

지역별 지하수중 우라늄과 라돈의 함량 분포 특성

정도환 · 김문수 · 주병규 · 김태승*
국립환경과학원

Distribution Characteristics of Uranium and Radon Concentration in Groundwaters of Provinces in Korea

Do Hwan Jeong · Moon Su Kim · Byoung Kyu Ju · Tae Seung Kim*
National Institute of Environmental Research.

ABSTRACT

In order to figure out the characteristics of radionuclides concentrations of nine provinces, we analyzed uranium and radon in 681 samples of groundwater. Most of uranium concentrations in each province were less than 10 µg/L, and Gyeongnam, Jeonnam, Jeju provinces did not have groundwaters exceeding the US EPA drinking water MCL (30µg/L) of uranium. The ratio of radon values exceeding US EPA drinking water AMCL (4,000 pCi/L) was 22.6% (154/681) and Gyeongnam and Jeju provinces had no groundwaters exceeding the AMCL (alternative maximum contaminant level). Uranium and radon concentrations in groundwaters of Gyeonggi, Chungbuk, Jeonbuk, Chungnam mainly composed of the Mesozoic granite and the Precambrian gneiss were relatively high, but the concentrations of Gyeongnam and Jeju widely comprised of the sedimentary rock and the volcanic rock were relatively low. A weak correlation between uranium and radon values showed in Gangwon, Chungbuk, Gyeonggi provinces.

Key words : Uranium and Radon, Province, Groundwater, Maximum contaminant level (MCL)

1. 서 론

암반 지하수의 수질은 강우가 지표에서 지하로 이동하면서 발생하는 물-암석반응 때문에 인체에 유해한 우라늄(U), 라돈(Rn), 불소(F) 등 특정 성분들이 지하수에 용해될 수 있다. 이들 특정 유해 물질들은 지표수에 비하여 특정 지역 지하수에 높게 나타나므로 인위적인 오염원과는 구별되는 자연발생적이라고 할 수 있다.

이 유해한 물질들 중에서 우라늄과 라돈은 자연방사성 물질중의 하나로써 우라늄은 반감기(44.5억년)가 길기 때문에 인체위해성은 방사성 독성보다는 중금속으로서의 화학적 독성이 문제시 되며 장기간 섭취 시에는 만성신장질환을 유발시킬 수 있다. 라돈은 짧은 반감기(3.82일)를 가진 무색 무취의 불활성 기체로서 인간에게 피폭되는 방사선량의 50% 이상을 차지하며 흡연 다음으로 높은 폐암

발병인자로 알려져 있다(조병욱 외, 2006; 김태승 외, 2007).

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 비하

*Corresponding author : tskim99@korea.kr

원고접수일 : 2011. 11. 25 심사일 : 2011. 12. 20 게재승인일 : 2011. 12. 22
질의 및 토의 : 2012. 2. 29 까지

여 높은 함량을 보이는 것으로 보고되고 있다(Wathen, 1987; Cothem and Rebers, 1990; Banks et al., 1998; David et al., 2009).

국내의 경우 지하수중 자연방사성물질인 우라늄과 라돈의 함량에 대하여 국립환경과학원에서 1999~2002(1차), 2006(2차), 2007년부터 현재까지(3차) 전국적인 조사가 수행되어 오고 있지만 조사지점수는 아직까지 1,000 여개로 선진국에 비하여 그 수가 매우 적으며 지역에 따른 체계적인 연구가 미흡한 실정이다. 본 연구는 2007부터 2009년까지 국내에서 분석된 지하수 681개소의 우라늄과 라돈 함량자료를 이용하여 지역별 함량특성을 비교, 분석하였다(Fig. 1).

