

Radioactivation Analysis of Concrete Shielding Wall of Cyclotron Room Using Monte Carlo Simulation

Donggun Jang,¹ Dongyeon Lee,² Junghoon Kim^{3,*}

¹Department of Nuclear Medicine, Dongnam Institute of Radiological & Medical Sciences Cancer center

²Department of Radiation Oncology, Dongnam Institute of Radiological & Medical Sciences Cancer center

³Department of Radiological Science, College of Health Sciences, Catholic University of Pusan

Received: August 30, 2017. Revised: September 25, 2017. Accepted: October 31, 2017

ABSTRACT

Cyclotron is a device that accelerates positrons or neutrons, and is used as a facility for making radioactive drugs having short half-lives. Such radioactive drugs are used for positron emission tomography (PET), which is a medical apparatus. In order to make radioactive drugs from a cyclotron, a nuclear reaction must occur between accelerated positrons and a target. After the reaction, unnecessary neutrons are produced. In the present study, radioactivation generated from the collisions between the concrete shielding wall and the positrons and neutrons produced from the cyclotron is investigated. We tracked radioactivated radioactive isotopes by conducting experiments using FLUKA, a type of Monte Carlo simulation. The properties of the concrete shielding wall were comparatively analyzed using materials containing impurities at ppm level and materials that do not contain impurities. The generated radioactivated nuclear species were comparatively analyzed based on the exposure dose affecting human body as a criterion, through RESRAD-Build. The results of experiments showed that the material containing impurities produced a total of 14 radioactive isotopes, and ⁶⁰Co(72.50%), ¹³⁴Cs(16.75%), ⁵⁴Mn(5.60%), ¹⁵²Eu(4.08%), ¹⁵⁴Eu(1.07%) accounted for 99.9% of the total dose according to the analysis having the exposure dose affecting human body as criterion. The ⁶⁰Co nuclear species showed the greatest risk of radiation exposure. The material that did not contain impurities produced a total of five nuclear species. Among the five nuclear species, ⁵⁴Mn accounted for 99.9% of the exposure dose. There is a possibility that Cobalt can be generated by inducive nuclear reaction of positrons through the radioactivation process of ⁵⁶Fe instead of impurities. However, there was no radioactivation because only few positrons reached the concrete wall. The results of comparative analysis on exposure dose with respect to the presence of impurities indicated that the presence of impurities caused approximately 98% higher exposure dose. From this result, the main cause of radioactivation was identified as the small ppm-level amount of impurities.

Keyword : Cyclotron, Activation, impurities

I. INTRODUCTION

사이클로트론은 양성자를 가속하는 장치로써 산업시설, 의료시설, 연구소 등에 설립되고 있다. 2015년을 기준으로 국내에 보급되어 있는 사이클로트론은 총 42대이며,^[1] 이들 대부분이 15 MeV 이하의 초소형 사이클로트론으로 이루어져 있다.^[2] 초소형 사이클

로트론은 의료장비인 PET/CT 이용되는 방사성동위원소를 생산하는 시설로 이용되며,^[3] 양성자를 가속하는 에너지가 낮아 낮은 원자번호의 ¹¹C, ¹³N, ¹⁵O, ¹⁸F를 생산할 수 있다. 이 중 현재 가장 많이 생산하고 있는 핵종은 ¹⁸F로써 국내 의료용 방사성동위원소 생산량의 약 98%를 차지하고 있다.^[4] ¹⁸F를 생산하기 위해선 양성자와 Target과의 핵반응(p,

* Corresponding Author: Junghoon Kim

E-mail: donald@cup.ac.kr

Tel: +82-51-510-0583

n)을 통해 방사성핵종을 생산하며,^[5] 이러한 핵반응 과정에서 필연적으로 불필요한 중성자가 발생하게 된다.^[6]

이처럼 사이클로트론은 운영함에 따라 양성자와 중성자는 필연적으로 발생하게 되며, 주변 물질과의 상호작용으로 통해 안정된 원소를 방사성동위원소로 방사화 시키게 된다.^[7] 중성자들에게 외부피폭을 발생시키는 원인이 된다.^[8] 이에 본 연구에서는 사이클로트론으로 가동으로 인해 발생하는 사이클로트론실 내부의 공간선량률과 해체 시 콘크리트 차폐벽 종류에 따른 방사화를 분석하고자 하였다.

