Journal of Radiation Industry 12(3) : 163~168(2018)

MCNP를 이용한 Zr-89 운반용기의 차폐적정성 평가

이상봉[1,2] · 김종일[2] · 정교성[1,2] · 이현진[1,2] · 이윤종[1] · 이진우[1,*]

[1]한국원자력연구원 첨단방사선연구소, [2]전북대학교 방사선과학기술학과

Evaluation of Shielding Capability of ^{89}Zr Transport Container Using MCNP Code

Sang-Bong Lee[1,2], Chong-Yeal Kim[2], Gyo-Seong Jeong[1,2], Hyun-Jin Lee[1,2], Yun-Jong Lee[1] and Jin-Woo Lee[1,*]

[1]*Advanced Radiation Technology Institute, KAERI, 29, Geumgu-gil, Jeongeup-si, Jeollabuk-do 56212, Republic of Korea*

[2]*Department of Radiation Science and Technology, Chonbuk National University, 567, Baekje-daero, Deokjin-gu, Jeonju-si, Jeollabuk-do 54896, Republic of Korea*

Abstract - ARTI (Advanced Radiation Technology Institute, KAERI) has been operating a 30 MeV cyclotron and is going to produce ^{89}Zr which is useful for diagnosis of cancer as an alternative of FDG (FluoroDeoxyGlucose). It is produced by proton irradiation on ^{89}Y target. Shielding analysis of a transport container has not been carried out, though there has been few cases of producing ^{89}Zr in Korea. In this study, we carry out shielding analysis for the ^{89}Zr transport container with MCNPX code. ^{89}Zr of which physical half life is 78.4 hours emits 0.909 MeV energy through a gamma transition at 99.9% fraction and β^+ emission at 23% fraction. The material of transport container is 97% lead with 3% antimony alloy, and the shape is cylindrical with diameter of 85 mm, height of 124 mm and weight about 8 kg. Radiation sources in transport container and were modeled based on the above data. Detectors which is a cylindrical shape with a radius and a height of 1cm respectively were set up from the outside of the transport container. Total of 8 tallies defined as F4 tally were also applied to calculate of flux for volume. Calculation results using MCNPX show that transport container can contain ^{89}Zr up to approximately 40 mCi to meet the radiation regulation of nuclear Act. This calculation is based on the surface radiation dose rate of 2 mSv·h^{-1} given in the radiation regulations. However, since the conditions used in analyses are conservative, actual maximum activity would be higher.

Key words : ^{89}Zr, Transport container, Radioisotope, Radiation shielding

서 론

현재 원자력에너지는 발전뿐만 아니라 생명공학, 농학, 재료 등 다양한 분야의 기초 및 응용연구에 활용되고 있다. 이에 따라 한국원자력연구원 첨단방사선연구소(이하 첨단방사선연구소)에는 연구용 30 MeV 사이클로트론이 운영되고 있으며, 이것으로 발생시키는 양성자 빔을 통해 기초·응용과학연구 및 의료·산업용 방사성동위원소를 생산하고 있다(이 등 2017). 특히 방사성동위원소는 국민의 기대수명이 높

* Corresponding author: Jin Woo Lee, Tel. +82-63-570-3271, Fax. +82-63-570-3279, E-mail. jinwoo@kaeri.re.kr

아짐에 따라 암 진단 및 치료의 목적으로 사용량이 점차 증가하고 있으며, 이를 이용한 암진단 및 암치료 연구도 활발히 진행되고 있다. 그 중 ^{18}F ($T_{1/2}$ = 1.8시간)은 암 진단의 목적으로 현재 활발히 사용되고 있으나, 짧은 반감기와 PET 영상진단 시 종양과 암의 구분이 명확하지 않다는 단점이 존재하고 있다. 따라서 이를 보완할 ^{89}Zr ($T_{1/2}$ = 78.4시간)의 연구가 최근 증가하고 있으며, ^{18}F에 비해 비교적 긴 반감기와 높은 염증 진단률을 장점으로 가지고 있다(Yim Zhang *et al*. 2011). 그러나 국내에서는 ^{18}F에 비해 ^{89}Zr는 생산경험이 많지 않으며, 생산한 ^{89}Zr를 사용처까지 안전하게 운반하기 위한 운반용기에 대한 연구가 활발히 진행되지 않았다(박 등 2017).