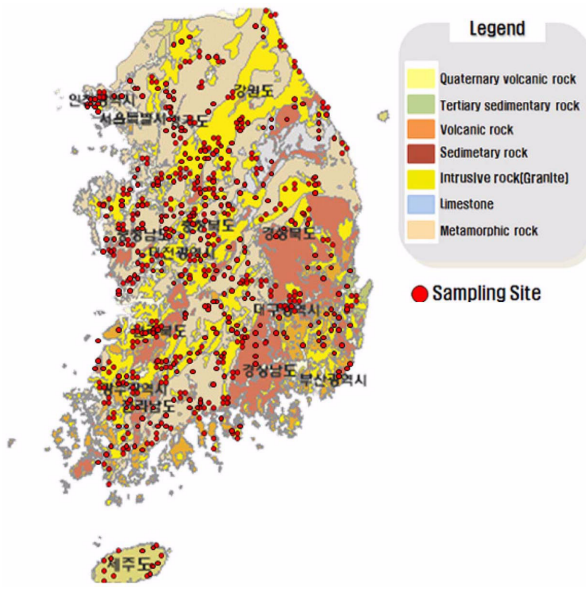
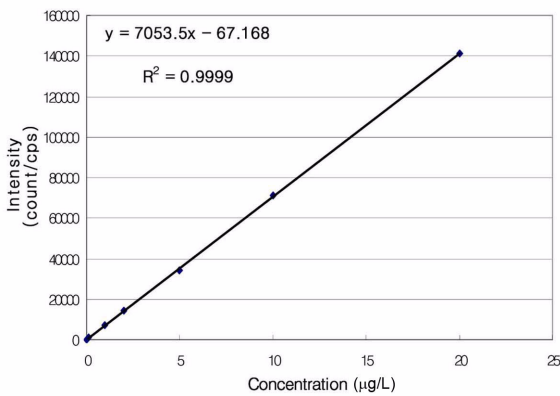


Fig. 1. Maps showing the location of sampling sites and geological setting



2. 시험방법

2.1. 시료채취 및 전처리

지하수의 현장시료 채취, 보관방법, 분석은 국립환경과학원의 지하수 중 자연방사성물질 함유실태 조사 등에 제시된 시험방법(안)에 준하여 행하였다(김태승 외, 2007; 김문수 외, 2009). 우라늄 분석용 시료는 0.45 µm 막필터한 후 125 mL Polyethylene bottle에 담았으며 공침과 흡착을 막기 위해 농질산 1 mL를 첨가하였다. 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 딸핵종의 방사평형이 이루어진 3시간 후에 측정하였다.

2.2. 분석방법

우라늄 분석은 국립환경과학원의 7500 Series ICP/MS(Agilent사)를 사용하였으며 Plasma Condition, Ion Lenses, Q-Pole Parameters, Detector Parameters 등에 대해 Tuning을 통하여 기기제작사에서 제공하는 매뉴얼에 따른 기기분석의 최적 조건으로 조정후 검량선을 작성하여 분석하였으며 이때의 R²의 값은 0.9999로 안정된 결과를 보여주었다(Fig. 2). 라돈은 국립환경과학원의 PerkinElmer사 Quantulus™ 1220 (LSC) 2대로 분석하였다. 짧은 반감기로 인하여 표준물질이 없는 라돈에 대한 함량 값을 얻기 위해 ²²⁶Ra표준선원용액(NIST SRM 4966)을 이용하여 측정효율을 구하였다(김용제 외, 2006; 김태승 외, 2007; 노회정 외, 2008). 재현성을 위해 3개의 시료를 만들었으며 평균 측정효율은 Table 1에 나타내었다.

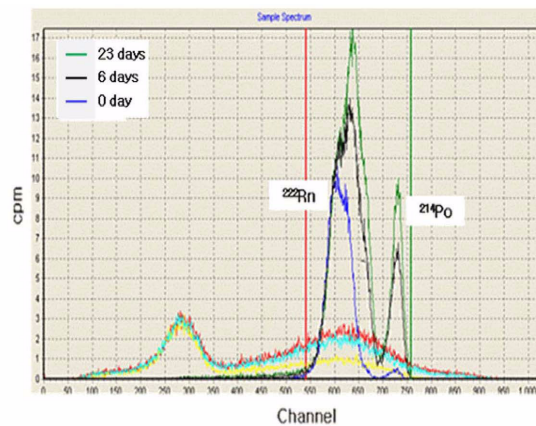


Fig. 2. Calibration curve for Uranium standard solution (0, 0.1, 1, 2, 5, 10, 20 µg/L) and spectrum variation of the ²²⁶Ra standard solution with the elapsed time after spiking of samples.

