

《原著》

## 국내 화산암 지역 지하수 중 자연방사성 물질에 대한 환경 특성

정도환 · 김문수 · 주병규 · 홍정기 · 김동수 · 김현구 · 김혜진 · 박선화 · 한진석 · 김태승\*

국립환경과학원 토양지하수연구과

## Environmental Characteristics of Natural Radionuclides in Groundwaters in Volcanic Rock Areas: Korea

Do Hwan Jeong · Moon Su Kim · Byoung Kyu Ju · Jung Ki Hong · Dong Su Kim  
Hyun Koo Kim · Hye Jin Kim · Sun hwa Park · Jin Seok Han · Tae Seung Kim\*

Soil and Groundwater Division, National Institute of Environmental Research

### ABSTRACT

We analyzed natural radionuclides in 80 wells in volcanic rock areas and investigated environmental characteristics. Uranium and radon concentrations ranged from ND to 9.70  $\mu\text{g/L}$  (median value: 0.21)  $\mu\text{g/L}$ , 38~29,222 pCi/L (median value: 579), respectively. In case of gross- $\alpha$ , 26 samples exceeded MDA (minimum detectable activity, < 0.9 pCi/L) value and the activity values ranged from 1.05 to 8.06 pCi/L. The radionuclides concentrations did not exceed USEPA MCL (maximum contaminant level) value of Uranium (30  $\mu\text{g/L}$ ) and gross- $\alpha$  (15 pCi/L). But Rn concentrations in 4 samples exceeded USEPA AMCL (Alternative maximum contaminant level, 4,000 pCi/L) and one of them showed a significantly higher value (29,222 pCi/L) than the others. The levels of uranium concentrations in volcanic rock aquifer regions were detected in order of andesite, miscellaneous volcanic rocks, rhyolite, basalt aquifer regions. Radon, however, was detected in order of miscellaneous volcanic rocks, rhyolite, andesite, basalt aquifer regions. The correlation coefficient between uranium and radon was  $r = 0.45$ , but we found that correlations of radionuclides with *in-situ* data or major ions were weak or no significant. The correlation coefficient between the depth of wells and uranium concentrations was a slightly higher than that of depth of wells and radons. Radionuclide concentrations in volcanic rock aquifers showed lower levels than those of other rock aquifers such as granite, metamorphic rock aquifers, etc. This result may imply difference of host rock's bearing-radioactive-mineral contents among rock types of aquifers.

**Key words :** Volcanic rock, Radionuclides (U, Rn, gross- $\alpha$ ), Correlation coefficient, Geologic setting, Groundwater

### 1. 서 론

강우가 지표에서 지하로 이동하면서 발생하는 물-암석 반응 때문에 인체에 유해한 우라늄(U), 라돈(Rn), 라듐(Ra), 비소(As) 등 특정 성분들이 지하수에 용해될 수 있으며 인위적인 오염원과는 구별되는 자연발생적이라고 할 수 있다. 이 유해한 물질들 중에서 우라늄과 라돈, 라듐 등은 자연방사성 물질중의 하나로써 우라늄은 반감기(44.5 억년)가 길기 때문에 인체위해성은 방사성 독성보다는 중금속으로서의 화학적 독성이 문제시 되며 장기간 섭취 시에는 만성신장질환을 유발할 수 있다. 라돈은 짧은 반감

기(3.82일)를 가진 무색 무취의 불활성 기체로써 인간에게 피폭되는 방사선량의 50% 이상을 차지하며 흡연 다음으로 높은 폐암 발병인자로 알려져 있다(Cho et al., 2006; Kim et al., 2007). 라듐은 은백색 금속으로 인체에 유입될 경우 뼈로 이동하여 유해영향을 일으키며 장기간 라듐에 노출되면 빈혈, 백내장, 치이손상과 골육종 등을 유발할 수 있으며, 수개월 후에는 대변과 소변을 통하여 배출된다(Shin et al., 2002; ANL, 2005). 또한, 전알파는 우라늄, 라듐, 라돈 등 모든 방사성핵종에서 방출되는  $\alpha$ 방사선의 총량에서 우라늄과 라돈의 방사성 함량을 뺀 값을 의미하며, 미국의 경우 발암 위험성을 고려하여 먹는물 중

\*Corresponding author : tskim99@korea.kr

원고접수일 : 2012. 10. 14 심사일 : 2013. 2. 2 게재승인일 : 2013. 2. 14  
질의 및 토의 : 2013. 4. 30 까지

전알과 15 pCi/L를 기준으로 설정하여 운영하고 있다 (USEPA, 2002).

미국을 비롯한 북유럽의 일부 선진국들은 이미 1960년대부터 지하수의 자연방사성물질에 대한 조사를 시작하였으며(USGS, 1962; Health Canada, 1968; Wrenn et al., 1975; Arvela et al., 1979; Hess et al., 1985) 미국의 경우는 약 200,000개 이상, 북유럽의 스웨덴의 경우는 약 35,000개 이상, 핀란드 30,000개 이상의 조사 개소수를 보이고 있다. 또한 이들 선진국에서는 지하수중 자연방사성물질 및 수리지화학적인 연구 등을 수행하고 있는 실정이며(Langmuir, 1978; Wathen, 1987; Wilhelm et al., 1997; Cothorn and Rebers, 1990; Banks et al., 1998; Daniel, 2006; David et al., 2009), 이들의 연구 결과에 의하면 우라늄, 라돈 등 자연방사성물질은 화강암 지역의 지하수에서 변성암, 퇴적암, 화산암의 지질에 비하여 높은 함량을 보이는 것으로 보고되고 있다(Wathen, 1987; Cothorn and Rebers, 1990; Banks et al., 1998; David et al., 2009).

국내의 경우 지하수중 자연방사성물질 함량에 대하여 1998년 6월 일부 지하수에서 우라늄 함량이 미국 EPA 기준치(30  $\mu\text{g/L}$ )를 상회하였다고 보도된 이후인 1999년부터 자연방사성물질 함량에 대하여 국립환경과학원과 한국지질자원연구원에서 1999~2002(1차), 2006(2차), 2007년부터 현재까지(3차) 전국적인 조사가 진행되어 오고 있다. 화강암과 변성암지역 지하수내 자연방사성물질에 대하여 일부지역에서 연구가 수행되어 왔다(Cho et al., 2011; Jeong et al., 2011; 2012). 그러나 국내에서는 아직까지 화산암지역 지하수내 자연방사성물질에 대한 연구는 현재까지 미흡한 실정이다. 이에 국내 화산암지역 지하수를 대상으로 현장 수질 측정, 주요 양음이온 함량 분석, 자연방사성물질(우라늄, 라돈, 전알파) 분석, 현장수질 및 주요 이온과 자연방사성물질과의 상관성 분석, 국내의 화산암 지역 지하수의 우라늄과 라돈 함량 비교 등을 통하여 국내 화산암지역 지하수에서의 자연방사성물질의 함량과 거동, 환경 특성을 파악함에 그 목적이 있다