따라서 본 연구에서는 Los Alamos Laboratory에서 개발한 Monte Carlo N-Particle transport Code (MCNP) 전산모사 코드를 이용하여 연구용 사이클로트론에서 생산한 ^{89}Zr를 기존 운반용기를 통해 운반할 경우, 국내 원자력안전법에 의거한 운반용기의 표면방사선량률 및 공간방사선량률 값을 통해 운반용기가 방사선량을 기준치 이하로 적절히 차폐할 수 있는지 평가하고자 한다(원자력안전법 시행규칙 2017).

재료 및 방법

1. 운반용기 분류기준

국내 방사성동위원소의 운반용기는 “방사선 안전관리 등의 기술기준에 관한 규칙(이하 방사선규칙)” 제92조 2항에 따라 운반하고자 하는 방사성내용물이 포함된 중량 및 방사성내용물의 특성을 고려하여 “방사성물질 등의 포장 및 운반에 관한 규정” 제22조부터 제36조까지의 운반용기 기술기준 규정을 적용하게 되어있다(원자력안전위원회고시 2014).

방사선규칙 제90조에 따르면 운반용기는 L형, IP형, A형, B형, C형, 핵분열성물질 운반물로 구분할 수 있으며, 운반물별 방사성물질의 한도량은 방사선규칙 제91조를 참고할 수 있다. Table 1은 주로 사용되는 핵종의 A_1, A_2 값을 나타내고 있으며, A_1 값은 특수형방사성물질에 적용하는 값을 의미하고 A_2 값은 특수형방사성물질 이외의 방사성물질에 적용하는 값을 의미한다. 본 연구에서 사용하는 ^{89}Zr는 핵종 및 방사능을 명확히 알고 있는 단일 방사성 핵종이고, 특수형방사성물질 이외의 방사성물질에 해당하여 A형 운반물로 구분할 수 있다. 원자력안전법 시행규칙에 따르면 운반용기의 설계승인 대상은 B (U), B (M), C형 및 핵분열성물질 운반물 운반용기이며 이것은 모두 설계승인을 받아야 한다. 설계승인에는 안전성분석보고서가 포함되며 보고서 안에는 운반용기의 재질, 구조, 열, 격납, 차폐 및 핵임계의 평가결과가 포함되어야 한다. 하지만 본 연구에서 다루게 되는 것은 A형 운반용기이기 때문에 방사선 차폐에 관한 내용만 살펴보고자 한다.

Table 1. A_1, A_2 Values of radionuclide

Radionuclide(atomic number)	A_1 (TBq)	A_2 (TBq)
Scandium (21)		
^{44}Sc	5×10^{-1}	5×10^{-1}
Cobalt (27)		
^{57}Co	1×10^{1}	1×10^{1}
Gallium (31)		
^{68}Ga	5×10^{-1}	5×10^{-1}
Zirconium (40)		
^{89}Zr	–	–
Indium (49)		
^{111}In	3×10^{0}	3×10^{0}

2. 운반용기의 물성

본 연구에서 평가한 운반용기는 Fig. 1과 같이 지름 85 mm, 높이 124 mm의 원기둥 형태이며, 방사성 물질의 외부선량률을 저감시키기 위해 운반용기 재질을 Pb 97% + Sb 3%로 구성된 합금과 이를 둘러싼 MC Nylon으로 제작되었다. Table 2에서 볼 수 있는 것과 같이 운반용기를 구성하고 있는 납의 밀도는 11.34 g·cm^{-3}, 안티몬의 밀도는 6.68 g·cm^{-3}, 텅스텐의 밀도는 19.25 g·cm^{-3}, MC Nylon의 밀도는 0.91 g·cm^{-3}을 적용하였다. 위의 밀도를 적용하게 되면 납 합금의 운반용기 무게는 약 5 kg, 텅스텐 합금의 운반용기 무게는 약 8 kg이 된다.

3. 선원

운반용기 차폐적정성 평가에 사용하는 선원은 ^{89}Zr이며, ^{89}Zr는 사이클로트론을 통해 표적물질인 ^{89}Y에 양성자를 조사시켜 생산할 수 있다. ^{89}Zr는 반감기가 78.4시간, 99.9% 분율로 Gamma Transition을 통해 0.909 MeV의 에너지를 방출하고, 100% 분율로 Electron Capture + β^+ decay를 통해 Y-89로 핵변환을 한다(Stacy Lee Queern *et al*. 2017). 이외에도 첨단방사선연구소에서 사용하는 방사성 동위원소는 ^{44}Sc, ^{57}Co 등이 있으며 Table 3에 핵종별 반감기, Decay Mode, Energy를 나타내었다.