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

Std. No.	Efficiency (%) LSC-1 ('07)	Efficiency (%) LSC-1 ('08)	Efficiency (%)	
			LSC-1 ('09)	LSC-2 ('09)
1	90.8	86.25	88.88	89.80
2	89.3	88.68	89.57	91.46
3	90.4	89.27	88.17	87.45
Average	90.2 ± 0.84	88.07 ± 1.60	88.87 ± 0.70	89.57 ± 2.01

Table 2. Statistical summary of U ($\mu\text{g/L}$) and Rn (pCi/L) concentrations of each province

(A) Uranium						
Province	No. of Sampling sites	Minimum	Maximum	Average	Median	Skewness
Gangwon	67	< 0.01	106.22	6.86	1.29	4.20
Gyeonggi	96	< 0.01	1,757.00	25.70	1.31	9.70
Chungbuk	91	0.06	335.50	18.64	2.45	4.51
Chungnam	99	< 0.01	378.70	7.47	1.25	9.54
Gyeongbuk	84	< 0.01	75.97	4.26	1.34	5.18
Gyeongnam	56	< 0.01	21.04	1.99	0.46	3.38
Jeonbuk	70	< 0.01	170.25	13.20	1.54	3.76
Jeonnam	97	< 0.01	26.21	1.72	0.43	4.89
Jeju	21	0.03	0.56	0.08	0.05	4.47
(B) Radon						
Province	No. of Sampling sites	Minimum	Maximum	Average	Median	Skewness
Gangwon	67	89	13,145	2,830	1,744	1.29
Gyeonggi	96	167	22,059	3,875	3,162	2.22
Chungbuk	91	3	19,773	3,373	2,284	2.11
Chungnam	99	117	15,467	3,397	2,662	1.84
Gyeongbuk	84	68	7,589	1,488	952	2.04
Gyeongnam	56	31	3,241	1,025	801	0.96
Jeonbuk	70	46	29,222	3,198	2,299	4.41
Jeonnam	97	108	14,516	2,948	2,147	2.06
Jeju	21	95	1,736	539	433	1.88

3. 결과 및 토의

3.1. 지역별 지하수의 우라늄과 라돈 함량 및 분포 특성

본 연구에서 조사된 681개소의 지하수는 '07~'09년 국립환경과학원의 실태조사에서 수행된 결과로, 지하수의 도별 우라늄과 라돈 함량 값에 대한 통계 자료를 Table 2에 나타내었다. 강원도(67개소)는 우라늄 <0.01~106.22 $\mu\text{g/L}$ 과 라돈 89~13,145 pCi/L, 경기도(96개소)는 우라늄 <0.01~1,757.00 $\mu\text{g/L}$ 과 라돈 167~22,059 pCi/L, 충북(91개소)은 우라늄 0.06~335.50 $\mu\text{g/L}$ 과 라돈 3~19,773 pCi/L, 충남(99개소)은 우라늄 <0.01~378.70 $\mu\text{g/L}$ 과 라돈 117~15,467 pCi/L, 경북(84개소)은 우라늄 <0.01~75.97 $\mu\text{g/L}$ 과 라돈 68~7,589 pCi/L, 경남(56개소)은 우라늄

<0.01~21.04 $\mu\text{g/L}$ 과 라돈 31~3,241 pCi/L, 전북(70개소)은 우라늄 <0.01~170.25 $\mu\text{g/L}$ 과 라돈 46~29,222 pCi/L, 전남(97개소)은 우라늄 <0.01~26.21 $\mu\text{g/L}$ 과 라돈 108~14,516 pCi/L, 제주(21개소)는 우라늄 0.03~0.56 $\mu\text{g/L}$ 과 라돈 95~1,736 pCi/L의 함량 값을 보였다.

지하수의 우라늄 함량 평균은 경기도에서 25.7 $\mu\text{g/L}$ 으로 가장 높고 경남(1.99 $\mu\text{g/L}$), 전남(1.72 $\mu\text{g/L}$)으로 낮으나 지하수의 우라늄 함량 중앙값은 충북에서 2.45 $\mu\text{g/L}$ 으로 가장 높고 경남(0.46 $\mu\text{g/L}$), 전남(0.43 $\mu\text{g/L}$)으로 낮다. 즉, 중생대 화강암이 많이 분포하는 경기, 충북, 전북, 충남의 지하수에서 다른 지역에 비하여 높은 함량을 나타내어서 지질과 지하수의 우라늄 함량과는 관계가 있음을 시사한다. 지하수의 라돈 함량은 전북에서 최고의 함량을 보

