

인광석 취급 산업체에서 발생하는 천연방사성물질 함유 입자의 특성 평가

임하얀*, 최원철†, 김광표*

*경희대학교, †한국원자력안전기술원

2013년 12월 5일 접수 / 2014년 1월 24일 1차 수정 / 2014년 1월 27일 채택

인광석 취급 산업체에서는 천연방사성물질(NORM)을 함유한 물질을 다량으로 취급하고 있어, 종사자들은 각 공정에서 발생하는 공기 중 입자의 흡입에 의해 내부피폭을 받을 수 있다. 흡입에 의한 내부피폭 방사선량은 입자의 특성에 의해 크게 좌우된다. 따라서 본 연구에서는 국내 최대 인광석 취급 산업체에서 공기 중 부유 입자의 크기 분포 및 농도, 입자의 모양 및 밀도, 그리고 방사능 농도를 평가 하였다. 다단계입자채집기를 이용하여 공기 중 입자를 채집하고 입자의 크기분포, 농도, 그리고 모양을 분석하였다. 입자의 공기역학적 직경은 0.03-100 μm 까지 광범위하게 분포하였으며, 입자크기가 4.7-5.8 μm (기하학적 평균직경 = 5.22 μm) 혹은 5.8-9.0 μm (기하학적 평균직경 = 7.22 μm)인 범위에서 공기 중 입자의 농도가 최댓값을 나타냈다. 공기 중 부유입자의 농도는 공정에 따라 최대 수백 배 이상 차이를 보였으며, 중장비 작업이 이루어지는 창고에서 높은 농도를 보였다. 반면에 인산석고 적치장에서는 입자의 부유방지를 위한 덮개 및 살수 그리고 비료공장 제어실에서는 환기시설을 갖추고 있어 상대적으로 입자의 공기 중 농도가 낮게 나타났다. 입자의 모양은 모든 측정 장소에서 구형에 가깝게 나타났으므로, 인광석 취급 시설에서 발생하는 입자의 모양인자 값을 1로 정하였다. 각 공정에서 시료를 채집하여 입자의 밀도를 분석하였다. 인광석의 밀도는 약 3.1-3.4 gcm^{-3} , 연화칼륨의 밀도는 약 2.7 gcm^{-3} , 공정 부산물인 인산석고의 밀도는 약 2.1-2.6 gcm^{-3} , 최종제품인 복합비료의 밀도는 약 1.7 gcm^{-3} 으로 나타났다. 감마분석기를 이용하여 원료물질, 공정부산물, 생산제품 내 ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{40}K 핵종의 방사능 농도를 측정하였다. 인광석에는 주로 우라늄계열 핵종을 많이 함유하고 있었으며, 그 농도는 원료 산지에 따라 94-866 Bqkg^{-1} 정도였다. 인광석 내에 존재하는 우라늄계열 핵종 중 우라늄은 생산품인 인산 혹은 비료에 농축되었으며, 라듐은 부산물인 인산석고에 농축되었다. 최종제품인 비료의 경우에는 ^{226}Ra 과 ^{228}Ra 이 거의 존재하지 않았으나, 제품생산을 위해 첨가한 연화칼륨에 의해 ^{40}K 의 방사능 농도가 5,000 Bqkg^{-1} 로 높게 나타났다. 본 연구에서 생산한 인광석 취급 산업체의 입자의 특성 평가 자료는 인산염 취급 산업체 종사자에 대한 방사선학적 안전성 평가에 이용될 수 있을 것이며, 최근 시행된 생활주변방사선 안전관리법에 따른 생활주변방사선 안전관리의 체계를 수립하기 위한 자료로 활용될 수 있을 것이다.

중심어: 생활주변방사선 안전관리법, 천연방사성물질, 인광석산업체, 호흡선량, 입자특성

1. 서론

국민의 생활에 광범위하게 유통되고 있는 천연방사성물질(NORM) 함유물에 대한 국가적 차원의 관리체계인 생활주변방사선 안전관리법이 2012년 시행되었다[1]. 생활주변방사선 안전관리법은 원료물질, 공정부산물 및 가공제품에 함유된 천연방사성핵종으로부터 국민의 건강과 환경을 보호하여 삶의 질을 향상시키고 공공의 안전에 이바지함을 목적으로 한다. 인광석은 가장 널리 알려진 천연방사성물질 중 하나이다. 따라서 이를 취급하는 시설에서 발생할 수 있는 방사선학적 영향에 대한 연구가 수행

되어 왔다[2, 3]. 국내 인광석 취급 산업체의 경우에는 중국 모로코 등에서 인광석을 수입하여 인산비료를 생산하고 있다. 인광석 취급 산업체에서 취급하는 물질 등은 천연방사성핵종을 함유하고 있으므로, 상기 시설의 종사자들은 시설에서 발생하는 공기 중 입자의 흡입에 의해 내부피폭이 발생할 수 있다.