## 2. 지질개요 및 시험방법

### 2.1. 조사지역 위치 및 지질개요

본 연구에서 조사된 80개소의 지하수는 음용으로 이용되고 있는 마을상수도이며 '07~'10년 국립환경과학원의 실태조사에 수행된 것으로 위치는 Fig. 1에 도시하였다. 한국지질자원연구원의 1:50,000과 1:250,000 지질도를 이

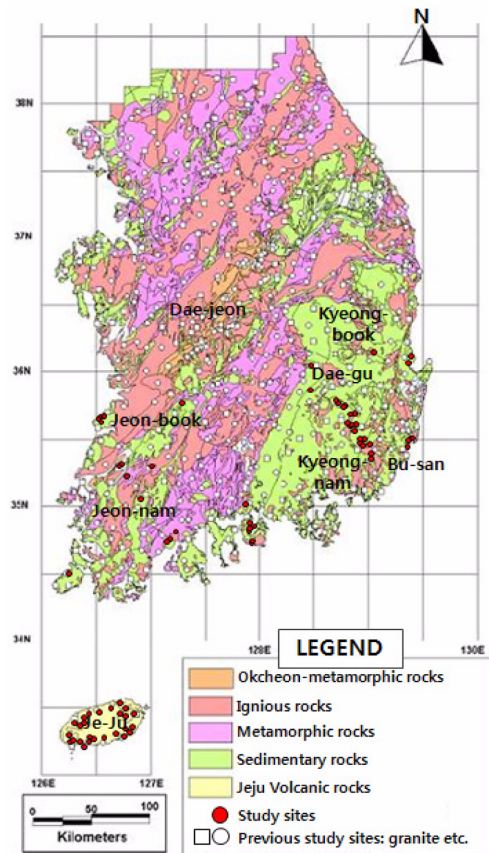
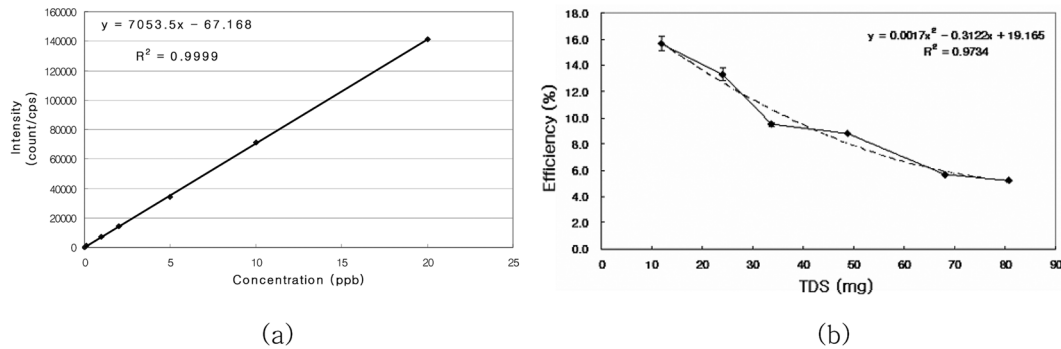


Fig. 1. Maps showing the location of sampling sites and geological setting.

용하여 지질을 파악하였다. 조사지역 지하수공을 주변 암석과 지질시대에 따라 분류하면 백악기 안산암 31개소, 신생대4기 현무암 27개소, 백악기 화산암류 15개소, 백악기 유문암 7개소로 나타났다. 신생대4기 현무암 지역 지하수공은 제주도에 백악기 안산암과 유문암, 화산암류 지하수공은 경상남북도, 전라남북도 일부 지역에 분포하고 있다.

### 2.2. 시료채취 및 전처리

지하수의 현장시료 채취, 보관방법, 분석은 국립환경과학원의 지하수 중 자연방사성물질 함유실태 조사 등에 제시된 시험방법(안)에 준하여 행하였다(Kim et al., 2007; Kim et al., 2009). 우라늄 분석용 시료는 0.45  $\mu\text{m}$  막필터 한 후 125 mL Polyethylene bottle에 담았으며 공침과 흡착을 막기 위해 농질산 1 mL를 첨가하여 pH 2 이하를 유지하였다. 라돈 시료 채취는 와류에 의한 폭기가 일어나지 않도록 주의하였다. 22 mL PE vial를 사용하며 Optiphase Hisafe3 섬광용액 12 mL에 현장시료 8 mL를 첨가하여 5분간 잘 흔든 후 실험실로 운반하였고 라돈과



**Fig. 2.** Calibration curve for uranium standard solution (0, 0.1, 1, 2, 5, 10, 20 µg/L) and TDS efficiency curve for gross-alpha efficiency values measurement.

**Table 1.** Measurement efficiency of  $^{222}\text{Rn}$  using  $^{226}\text{Ra}$  standard solution

Std. No.	Efficiency (%) LSC-1 ('07)	Efficiency (%) LSC-1 ('08)	Efficiency (%)		Efficiency (%)	
			LSC-1 ('09)	LSC-2 ('09)	LSC-1 ('10)	LSC-2 ('10)
1	90.8	86.3	88.9	89.8	89.8	90.5
2	89.3	88.7	89.6	91.5	84.3	88.9
3	90.4	89.3	88.2	87.5	85.3	92.1
Average	90.2 ± 0.84	88.1 ± 1.6	88.9 ± 0.7	89.6 ± 2.0	86.4 ± 1.4	90.5 ± 1.6

말핵종의 방사평형이 이루어진 3시간 후에 측정하였다. 전 알파 시료는 현장에서 지하수 시료 1 L에 1 N  $\text{HNO}_3$  15 mL 첨가하였다.

### 2.3. 분석방법

지하수 시료는 휴대용 멀티 측정기(Orion multi 5 Star)를 이용하여 현장수질 항목인 수온, pH, EC, Eh, DO에 대하여 현장에서 즉시 측정하였다.

양이온(Na, K, Mg, Ca)은 Horiva & Jobin Yvon (Kyoto, Japan)사의 ULTIMA2 ICP-OES(유도결합플라즈마 원자방출광도계)로, 음이온( $\text{Cl}$ ,  $\text{SO}_4$ ,  $\text{NO}_3$ , F)은 Metrohm사의 850 Professional IC(이온크로마토그래피)로 분석하였다. 음이온 중  $\text{HCO}_3^-$ 의 경우는 이산화탄소의 용탈을 막기 위해 현장에서 산중화적정법을 사용하여 신속하게 측정하였다.