II. MATERIAL AND METHOD

1. 방사선원

사이클로트론에서 발생하는 양성자와 중성자는 연속적인 에너지를 가지므로 실측이 매우 어려워,^[9] 몬테카를로 모의 모사의 일종인 MCNPX^[10]를 이용하여 실험을 진행하였다. 실험은 380×430×250 cm의 공기로 구성된 가상의 공간을 모사하였으며, 공기의 성분^[11]은 Table 1과 같다. Targetry의 기하학적 구조는 PETrace 800 series(GE Healthcare, USA) 모델^[12]를 참고하여 H₂¹⁸O Target을 제작하였으며, 세부구조는 Fig. 1과 같다.

제작된 Target은 사이클로트론실 중앙에 위치시킨 후 16.5 MeV, 60 μA의 양성자^[13]를 충돌시켜 양성자와 중성자의 공간선량분포를 측정하였으며, 측정부위는 Fig. 2와 같이 사이클로트론에서 노출되어 있는 Targetry의 측면부위로 설정하였다. 측정도구로는 ICRU slab phantom(30×30×15 cm)을 10 cm 간격으로 위치시켜 H(10)의 값을 이용하였다.

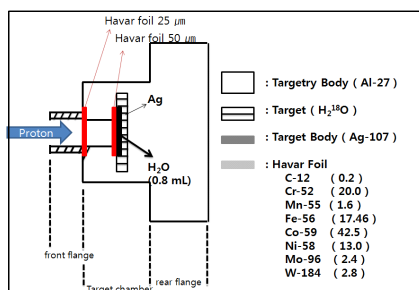
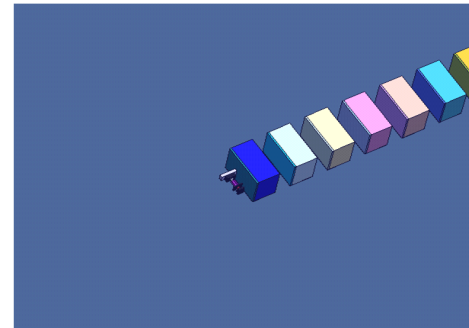


Fig. 1. Elements and their weight percents in targetry.



(a) Simulation diagram



(b) Cyclotron

Fig. 2. Measurement of spatial dose rates in the cyclotron room.

Table 1. Chemical composition of Air

Material	Chemical composition (Weight fractions)
Air	¹² C: 0.000124, ¹⁴ N: 0.755268 ¹⁶ O: 0.231781, ⁴⁰ Ar: 0.012827

2. 방사화

사이클로트론 운영에 따른 콘크리트 차폐벽의 방사화를 알아보려고 몬테카를로 모사 코드의 한 종류인 FLUKA code^[14](FLUktuierende KAskade)를 이용하였으며, 콘크리트 차폐벽은 Fig. 3과 같이 구성하였고, 두께는 방사선이 완전히 차폐되는 두께인 200 cm로 모사하였다.^[15] 차폐벽의 물성은 ppm 단위의 불순물이 포함된 Table 2의 물성^[16]과 불순물을 고려하지 않은 Table 3과 같은 물성으로^[17] 구성하였다. 차폐벽의 방사화 분석은 FLUKA code에 내장된 RESNUCLEI를 통해 평가하였다. 방사화 측정은 양성자 조사시간을 기준으로 1년 단위, 20년간 설정하였다.

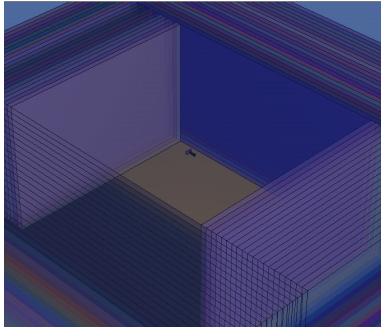


Fig. 3. Model of Cyclotron room.

Table 2. Elements and their weight percents in concrete(with impurities)

Element	Weight percent %
¹ H	1.00
¹² C	0.10
¹⁶ O	52.91
²⁴ Mg	0.20
²⁷ Al	3.38
²⁸ Si	33.70
³⁹ K	1.30
⁴⁰ Ca	4.40
⁵⁶ Fe	1.40
⁵⁹ Co	25×10 ⁻⁶ ppm
¹³³ Cs	3×10 ⁻⁶ ppm
¹⁵¹ Eu	1.005×10 ⁻⁷ ppm
¹⁵³ Eu	1.095×10 ⁻⁷ ppm

Table 3. Elements and their weight percents in concrete(without impurities)