4. 모델링 및 해석조건

4.1 모델링

Fig. 1의 운반용기 도면을 바탕으로 Fig. 2에 Full Model의 구성도를 나타내었다. X-Z 평면을 기준으로 한 Fig. 2를 보게 되면 방사성물질이 들어있는 캡슐이 운반용기의 가운데에 위치하게 되고, 위쪽공간으로는 방사성물질이 들어있는 캡슐이 진출입하는 통로로 사용된다. 또한 실제 운반하

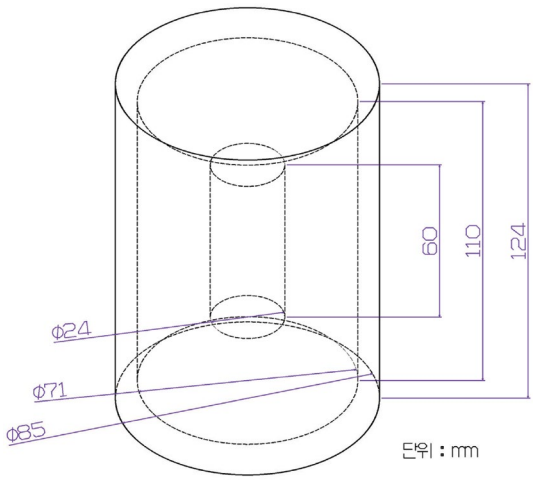

Fig. 1. Design of ^{89}Zr transport container.

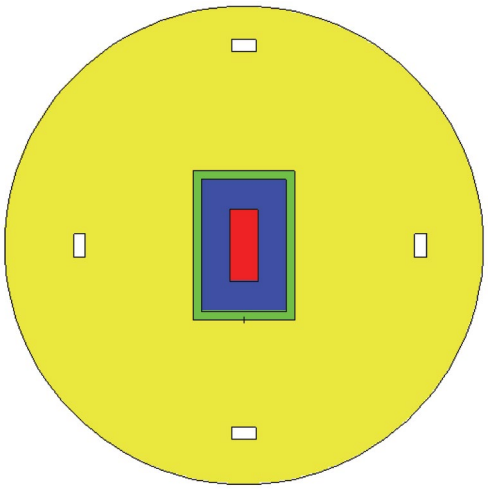

Fig. 2. Full model of ^{89}Zr container in MCNPX (X-Z Plane).

게 될 ^{89}Zr의 물성은 ^{89}Zr oxalate 액체 형태이나 MCNPX 계산의 편의성과 보수성을 높이기 위해 캡슐내부를 공기로 설정하였다. 그리고 운반용기를 구성하는 내·외부는 rcc 타입인 원기둥 형태로 모델링하였고, 계측기는 운반용기 상하좌우 10 cm, 100 cm에 반지름과 높이가 각각 1 cm인 원기둥 형태인 volume으로 관심지점 설정을 하여 총 8 곳의 외부 방사선량을 계산하였다.

4. 2 해석조건

방사성물질의 방사선량 계산은 대상 물체와 동일하게 하는 것이 가장 좋지만 단순하고 보수적으로 조건을 설정한다면 보다 효율적으로 계산 값을 얻을 수 있다. 방사선량 계산은 5개의 CPU 코어를 가진 컴퓨터를 이용하여 Los Alamos Laboratory에서 개발한 Monte Carlo N-particle transport Code (MCNP)인 MCNPX 2.7.0 version 전산모사 코드를 사용하였다. 모델링에서 언급한 것과 같이 원기둥 형태의 내부 캡슐에 선원이 있다고 설정을 하여 surface card와 cell card를 구성하였고, Table 2와 같이 보편적으로 알려진 물성치를 바탕으로 data card를 작성하였다. ^{89}Zr는 양전자 방출핵종이기 때문에 mode＝p로 설정하였고, 가중치 imp＝p로

Table 2. Material density

Material	W	Pb	Sb	97%Pb＋3%Sb	MC Nylon	Air	Zr
Density (g·cm^{-3})	19.25	11.34	6.68	11.2002	0.91	4.0866×10^{-5}	6.52