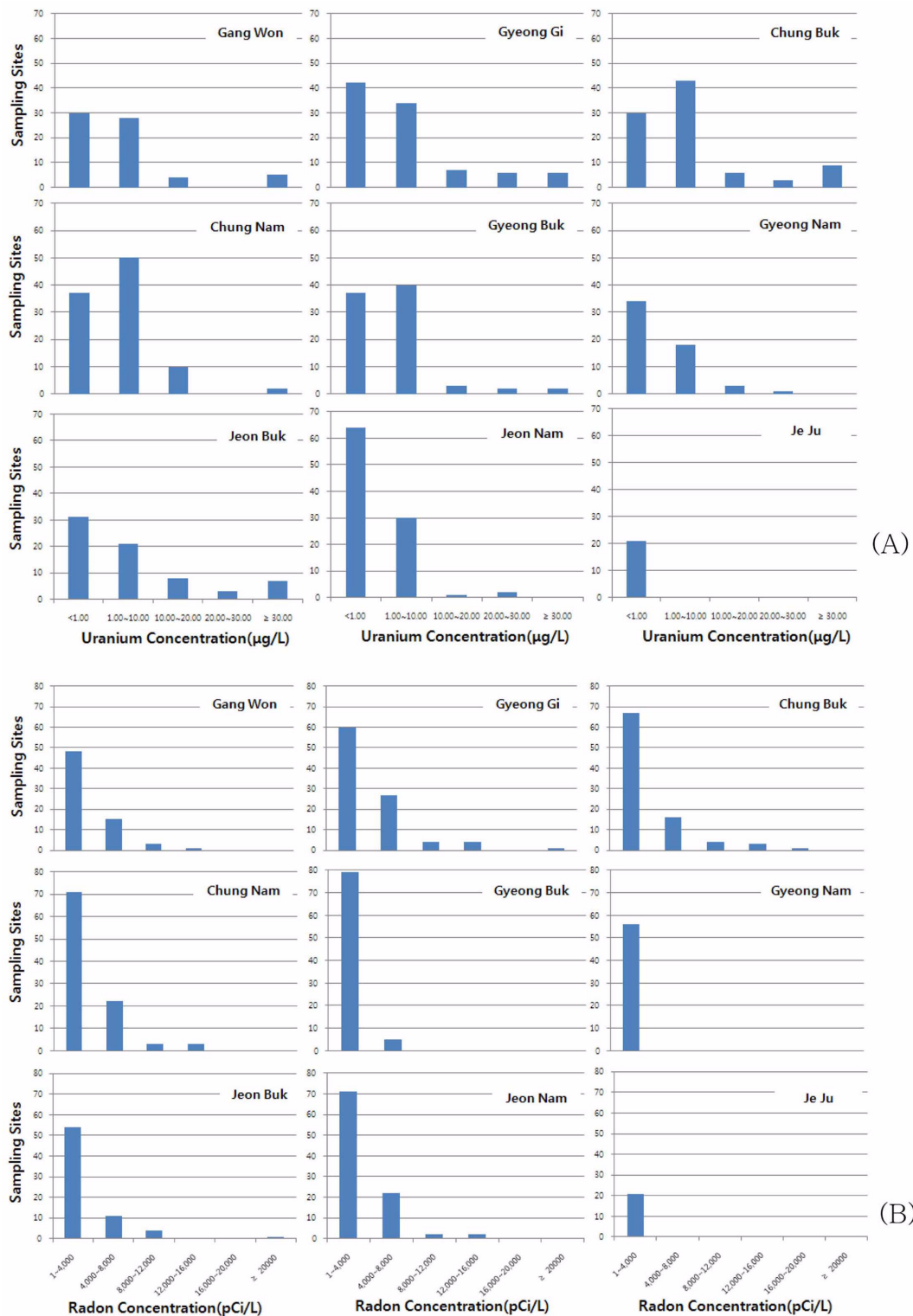


Fig. 3. Distribution of Uranium and Radon concentrations in groundwater of the nine Provinces (A: Uranium, B: Radon).

이지만(29,222 pCi/L) 평균(3,875 pCi/L)과 중앙값(3,162 pCi/L)은 경기도에서 가장 높게 나타난다. 퇴적암이 우세

한 경북과 경남의 중앙값은 각각 952 pCi/L, 801 pCi/L로 낮게 나타났다. 한편 제주도는 제 4기 현무암으로 이루어

저 있기 때문에 지하수의 우라늄, 라돈의 최고값, 평균값, 중앙값 모두 가장 낮게 나타난다. 이와 같이 지역(광역도)에 따라 지하수의 우라늄과 라돈의 함량에 차이가 있는 것은 과거 지하수의 방사성물질의 실태조사 결과와도 일치한다(성익환 외, 2002; 조병욱 외, 2006; 김태승 외, 2007).

