농도를 측정하여 측정값을 바탕으로 한 실무적 방법의 처분이 가능하도록, Re-186 핵종 폐기물의 방사능 유도 감쇠식을 도출하였다.

Fig. 2는 Re-186 방사성폐기물을 시간 경과별로 방사능 변화를 측정된 결과이다. 시간이 경과함에 따라 지수함수적으로 방사능이 감쇄하는 것을 확인할 수 있으며, 각 시간대별 측정지점에 따른 곡선 맞추기(curve fitting)를 수행한 결과 아래와 같은 유도 감쇠식을 구할 수 있다.

Re-186 핵종의 경우 임상적으로 널리 사용되고 있지는 않지만 관련 연구가 진행되고 있으며, 비록 수집한 시료의 수는 적지만 가까운 미래에 발생되는 폐기물이라는 관점에

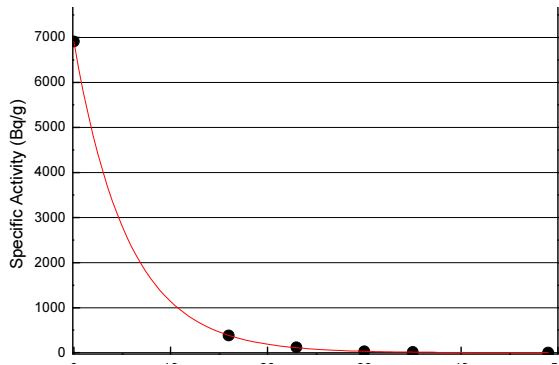


Fig. 2 Specific radioactivity reduction according to the elapsed time of Re-186 radioactive waste

서 대상으로 하였다. 시간에 따른 방사능 변화 데이터를 바탕으로 구한 감쇠식은 아래와 같다.

$$y = 6895.3e^{-0.171x}$$

위 감쇠식의 상관계수는 0.999이었으며, 유도 반감기는 3.6일로 나타났다. 즉, Re-186 핵종의 이론적인 반감기 3.8일 보다 0.2일 더 짧은 것을 알 수 있으며, 따라서 이론적인 반감기 3.8일을 적용하는 경우 소요되는 보관기간 12.84일 보다 0.68일이 짧은 12.16일이 경과하면 자체처분이 가능한 것으로 평가된다.

2. 고려사항

방사능 측정에 따라 고려하여야 할 사항으로 방사성폐기물의 기하학적 특성, 보관과정에서 미치는 영향 및 측정불확도 등이 있다.

1) 방사성폐기물의 기하학적 특성

의료방사선분야에서 발생하는 방사성폐기물의 기하학적 형태[10-12]는 매우 다양하며, 따라서 정확한 방사능 측정을 위해 주의하여야 한다. 특히, 유리병이나 비늘, 튜브 등은 물론 주사기와 캡슐케이스 등은 기하학적으로 정확한 방사능량의 측정이 용이하지 않다. 이의 측정을 위해 폐기물 전체를 용액에 침전시켜 용해하는 방법을 적용하기도 한다.

다만, 종이컵이나 약솥 등을 포함하여 이 연구의 대상이 되는 장갑은 단순한 형태이므로 MCA로 정확하게 방사능량을 측정할 수 있으므로 특별한 고려는 하지 않았다.

2) 보관과정에서 미치는 영향

일단 자체처분을 위하여 방사능 감쇠를 위한 보관기간이

결정되면 오염된 개봉선원이 누출되지 않는 용기 등에 봉입하여 격리시설에 저장하게 된다. 자체처분을 위한 방사성폐기물은 주기적으로 압출고 되며 정기적으로 점검하게 되므로 보관과정에서 측정에 영향을 미치게 될 가능성은 없으나, 개봉선원 자체 특성에 의한 화학작용 또는 기화 등의 영향으로 보다 빠른 시기에 방사능 농도값이 규제해제기준에 도달하게 될 가능성이 있을 수 있다.