입자 흡입에 의한 내부피폭 방사선량은 국제방사선방호위원회(ICRP)에서 제시한 인체호흡기모델(HRTM)에 의해 평가할 수 있다[4]. 호흡기모델에 의하면 입자흡입에 의한 방사선량은 입자의 크기분포 및 공기 중 농도, 모양, 밀도, 방사능 농도 등 입자의 특성에 의해 크게 영향을 받는다. 따라서 국제방사선방호위원회에서는 입자의 흡입에 의한 내부피폭 방사선량 평가 시 실측된 입자의 특

교신저자 : 김광표, kpkim@khu.ac.kr
경기도 용인시 기흥구 서천동 1번지 경희대학교 원자력공학과

성값을 사용하도록 권고하고 있다. 하지만 입자의 특성에 대한 실측이 불가능한 경우에 대해서 입자 특성에 대한 기본값을 제시하고 있다. 공기 중 입자의 크기분포는 단일 로그정규화 분포로 가정하였고, 공기역학적 방사능 중간직경(AMAD)은 작업자의 경우 5 μm , 일반인의 경우 1 μm 을 제시하였다. 입자의 밀도는 3 g cm^{-3} , 모양인자는 1.5를 제시하였다 (표 1 참조). 하지만 입자의 특성은 취급하는 물질, 시설, 작업환경 등에 따라 크게 달라질 수 있다. Dorrian 등의 연구에 의하면 작업환경에서 측정된 공기역학적 방사능 중간직경(AMAD)은 0.12 μm 에서 최대 25 μm 까지로 광범위하게 분포하였다[5]. 입자의 모양인자 및 밀도에 대해서는 대략 1.1-1.9 및 0.7-11 g cm^{-3} 의 값들이 보고되었다[6, 7]. 입자의 특성에 따른 방사선량 민감도 연구에 따르면 기본 값을 사용하는 경우 선량평가 결과가 실제보다 수십 배 이상 크게 왜곡될 수 있다고 보고하였다[3]. 따라서 인광석 취급 산업체와 같은 생활주변 방사선 안전관리법의 대상이 되는 천연방사성물질을 함유한 물질의 취급시설에서는 종사자의 정확한 방사선학적 영향을 평가하기 위해서는 우선적으로 입자의 특성에 대한 평가가 필요하다.

Table 1. Default Aerosol Parameters Given in ICRP 66 Human Respiratory Tract Model.

입자특성	ICRP 특성인자 기본값
입자크기	AMAD = 5 μm (작업자) AMAD = 1 μm (일반인)
입자크기분포	로그정규화분포 $\text{GSD}_{\text{ICRP66}} = 1+1.5[1-(100\text{AMTD})^{1.5} + 1] - 1$ $\text{GSD}_{\text{ICRP66}} = 2.50$ (작업자) $\text{GSD}_{\text{ICRP66}} = 2.47$ (일반인)
입자밀도	3 g cm^{-3}
모양인자	1.5

본 연구에서는 국내 인산염 취급 산업체 종사자에 대한 방사선학적 영향을 평가하기 위한 기반 연구로써 천연방사성물질 함유 입자의 특성을 평가하였다. 입자의 특성 평가를 위해 국내 최대의 인광석 취급 산업체에서 공기 부유입자를 채취하여 입자의 크기분포 및 공기 중 농도를 측정하였다. 다음으로 공기 중 부유 입자의 모양을 분석하였으며, 입자의 밀도를 측정하였다. 또한 원료물질, 공정부산물, 생산제품에 대한 방사능 농도를 측정하였다. 측정된 자료는 관련 시설에 근무하는 종사자의 피폭선량을 평가하는데 직접 활용될 수 있을 것이다.

2. 재료 및 방법

인광석을 이용하여 인산비료를 생산하는 국내 최대 산업체에서 입자의 특성 평가를 실시하였다. 시설의 주요 공정에서 다단계입자채집기를 이용하여 입자를 직접 채집하였다. 채집된 입자를 대상으로 공기 중 입자의 크기

분포 및 농도를 측정하였으며 입자의 모양을 분석하였다. 또한 주요 공정에서 시료를 채취하여 밀도를 측정하였으며, 시료 내 함유되어 있는 ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{40}K 핵종의 방사능 농도를 측정하였다.

2.1. 공기 중 부유입자의 크기 분포 및 농도 측정

공기 중 부유 입자의 크기 분포 및 농도를 측정하기 위하여 우선 시설의 주요 공정에서 입자 채집 장소를 선정하였다. 인광석 취급 산업체에서 천연방사성핵종이 함유된 물질을 취급하는 주요 공정은 인산 추출 공정과 비료 생성 공정으로 나눌 수 있다. 인산 추출 공정에서는 인광석과 황산을 사용하여 인산을 생산한다. 이 때 공정부산물인 인산석고가 대량 발생된다. 인산 추출 공정에서는 원료물질인 인광석의 운반 및 분쇄 과정이 이루어지므로 많은 분진이 발생한다. 공정 부산물인 인산석고는 야외에 적치되며 바람과 같은 환경의 영향에 의해 분진이 발생한다. 비료 생성 공정에서는 인산 추출 공정에서 생산된 인산에 염화칼륨 및 암모니아 등을 섞어 복합비료를 생산한다. 비료 생산 공정에서는 인산, 염화칼륨, 암모니아 등의 원료물질이 주로 파이프 혹은 반응용기 내에 존재하기 때문에 외부와 격리된 상태이거나, 외부에 노출되어 있더라도 원료물질이 슬러리 등의 액체 상태로 존재하여 분진이 거의 발생하지 않는다. 하지만 복합 비료를 생산하는 제립기 지역 및 선별기 지역에서는 건조한 상태의 복합 비료가 생산되고, 환기가 이루어지지 않기 때문에 많은 분진이 발생할 수 있다. 따라서 공기 중 입자의 채집 장소는 시설의 주요 공정에서 분진이 발생할 수 있는 곳과 작업자가 이에 노출될 수 있는 지점을 고려하여 선정하였다. 본 연구에서 최종 선정된 공기 중 입자 채집 장소는 인광석 원료 창고, 인산공장 선별기 지역, 염화칼륨 원료 창고, 복합비료 제립기 지역, 복합비료 선별기 지역, 복합비료 공장 제어실, 석고 적치장이다.

