Journal of Radiation Industry 11(1) : 13~18(2017)

조선대학교 사이클로트론 시설의 RI 배기필터 성능평가 및 ^{18}F 배출저감 연구

정철기[1] · 장 한[1] · 이경진[1,*]

[1]조선대학교 원자력공학과

Performance of the RI Exhaust Filter at Chosun University Cyclotron Facility and ^{18}F Emission Reduction

Cheol-Ki Jeong, Han Jang[1] and Goung-Jin Lee[1,*]

[1]*Department of Nuclear Engineering, Chosun University*

Abstract - Recently, the number of PET cyclotrons has increased in Korea. A cyclotron mainly produces ^{18}F, which is used for the production of [^{18}F]FDG, a cancer diagnostic radiopharmaceutical. For radiation protection, the discharge control standard under the Nuclear Safety Act limits the radioactive concentration of ^{18}F in the exhaust discharged from a nuclear power utilization facility to below 2,000 Bq m^{-3}. However, the radioactive concentration of ^{18}F discharged during [^{18}F]FDG production at the cyclotron facility at Chosun University is maintained at about 1,500 Bq m^{-3} on average, which is 75% of the concentration limit of the discharge control standard, and temporarily exceeds the standard as per the real-time monitoring results. This study evaluated the performance of the exhaust filter unit of the cyclotron facility at Chosun University by assessing the concentration of ^{18}F in the exhaust, and an experiment was conducted on the discharge reduction, where ^{18}F is discharged without reacting with the FDG precursors during [^{18}F]FDG synthesis and is immediately captured by the [^{18}F]FDG automatic synthesis unit. Based on the performance evaluation results of the exhaust filter at the cyclotron facility of Chosun University, the measured capture efficiency before and after the filter was found to be 92%. Furthermore, the results of the discharge reduction experiment, where the exhaust ^{18}F was immediately captured by the [^{18}F]FDG synthesizer, showed a very satisfactory 94.3% reduction in the concentration of discharge compared to the existing discharge concentration.

Key words : [^{18}F]FDG synthesis, Exhaust filter unit, Emission management standard, Emission reduction

서 론

최근 국내에서는 PET 검사의 확대와 더불어 사이클로트론의 수가 급격하게 증가하였다. 국내에 가동 중인 사이클로트론의 수는 총 41대이며, 이들 대부분은 의료용 동위원소 생산용으로 13~18 MeV 정도의 평균 에너지를 가지고 전국의 대형 병원을 중심으로 구축되어 있다(한국원자력안전기술원. KINS/HR-1269. 2013).

현재 국내에서 가동 중인 사이클로트론 시설에서 생산하고 있는 동위원소는 암 진단용 방사성의약품인 [^{18}F]FDG 제

* Corresponding author: Goung-Jin, Lee, Tel. +82-62-230-7167, Fax. +82-62-222-3594, E-mail. kjblee@chosun.ac.kr

조에 사용되는 ^{18}F이 주를 이루고 있다. 이러한 시설에서 배출되는 배기 중 ^{18}F 방사능 농도에 대해 원자력안전법 배출관리기준은 2,000 Bq m^{-3} 이하가 되도록 제한하고 있다(한국원자력안전위원회. 고시 2014-34호. 2014). 이에 따라 국내의 모든 사이클로트론 시설은 배출하는 공기에 대해 활성탄 필터가 포함된 3단 배기필터를 통해 외부로 배출되도록 설계되어 있으며, 배기 중 ^{18}F 방사능 농도를 감시하기 위하여 3단 배기필터 유닛과 배기구 사이에 stack monitor를 설치 · 운영하고 있다.

본 연구에서는 배기 중 ^{18}F 농도 평가를 통해 조선대학교 사이클로트론 시설의 배기필터 유닛에 대한 성능을 평가하고, [^{18}F]FDG 합성 중 FDG 전구물질과 반응하지 않고 배출되는 ^{18}F을 [^{18}F]FDG 자동합성장치에서 곧바로 포집하는 배출저감 실험을 수행하였다.