우라늄 분석은 Agilent사의 7500 Series ICP/MS를 사용하였으며 Plasma Condition, Ion Lenses, Q-Pole Parameters, Detector Parameters 등에 대해 Tuning을 통하여 기기제작사에서 제공하는 매뉴얼에 따른 기기분석의 최적 조건으로 조정된 후 검량선을 작성하여 분석하였으며, 이때의  $R^2$ 의 값은 0.9999로 안정된 결과를 보여주었다(Fig. 2). 라돈은 국립환경과학원의 PerkinElmer사 Quantulus™ 1220(LSC) 2대로 분석하였다. 라돈은 3.82

일의 짧은 반감기로 인하여 표준물질이 없기 때문에  $^{226}\text{Ra}$  표준선원용액(NIST SRM 4966)을 이용하여 측정효율을 산정한다. 효율측정을 위한 시료는 설팅용액 12 mL가 든 22 mL vial에 라돈을 완전히 제거한 증류수 8 mL와  $^{226}\text{Ra}$  표준선원용액을 희석시킨 표준용액(14.35 Bq/g)을 넣은 후 밀봉하여 준비한다. 준비된 시료는 암소에서 약 25일 이상 방치하여,  $^{226}\text{Ra}$ 와  $^{222}\text{Rn}$  및 딸핵종들이 영속평형에 도달하도록 하면서 기기 최적 PSA(Pulse Shape Analysis) 준위 100에서 시간경과에 따른 라돈의 방사능을 측정하였다(Kim et al., 2006; Kim et al., 2007). 재현성을 위해 3개의 시료를 만들었으며 평균 측정효율은 Table 1에 나타내었으며, 이 측정효율을 이용한 계산식(1)에 의하여 라돈 함량 값을 구하였다. 전알파 시료는 증발과 건조를 통하여 고형화시킨 후 TDS 효율곡선(Fig. 1)을 만든 후 GPC를 이용하여 분석하였다(Currie, 1968; Jeong et al., 2011(a)).

$$Rn(dpm/L) = \frac{(Rn)_{total}}{V_s} = \frac{CR}{V_s \cdot \varepsilon} \cdot e^{\lambda_{Rn} T_D} \quad (1)$$

여기서,  $V_s$ : volume of sample (L),  $\varepsilon$ : counting efficiency, CR: count rate (cpm)

$\lambda_{Rn}$ : decay constant of radon,  $T_D$ : elapsed time (day)

**Table 2.** Uranium and radon contents in groundwaters for the major rocks of other countries

Rock type	Studied area (No. of sample)	U	Rn
		Median Value (Min.~Max.)	Median Value (Min.~Max.)
Granite	Norway <sup>1)</sup> (163)	16 µg/L (~750 µg/L)	700 Bq/L (~19,900 Bq/L)
	Pennsylvania, USA <sup>2)</sup> (116)	—	(49~1,300 pCi/L)
Sedimentary rocks	Norway <sup>1)</sup> (30)	—	22 Bq/L (~410 Bq/L)
	Illinois, USA <sup>3)</sup> (116)	1.3 µg/L (0~17 µg/L)	267 pCi/L (< 80~1,300 pCi/L)
Metamorphic rocks	Poland <sup>4)</sup> (654)	—	(0~92.5 Bq/L)
Volcanic rocks	Italy <sup>5)</sup> (119)	—	11.8 Bq/L (1.8~52.7 Bq/L)

<sup>1)</sup> Frengstad (2000), <sup>2)</sup> USGS (2000), <sup>3)</sup> USGS (2001), <sup>4)</sup> Tadeusz Andrzej Przylibski et al. (2004), <sup>5)</sup> Walter D'Alessandro and fabio Vita (2003)

\*1 pCi = 0.037 Bq

### 3. 결과 및 토의

#### 3.1. 국외 주요 암석별 지하수중 자연방사성물질의 함량

국외 주요 암석별 지하수중 자연방사성물질(우라늄, 라돈)에 대한 함량 값에 대하여 Table 2에 보여주었다. 외국의 경우 화강암, 퇴적암, 변성암, 화산암의 순으로 지하수중 라돈의 함량 값을 보이고 있으며, 특히 노르웨이 화강암의 중앙값인 700 Bq/L(18,900 pCi/L)에 비하면 이탈리아 화산암과 미국 퇴적암 지역 지하수의 중앙값은 각각 11.8 Bq/L(319 pCi/L), 9.9 Bq/L(267 pCi/L)로 낮은 라돈 함량 값을 보여주고 있다.

#### 3.2. 조사지역의 지하수 수질 및 자연방사성물질의 함량

조사지역 지하수의 현장 수질(온도, pH, Eh, EC, DO)과 주요 양이온 및 자연방사성물질(우라늄과 라돈, 전알파) 함량에 대한 조사결과는 Table 2에 나타내었다. 연구지역 지하수의 현장수질 5개 항목에 대한 결과, 온도는 13.9~24.7°C(평균: 16.8°C), pH 6.16~8.50(평균: 7.43), Eh 33~590 mV(평균: 219 mV), EC 71~618 µS/cm(평균: 221 µS/cm), DO 0.75~8.10 mg/L(평균: 4.39 mg/L)의 범위를 보였으며 국내 지하수와 비슷한 경향을 나타냈다(Lee et al., 1997; Hamm et al., 1999; Kim et al., 2009; Jeong et al., 2011(b)). 또한, 주요이온들의 상대적 함량과 지하수의 유형을 알아보기 위하여 piper diagram에 도시한 결과, 대부분이 Ca-(Na)-HCO<sub>3</sub> type으로 나타났다(Fig. 3). 자연방사성물질인 우라늄 함량분포는 ND~9.70 µg/L(평균: 1.09, 중앙값: 0.21)이었으며, 라돈 방사능은 38~29,222 pCi/L(평균: 1350, 중앙값: 579)의 분포로 나타났다. 중앙값에 비하여 평균값이 높게 검출된 이유는 함량 값이 상대적으로 높게 검출된 일부 지역에 의한 것이다. 전알파의 경우 최소검출가능농도(MDA;

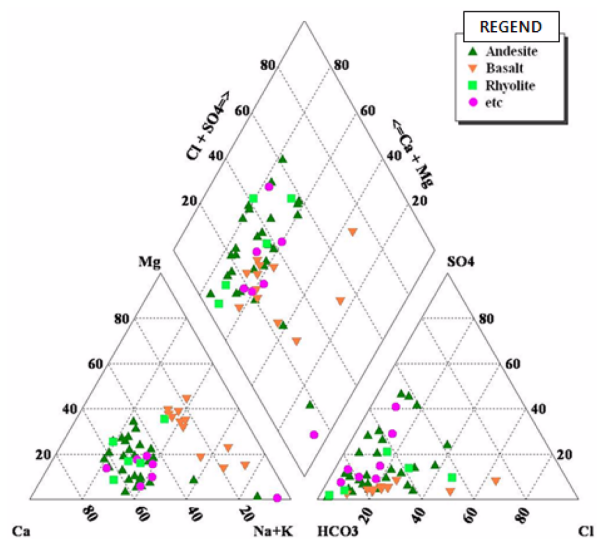


Fig. 3. Piper diagram of groundwaters in the study area.

minimum detectable activity, < 0.9 pCi/L)값 이상 나타난 지하수는 26개소이며 1.05~8.06 pCi/L(평균: 2.64, 중앙값: 1.63)로 검출되었다.