이를 위하여, 방사능농도의 실측과 이론식에 의한 감쇠의 정도를 비교하면서 보관과정에서 미치는 영향을 고찰할 필요가 있겠지만, 그 정도는 무시할 만할 것으로 판단된다.

3) 확장 불확도

불확도의 요소[13]는 계측기(MCA) 자체의 측정에 따른 오차(U_a), 시료의 질량측정에 대한 오차(U_b), 시료의 채취하고 측정시간까지의 오차(U_c), 표준선원과 용기의 기하학적 차이(U_d), 시료의 분포(균질성) 차이에 기인한 불확도(U_e) 등이 있다. 따라서 전체 불확도 U 는 다음의 식과 같이 계산된다.

$$U = \sqrt{U_a^2 + U_b^2 + U_c^2 + U_d^2 + U_e^2}$$

측정에 대한 불확도(U_a)는 측정환경의 요소(온도, 습도 등)를 포함하여 최대 5%, 시료의 질량측정에 따른 불확도(U_b)는 질량 측정기의 정밀도가 매우 높으므로 최대 1%를 넘지 않으며, 시료를 수거한 후 측정 시까지의 측정시간에 의한 오차는 초분 단위까지 정확하게 처리하였으므로 불확도(U_c)는 최대 1%를 초과하지 않을 것이다. 표준선원과 용기별 기하학적 차이(U_d)는 동일한 용기를 사용하므로 1% 이내에서 관리할 수 있으며, 시료의 균질성 차이에 기인한 불확도(U_e)는 교반기를 사용하였으므로 보통 3% 이내로 평가된다. 따라서 전체 확장 불확도는 다음과 같이 계산되어 6.1% 이내이다.

$$U = \sqrt{0.05^2 + 0.01^2 + 0.01^2 + 0.01^2 + 0.03^2} = 0.0608$$

IV. 고찰

이 연구를 통하여 의료용 방사성폐기물에 대해 IAEA의 규제해제(Clearance) 기준을 적용하기 위하여 Re-186 방사성핵종에 방사성폐기물의 방사능을 측정하였다. 이를 위하여 방사성폐기물 수집, 보관, 전처리 등의 방법을 수립하

였고, MCA 계측기를 이용한 방사능측정방법을 설정하였으며, 한국표준과학연구원에서 제작한 표준물질을 이용하여 MCA 계측기를 자체적으로 교정하였다.

측정결과를 이용하여 도출한 방사능 감쇠 유도식으로부터 이론식 보다는 다소 짧은 반감기를 얻을 수 있었고, 따라서 자체처분을 위한 폐기물 보관기간은 0.64일 축소할 수 있었으며, 불확도는 6.1%로 신뢰할만한 결과라고 판단되었다.

Re-186 핵종의 경우 임상적으로 널리 사용되고 있지만, 관련 연구가 진행되고 있으며, 추후 사용가능한 핵종이라는 관점에서 측정대상으로 하였다. 비록 수집한 시료의 수는 적었지만 측정결과는 신뢰할 만하다는 점에서 I-131, Tc-99m, F-18 등의 일반화되어 있는 방사성핵종 오염폐기물 측정절차에도 적용 가능할 것으로 판단된다.

V. 결 론

의료용 방사성동위원소의 사용이 증가하면서 방사성폐기물의 처리는 의료기관의 중요한 업무로 대두되고 있다. 이를 위하여 의료기관에서는 규제해제기준에 따른 자체처분을 위하여 일정기간 방사성폐기물을 보관하고 있는 실정이며, 이에 따른 공간 확보 등 다소의 어려움을 겪고 있어 최적의 보관기간을 설정할 필요가 있다.

이 연구 대상인 Re-186에 대해서는 아직 사용빈도가 많지 않아 측정시료를 충분히 확보하지 못하였지만, 측정결과는 신뢰할 만한 것으로 보인다. 또한, 장갑이외에 주사기, 바이알 등과 같이 잔존 방사능량이 높아 보관기간이 더 길 것으로 보이는 폐기물이 제외된 아쉬움이 있지만, 측정 절차 및 평가방법에 있어서는 크게 다르지 않을 것으로 판단된다. 따라서 방사성폐기물의 자체처분에 대해 과학적 근거를 기반으로 종사자에 대한 방사선피폭을 고려[14,15]하면서 보관기간 산출 방법에 대한 연구는 계속되어야 할 것이다.