공기 중 부유입자 채집을 위해 다단계입자채집기 (Andersen 1 ACFM Non-viable Ambient Particle Sizing Sampler, Thermo scientific, USA)를 사용하였다[8-10]. 다단계입자채집기는 공기 중 부유입자에 대해 인간의 호흡기를 모방한 장비로서 0-8 단계로 구성되어 있다. 각 단계에 해당하는 공기역학적 직경의 범위는 9 μm 이상(0 단계), 5.8-9 μm (1단계), 4.7-5.8 μm (2단계), 3.3-4.7 μm (3단계), 2.1-3.3 μm (4단계), 1.1-2.1 μm (5단계), 0.65-1.1 μm (6단계), 0.4-0.65 μm (7단계), 0.03-0.4 μm (8 단계)이다. 이러한 순차적인 포집은 공기 중 부유입자를 공기역학적 직경의 크기별로 분류하여 공기 중 부유입자의 크기분포 및 농도 측정을 가능하게 한다. 다단계입자채집기의 0-7단계 충돌판에는 멤브레인 여과지를 사용하였으며, 8단계에서는 유리섬유 여과지를 사용하였다. 다단계입자채집기는 실제 근무자가 작업을 수행하는 지점에 설치하였으며, 28.3 L min^{-1} 의 유속으로 운영하였다.

2.2. 입자의 모양 및 밀도 분석

호흡기 내 입자의 거동은 주로 중력에 의한 침강, 관성에 의한 충돌, 확산운동에 영향을 받는다. 이때 중력에 의

한 침강과 관성에 의한 충돌은 공기역학적 현상에 포함되며, 확산운동은 열역학적 현상에 포함된다. 공기역학적 직경은 관심 입자와 동일한 낙하속도를 갖는 구형입자의 직경이며, 열역학적 직경은 관심 입자와 동일한 확산계수를 갖는 구형입자의 직경이다. 따라서 호흡기 내 입자의 거동은 공기역학적 직경과 열역학적 직경에 의해 결정된다. 입자의 공기역학적 직경 및 열역학적 직경은 아래와 같은 관계를 가지고 있다.

$$d_{th} = d_{ae} \sqrt{\frac{\chi \rho_0}{\rho} \times \frac{C(d_{ae})}{C(d_e)}} \quad (1)$$

여기서 d_{th} 는 열역학적 직경, d_{ae} 는 공기역학적 직경, χ 는 모양인자, ρ_0 는 단일밀도 (1 gcm^{-3}), ρ 는 실제 공기입자의 밀도, $C(d_{th})$ 와 $C(d_{ae})$ 는 각각의 직경에 대한 미끄럼보정계수를 의미한다. 일반적으로 동일한 공기역학적 직경이라 할지라도 입자의 밀도가 높을수록, 모양인자 값이 작을수록 열역학적 직경은 감소한다. 열역학적 직경이 감소할수록 입자의 확산계수는 증가하게 되며, 입자는 호흡기 내의 깊은 곳까지 침착되어 높은 방사선량을 초래한다 [4]. 따라서 입자 흡입에 의한 내부피폭 방사선량 평가를 위해서는 입자의 모양 및 밀도가 결정되어야 한다. 모양인자는 밀도가 1 gcm^{-3} 인 구형 입자의 저항력에 대한 해당 입자의 동일한 체적과 정착속도를 갖는 불규칙한 형태 입자의 저항력의 비로 정의된다 [7].

본 연구에서는 입자의 모양인자를 결정하기 위해 입자의 모양을 주사전자현미경(Stereoscan 440, Leica Cambridge, England)을 이용하여 분석하였다. 입자의 모양은 물질의 종류에 따라, 입자의 크기에 따라 달라질 수 있다. 따라서 입자의 모양 분석은 인광석 원료 창고, 인산 공장 선별기 지역, 염화칼륨 원료 창고, 복합비료 제립기 지역, 복합비료 선별기 지역, 복합비료 공장 제어실, 석고 적치장 등 각각의 입자 채집 장소에서 채집된 입자들을 대상으로 실시하였다. 또한 다단계입자채집기의 0 단계, 3 단계, 5 단계에 채집된 입자를 대상으로 분석하였다.

입자의 밀도는 밀도분석기 (AccuPyc 1330, Micromeritics, German)를 이용하여 분석하였다. 원료 산지에 따른 인광석 3종류, 분쇄 인광석, 염화칼륨, 채취지점에 따른 인산석고 3종류, 복합비료를 포함하여 총 9종류의 시료를 대상으로 분석하였다. 밀도분석을 위해 시료를 약 100°C 에서 24 시간동안 건조시켰다. 밀도분석기를 사용하기 전에 시료의 정확한 밀도값을 측정하기 위하여 25 cc 알루미늄 용기에 대한 보정을 실시하였다. 해당 용기에 약 15-30 g의 채취한 시료를 담아 밀도를 측정하였다.