Element	Weight percent %
¹ H	0.45
¹⁶ O	51.26
²³ Na	1.52
²⁷ Al	3.55
²⁸ Si	36.03
⁴⁰ Ca	5.79
⁵⁶ Fe	1.37

2. 선량평가

방사화된 콘크리트 차폐벽으로 종사자가 받게 되는 피폭선량을 알아보기 위하여 방사선에 오염된 건

물이나 구조물을 평가하는데 사용되는 RESRAD-BUILD를 사용하였으며, FLUKA를 통해 얻은 콘크리트 차폐벽의 방사화 핵종에 대한 정보를 Fig. 4와 같이 입력하여 인체가 받게 되는 연간유효선량으로 비교 분석하였다.

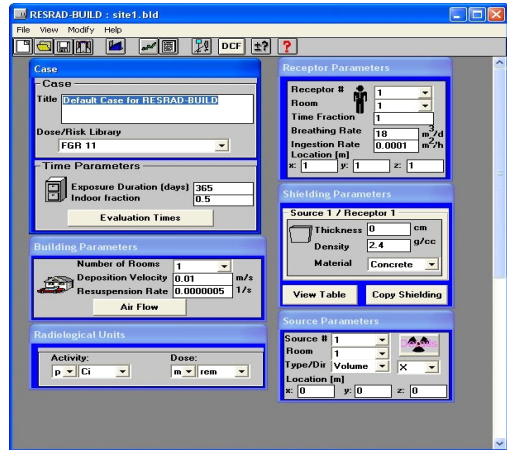


Fig. 4. RESRAD-BUILD.

III. RESULT

본 연구에서는 사이클로트론 가동 시 발생하는 양성자와 중성자로 인해 콘크리트 차폐벽의 방사화를 분석하고자 실험을 진행하였다.

1. 방사선원

콘크리트 차폐벽의 방사화에 영향을 미치는 양성자와 중성자의 공간선량분포를 실험한 결과 Fig. 5와 같이 중성자는 거리가 증가함에 따라 감소하지만 최대 거리 160 cm 까지 도달하는 것으로 나타났으며, 양성자는 거리 110 cm 이상부터 방사선이 Phantom에 도달하지 않는 것으로 나타났다.

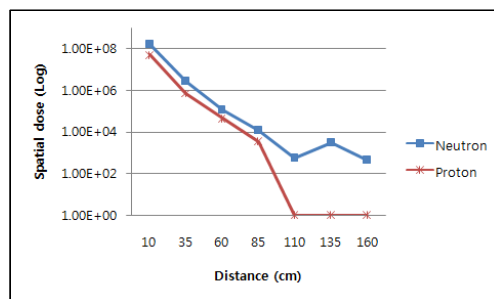


Fig. 5. Spatial dose rates according to the radiation type.

2. 방사화 분석

FLIUKA를 통한 방사화 실험 결과 불순물이 포함

된 콘크리트 성분에서는 Table 4와 같이 총 12개의 방사화 핵종이 나타났으며, 불순물이 포함되지 않은 콘크리트 성분에서는 총 6종의 방사화 핵종이 나타났다.

Table 4. Nuclides generated by activation in concrete wall

Concrete component with impurities											
¹⁵⁴ Eu	¹⁵² Eu	¹³⁴ Cs	⁶⁰ Co	⁵⁹ Fe	⁵⁵ Fe	⁵⁴ Mn	⁵³ Mn	⁵¹ Cr	⁴⁵ Ca	⁴¹ Ca	⁴⁰ K
Concrete component without impurities											
⁵¹ Cr	⁵⁹ Fe	⁵⁵ Fe	⁵⁴ Mn	⁴⁰ K	²² Na						

3. 선량평가

3.1 유의한 핵종 선별

콘크리트 차폐벽에서 방사화로 인하여 발생된 방사화 핵종을 RESRAD-BUILD를 통해 분석한 결과 불순물이 포함된 콘크리트 성분에서 Table 5와 같이 ¹⁵⁴Eu[¹⁵³Eu(n, γ)¹⁵⁴Eu], ¹⁵²Eu[¹⁵¹Eu(n, γ)¹⁵²Eu], ¹³⁴Cs[¹³³Cs(n, γ)¹³⁴Cs], ⁶⁰Co[⁵⁹Co(n, γ)⁶⁰Co], ⁵⁴Mn[⁵⁶Fe(d, α)⁵⁴Mn] 다섯 개의 핵종이 전체 선량의 99.9 %를 차지하는 것으로 나타났으며, 불순물이 포함되지 않은 콘크리트 성분에서는 Table 6과 같

이 ⁵⁴Mn[⁵⁶Fe(d, α)⁵⁴Mn] 한 개의 핵종이 99.9%를 차지하는 것으로 나타났다.