Table 3. Characteristic of radionuclide

Radionuclide	Half life	Decay mode	Energy (keV)	Fraction (%)
^{44}Sc	3.97 h	β^+ decay	1,474	94.27
		Gamma transition	1,157	99.88
		Gamma transition	1,499	0.91
^{57}Co	271.74 d	Electron Capture	1,022	99.80
		Gamma transition	14	87.67
		Gamma transition	122	87.51
		Gamma transition	136	12.30
^{68}Ga	67.71 m	β^+ decay	1,022	89.10
		Gamma transition	806	0.09
		Gamma transition	1,077	3.23
		Gamma transition	1,261	0.09
		Gamma transition	1,883	0.14
^{89}Zr	78.41 h	β^+ decay	1,022	22.80
		Gamma transition	909	99.87
^{111}In	2.80 d	Electron Capture	1,022	99.99
		Gamma transition	171	99.99
		Gamma transition	245	100

Table 4. Calculation results of dose rate at 10 cm and 100 cm

Nuclide	Position	10cm dose rate [Sv·h^{-1}]		100cm dose rate [Sv·h^{-1}]	
		50 mCi	100 mCi	50 mCi	100 mCi
^{44}Sc	Bottom	6.5332×10^{-3}	1.3066×10^{-2}	1.2621×10^{-4}	2.5242×10^{-4}
	Left	1.0346×10^{-2}	2.0693×10^{-3}	1.8285×10^{-4}	3.6569×10^{-4}
	Top	5.6019×10^{-3}	1.1204×10^{-2}	1.2258×10^{-4}	2.4517×10^{-4}
	Right	8.9457×10^{-3}	1.7891×10^{-2}	1.8018×10^{-4}	3.6036×10^{-4}
^{57}Co	Bottom	1.1288×10^{-3}	2.2576×10^{-3}	2.2633×10^{-5}	4.5265×10^{-5}
	Left	2.3257×10^{-3}	4.6514×10^{-3}	4.2410×10^{-5}	8.4820×10^{-5}
	Top	9.4686×10^{-4}	1.8937×10^{-3}	1.7985×10^{-5}	3.5971×10^{-5}
	Right	2.0123×10^{-3}	4.0247×10^{-3}	4.2842×10^{-5}	8.5683×10^{-5}
^{68}Ga	Bottom	1.3100×10^{-3}	2.6199×10^{-3}	2.5925×10^{-5}	5.1850×10^{-5}
	Left	2.5588×10^{-3}	5.1176×10^{-3}	4.6010×10^{-5}	9.2019×10^{-5}
	Top	1.1593×10^{-3}	2.3186×10^{-3}	2.4357×10^{-5}	4.8714×10^{-5}
	Right	2.1102×10^{-3}	4.2203×10^{-3}	4.3777×10^{-5}	8.7554×10^{-5}
^{89}Zr	Bottom	1.2526×10^{-3}	2.5056×10^{-3}	2.2720×10^{-5}	4.5438×10^{-5}
	Left	2.4880×10^{-3}	4.9774×10^{-3}	4.4029×10^{-5}	8.7990×10^{-5}
	Top	1.1036×10^{-3}	2.2138×10^{-3}	2.1466×10^{-5}	4.2103×10^{-5}
	Right	2.1029×10^{-3}	4.2092×10^{-3}	4.3224×10^{-5}	8.6152×10^{-5}
^{111}In	Bottom	8.3814×10^{-4}	1.6763×10^{-3}	1.7143×10^{-5}	3.4286×10^{-5}
	Left	1.6929×10^{-3}	3.3858×10^{-3}	2.9294×10^{-5}	5.8589×10^{-5}
	Top	7.4632×10^{-4}	1.4926×10^{-3}	1.4792×10^{-5}	2.9584×10^{-5}
	Right	1.4377×10^{-3}	2.8754×10^{-3}	3.0721×10^{-5}	6.1441×10^{-5}

지정하였다. 방사선원인 ^{89}Zr의 위치는 캡슐내부에 선(Line) 선원 형태로 가정을 하였고, 에너지인 erg = 0.909 MeV 광자의 종류를 지정하는 par = 2로 설정을 하였다. 코드 내부에서의 관심지점을 의미하는 tally는 여러 종류가 있지만 본 연구에서는 volume에 대한 flux를 계산하는 것으로 정의되어 있는 F4 tally를 사용하였고, 각 위치별로 총 8개의 F4 tally가 적용되었다. 계산된 flux의 값을 Sv·h^{-1} 단위로 출력하기 위해 iu = 2 옵션, DCF (Dose Conversion Factor)는 ic = 40 옵션을 설정하였고, 여기서 사용된 ic = 40 옵션은 MCNPX 전산모사 코드에 내장된 ICRP-74 Ambient Dose Equivalent 값을 사용하게 된다.