2.3. 방사능 농도

인광석 취급 시설에서 생산되는 복합비료 내 우라늄의 질량 분율은 약 0.014-0.025%로 보고되었으며, 이외에도 천연방사성핵종인 토륨 계열의 핵종과 ^{40}K 핵종이 함유되어 있다 [11-15]. 원료물질은 수입국에 따라 지형적 차이에 의하여 방사능 농도의 차이가 발생하며, 특히 퇴적암

지역인 플로리다와 모로코 산지의 인광석에 우라늄 붕괴 계열 및 토륨 붕괴 계열 핵종의 방사능 농도가 높게 나타나는 것으로 보고되었다 [16]. 방사능 농도는 원료 산지에 따른 인광석 3종류, 분쇄 인광석, 염화칼륨, 채취지점에 따른 인산석고 2종류, 복합비료를 포함하여 총 8종류의 시료를 대상으로 분석하였다.

본 연구에서는 감마분광법을 이용하여 시료 내의 방사능 농도를 측정하였다. 따라서 우라늄계열 핵종 중에서는 ^{226}Ra , 토륨계열 핵종 중에서는 ^{228}Ra , 그리고 ^{40}K 의 농도를 측정하였다. 인광석의 경우 우라늄계열 핵종 그리고 토륨계열 핵종들은 각각 방사평형을 이루고 있어 ^{226}Ra 및 ^{228}Ra 의 방사능 농도를 측정함 계열 내 핵종의 방사능 농도를 예측할 수 있다 [11, 17]. ^{226}Ra 의 농도는 그 자핵종인 ^{214}Pb 와 ^{214}Bi 에서 방출되는 295 keV, 352 keV, 609 keV의 감마선을 이용하여 측정하였다. ^{228}Ra 의 농도는 그 자핵종인 ^{228}Ac 에서 방출되는 338 keV, 911 keV, 969 keV의 감마선을 이용하여 측정하였다. ^{40}K 의 농도는 약 1460 keV에서 방출되는 감마선을 이용하여 측정하였다.

시료를 1 L 마리네리 비커를 이용하여 약 30일 동안 밀봉하여 ^{226}Ra 과 ^{228}Ra 이 반감기가 짧고 감마선 방출율이 비교적 높은 자핵종과 방사평형에 도달하도록 한 후 방사능을 측정하였다 [17]. 자핵종의 반감기가 모핵종의 반감기보다 매우 짧은 경우, 일정 시간이 지나면 자핵종 및 모핵종은 영속평형을 이루어 방사능이 같아진다. ^{226}Ra 의 경우 일정시간 밀봉하면, ^{222}Rn 및 그 자핵종들인 ^{214}Pb 와 ^{214}Bi 는 방사화학적으로 영속평형에 도달한다. 반감기가 3.8일인 ^{222}Rn 의 생성율은 4일 후에 약 52%, 30일 후에는 99.7%에 도달한다. 따라서 30일 정도 밀봉한 경우 ^{222}Rn 및 그 자핵종들의 방사능은 ^{226}Ra 의 방사능과 거의 동일하다. ^{228}Ra 의 경우 그 자핵종인 ^{228}Ac 의 반감기가 약 6.1 시간으로 ^{226}Ra 보다 더 빨리 방사평형에 도달한다. 준비된 시료는 HPGe 계측기(GC 3020, Canberra, USA)를 이용하여 80,000초 동안 측정하였다.

3. 결과 및 논의

3.1. 공기 중 부유 입자의 크기 분포 및 농도

그림-1에 인광석 취급 시설의 주요 공정 지역에서 채집된 공기 중 부유 입자의 크기 분포 및 농도를 나타내었다. 공기 중 부유 입자 크기 분포와 같이 광범위한 범위의 분포를 갖고, 한쪽으로 치우친 형태의 곡선으로 나타낼 경우에는 로그정규화 분포를 사용하는 것이 유용하다 [7]. 따라서 입자크기 분포를 지수적으로 나타내기 위해 입자채집기 각 단계에 해당하는 공기역학적 직경 범위의 기하학적 평균을 함께 나타내었다. 입자의 크기 및 입자의 농도를 나타내는 축은 모두 지수 척도로 나타내었다. 입자 크기의 범위는 대략 0.01-100 μm 로 넓게 분포되어 있고, 입자크기 분포에 따른 입자의 농도는 적게는 약 0.01 μgL^{-1} 에서 많게는 약 100 μgL^{-1} 까지 높게 나타났다.