3.2 선량평가

콘크리트 차폐벽에서 발생된 방사화 핵종 중 선량의 기여도가 높은 핵종을 토대로 RESRAD-BUILD를 통해 종사자의 선량으로 산출한 결과 조사시간에 따라 Table 7과 같이 나타났으며, 불순물 유무에 따른 피폭선량을 비교한 결과 불순물을 포함 콘크리트 성분에서의 피폭선량이 약 95% 이상을 차지하였다.

Table 5. Percentage of dose per nuclide (with impurities).

	¹⁵⁴ Eu	¹⁵² Eu	¹³⁴ Cs	⁶⁰ Co	⁵⁹ Fe	⁵⁵ Fe	⁵⁴ Mn	⁵³ Mn	⁵¹ Cr	⁴⁵ Ca	⁴¹ Ca	⁴⁰ K
Sv	1.27E-02	4.82E-02	1.98E-01	8.57E-01	3.79E-05	5.08E-08	6.62E-02	0.00E+0 0	0.00E+0 0	9.59E-07	1.77E-11	6.48E-09
%	1.07	4.08	16.75	72.50	.	.	5.60

Table 6. Percentage of dose per nuclide (without impurities).

	⁵¹ Cr	⁵⁹ Fe	⁵⁵ Fe	⁵⁴ Mn	⁴⁰ K	²² Na
Sv	1.30E-15	2.01E-12	3.10E-15	4.73E-8	4.87E-15	3.32E-11
%	.	.	.	99.9	.	.

Table 7. Comparison of doses rate due to Activation of two components of concrete.

year	1	2	3	4	5	15	16	17	18	19	20	
without impurities	6.45E-09	1.25E-08	1.79E-08	2.28E-08	2.74E-08	...	5.53E-08	5.69E-08	5.85E-08	5.98E-08	6.11E-08	6.22E-08
with impurities	1.46E-07	2.89E-07	4.27E-07	5.64E-07	6.97E-07	...	1.88E-06	1.98E-06	2.08E-06	2.19E-06	2.29E-06	2.39E-06
Difference (%)	95.5	95.6	95.8	95.9	96.1	...	97.1	97.1	97.2	97.3	97.3	97.4

IV. DISCUSSION

오랜 시간 방사선에 노출된 콘크리트는 방사선을 방출하게 되는 방사화가 발생하게 된다.^[18] 이에 본 연구에서 콘크리트 성분에 따른 방사화를 알아보고자 불순물이 포함된 콘크리트 성분과 포함되지 않은 콘크리트 성분을 이용하여 비교 분석하고자 하였다.

첫째, 방사화를 일으키는 방사선원인 양성자와 중성자의 공간 분포를 알기 위해 ICRU Slab Phantom을 이용하여 실험을 진행한 결과 양성자는 110 cm 이상에서부터 측정되지 않았으며, 중성자는 최대 거리인 160 cm 까지 도달하여 콘크리트 차폐벽과 상호작용 할 수 있는 것으로 나타났다. 둘째, FLUKA를 통해 콘크리트 차폐벽의 방사화 분석을 진행한 결과 ppm 단위의 불순물이 포함된 콘크리트 물성의 경우 총 14개의 방사화 핵종이 나타났으며, 불순물이 포함되지 않은 물성에서는 총 5개의 핵종이 나타났다. 방사화된 핵종들을 RESRAD-BUILD를 통해 선량평가를 진행한 결과 불순물이 포함된 콘크리트에서는 ^{60}Co (72.50%), ^{134}Cs (16.75%), ^{54}Mn (5.60%), ^{152}Eu (4.08%), ^{154}Eu (1.07%) 다섯 개의 핵종이 전체 선량의 99.9%를 차지하는 것으로 나타났으며, 불순물이 포함되지 않은 물성에서는 ^{54}Mn (99.99%) 한 개의 핵종이 피폭선량의 99.9%를 차지하는 것으로 나타났다.