주변 지질에 따른 지하수중 우라늄 함량 값을 살펴보면, 안산암(ND~9.49 µg/L, 평균: 1.76 µg/L, 중앙값: 1.76 µg/L) 화산암류(0.15~9.70 µg/L, 평균: 1.61 µg/L, 중앙값: 0.61 µg/L) 유문암(0.08~1.62 µg/L, 평균: 0.66 µg/L, 중앙값: 0.27 µg/L) 현무암(0.03~1.37 µg/L, 평균: 0.14 µg/L, 중앙값: 0.05 µg/L)순으로 검출되었다. 제주도의 신생대 4기 현무암의 경우 상대적으로 낮은 값을 보였으며 미국의 기준치(30 µg/L)를 넘는 지하수공은 하나도 없었다.

주변 지질에 따른 지하수중 라돈 함량 값을 살펴보면, 화산암류(38~29,222 pCi/L, 평균: 3,386 pCi/L, 중앙값: 1,323 pCi/L) 유문암(283~2,147 pCi/L, 평균: 1,189 pCi/L, 중앙값: 1,206 pCi/L) 안산암(112~4,665 pCi/L, 평균: 1,069

pCi/L, 중앙값: 846 pCi/L) 현무암(95~1,970 pCi/L, 평균: 583 pCi/L, 중앙값: 443 pCi/L)으로 검출되었다. 미국의 제안치(4,000 pCi/L)를 넘는 지하수공은 화산암류 2개소, 안산암 2개소로 나타났다. 특히 전라북도 변산반도에 위치한 화산암류의 한 개소는 29,222 pCi/L(1,082 Bq/L)의 매우 높은 값을 보였다. 이 지점은 1:250,000 광주지도를 보면 화산암류로 나타났지만 주변 지역은 화강암이 분포하고 있는 것으로 조사되었다. 심부지질을 직접 확인 할 수는 없었지만 주변 지역의 화강암 관입 등으로 볼 때 지표지질은 비록 화산암이라도 심부의 지질은 화강암일 수도 있을 것으로 사료되어 진다. 이와 같이 화산암 지역의 지하수라도 높은 함량을 보인 지역에 대해서는 심부지질과 자연방사성물질 함유 광물 파악이 필요하다고 사료되어지며, 이를 위하여 지하수공의 시추를 통한 암석박편에 대한 현미경 관찰, EPMA 등을 통한 더 많은 연구가 필요하다고 사료되어 진다.

### 3.3. 화산암 지역 지하수 중 자연방사성물질과 수질과의 상관관계

화산암 지역 지하수의 우라늄 함량 값들은 화강암과 변성암 지역의 지하수에 비하여 낮게 분포하고 있다(David et al., 2009; Jeong et al., 2011(b)). Frengstad(2000)는 노르웨이의 476개 암반지하수 중 우라늄과 라돈의 상관성을 log-log 그래프로 분석하여 상관계수  $r=0.58$  값을 구하였다. Fig. 4는 조사지역(화산암) 지하수 중 우라늄과 라돈의 상관관계를 log-log 그래프로 나타낸 것으로 상관계수  $r=0.45$ 를 보였으며 결정질 암반(화강암)으로 이루어

진 노르웨이에 비하여 비교적 낮은 상관성을 보였으나, 아직은 실태조사 개소수가 80개로 더 많은 조사가 필요하다고 사료되어 진다.

지하수의 우라늄 함량은 모암의 우라늄 함량, 지하수의 산화-환원환경, 지하수에 용존되어 있는 중탄산염 함량 등에 의하여 영향을 받으며 Langmuir(1978)는 pH와 우라늄 광물의 용해도에 대하여 언급한 바 있다. 우라늄과 현장수질, 주요 이온들과의 상관관계는 Fig. 5에 도시하였다. 우라늄과 현장수질 항목 pH( $r=0.19$ ), 온도( $r=0.09$ ), Eh( $r=0.11$ ), EC( $r=0.12$ )와의 상관성은 낮게 나타났지만 pH의 경우는 다른 항목에 비하여 좀 더 높은 상관관계수를 보여주고 있으며 P-value 값은 0.05 이하를 보였다.

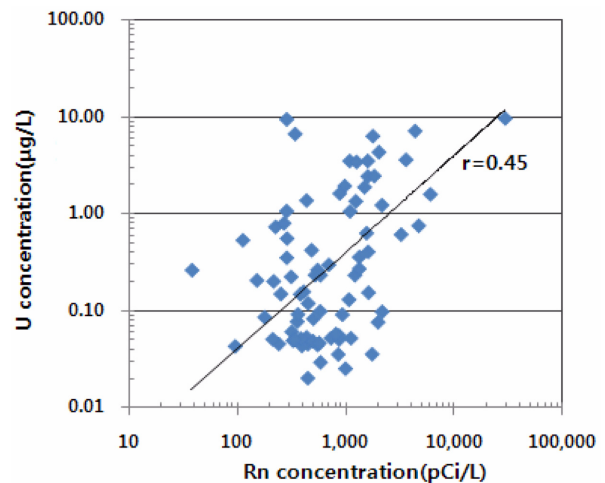


Fig. 4. Correlation between Rn and U in the groundwaters in the study area.

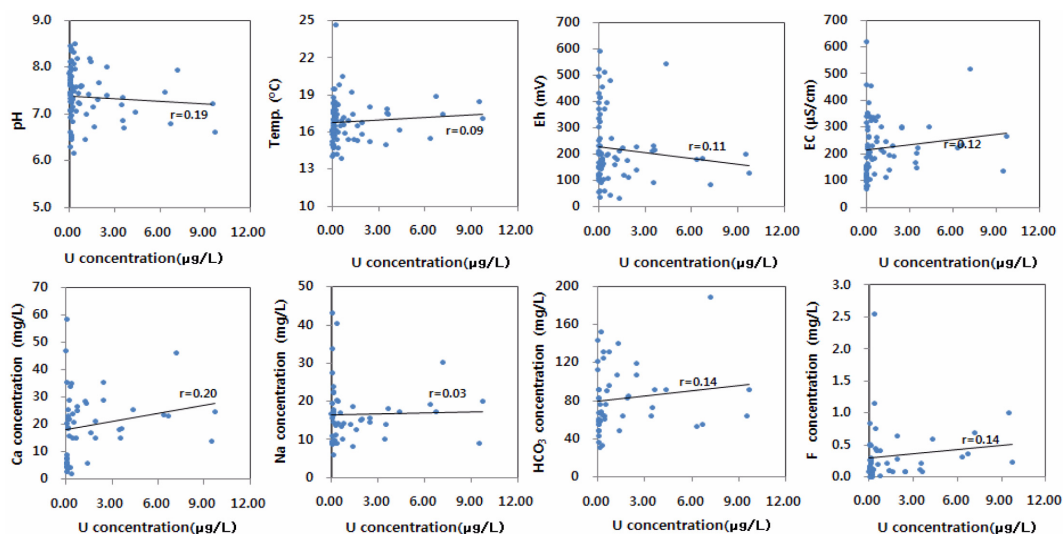


Fig. 5. Relationship between U and pH, Temp., Eh, EC, Ca, Na, HCO<sub>3</sub>, F in groundwaters in the study area.