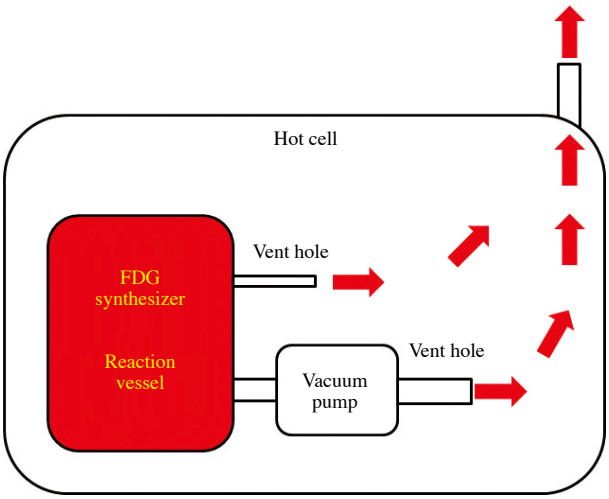

Fig. 1. ^{18}F production and discharge.

재료 및 방법

1. ^{18}F 발생 및 배출

사이클로트론 시설에서 옥외로 배출되는 ^{18}F의 주요 발생원은 [^{18}F]FDG 자동합성 과정이다. [^{18}F]FDG 자동합성장치의 내부는 사이클로트론에서 생산된 ^{18}F과 FDG 전구체를 합성하는 반응 용기가 있으며, [^{18}F]FDG 합성은 이 용기의 온도와 압력을 조절하면서 진행된다. 이러한 과정에서 FDG 전구체와 결합하지 못한 ^{18}F^{-} 이온은 합성에 사용되는 용매의 공비증류과정에서 [^{18}F]FDG 자동합성장치 밖으로 배출되며 사이클로트론 시설의 공조계통을 통해 밖으로 배기된다. Fig. 1은 사이클로트론 시설에서의 ^{18}F 발생 및 배출 개념도를 나타낸다.

2. 시료채집 및 측정

사이클로트론 시설의 배기필터 유닛에 대한 성능을 평가하기 위한 방법으로 배기필터 유닛의 전 · 후단에서 공기시료를 채집하여, 시료 중 ^{18}F의 방사능 농도를 측정하였다(Jeong *et al*. 2016). 시료 채집에 사용된 Air Sampler는 네오시스코리아 사의 NDAS-0200이며, 활성탄 흡착 필터는 NAC CO. LTD 사의 NAC-100 Impregnated Charcoal Filter를 사용하였다. Fig. 2는 조선대학교 사이클로트론 시설의 배기설비이며, 배기필터 유닛을 중심으로 우측이 건물에서 배기필터로 연결된 흡입구이며, 좌측이 배기필터에서 외부로 배출되는 배기구이다.

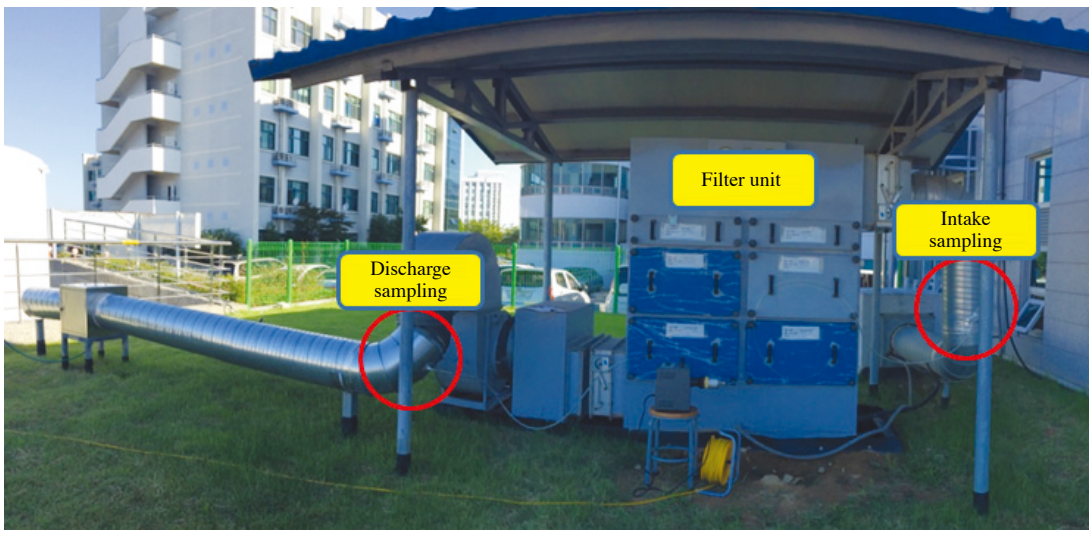

Fig. 2. Exhaust filter unit and sample collection locations.