위 결과를 토대로 피폭의 주된 요인은 불순물에서 발생하는 것으로 나타났으며, 그 중 ^{60}Co 이 가장 위험한 핵종인 것으로 알 수 있었다. 이론적으로 불순물이 포함되지 않은 콘크리트에서 양성자의 유도 핵반응에 따라 ^{56}Fe 에서 Cobalt가 발생될 가능성이 있으나,^[19] 콘크리트 차폐벽에 도달하는 양성자의 작거나 없어 방사화를 일으키지 못한 것으로 사료되었다. 사이클로트론과 같이 고에너지를 사용하는 경우 방사선 피폭으로 인해 실제 측정을 하기에는 많은 제한점이 따르게 되며, 최근 이러한 단점 해소하고자 컴퓨터를 이용한 모의 모사 방법이 많이 진행되고 있다. Pacific Northwest National Laboratory^[20]에 따르면 현재 모의 모사에 사용되는 콘크리트는 약 26가지 정도로 매우 다양하며 이 중

에서 ppm 단위의 불순물을 표시한 물성은 매우 제한적인 것으로 나타나 있다. 과거에는 콘크리트 차폐벽을 설계할 때 차폐를 기준으로 하여 미량의 불순이 무시되어 왔지만 가속기 시설과 같은 양성자 혹은 중성자 발생되는 장비의 차폐벽은 방사화를 고려하여 콘크리트 차폐벽에 대한 방사화 실험 시 반드시 ppm 단위의 미미한 불순물까지 포함되어야 할 것이다.

방사선 피폭에 대한 위험성은 직접적으로 인지할 수 없으며, 사이클로트론 또한 용도에 따라 수백 MeV의 매우 높은 에너지까지 사용됨으로 방사화 물질에 대한 체계적인 관리가 필요할 것으로 사료되었다.

V. CONCLUSION

사이클로트론 운영 시 사이클로트론을 둘러싸고 있는 콘크리트 차폐벽이 장시간의 방사선 노출로 인해 방사화를 진행하게 된다. 이에 본 연구에서 콘크리트 성분에 따른 방사화를 분석한 결과 가장 위험한 핵종은 ^{60}Co 으로 나타났으며, 방사화로 인해 인체에 영향을 미치는 핵종은 ppm 단위의 불순물에서 기여하는 것으로 나타났다. 콘크리트 방사화에 대한 실험 시 반드시 ppm 단위의 불순물이 포함된 물성을 사용하여야 하며, 그렇지 않을 경우 산출된 피폭선량은 매우 과소평가 될 것이다.

Acknowledgement

이 논문은 2016년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단-원자력연구개발사업의 지원을 받아 수행된 연구임(No. 2016M2B2A9A02944626).

Reference

- [1] Jaeho Lee, "Development of reduction technique and evaluation of radioactive concrete waste in cyclotron facility", Master. diss., University of Hanyang, 2016.
- [2] Korea Institute of Nuclear Safety, Development of advanced technology for evaluation and verification of radiation safety. KINS-RR-1027, 2013.
- [3] Korea Atomic Research Institute, "Development of cyclotron and PET application", pp. 9, 2000.
- [4] The Korean Society of Nuclear Medicine : Nuclear