결 과

첨단방사선연구소에서 운영 중인 30 MeV 연구용 사이클로트론으로 생산하게 될 ^{89}Zr는 Oxalate 또는 Chloride 형태로 캡슐 내에 액체 상태로 운반될 것이다. 하지만 MCNPX 전산모사 코드를 이용한 계산 시 보수적으로 값을 구하기 위해 캡슐 내부를 일반 공기상태로 가정하여 실제보다 보수적인 값을 도출할 수 있었다. 또한 ^{89}Zr 핵종 외에도 개봉 방사성동위원소를 필요에 따라 소내 운반할 경우도 있기 때문에 사용할 가능성이 있는 핵종에 대해 차폐 계산을 하였고, 방사능량은 일괄적으로 50, 100 mCi로 지정하였다. 계산결과를 바탕으로 운반 가능한 최대방사능량은 외삽법으로 계산하였으며 그 결과는 다음과 같다.

1. ^{89}Zr
   최대방사능량 : 약 40 mCi (1,480 MBq)
2. ^{44}Sc
   최대방사능량 : 약 10 mCi (370 MBq)
3. ^{68}Ga
   최대방사능량 : 약 39 mCi (1,443 MBq)
4. ^{111}In
   최대방사능량 : 약 59 mCi (2,183 MBq)
5. ^{57}Co
   최대방사능량 : 약 43 mCi (1,591 MBq)

상기 핵종모두 운반용기 상·하단에 비해 좌·우측면에서 표면선량률이 높게 나왔고, 공간선량률도 마찬가지 결과가 나왔다. 운반 가능한 최대방사능량은 방사선규칙에서 제시하는 표면선량률 2 mSv·h^{-1}를 기준으로 하였고 자세한 결과는 Table 4를 통해 확인할 수 있다.

추가적으로 운반용기의 재질에 따라 차폐 능력에 차이가 발생하는지 알아보기 위해 텅스텐과 납의 비율을 달리하여 ^{89}Zr 핵종에 대해서만 해석을 수행하였고, 해석결과는 Table 5와 같았다.

1. Pb (97%) + Sb (3%)
   최대방사능량 : 약 40 mCi (1,480 MBq)
2. W (97%) + Sb (3%)

Table 5. Maximum activity of ^{89}Zr by material change in a transport container

Radionuclide	Material	Maximum activity
^{89}Zr	Pb(97%) + Sb(3%)	40.19
	W(97%) + Sb(3%)	101.75
	Pb(100%)	41.40
	W(100%)	97.78

최대방사능량 : 약 98 mCi (3,626 MBq)

3. Pb (100%)

최대방사능량 : 약 41 mCi (1,517 MBq)

4. W (100%)

최대방사능량 : 약 101 mCi (3,737 MBq)

위와 같이 운반용기의 재질을 달리하여 해석을 수행한 결과 보유하고 있는 납 합금 운반용기의 경우 ^{89}Zr를 최대 약 40 mCi까지 운반 가능하며, 차폐능력은 텅스텐이 우수한 것을 알 수 있었다.

고 찰

첨단방사선연구소에서 사이클로트론을 이용해 생산할 수 있는 핵종은 여러 가지가 있지만 현재 주로 생산하는 핵종은 ^{18}F이다. 앞으로 생산하게 될 ^{89}Zr 외의 핵종을 Table 4와 같이 MCNPX 전산모사 코드를 이용하여 운반용기에 의한 표면선량률 차폐해석을 수행할 필요가 있다. Table 4 결과를 보게 되면 핵종에 관계없이 운반용기 측면에서 표면선량률이 높게 계산되었는데 이것은 운반용기 측면 두께가 23.5 mm, 상·하단 두께가 25 mm로 1.5 mm의 두께 차이가 발생하기 때문에 핵종에 관계없이 운반용기 측면에서 표면선량률이 높게 계산된 것이라 판단된다. 그리고 운반용기 표면선량률 계산에 사용된 해석조건은 여러 상황을 고려한 보수적인 값이기 때문에 실제 운반할 수 있는 양은 이보다 더 많을 것으로 생각된다. 추후 다른 방사성핵종을 생산하여 운반하게 된다면 운반 전 MCNPX 전산모사 코드를 이용한 운반용기 표면방사선량률 계산이 필요하다고 생각되며, 이것은 방사선규칙에서 제시하는 표면방사선량률 기준을 만족하는 동시에 방사선작업종사자의 피폭을 저감하는데 도움이 될 것이라 생각한다.