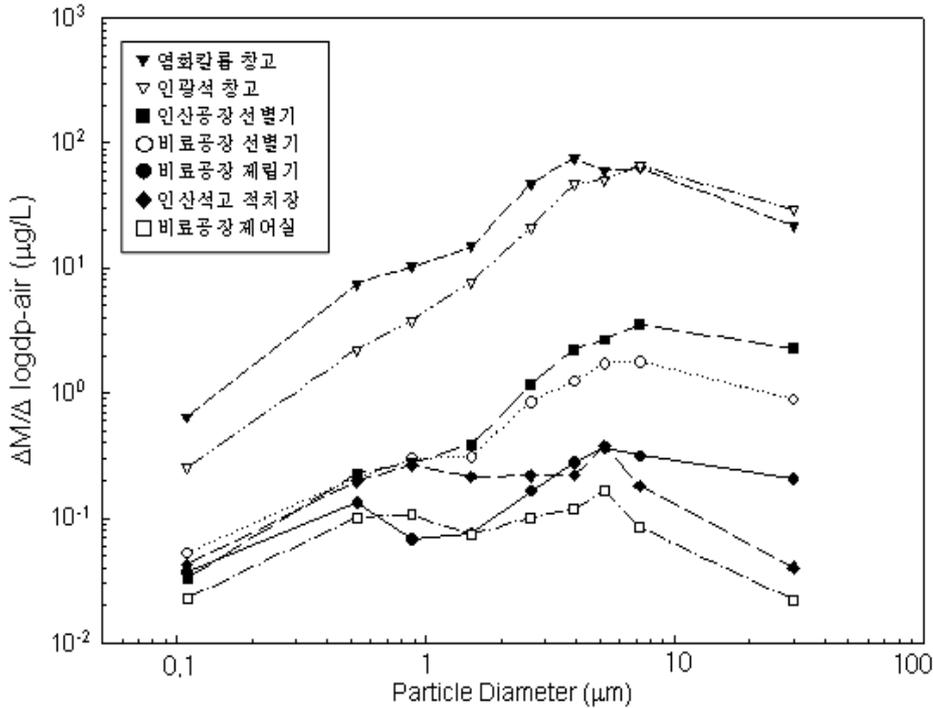


Fig. 1. Airborne particle concentrations and size distributions in phosphate rock processing facility.

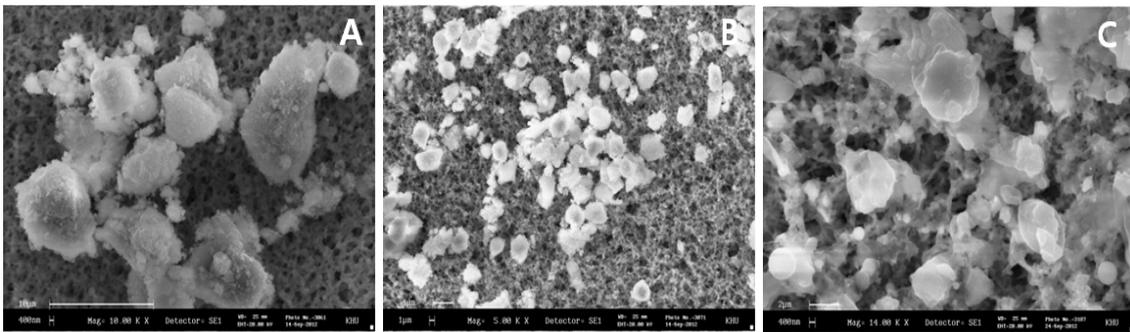


Fig. 2. Shapes of airborne particulates collected at phosphate rock storage. A: 0th impactor stage particles, B: 3rd impactor stage particles, C: 5th impactor stage particles.

전체적으로 입자의 공기 중 농도는 공정 지역에 따라 열화칼륨 원료 창고, 인광석 원료 창고, 인산공장 선별기, 비료공장 선별기, 비료공장 제립기, 인산석고 적치장, 비료공장 제어실 순으로 높게 나타났다. 각 공정 지역에서 입자크기가 4.7-5.8 μm (기하학적 평균직경 = 5.22 μm) 혹은 5.8-9.0 μm (기하학적 평균직경 = 7.22 μm)인 범위에서 공기 중 입자의 농도가 최대값을 나타냈다.

열화칼륨 원료 창고 및 인광석 원료 창고에서 공기 중 입자의 농도는 타 지역에 비해 최대 수백 배 까지 높게 나타났다. 이는 원료창고에서 중장비를 이용하여 원료 물질을 컨베이어 벨트로 운반 작업을 할 경우 낙하하는 원료물질에 의해 바닥 등에 침착되어 있던 입자들이 공기 중으로 부유하기 때문이다.

인산공장 선별기에서 채집된 공기역학적 직경에 따른 농도 분포는 인광석 원료 창고의 경우와 유사한 형태를 나타내었다. 인산공장 선별기에서는 인광석 창고에 적치

되어 있는 원료물질을 선별하는 과정으로, 두 지역에서는 동일한 물질을 취급한다. 그러나 분진을 발생시키는 작업의 강도가 인광석 창고에서보다 약하기 때문에 공기 중 입자의 농도는 다소 낮게 나타났다.

비료공장 제립기와 비료공장 사무실에서 채집한 공기역학적 직경 분포에 따른 농도를 비교하면 비료공장 제어실에서의 공기 중 입자의 농도는 제립기 지역에서의 10% 수준으로 낮게 나타났다. 이는 비료공장 제어실은 입자가 부유하는 외부와 격리되어 있고, 다수의 환풍기가 설치되어 환기가 원활하게 이루어지고 있기 때문이다.