- medicine scan statistics, 2013.
- [5] Syed M. Qaim, John C. Clark, Christian Crouzel, "Radiopharmaceuticals for positron emission tomography", Springer Netherlands, Vol. 24, pp.1-43, 1993.
- [6] N. E. Hertel, M. P. Shannon, Z.-L. Wang, et al. "Neutron measurements in the vicinity of a self-shielded pet cyclotron", Radiation Protection Dosimetry, Vol. 108, No. 3, pp. 255-261, 2004.
- [7] Taylor H., Francis, *Basic ideas and concepts in nuclear physics*. An Introductory Approach, Third Edition K. 2004.
- [8] Martinez-Serrano J. J., De los Rios A. D. "Prediction of neutron induced radioactivity in the concrete walls of a PET cyclotron vault room with MCNPX". Medical Physics, Vol. 37, No. 11, pp. 6015-6021. 2010.
- [9] Euntae Park, Dongyeon Lee, Seongjin Ko, et al., "A study on photon spectrum in medical linear accelerator based on MCNPX", Journal of the Korean Society of Radiology, Vol. 8, No. 5, pp. 249-254, 2014.
- [10] John S, Hendricks et al.. MCNPX Extensions Version 2.5.0, LA-UR-05-2672. 2005.
- [11] ICRU, Tissue substitutes in radiation dosimetry and measurement, ICRU Report 44. 1989.
- [12] GE Healthcare, PETtracer 800 series Service Manual -Accelerator, Direction 2169047-100, Rev. 22, 2015.
- [13] GE Healthcare, PETtracer 800 cyclotron series Data sheet. 2010.
- [14] A. Ferrari, P. Sala, A. Fasso, J. Ranft, "FLUKA: A multi-particle transport code", CERN-2005-10, INFN/TC_05/11, SLAC-R-773, 2005.
- [15] D.G. Jang, J.M. Kim and J.H. Kim, "Design of the shielding wall of a cyclotron room and the activation interpretation using the Monte Carlo simulation", Journal of Instrumentation Vol.12, pp.1-10 2017.
- [16] Roshanbakht N., Marashi M.K., Salehкотahi M. et al., "Activation of trace elements in concrete walls of the solid target room at cyclotron accelerator at NR CAM", Journal of Life Science and Biomedicine, Vol. 4, No. 4, pp.320-326. 2014.
- [17] HBrewer R., "Criticality Calculations with MCNP5: A Primer", LA-UR-09-00380, Los Alamos National Laboratory, Los Alamo New Mexico, 2009.
- [18] Jong Suk Lee, Jiyoung Min, Kyu Nam Jeon, et al., "Activation properties to aggregates type for low-Activation concrete", Korea concrete institute Proceedings of the Autumn Conference pp.579-580, 2014.
- [19] N. C. Schoen, G. Orlov, R. J. McDonald, "Excitation functions for radioactive isotopes produced by proton bombardment of Fe, Co, and W in the energy range from 10 to 60 MeV", Physical Review C, Vol. 20, No. 1, pp.88-92, 1979.
- [20] RJ McConn Jr, CJ Gesh, RT Pagh, et al., "Compendium of material composition data for radiation transport modeling", PIET-43741-TM-963 PNNL-15870 Rev. 1, 2011.

PET 사이클로트론 가동에 따른 콘크리트 차폐벽의 방사화

장동근,¹ 이동연,² 김정훈^{3,*}

¹동남권 원자력의학원 핵의학과

²동남권 원자력의학원 방사선종양학과

³부산가톨릭대학교 보건과학대학 방사선학과

요 약

사이클로트론은 양자 또는 중양자를 가속하는 장치로써 의료장비인 양전자방출촬영장치(PET)에 이용되는 단반감기의 방사성의약품을 생산하는 시설로 이용되고 있다. 사이클로트론에서 방사성의약품을 생산하기 위해선 가속된 양성자와 타겟과의 핵반응이 필요하며 반응 후 불필요한 중성자가 발생하게 된다. 이에 본 연구에서는 사이클로트론에서 발생하는 양성자와 중성자가 콘크리트 차폐벽과 충돌하여 발생하는 방사화에 대해 알아보려고 하였다. 실험은 몬테카를로 모의 모사의 한 종류인 FLUKA를 통해 방사화된 방사성동위원소를 추적하였으며, 콘크리트 차폐벽의 물성은 ppm 단위의 미량의 불순물이 포함된 물성과 불순물이 포함되지 않은 물성을 이용하여 비교 분석하였다. 발생한 방사화 핵종은 RESRAD-Build를 통해 인체에 미치는 피폭선량을 기준으로 비교분석하였으며, 실험결과 불순물이 포함된 콘크리트 물성에서는 총 14개의 방사성동위원소가 생산되었으며, 인체에 미치는 피폭선량을 기준으로 분석 하였을 때, ^{60}Co (72.50%), ^{134}Cs (16.75%), ^{54}Mn (5.60%), ^{152}Eu (4.08%), ^{154}Eu (1.07%)이 전체 선량의 99.9%를 차지하였으며, 피폭의 위험도는 ^{60}Co 핵종이 가장 높게 나타났다. 불순물이 포함되지 않은 물성에서는 총 5개의 핵종이 나타났으며, 그 중 ^{54}Mn 이 피폭선량의 99.9%를 차지하는 것으로 나타났다. 양성자의 유도 핵반응에 따라 불순물이 아닌 ^{56}Fe 에서 방사화 과정을 통해 Cobalt가 발생될 가능성이 있으나 콘크리트벽에 도달하는 양성자의 개수가 작아 방사화를 일으키지 못하였다. 불순물의 포함 여부에 따른 피폭선량의 비교 결과 불순물이 포함된 경우가 그렇지 않은 경우 보다 약 98% 높게 나타나 ppm 단위의 미량의 불순물이 방사화의 주요인임을 알 수 있었다.

중심단어: 사이클로트론, 방사화, 불순물