최초의 시료채집은 배기필터의 흡입구에서 시작하였다. 경과시간은 [^{18}F]FDG 합성이 시작되는 시점부터이며, 각 시료별 시료채집 시간은 3분씩 하고, 합성시간의 경과에 따라 배기필터의 흡입구와 배출구에서 5분 간격으로 번갈아 가면서 시료를 채집하였다. 따라서 동일한 시료채집 지점에서의 각 시료별 시간 간격은 10분이다. Table 1에 경과시간에 따른 시료채집 방법을 나타내었다.

Table 1. Sample collection at the different point of time

Filter unit intake		Filter unit discharge	
Elapsed time (min)	Sample name	Elapsed time (min)	Sample name
0	In_1	5	Out_1
10	In_2	15	Out_2
20	In_3	25	Out_3
30	In_4	35	Out_4
40	In_5	45	Out_5
50	In_6	55	Out_6
60	In_7	65	Out_7
70	In_8	75	Out_8
80	In_9	85	Out_9
90	In_10	95	Out_10

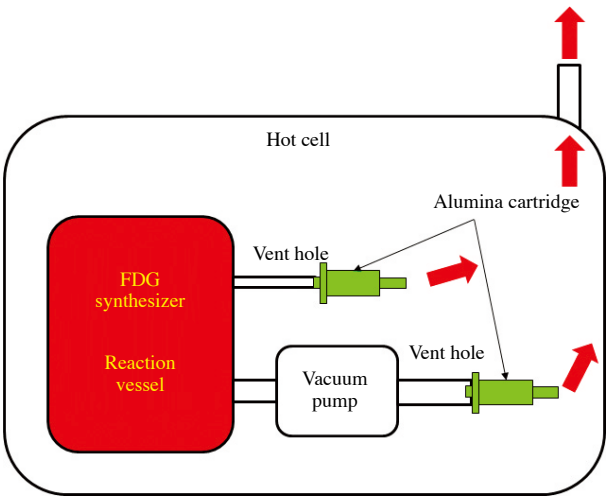

Fig. 3. Ion exchange resin mounted system.

채집된 시료는 Canberra 사의 GC1518 HPGe 검출기와 Genie 2000 소프트웨어를 이용하여 분석하였다.

3. ^{18}F 배출저감 실험

사이클로트론 시설에서 ^{18}F 배출을 저감시키기 위해서는 배기필터의 용량을 확장하는 방법이 있다. 그러나 이러한 방법은 시설의 증설에 따른 운영비용 증가를 초래한다. 따라서 본 연구에서는 비용을 최소화하면서 효율적인 ^{18}F 배출저감을 위한 실험을 수행하였다. [^{18}F]FDG 자동합성장치에서 ^{18}F이 배출되는 경로는 반응용기의 배출구를 통해 장치 밖으로 배출된다. 따라서 반응용기의 배출구에서 ^{18}F를 직접 포집하는 방법을 사용하였다. Fig. 3은 [^{18}F]FDG 자동합성장치 반응용기 배출구에 이온교환수지(Waters 사, 알루미나 N Seppak 카트리지)를 장착한 개념도이다. 알루미나 N Seppak 카트리지는 음이온, 양이온, 메탈 이온과 같은 이온성 물질에 대한 흡착력이 매우 높다.

이온교환수지 장착에 따른 배기구에서의 ^{18}F 방사능 농도 측정은 배기필터 성능평가 방법과 동일한 방법으로 수행하였다.