**Table 3.** Analysis results (*in-situ*, major cation & anion, radionuclides) of groundwater

No.	Temp. (°C)	pH	Eh (mV)	EC ( $\mu$ S/ cm)	DO (mg/L)	Na	K	Mg	Ca	F	Cl	SO <sub>4</sub>	NO <sub>3</sub>	HCO <sub>3</sub>	C.B	<sup>222</sup> Rn (pCi/L)	<sup>238</sup> U ( $\mu$ g/L)	Gross $\alpha$ (pCi/L)
															(mg/L)			
1	19.8	7.57	510	231	3.1	19.9	0.4	1.6	23.8	0.8	7.0	50.3	3.3	61.0	-3.2	480	0.42	MDA
2	18.5	6.98	353	342	1.5	22.2	2.6	5.7	25.6	0.5	18.8	61.3	1.0	76.3	-5.5	1,062	0.13	MDA
3	16.6	7.60	481	260	5.6	10.0	0.7	7.6	26.5	0.0	7.8	37.3	1.2	96.1	-3.9	224	0.73	1.62
4	16.2	7.31	144	153	7.9	9.8	-	4.2	16.0	0.0	3.5	6.6	4.1	67.1	5.6	151	0.20	MDA
5	16.0	8.50	60	454	1.5	40.5	-	0.1	1.9	2.5	4.7	8.7	0.7	131.0	-16.6	1,323	0.36	4.79
6	17.4	8.18	211	245	2.3	18.6	-	2.6	27.9	0.1	9.2	6.3	3.4	140.3	-6.5	1,229	1.35	8.06
7	16.5	8.13	206	200	1.1	8.9	-	2.8	22.0	0.2	6.5	37.4	3.1	58.0	-7.0	406	0.16	1.69
8	13.9	7.24	110	182	4.8	13.4	-	3.8	15.1	0.2	3.3	11.4	1.6	90.0	-5.5	3,215	0.61	MDA
9	17.9	7.35	95	149	4.6	13.9	0.9	1.4	15.0	0.2	6.3	6.2	6.5	73.2	-4.3	1,079	3.52	MDA
10	15.0	7.20	213	167	4.3	10.2	-	3.9	18.3	0.1	5.2	2.0	4.7	64.1	11.8	1,247	3.44	MDA
11	19.5	6.50	155	303	4.4	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1,611	0.15	MDA
12	17.5	8.45	125	154	0.8	33.9	0.5	0.3	4.2	0.8	3.1	10.2	-	82.4	0.8	724	0.05	MDA
13	18.0	7.39	142	296	4.6	14.4	1.1	4.9	35.4	0.1	12.2	8.2	27.1	119.0	-1.6	1,584	2.44	MDA
14	15.8	7.66	112	190	0.8	15.4	0.4	2.5	21.2	0.6	3.8	19.1	2.9	85.4	-1.1	971	1.94	2.25
15	16.2	7.04	545	300	2.9	17.3	0.7	6.0	25.5	0.6	29.0	18.3	12.3	91.5	-7.2	2,008	4.34	MDA
16	18.2	7.06	370	178	5.0	14.2	1.8	3.9	15.2	0.5	11.7	7.2	15.7	64.1	-1.9	1,596	0.40	MDA
17	17.4	8.08	183	207	6.5	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	546	0.26	1.48
18	15.2	6.30	148	151	6.2	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	846	0.04	MDA
19	19.5	6.45	262	218	4.7	17.2	1.2	6.0	18.7	0.3	19.7	5.4	29.0	67.1	-1.2	923	0.09	3.35
20	16.2	7.86	57	339	2.0	16.8	-	8.1	46.9	0.1	6.7	48.1	2.5	143.4	2.1	233	ND	MDA
21	17.0	6.93	103	119	3.9	15.5	-	1.2	7.6	0.5	7.9	2.4	4.0	48.8	-0.5	239	0.04	MDA
22	17.2	7.58	47	247	3.7	14.2	-	8.7	25.2	0.4	2.8	1.3	2.7	131.2	5.4	4,665	0.75	MDA
23	15.5	7.46	180	221	6.3	19.1	-	2.7	23.4	0.3	8.9	44.7	9.6	52.6	0.1	1,764	6.36	MDA
24	15.2	8.00	228	300	6.7	15.6	-	9.1	29.1	0.1	11.2	11.9	4.9	106.8	9.1	1,820	2.46	1.24
25	17.4	7.94	84	517	1.6	30.2	-	20.2	46.4	0.7	22.8	13.5	17.0	189.1	9.9	4,325	7.18	MDA
26	18.5	7.21	200	136	2.7	9.1	-	0.5	14.1	1.0	2.2	7.0	1.8	64.1	-8.1	284	9.49	MDA
27	16.5	8.18	196	335	4.6	16.9	-	2.0	20.7	0.4	8.5	18.4	4.7	76.3	-1.0	112	0.53	MDA
28	14.0	7.06	214	618	4.4	27.5	2.0	19.0	58.6	0.5	70.7	60.7	34.9	122.0	-1.1	987	0.02	MDA
29	15.0	7.25	233	227	4.0	17.9	-	1.4	23.1	0.3	27.1	4.3	4.7	82.4	-5.8	577	0.10	MDA
30	14.7	7.95	167	324	2.2	20.3	-	4.8	35.2	1.2	24.4	20.1	3.4	125.1	-3.8	284	0.35	1.25
31	18.9	6.80	183	234	2.3	17.4	-	7.4	23.0	0.4	13.5	8.1	33.5	54.9	10.9	339	6.69	MDA
32	16.9	7.35	457	214	1.9	11.1	-	6.1	28.8	0.0	7.6	23.1	1.1	68.6	13.7	519	0.23	MDA
33	15.8	6.62	337	458	3.8	19.5	3.1	17.2	35.5	0.0	52.1	28.2	56.9	112.9	-8.1	444	0.02	MDA
34	18.8	6.54	416	353	5.1	22.6	2.5	13.2	18.9	0.3	57.6	15.7	28.3	91.5	-12.2	2,147	0.10	3.06
35	19.2	7.41	181	206	3.5	14.1	0.5	2.3	28.4	0.2	6.1	3.7	3.2	106.8	3.9	2,139	1.23	7.56
36	15.4	7.00	160	215	5.1	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	283	1.07	MDA
37	16.9	7.50	160	260	5.2	13.8	-	4.1	22.0	0.1	3.7	2.0	0.8	152.5	-13.4	1,206	0.23	MDA
38	15.4	6.16	182	192	4.6	13.6	-	9.3	33.9	0.1	18.7	12.1	15.8	65.6	18.0	1,322	0.27	MDA
39	16.5	7.08	123	236	6.1	16.4	-	4.0	20.5	0.3	9.3	15.9	17.8	61.0	4.2	354	0.08	MDA
40	15.3	6.73	121	141	6.1	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	873	1.62	1.12
41	15.9	7.59	260	339	4.9	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	267	0.80	MDA
42	18.3	7.48	156	341	5.9	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	38	0.26	MDA
43	16.9	6.45	190	300	3.5	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1,087	1.06	MDA
44	20.5	7.22	199	326	1.2	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1,542	0.63	1.59
45	17.4	6.69	218	224	4.7	18.0	0.5	2.2	18.4	0.1	13.0	8.8	19.6	91.5	-11.3	3,561	3.61	4.40
46	17.1	6.62	130	267	2.0	20.1	0.8	1.5	24.9	0.2	13.3	36.4	12.5	91.5	-11.5	29,222	9.70	8.03
47	17.5	6.85	234	203	5.2	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1,583	3.52	2.62