특히, 이 연구에서 시도한 측정방법 및 절차와 이를 적용한 측정결과는 현재 ISO (International Organization for Standardization) 표준으로 추진하고 있다.

REFERENCES

- [1] IAEA Safety Series No. 111-P-1.1, Application of Exemption Principles to the Recycle and Reuse of Materials from Nuclear Facilities; 1992
- [2] Atomic Energy Safety Law; 2016
- [3] Regulation on the Classification and Clearance of Radioactive Waste; 2014
- [4] IAEA Safety Series No. 111, Classification of Radioactive Waste; 1994
- [5] IAEA RS-G-1.7, Application of the Concepts of Exclusion, Exemption and Clearance
- [6] Radionuclide and radiation Protection Data Handbook; 2002
- [7] IAEA-TECDOC-1183, Management of Radioactive Waste from the Use of Radionuclides in Medicine; 2000
- [8] IAEA Safety Guide WS-G-2.7 Management of waste from the use of radioactive material in medicine, in industry, agriculture, research and education; 2005
- [9] 10CFR Part 35 Medical Use of Byproduct Material
- [10] IAEA Safety Series No. 40, Applying Radiation Safety Standards in Nuclear Medicine; 2005
- [11] IAEA Safety Guide RS-G-1.5, Radiological Protection for Medical Exposure to Ionizing Radiation; 2002
- [12] ICRP Report 73 Radiological Protection and Safety in Medicine
- [13] KRISS Guide to the expression of uncertainty in measurement; 1998
- [14] 10CFR Part 20 Standards for Protection against Radiation
- [15] ICRP Report 75 General Principles for the Radiation Protection of Workers

•Abstract

Measurement of Specific Radioactivity for Clearance of Waste Contaminated with Re-186 for Medical Application

Kim Chang-Bum¹⁾·Lee Sang-Kyung²⁾·Jang Seong-Joo³⁾·Kim Jung-Min⁴⁾

¹⁾*Health Science Research Center, Korea University*

²⁾*Department of Bio-convergence Engineering, Korea University*

³⁾*Department of Radiological Science, Dongshin University*

⁴⁾*School of Health and Environmental Science, Korea University*

The amount of radioactive waste has been rapidly increased with development of radiation treatment in medical field. Recently, it has been a common practice to use I-131 for thyroid cancer, F-18 for PET/CT and Tc-99m for diagnosis of nuclear medicine.

All the wastes concerned have been disposed of by means of the self-disposal method, for example incineration, after storage enough to decay less than clearance level. IAEA proposed criteria for clearance level of waste which depends on the individual ($10 \mu\text{Sv/y}$) and collective dose (1 man-Sv/y), and concentration of each nuclide (IAEA Safety Series No 111-P-1.1, 1992 and IAEA RS-G-1.7, 2004).

In this study, specific radioactivity of radioactive waste contaminated with Re-186 was measured to confirm whether it meets the clearance level. Re-186 has long half life of 3.8 days relatively and emits beta and gamma radiation, therefore it can be applied in treatment and imaging purposes.

The specific radioactivity of contaminated gloves worn by radiation workers was measured by MCA(Multi-channel Analyzer) which was calibrated by reference materials in accordance with the measuring procedure.

As a result, comparison evaluation of decay storage period between the half-life which was calculated by attenuation curve based on real measurement and physical half-life was considered, and it is showed that the physical half-life is longer than induced half-life. Therefore, the storage period of radioactive waste for self-disposal may be curtailed in case of application of induced half-life. The result of this study will be proposed as ISO standard.

Key Words : Re-186, Radioactive Waste, Radioactivity Measurement, Clearance, Multi-channel Analyzer