결 과

1. 배기필터 성능평가 결과

사이클로트론 시설에서 배출되는 ^{18}F는 대부분 활성탄 필터에 의해 포집된다. 현재 조선대학교 사이클로트론 시설의

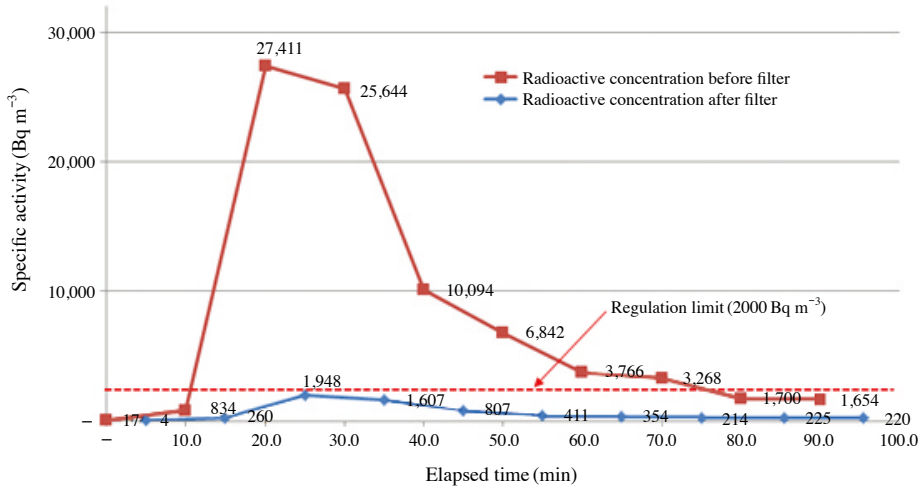

Fig. 4. Performance of the exhaust filter.

Table 2. Radioactive concentration at intake filter unit

Sample name	Elapsed time	Sampling flow (L)	Detection time	Net counts	Radioactive concentration (Bq m^{-3})	MDA (Bq m^{-3})
In_1	0	254	180	35	17	24
In_2	10	246	180	1,624	834	29
In_3	20	255	180	55,553	27,411	76
In_4	30	254	180	50,496	25,644	72
In_5	40	261	180	20,798	10,094	39
In_6	50	255	180	13,845	6,842	39
In_7	60	256	180	7,674	3,766	38
In_8	70	251	180	6,518	3,268	36
In_9	80	261	180	3,558	1,700	28
In_10	90	254	180	3,372	1,654	23

Table 3. Radioactive concentration at discharge filter unit

Sample name	Elapsed time	Sampling flow (L)	Detection time	Net counts	Radioactive concentration (Bq m^{-3})	MDA (Bq m^{-3})
Out_1	5	260	180	9	4	26
Out_2	15	255	180	527	260	23
Out_3	25	247	180	3,820	1,948	31
Out_4	35	254	180	3,192	1,607	30
Out_5	45	253	180	1,619	807	27
Out_6	55	256	180	834	411	28
Out_7	65	250	180	702	354	29
Out_8	75	256	180	439	214	28
Out_9	86	247	180	447	225	28
Out_10	96	247	180	433	220	26

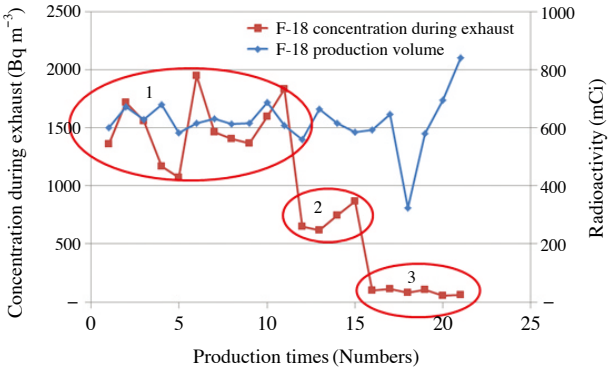

Fig. 5. Reduction efficiency of released ^{18}F with resin cartridge.

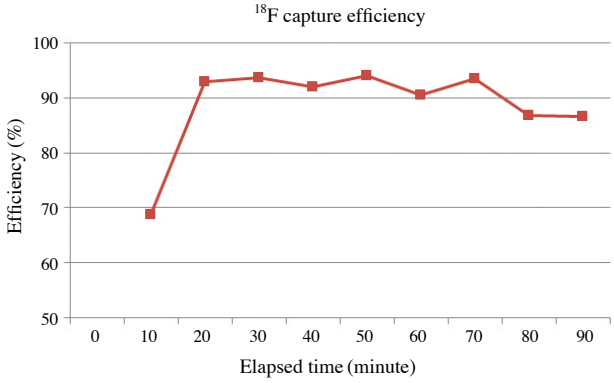

Fig. 6. Test results for the capture efficiency of the exhaust filter.

배기필터는 610 mm × 610 mm × 292 mm 체적의 활성탄 필터 2개가 설치되어 있으며, 배기필터 유닛의 모습은 Fig. 2에 나타나 있다.