MCNPX 전산모사 코드를 이용한 표면선량률 차폐해석 시 flux 값을 Sv·h^{-1} 단위로 출력하기 위한 옵션 중 DCF는 ic = 40 옵션을 사용하며, 해당 옵션은 코드에 내장된 ICRP-74 Ambient Dose Equivalent 값을 사용한다. ICRP에서는 지속적으로 권고사항을 업데이트 하고 있지만 실제로 ICRP에서 권고한 사항을 법에 반영시키기까지에는 많은 시간이 걸리기 때문에 아직까지 우리나라도 현재 ICRP-60 권고에 근거한 데이터를 원자력안전법에 반영중이다. 이러한 원자력안전법을 바탕으로 국내에서 인·허가 업무가 문제없이 진행되고 있기 때문에 본 연구에서 목적으로 하는 MCNPX 전산코드를 이용한 운반용기 선량계산시 ICRP 최근 권고를 지금 당장 적용할 필요는 없다고 생각된다. 하지만, 장기적인 측면으로 봤을 때 ICRP에서 제시한 권고는 고려해야할 필요가 있기에 비교를 통한 차이점을 파악할 필요는 있다고 생각된다.

결 론

본 연구에서는 MCNPX 전산모사 코드를 이용하여 방사성핵종과 운반용기 재질 변화에 따른 외부 방사선량률을 계산하였다. 그 결과 방출되는 방사선의 에너지와 분율이 높을수록 표면선량률이 높게 계산되었고 운반용기를 이용해 운반 가능한 핵종의 양도 적을 수밖에 없었다. 현재 관심을 갖는 핵종인 ^{89}Zr는 보수적으로 계산했을 때 최대 약 40 mCi까지 운반용기에 저장할 수 있었고, 그 외에는 ^{44}Sc가 가장 적은 양을 저장할 수 있었다. ^{89}Zr 운반에 사용될 운반용기는 Pb (97%) + Sb (3%)로 구성된 납 합금이며, 위에서 언급한 것과 같이 최대 약 40 mCi까지 저장할 수 있다. 하지만 납보다 밀도가 높은 텅스텐 재질의 운반용기를 사용한다면 약 2.5배의 ^{89}Zr를 저장할 수 있다. 따라서 앞으로 한 번에 많은 양의 ^{89}Zr를 운반하고자 한다면 텅스텐 합금으로 제작된 운반용기를 사용하거나 두께가 보다 두꺼운 납 합금을 이용할 필요가 있지만 실제 ^{89}Zr 1회 운반 시 최대 10 mCi까지 운반할 예정이기 때문에 텅스텐 합금으로 제작된 운반용기는 필요 없을 것이라 생각되며, 이로 인한 방사선작업종사자의 방사선장해는 없을 것이라 판단된다.

사 사

이 논문은 2018년도 전북대학교 연구교수연구비 지원에 의하여 연구되었음.

참 고 문 헌

이진우, 정교성, 이상봉. 2017. 첨단방사선연구소 개봉 방사성동위원소 사용 방사선안전보고서.

박종한, 홍진태, 양태호, 손광재. 2017. Ir-192 10,000 Ci와 I-131 80 Ci 운반에 적합한 운반용기 구조 분석. 한국기계기술학회지. **19**(1):46-55.

원자력안전법 시행규칙. 2017.

원자력안전위원회고시 제2014-50호.
이주찬, 구정희, 서기석, 민덕기. 1997. 방사성 동위원소 운반용기의 안전성 평가. 대한방사선방어학회지. **22**(4):55-63.
Yin Z, Hao H and Weibo C. 2011. PET Tracer Based on Zirconium-89. *Current Radiopharmaceuticals*. **4**(2):131-139.
Stacy LQ, Tolulope AA, Adriana VFM, Nicholas AC, Retta ES, Jayden AS, Alexander Z and Suzanne EL. 2017. Production of Zr-89 using sputtered yttrium coin targets. *Nuclear Medicine and Biology* **50**(1):11-16.

Received: 5 February 2018
Revised: 6 March 2018
Revision accepted: 4 July 2018