인산석고 적치장에서 입자의 공기 중 농도는 비료공장 제립기, 제어실과 비교 할 경우 비교적 크기가 작은 입자 (2.64 μm 이하)의 공기 중 농도는 높게 나타났으며, 그 이상 입자 크기에서의 공기 중 농도는 낮게 나타났다. 인산석고 적치장은 다른 채집 장소와 달리 야외에 위치하므로 입자 채집 시 날씨의 영향을 크게 받는다. 인산석고

적치장의 경우 적치된 인산석고는 분진의 발생을 막기 위하여 옆쪽으로는 덮개를 사용하고 있었고, 적치장 주위에서 주기적으로 살수하여 분진의 발생을 감소시키기 위한 시스템을 구축하고 있었다.

3.2. 입자의 모양 및 밀도

본 연구에서는 각 공정에서 채집된 입자의 모양을 크기별로 분석하였다. 그 예로써, 그림-2에 인광석 창고에서 다단계입자채집기의 0(9 μm 이상), 3(4.7-5.8 μm), 5(1.1-2.1 μm) 단계에서 채집된 입자의 모양을 나타내었다. 인광석 취급 산업체에서 수집된 입자의 모양은 모든 공정에서 그리고 입자의 크기에 상관없이 거의 구형에 가까웠으며, 기다란 모양의 입자는 존재하지 않았다. 따라서 인광석 취급 산업체의 입자의 모양인자를 1로 평가하였다.

Table 2. Mass Densities of Bulk Products.

시료채취장소	종류	밀도 (gcm ⁻³)
원료창고	인광석 (산지 A)	3.4
	인광석 (산지 B)	3.2
	인광석 (산지 C)	3.1
원료 분쇄공정	분쇄인광석	3.2
석고적치장	인산석고 (채취지점 a)	2.1
	인산석고 (채취지점 b)	2.5
	인산석고 (채취지점 c)	2.6
원료창고	염화칼륨	2.7
제품창고	복합비료	1.7

표-2에 본 연구에서 측정된 입자의 밀도를 나타내었다. 원료물질인 인광석의 밀도는 산지에 따라 3.1-3.4 gcm⁻³의 밀도분포를 보였다. 인광석 분쇄 공정은 원료물질인 인광석의 분쇄과정과 물리적인 반응을 거쳐 화학적 반응이 일어나기 위해 필요한 원료물질의 양을 계량하는 곳으로써, 이곳에서 채집한 분쇄 인광석 시료의 밀도는 3.2 gcm⁻³로 나타났다. 분쇄 인광석 시료 내에는 각 산지에서 수입한 원료물질 인광석이 혼합되어 있으므로 인광석 분

쇄 공정에서 수집된 분쇄 인광석 시료의 밀도는 원료물질 인광석의 밀도 범위(3.1-3.4 gcm⁻³)의 내의 값을 보였다. 공정부산물인 인산석고의 밀도는 2.1-2.6 gcm⁻³, 염화칼륨의 밀도는 약 2.7 gcm⁻³, 최종제품인 복합비료의 밀도는 약 1.7 gcm⁻³으로 나타났다.

3.3. 방사능 농도

표-3에 인광석 취급 산업체의 원료물질, 공정부산물, 생산제품 내에 함유된 ²²⁶Ra, ²²⁸Ra, ⁴⁰K의 방사능 농도를 나타내었다. 인광석은 전량 수입되어 사용됨에 따라, 3개의 산지에 따른 각각의 방사능 농도를 나타내었다. 전체적으로 인광석 취급 시설에서 취급하는 물질의 ²²⁶Ra의 방사능 농도가 ²²⁸Ra의 방사능 농도 보다 높게 나타났다. 인광석은 우라늄 계열, 토륨 계열 그리고 ⁴⁰K과 같은 천연방사성핵종을 포함하며, 이 중에서도 특히 우라늄 계열의 핵종을 다량 포함하였다[11]. 인광석(산지 B)에 함유된 핵종 ²²⁶Ra의 방사능 농도는 866 Bqkg⁻¹로 가장 높게 나타났다. 인광석(산지 C)에서 94 Bqkg⁻¹로 가장 낮게 나타났다. 유엔방사선영향과학위원회(UNSCEAR)에서는 인광석에 대한 방사능 농도를 ²³⁸U의 경우, 200-1,500 Bqkg⁻¹, ²³²Th의 경우 20 Bqkg⁻¹ 수준으로 보고하고 있다[18]. 따라서 국내에서 사용되는 인광석에 함유된 ²²⁶Ra 및 ²²⁸Ra의 농도범위도 세계 각국에서 사용되고 있는 물질과 그 방사능 준위가 비슷한 수준이다. 인광석 분쇄공정지역에서 채집한 시료는 각 산지에서 수입된 인광석이 섞여 있기 때문에 ²²⁶Ra 및 ²²⁸Ra의 방사능 농도가 각각 242 Bqkg⁻¹, 4 Bqkg⁻¹ 나타났으며, 핵종 ⁴⁰K의 경우에는 약 130 Bqkg⁻¹로 나타났다.