조선대학교 사이클로트론 배기필터 유닛의 성능을 평가한 결과, 대부분 배출관리기준(2,000 Bq m^{-3})을 만족하는 것으로 나타났다. 다만, [^{18}F]FDG 합성 시작 후 30분 전후에서 ^{18}F 방사능 농도가 최대값을 보이며, 이때 일시적으로 배출관리기준을 상회하는 경우도 발생하였다. Fig. 4는 [^{18}F]FDG 합성 중 배기필터 유닛 전 · 후단에서 측정한 ^{18}F 방사능 농도를 나타낸다. Fig. 4에서 살펴보면, 배기필터 전단에서의 ^{18}F 농도는 27,411 Bq m^{-3}로 배출관리기준에 비해 13.7배 높게 나타나지만 필터를 통과한 농도는 1,948 Bq m^{-3}로 낮아지며 배출관리기준을 만족한다(Table 2~3 참조).

2. ^{18}F 배출저감 결과

Fig. 5는 [^{18}F]FDG 자동합성장치의 반응용기 배기 부분에 Waters 사의 알루미나 N Seppak 카트리지를 장착한 후 [^{18}F]FDG 합성공정을 수행하였다. Fig. 5의 배기 중 농도측정은 합성 과정 중 ^{18}F의 배출이 가장 많은 시점인 합성 시작

Table 4. The calculation result of ^{18}F capture efficiency

Sample name	Elapsed time (min)	Radioactive concentration (Bq m^{-3}),A	Sample name	Elapsed time (min)	Radioactive concentration (Bq m^{-3}),B	Filter penetration ratio (%), (B ÷ A) × 100	^{18}F capture efficiency (%)
In_1	0	< MDA	Out_1	5	< MDA	–	
In_2	10	834	Out_2	15	260	31.2	68.8
In_3	20	27,411	Out_3	25	1,948	7.1	92.9
In_4	30	25,644	Out_4	35	1,607	6.3	93.7
In_5	40	10,094	Out_5	45	807	8.0	92.0
In_6	50	6,842	Out_6	55	411	6.0	94.0
In_7	60	3,766	Out_7	65	354	9.4	90.6
In_8	70	3,268	Out_8	75	214	6.5	93.5
In_9	80	1,700	Out_9	86	225	13.3	86.7
In_10	90	1,654	Out_10	96	220	13.3	86.7

Table 5. Operation data for cyclotron facility of Chosun University

Operation date (day)	^{18}F production (mCi)	FDG production (mCi)	FDG synthesis yield (%)	Sample flow (L)	Detection time (sec)	Net counts	Radioactive concentration (Bq m^{-3})	MDA (Bq m^{-3})
1	601	282	47	338	240	4,845	1,358	16
2	671	350	52	294	240	5,323	1,720	22
3	629	337	54	337	180	3,740	1,561	19
4	680	315	46	1,922	600	54,301	1,168	3
5	582	247	42	1,924	600	46,554	1,073	3
6	616	335	54	247	180	3,820	1,948	31
7	631	299	47	320	240	4,354	1,464	20
8	613	335	55	338	240	4,997	1,405	17
9	616	356	58	341	180	3,301	1,367	19
10	688	373	54	308	180	3,402	1,595	24
11	607	312	51	339	240	5,877	1,836	20
12	560	41	7	335	180	1,525	650	19
13	665	327	49	273	180	1,281	615	25
14	615	277	45	222	180	1,318	748	26
15	584	275	47	324	240	2,575	867	19
16	593	300	51	314	240	268	98	14
17	647	324	50	329	240	350	114	13
18	325	162	50	324	240	188	78	15
19	580	289	50	323	180	242	107	16
20	695	336	48	327	180	126	57	18
21	840	416	50	334	180	142	59	15

후 30분에 배기구에서 배출공기를 포집하여 측정한 값이다 (Table 4 참조).

Fig. 5에서 1의 영역은 [^{18}F]FDG 자동합성장치에 대해 아무런 배출저감 조치를 하지 않고 일상적으로 합성을 수행한 결과이며, 거의 배출관리기준(2,000 Bq m^{-3})에 근사한 값인 평균 1,500 Bq m^{-3}를 보인다. Fig. 5에서 2와 3의 영역은 [^{18}F]FDG 자동합성장치에 알루미나 N Seppak 카트리지를 장착한 후 합성을 수행한 결과이다. 2영역은 1개의 알루미나 N Seppak 카트리지를 설치한 실험결과이며, 3영역은 알루미나 N Seppak 카트리지 3개를 장착하고 합성을 수행한 실험결과이다. 실험결과, 1개를 설치한 경우에는 평상시에 비해 평균 52%가 저감되었으며, 3개를 설치한 경우에는 평상시에 비해 94.3% 수준으로 나타났다.