Table 3. continued

No.	Temp. (°C)	pH	Eh (mV)	EC ( $\mu$ S/ cm)	DO (mg/L)	Na	K	Mg	Ca	F	Cl	SO <sub>4</sub>	NO <sub>3</sub>	HCO <sub>3</sub>	C.B	<sup>222</sup> Rn (pCi/L)	<sup>238</sup> U ( $\mu$ g/L)	Gross $\alpha$ (pCi/L)
															(mg/L)			
48	17.3	7.95	199	288	5.3	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	250	0.15	MDA
49	17.2	7.57	178	203	2.8	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	580	0.23	1.20
50	17.8	6.84	178	393	7.6	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	215	0.20	1.42
51	24.7	7.14	163	264	4.0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	312	0.22	MDA
52	16.8	7.30	176	230	5.5	15.1	-	3.1	15.2	0.3	6.7	8.0	9.0	82.4	-5.6	1,479	1.88	MDA
53	16.5	7.15	225	194	3.6	12.6	-	3.6	17.1	0.1	9.1	10.7	12.4	64.1	-1.2	5,982	1.59	MDA
54	17.8	7.74	165	95	5.1	8.6	3.5	4.2	5.5	0.1	6.9	2.4	2.7	54.9	-4.9	316	0.06	MDA
55	16.1	7.62	370	79	6.4	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	581	0.03	MDA
56	17.5	7.60	525	79	4.7	9.1	4.9	2.1	4.7	0.2	6.4	1.9	1.6	42.7	-1.4	443	0.04	MDA
57	16.7	7.82	394	114	6.7	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	545	0.04	1.05
58	16.8	7.47	119	318	3.2	43.2	4.9	8.6	7.9	0.1	66.6	11.4	24.0	48.8	-3.3	95	0.04	MDA
59	18.3	7.46	497	112	5.7	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	861	0.05	1.54
60	15.8	7.60	322	105	7.3	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	360	0.09	1.22
61	18.4	7.32	117	145	2.3	10.9	3.1	7.3	9.0	0.1	11.9	3.4	18.8	58.0	-2.1	324	0.05	MDA
62	17.7	7.40	170	121	3.3	9.4	3.3	6.2	6.2	0.1	9.8	2.6	9.6	54.9	-3.0	211	0.05	MDA
63	17.5	7.09	415	352	6.5	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	178	0.09	1.38
64	17.0	7.65	199	116	4.1	9.6	3.4	5.2	6.3	0.1	8.3	2.5	8.1	58.0	-5.0	433	0.05	MDA
65	17.7	7.27	303	125	6.8	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	391	0.04	MDA
66	16.3	7.66	252	155	6.8	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	495	0.05	MDA
67	16.0	7.45	433	104	6.8	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	862	0.06	MDA
68	16.9	7.44	394	125	6.0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	286	0.56	1.63
69	15.4	8.11	33	113	3.6	8.1	-	5.1	5.8	0.1	7.2	1.8	4.2	48.8	-2.5	432	1.37	1.70
70	15.7	7.80	36	81	3.7	6.1	-	3.2	4.0	0.1	6.2	1.7	6.9	30.5	-6.5	447	0.12	MDA
71	14.7	8.39	590	163	3.1	24.0	0.7	2.6	2.8	0.2	22.2	2.1	1.7	36.6	4.0	500	0.08	MDA
72	14.2	8.32	107	103	2.9	8.9	0.4	4.0	4.3	0.1	7.8	3.4	12.3	33.6	-5.4	692	0.30	MDA
73	16.1	8.01	60	188	3.0	14.4	0.9	9.3	6.0	0.1	6.1	2.1	1.9	91.5	-1.1	1,970	0.08	MDA
74	14.8	7.77	154	129	5.2	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	565	0.05	MDA
75	15.7	7.91	107	140	5.9	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	383	0.05	MDA
76	15.6	7.45	205	146	7.3	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1,107	0.05	2.04
77	14.9	8.12	231	97	8.1	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	335	0.05	1.30
78	15.0	7.63	125	81	5.1	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1,736	0.04	MDA
79	14.2	7.72	152	71	5.7	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	805	0.06	MDA
80	18.0	8.33	92	345	2.4	16.6	3.0	2.0	4.5	0.2	10.0	3.5	6.0	58.0	-8.6	378	0.15	MDA

ND:  $\leq 0.01 \mu\text{g/L}$ , MDA:  $< 0.9 \text{ pCi/L}$ 

불소는 화강암 지역에서 지하수공의 심도가 깊어질수록 함량 값이 증가한다고 알려져 있어서(Choo et al., 2008) 본 연구 지역인 화산암에도 적용하여 보았으나  $r=0.14$ 으로 큰 상관성을 보여주지는 않았다. 또한 우라늄과 주요 이온들의 상관성은  $\text{Ca}(r=0.20)$ ,  $\text{HCO}_3(r=0.14)$ ,  $\text{Na}(r=0.03)$ 으로 이천 화강암 지역(Cho et al., 2011)에 비하여 낮게 나타났다.

지하수의 라돈 함량은 모암내 광물의 영향은 있지만 지하수의 수질과는 관계가 없는 것으로 알려져 있으며(STUK, 2005; Cho et al., 2011), Wilhelm et al.(1997)은 온도의

증가에 따라 라돈 가스의 용해도가 감소하는 것으로 연구한바 있다. 이에 본 조사 지역에 대한 라돈과 온도, 주요 이온과의 상관관계를 Fig. 6에 도시하였으나 대체적으로 관계가 약하거나 없는 것으로 나타났다( $r=0.16$  이하).

조사지역 지하수 심도는 54~360m로 암반지하수 공들로 이루어져 있으며 Fig. 7에 우라늄과 라돈과의 상관관계를 도시하였다. 우라늄( $r=0.40$ )의 경우는 라돈( $r=0.23$ )에 비하여 상대적으로 심도에 따른 상관관계를 보였으나 추후 더 많은 시료에 대한 분석이 필요하다고 사료된다.