본 산업체에서는 원료물질인 인광석을 인산추출공정으로 투입하기 위하여 산지별 인광석을 배합하여 분쇄한다. 인산추출공정에서는 비료의 원료물질인 인산과 공정부산물인 인산석고가 생성된다. 추출된 인산은 염화칼륨 등의 물질과 혼합되어 복합비료로 생산된다. 방사능농도 측정 결과를 보면 최종제품인 복합비료의 경우 ²²⁶Ra의 농도가 2 Bqkg⁻¹로 매우 낮은 반면, 인산석고 내의 ²²⁶Ra의 농도는 151 Bqkg⁻¹ 및 223 Bqkg⁻¹로 높게 나타났다. 따라서 인광석 취급 시설에서 취급하는 원료물질인 인광석 내에 함유된 ²²⁶Ra의 대부분은 화학공정을 통해 인산석고에 농

Table 3. Radioactivity Concentrations for ²²⁶Ra, ²²⁸Ra, ⁴⁰K in Raw Material, By Products, and Fertilizer.

시료채취장소	종류	²²⁶ Ra (Bqkg ⁻¹)	²²⁸ Ra (Bqkg ⁻¹)	⁴⁰ K (Bqkg ⁻¹)
원료창고	인광석 (산지 A)	743	11	76
	인광석 (산지 B)	866	<MDA	62
	인광석 (산지 C)	94	5	180
원료 분쇄공정	분쇄인광석	242	4	130
석고적치장	인산석고 (채취지점 a)	151	2	<MDA
	인산석고 (채취지점 b)	223	5	24
원료창고	염화칼륨	<MDA	<MDA	16,000
제품창고	복합비료	2	<MDA	5,000

축된다고 결론 내릴 수 있다. 기존 연구에서도 인광석에 포함된 천연방사성핵종은 인산이나 인산비료를 생산하는 화학적 처리가 이루어지는 공정에서 약 90% 이상의 라듐이 부산물인 인산석고에 농축되며, 약 95% 이상의 우라늄이 인산에 농축된다고 보고되었다[19].

4. 결론

본 연구에서는 국내 인광석 취급 산업체 종사자에 대한 방사선학적 영향을 평가하기 위한 기반 연구로써 천연 방사성물질 함유 입자의 특성을 평가하였다. 특성평가는 작업자의 호흡에 의한 내부피폭 방사선량 평가에 필요한 공기 중 부유 입자의 크기 분포 및 농도 측정, 입자의 모양 및 밀도 분석, 그리고 방사능 농도 측정을 포함하였다.

공기 중 부유 입자의 공기역학적 직경은 0.03-100 μm 까지 광범위하게 분포하였으며, 일반적으로 입자크기가 4.7-5.8 μm (기하학적 평균직경 = 5.22 μm) 혹은 5.8-9.0 μm (기하학적 평균직경 = 7.22 μm)인 범위에서 공기 중 입자의 농도가 최대값을 나타냈다. 공기 중 부유입자의 농도는 공정에 따라 최대 수백 배 이상 차이를 보였으며, 중장비 작업이 이루어지는 창고에서 높은 농도를 보였다. 반면에 인산석고 적치장에서는 입자의 부유 방지를 위한 덮개 및 살수 그리고 비료공장 제어실에서는 환기시설을 갖추고 있어 상대적으로 입자의 공기 중 농도가 낮게 나타났다. 입자의 모양은 모든 측정 장소에서 구형에 가깝게 나타났으므로, 인광석 취급 시설에서 발생하는 입자의 모양인자 값을 1로 정하였다. 인광석의 밀도는 약 3.1-3.4 gcm^{-3} , 염화칼륨의 밀도는 약 2.7 gcm^{-3} , 공정 부산물인 인산석고의 밀도는 약 2.1-2.6 gcm^{-3} , 최종제품인 복합비료의 밀도는 약 1.7 gcm^{-3} 으로 나타났다. 인광석에는 주로 우라늄계열 핵종을 많이 함유하고 있었으며, 그 농도는 산지에 따라 94-866 Bqkg^{-1} 정도였다. 인광석 내에 존재하는 우라늄계열 핵종 중 라듐은 부산물인 인산석고에 농축되었다. 최종제품인 복합비료의 경우에는 ^{226}Ra 과 ^{228}Ra 이 거의 존재하지 않았으나, 제품 생산을 위해 첨가한 염화칼륨에 의해 ^{40}K 의 방사능 농도가 5,000 Bqkg^{-1} 로 높게 나타났다.

본 연구에서 생산한 인광석 취급 산업체의 입자의 특성 평가 자료는 최근 시행된 생활주변방사선 안전관리법에 따른 생활주변방사선 안전관리의 체계를 수립하기 위한 기초자료로 활용될 수 있을 것이다. 그리고 천연방사성핵종 함유물질 취급 등에 대한 안전기준 및 지침개발과 사업자의 방사선 안전관리 실무에도 활용 될 수 있다.

감사의 글

본 연구는 원자력안전위원회의 방사선기술개발사업 “천연방사성핵종 함유물질 이용에 따른 피폭 최적화 기술 개발” 수행의 일환으로 수행되었으며 이에 감사드립니다.

참고문헌

1. 생활주변방사선 안전관리법, [시행 2012. 7.26] [법률

제10908호, 2011. 7.25, 제정]

2. Kim KP, Wu CY, Birky BK, Bolch WE. TENORM aerosols in the Florida Phosphate Industry - assessment of lung fluid solubility and annual effective dose to workers. *Radiat. Prot. Dosim.* 2007;123(1):41-55.