고 찰

1. 배기필터 성능

본 연구의 실험결과를 통해 조선대학교 사이클로트론 시설의 배기 중 ^{18}F 방사능 농도는 평균 1,500 Bq m^{-3} 정도로 배출관리기준의 75% 수준으로 배기필터의 성능이 유지되고 있음을 확인하였다. 그러나 실시간 모니터링 결과에서는 일시적으로 배출관리기준을 넘는 경우도 발생하였다.

배기필터 유닛 전 · 후단에서 배기필터 가동 시간 중 ^{18}F 방사능 농도를 측정하여 필터의 포집효율을 분석한 결과, 조선대학교 사이클로트론 시설의 배기필터의 포집효율은 평균 92%로 나타났다 (Fig. 6 참조). 이러한 결과는 포집효

율을 지속적으로 모니터링 한다면 배기설비의 활성탄 필터 교체시기를 예측하여 시설의 방사선 관리에 활용할 수 있을 것으로 판단된다.

2. ^{18}F 배출저감 효과

본 연구에서는 사이클로트론 시설에서 ^{18}F의 배출을 효율적으로 저감시키기 위하여 선원을 발생단계에서부터 제거하는 방법을 고안하였다. 시설 밖으로 배출되는 ^{18}F의 발생은 [^{18}F]FDG 자동합성장치 내에서 [^{18}F]FDG 전구물질과 반응하지 못한 ^{18}F 이온이 대부분이므로, 이러한 ^{18}F 이온을 시설의 배기필터까지 이송되기 이전 단계인 [^{18}F]FDG 자동합성장치에서 제거한 경우 기존에 비해 94.3%나 저감되었다. 이는 이온교환수지가 [^{18}F]FDG 자동합성장치 내에서 밖으로 배출되는 ^{18}F을 대부분 포집하는 것을 확인할 수 있었다.

결 론

본 연구에서는 조선대학교 사이클로트론 시설의 가동 중 배기필터 전 · 후단에서 ^{18}F 방사능 농도를 측정하였다. 실험을 통해 확인된 배기필터의 성능은 포집효율이 92%로 본 시설이 배출관리기준에 적합하게 운영되고 있음을 확인하였으며, 정기적인 배기필터의 포집효율 모니터링이 배기필터 관리에 중요함을 확인할 수 있었다.

그러나 조선대학교 사이클로트론 시설의 배기 중 ^{18}F 방사능 농도는 평균 1,500 Bq m^{-3} 정도로 배출관리기준의 75%에 달하는 수준을 유지하고 있었으며, 실시간 모니터링 결과 일시적으로 배출관리기준을 넘는 경우도 발생하였다. 따라서 본 연구에서는 사이클로트론 시설에서의 ^{18}F 배출농도를 저감시키기 위한 방법으로 [^{18}F]FDG 자동합성장치에 이온교환수지를 장착하여 실험을 수행하였으며, 실험결과 94.3%의 배출저감 효과를 도출하였다. 따라서 이와 같은 방법은 사이클로트론 시설에서 ^{18}F 배출저감 방법으로 매우 효과적인 것으로 나타났다.

사 사

이 논문은 2013학년도 조선대학교 학술연구비의 지원을 받아 연구되었습니다.

참 고 문 헌

한국원자력안전기술원(KINS). 2013. 사이클로트론 국내운영 실태 및 국내외 시설해체 기준 분석 평가(KINS/HR-1269).

한국원자력안전위원회 고시 2014-34호. 2014. 방사선방호 등에 관한 기준.

Jeong CK, Jang H, Lee GJ. 2016. Evaluation of ^{18}F Radioactive Concentration in Exhaust at Cyclotron Facility at Chosun University. *Jour. Rad. Ind.* **10**(1):37-41.

Chi DY. 2003. The development of radiopharmaceuticals for human body imaging. *J. Korean Ind. Eng. Chem.* **14**:253-262.

KINS/RR-1116. 2014. Analysis on the domestic operation status and abroad decommissioning practices of radiation utilizing facilities.

Received: 26 October 2016
Revised: 8 December 2016
Revision accepted: 3 February 2017