연구지역 지하수의 자연방사성물질(우라늄, 라돈)과 현

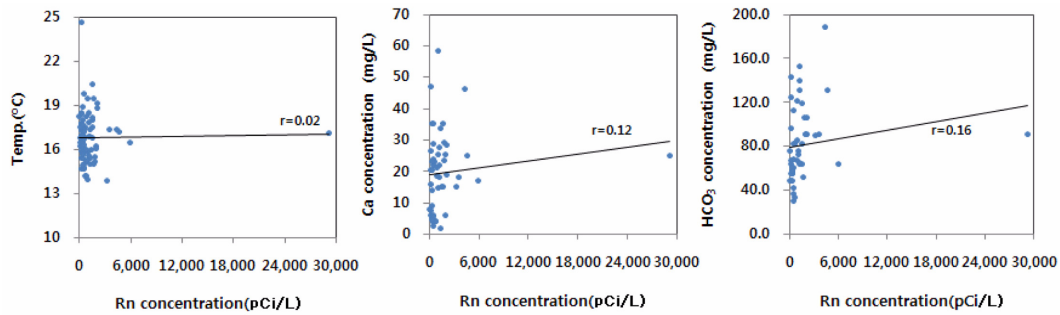


Fig. 6. Relationship between Rn and Temp., Ca,  $\text{HCO}_3^-$  in the groundwaters in the study area.

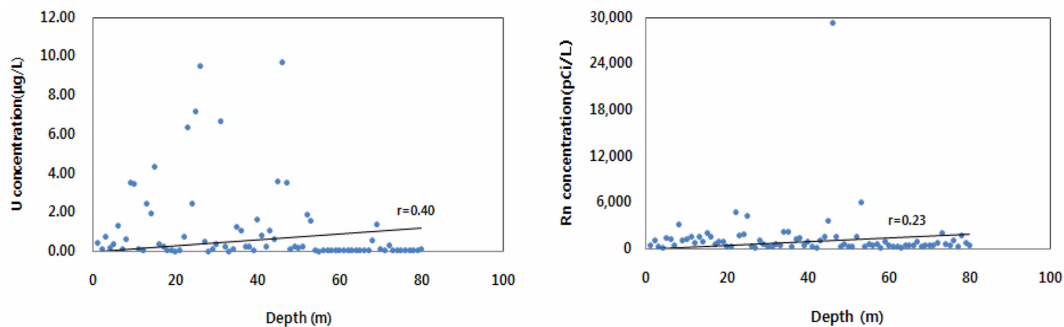


Fig. 7. Relationship between the depth of wells and U, Rn in groundwaters in the study area.

장수질, 주요 이온성분, 관정심도 등과의 상관성은 비교적 화강암이나 다른 암석들(Cho et al., 2011; Jeong et al., 2011(b))에 비하여 관계가 약하거나 없는 것으로 나타났다. 이에 대한 원인으로는 모암내 자연방사성물질을 포함하고 있는 광물의 함량, 지하수 환경, 특정 용존성분의 함량 등 여러 요인에 의한 것으로 사료되며 여기에 천부지하수나 강수에 의한 희석도 생각 될 수 있다. 현재 화강암이나 변성암(화강편마암)에 비하여 화산암의 경우 국내 실태조사 개소수는 많이 부족한 실정으로 향후 더 많은 조사가 필요하다고 사료된다.

#### 4. 결 론

국내 화산암지역 지하수에서의 자연방사성물질의 함량과 거동, 환경 특성을 알기 위하여 마을상수도로 사용되어지고 있는 지하수공 80개소에 대하여 자연방사성물질(우라늄, 라돈, 전알파), 지하수 수질(현장수질, 주요 양·음이온)을 분석하였다. 조사지역 지하수는 백악기 안산암 31개소, 백악기 유문암 7개소, 백악기 화산암류 15개소, 신생대4기 현무암 27개소로 나타났으며 제주도와 경상남북도, 전라남북도 일부 지역에 분포하고 있다.

조사지역 지하수의 주요 양음이온 분석 결과 국내 일반

지하수와 비슷한 경향을 보였으며, 지하수 중 자연방사성물질은 우라늄 ND~9.70  $\mu\text{g/L}$ (평균: 1.09, 중앙값: 0.21), 라돈 38~29,222 pCi/L(평균: 1350, 중앙값: 579, 1.4~1,082 Bq/L)로 나타났다. 전알파의 경우 MDA(minimum detectable activity, <0.9 pCi/L) 값 이상 나타난 지하수는 26개소이며 1.05~8.06 pCi/L(평균: 2.64, 중앙값: 1.63)로 검출되었다.

지질에 따른 우라늄 함량은 안산암, 화산암류, 유문암, 현무암 순으로 검출되었고 라돈 함량은 화산암류, 유문암, 안산암, 현무암순으로 검출되었다. 우라늄, 전알파는 미국 기준치를 넘는 지점은 하나도 없었지만 라돈의 경우는 화산암류 2개소, 안산암 2개소로 나타났으며 특히 한 개소는 29,222 pCi/L의 매우 높은 값을 보였다.

화산암의 경우 결정질 암반(화강암)에 비하여 우라늄과 라돈의 상관계수( $r=0.45$ )가 낮게 나타났다. 우라늄과 pH의 경우는 다른 항목에 비하여 좀 더 높은 상관관계수를 보여주었으며 라돈은 현장수질, 주요이온들과 관계가 약하거나 없는 것으로 나타났다. 우라늄이 라돈에 비하여 상대적으로 심도에 따른 더 큰 상관관계를 보였다.

향후 국내 화산암에 대한 실태조사, 시추를 통한 심부지질 확인 및 자연방사성물질을 함유하고 있는 광물 등에 대한 더 많은 조사와 연구가 필요하다.



## 사 사

이 연구는 국립환경과학원 지하수환경영향평가 중 ‘지하수 중 자연방사성물질 함유실태 조사’ 연구사업의 일환으로 수행되었다.