3. Kim KP, Wu CY, Birky BK, Bolch WE. Influence of particle size distribution on inhalation doses to workers in the Florida Phosphate Industry. *Health Phys.* 2006;91(1):58-67.

4. International Commission on Radiological Protection. Human respiratory tract model for radiological protection, ICRP Publication 66, Oxford; Pergamon Press, 1994.

5. Dorrian MD, Bailey MR. Particle size distributions of radioactive aerosols measured in work places. *Radiat. Prot. Dosim.* 1995;60(2):119-133.

6. Mercer T. Aerosol technology in hazard evaluation. New York and London; Academic Press, 1973.

7. Hinds W. Aerosol Technology: Properties, Behavior, and Measurement of Airborne Particles. New York; John Wiley & Sons, Inc., 1998.

8. Marple V. History of impactors—The first 110 years, *Aerosol Sci. Technol.* 2004;38:247-292.

9. Pegnam R, Pilat M. Airborne particulate emissions form a chromic-acid anodizing process tank, *J. Air. Waste Manage Assoc.* 1992;42(3):303-308.

10. Pilat M, Steig T. Size distribution of particulate-emissions from a pressurized fluidized-bed coal combustion facility, *Atmos. Environ.* 1983;17(12): 2429-2433.

11. Birky B, Tolaymat T, Warren B, Ammons R, McNally T, Nall W. Evaluation of exposure to Technologically Enhanced Naturally Occurring Radioactive Materials (TENORM) in the phosphate industry. Publication No. 05-046-155. FL: Florida Institute of Phosphate Research, 1998.

12. Guimond R. The Radiological Aspects of Fertilizer Utilization. U.S. Nuclear Regulatory Agency. Washington DC; NUREG/CP-0001. 1978:380-393.

13. National Council on Radiation Protection. Radiation Exposure of the U.S. Population from Consumer Products and Miscellaneous Sources. NCRP Report No. 95. Bethesda, MD. 1987.

14. Owen R, Hyder L. Technologically Enhanced Naturally Occurring Radioactivity: An Overview. ORNL/CF-80/265. Oak Ridge, TN. 1980.

15. Roessler CE, Smith ZA, Bolch WE, Prince RJ. Uranium and radium-226 in Florida phosphate materials, *Health Phys.* 1979;37(3):269-277.

16. Scholten LS. Natural radioactivity in phosphate

- fertilizers. Fertilizer Research 43, 1996;103-107.
17. Kim KP, Wu CY, Birky BK, Nall W, Bolch WE. Characterization of radioactive aerosols in Florida phosphate processing facilities. Aerosol Sci. Tech. 2006;40(6): 410-421
 18. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Sources and effects of ionizing radiation. UNSCEAR 2000. United Nations, Austria. 2000.
 19. International Atomic Energy Agency. Assessing the need for radiation protection measures in work involving minerals and raw materials. IAEA Technical Report Series No 49. Vienna, Austria. 2006.

Characterization of Particulates Containing Naturally Occurring Radioactive Materials in Phosphate Processing Facility

HaYan Lim*, Won Chul Choi[†], and Kwang Pyo Kim*

*Kyung Hee University, [†]Korea Institute of Nuclear Safety

Abstract - Phosphate rock, phosphogypsum, and products in phosphate processing facility contain naturally occurring radioactive materials (NORM). Therefore, they may give rise to enhanced radiation dose to workers due to inhalation of airborne particulates. Internal dose due to particle inhalation varies depending on particle properties. The objective of the present study was to characterize particle properties at the largest phosphate processing facility in Korea. A cascade impactor was employed to sample airborne particulates at various processing areas in the plant. The collected samples were used for characterization of particle size distribution, particle concentration in the air, and shape analysis. Aerodynamic diameters of airborne particulates ranged 0.03-100 μm with the highest concentration at the particle size range of 4.7-5.8 μm (geometric mean = 5.22 μm) or 5.8-9.0 μm (geometric mean = 7.22 μm). Particle concentrations in the air varied widely by sampling area up to more than two orders of magnitude. The large variation resulted from the variability of mechanical operations and building ventilations. The airborne particulates appeared as spheroids or rough spherical fragments across all sampling areas and sampled size intervals. Average mass densities of phosphate rocks, phosphogypsums, and fertilizers were 3.1-3.4, 2.1-2.6, and 1.7 gcm^{-3} , respectively. Radioactivity concentration of uranium series in phosphate rocks varied with country of origin, ranging 94-866 Bqkg^{-1} . Among the uranium series, uranium was mostly concentrated on products, including phosphoric acid or fertilizers whereas radium was concentrated on byproducts or phosphogypsum. No significant radioactivity of ^{226}Ra and ^{228}Ra were found in fertilizer. However, ^{40}K concentration in fertilizer was up to 5,000 Bq g^{-1} . The database established in this study can be used for the accurate risk assessment of workers due to inhalation of airborne particles containing NORM. In addition, the findings can be used as a basic data for development of safety standard and guide and for practical radiation safety management at the facility.

Keywords : Natural Radiation Safety Management Act, Naturally Occurring Radioactive Material (NORM), Phosphate processing facility, Inhalation dose, Particle property