## 참 고 문 헌

- ANL (Argonne National Laboratory), 2005, radium Human Health Fact Sheet, August 205, ANL.
- Arvela, H., Blomqvist, L., and Mustonen, R., 1979, In Situ External Environmental Gamma Ray measurements, In: Studies on Environmental Radioactivity in Finland 1976-1977, Report STL-A 26, Helsinki; Institute of Radiation Protection.
- Banks, D., Bjørn, F., Aase, K.M., Jan, R.K., and Terje, S., 1998, The chemistry of Norwegian groundwaters : I. The distribution of radon, major and minor elements in 1604 crystalline bedrock groundwaters, *The Science of the Total Environment*, **222**, 71-91.
- Cho, B.W., Kim, K.H., Kim, Y.K., Sung, Y.H., An, J.S., Yoon, U., Yoon, Y.Y., Lee, K.Y., Lee, B.D., Lee, H.J., Lim, H.C., Cho, S.Y., and Hong, Y.K., 2006, An investigation of natural radionuclide levels in groundwater, NIER Report, p. 200.
- Cho, B.W., Choo, C.O., Kim, M.S., Lee, Y.J., Yoon, U., and Lee, B.D., 2011, Uranium and Radon Concentrations in Groundwater near the Icheon Granite, *The Journal of Engineering Geology*, **21**(3), 259-269.
- Choo, C.O., Kim, J.T., Chung, I.M., Kim, N.W., and Jeong, G.C., 2008, Geochemical Aspects of Groundwater in Granite Area and the Origin of Fluoride with Emphasis on the Water-Rock Interaction, *The Journal of Engineering Geology*, **18**(1), 103-115.
- Cothorn, C.R. and Rebers, P.A., 1990, Radon, radium and uranium in drinking water, Lewis publishers, p. 283.
- Currie, L.A., 1968, Limits for Qualitative Detection and Quantitative Determination, *Anal. Chem.*, **40**, 586-593.
- David, S.V., Avner, V., Daniella, H., and Gary, S.D., 2009, Relationships between radium and radon occurrence and hydrochemistry in fresh groundwater from fractured crystalline rocks, North Carolina (USA), *Chemical Geology*, **260**, 159-171.
- Daniel, M.B., 2006, Hydro(radio)chemical relationships in the giant Guarani aquifer, Brazil., *Journal of Hydrology*, **323**, 353-86.
- Frengstad, B., 2000, The chemistry of Norwegian groundwater III. The distribution of trace elements in 476 crystalline bedrock groundwaters, as analysed by ICP-MS techniques, *Total environment*, **246**, 21-40.
- Health Canada, 1968, The Guidelines for Canadian Drinking Water Quality and the Guideline Technical Documents.
- Hess, C.T., Michel, J., Horton, T.R., and Coniglio, W.A., 1985, The occurrence of radioactivity in public water supplies in the United States, *Health Physics*, **48**, 553-586.
- Hamm, S.Y., Cho, M.H., Sung, I.H., Lee, B.D., Cho, B.W., and Shim, H.S., 1999, Comparison of Hydrochemical Characteristics of Groundwater in the Southern Area and the Northwestern Area, Pusan, *Journal of the KSGE*, **6**(3), 140-151.
- Jeong, C.H., Kim, M.S., Lee, Y.J., Han, J.S., and Jang, H.G., 2011, Hydrochemistry and Occurrence of Natural Radioactive Materials within Borehole Groundwater in the Cheongwon Area, *The Journal of Engineering Geology*, **21**(2), 163-178.
- Jeong, C.H., Kim, D.W., Kim, M.S., Lee, Y.J., Kim, T.S., Han, J.S., and Jo, B.U., 2012, Occurrence of Natural Radioactive Materials in Borehole Groundwater and Rock Core in the Icheon Area, *The Journal of Engineering Geology*, **22**(1), 95-111.
- Jeong, D.H., Lee, Y.J., Ju, B.K., Noh, H.J., Yu, S.J., and Kim, M.S., 2011(a), Study on Gross-alpha Characteristics of Groundwater for Drinking in Korea, *J. of Soil & Groundwater Env.*, **16**(5), 67-73.
- Jeong, D.H., Kim, M.S., and Lee, Y. J., 2011(b), Hydrogeochemical Characteristics and Natural Radionuclides in Groundwater for Drinking-water Supply in Korea, *J. of Soil & Groundwater Env.*, **16**(6), 133-142.
- Kim, M.S., Yu, S.J., Kim, D.H., Yoon, J.K., Noh, H.J., Jeong, H.S., Jung, D.I., Jeong, D.H., Ju, B.K., Lim, T.S., Park, Y.H., and Hong, S.K., 2009, An investigation on natural radionuclide levels in groundwater(III), NIER Report, p. 227. Standard Method, 21st Edition, 2005.
- Kim, T.S., Park, J.G., Eom, I.C., Yoon, J.K., Jeong, D.H., Kang, K.C., Yun, D.G., and Kwon, J.C., 2007, An investigation of natural radionuclide levels in groundwater(I), NIER Report, p. 155.
- Kim, Y.J., Cho, S.Y., Yoon, Y.Y., and Lee, K.Y., 2006, Optimal Method of Radon Analysis in Groundwater using Ultra Low-Level Liquid Scintillation Counter, *J. of Soil & Groundwater Env.*, **11**(5), 59-66.
- Langmuir, D., 1978, Uranium solution-mineral equilibria at low temperatures with applications to sedimentary ore deposits, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **42**, 547-569.
- Lee, J.U., Chon, H.T., and John, Y.W., 1997, Geochemical Characteristics of Deep Granitic Groundwater in Korea, *Journal of the KSGE*, **4**(4), 199-211.
- Noh, H.J., Kim, T.S., Park, J.G., Yoon, J.K., Kim, M.S., Chung, I.R., Jeong, D.H., Ju, B.K., Jeon, S.H., Sim, Y.E., and Baek, Y.W., 2008, An investigation of natural radionuclide levels in groundwater(II), NIER Report, p. 195.

- Shin, D.C., Kim, Y.S., Moon, J.Y., Park, H.S., Kim, J.Y., and Park, S.K., 2002, International Trends in Risk Management of Groundwater Radionuclides, *J. Environ. Toxicol.*, **17**, 273-284.
- STUK, 2005,  $^{238}\text{U}$ -series radionuclides in Finnish groundwater-based drinking water and effective doses, STUK-A123, p. 94.
- Tadeusz, A.P., Kalina, M.L., Monika, K., Jerzy, D., and Beata, K.O., 2004, Radon concentration groundwaters of the Polish part of the Sudety Mountains (SW Poland), *Journal of Environmental Radioactivity*, **75**, 193-209.
- USEPA, 2002, Radionuclides in Drinking Water: A Small Entity Compliance Guide, 815-R-02-001, <http://www.epa.gov/safewater>.
- USEPA, 2003, National primary drinking water standards, Office of Water, EPA 816-F-03-016.
- USGS, 1962, Data on uranium and radium in groundwater in the USA, Professional Paper No. 426.
- USGS, 2000, Naturally occurring radionuclides in the ground water of southeastern Pennsylvania, USGS Fact Sheet 012-00.
- USGS, 2001, Uranium and radon in ground water in the Lower Illinois River Basin, Water-Resources Investigation report 01-4056.
- Walter D'Alessandro and fabio Vita, 2003, Groundwater radon measurements in the Mt. Etna area, *Journal of Environmental Radioactivity*, **65**, 187-201.
- Wathen, J.B., 1987, The effect of uranium sitting in two-mica granites on uranium concentrations and radon activity in groundwater, Proceedings of the NWWA conference, p. 31-45.
- Wilhelm, E., Battino, R., and Wilcox, R.J., 1977, Low-pressure Solubility of Gases in Wrenn W.M., Spitz, H., and Och C.N., 1975, "Design of a continuous digital output environmental radon monitor." IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-22, 645.