Fig. 3의 히스토그램은 각 도별 지하수의 우라늄과 라돈의 함량에 따른 분포 개소수를 나타낸 것이다. 618개 지하수의 우라늄 함량 분포는 대부분이 10 µg/L 이하에 위치하고 있다. 경남, 전남, 제주의 경우 미국의 우라늄 기준치인 30 µg/L를 초과한 지점이 없으나 나머지 지역에서는 1개 이상의 초과 지점이 있는 것으로 나타났다. 우라늄과는 달리 라돈의 경우는 지하수 원수 681개 시료에 대하여 미국 환경청 제안치 4,000 pCi/L를 초과한 지점은 22.6% (154/681)로 나타났다. 행정구역(도)별로 보면 경기도와 충남이 상대적으로 높게 나타났지만 경남과 제주의 경우는 미국의 라돈 제안치를 초과한 지점은 없었다. Fig. 3에서 보는 바와 같이 대부분 지하수의 우라늄과 라돈 함량이 낮은 쪽으로 치우쳐 있고 일부 초과된 지점들 때문에 각 도별로 평균값과 중앙값, 왜도 값이 크게 차이가 있는 것으로 나타났는데 이는 경기도 이천지역 지하수의 우라늄, 라돈 함량 분포와도 비슷하다(조병욱 외, 2011).

3.2. 외국의 지하수중 우라늄과 라돈 함량과의 비교

국내 681개 지하수의 우라늄, 라돈 함량과의 비교를 위해서 노르웨이와 미국의 지하수중 우라늄과 라돈의 함량 값을 Table 3에 나타내었다. 국내 681개 지하수의 우라늄의 중앙값은 미국의 일리노이 주와는 비슷하게 나타났지만 노르웨이에 비하여는 훨씬 적은 값을 보여주고 있다. 라돈의 경우는 노르웨이에 비하여는 적은 값을 보이고 있지만 미국의 일부 주에 비하여는 높은 값을 나타내고 있다. 이와 같은 이유는 노르웨이 대수층의 지질은 대부분 결정질 화강암반으로 이루어져 있는 반면에 라돈과 우라늄의 값이 적게 나타난 미국의 일리노이주의 경우는 대부분이 퇴적암 지역의 지하수이기 때문으로 판단된다. 이는 중생대 화강암과 선캠브리아기 편마암이 주로 분포하는

경기, 충북, 전북, 충남 지역의 지하수에서 우라늄과 라돈의 함량이 퇴적암과 화산암 지역인 경남과 제주에 비해 높게 나타나는 것과 유사한 양상을 보여주고 있다.

3.3. 지역별 우라늄과 라돈의 상관관계

우라늄의 함량 값들이 낮게 분포하므로 우라늄과 라돈의 상관관계를 log-log 그래프를 이용하였다. Frengstad (2000)는 노르웨이의 결정질 암석 내 지하수의 우라늄과 라돈의 상관성을 log-log 그래프로 분석하여 상관계수 $r=0.58$ 값을 구하였다. Fig. 4는 광역도별 우라늄과 라돈의 상관관계를 나타낸 것으로 강원, 충북, 경기, 경북, 충남, 전남, 전북, 제주의 순으로 상관성을 보였다. 노르웨이의 결정질암내 지하수의 우라늄과 라돈 함량의 상관성이 높은 것은 조사가 대부분 결정질 암석인 화강암에서 이루어졌기 때문으로 판단된다. 국내 681개 지하수의 경우 중생대 화강암이 주로 분포하는 강원, 충북, 경기도지역 지하수의 우라늄과 라돈 함량은 노르웨이와 같이 비교적 높은 상관성이 나타났다. 신생대 4기 화산암으로 이루어진 제주지역 지하수의 우라늄과 라돈 함량간에는 상관성이 없는 것으로 나타났다.

지하수의 우라늄 함량은 모암의 우라늄 함량, 지하수의 산화-환원환경, 지하수에 용존되어 있는 중탄산염 함량 등에 의하여 영향을 받으나 지하수의 라돈 함량은 모암내 광물의 영향은 있지만 지하수의 수질과는 관계가 없는 것으로 알려져 있다(STUK, 2005; 조병욱 외, 2011). 본 연구에서는 한정된 지하수 시료를 이용하여 각 지역(도)별 지하수의 우라늄과 라돈의 함량 값에 대한 연구만 수행하였으나 향후 모암의 성분분석, 각 지역별 지하수에 대한 주성분 분석, 미량성분 분석 등의 추가 분석이 필요하다.

4. 결 론

국내 각 지역(광역도)별 지하수중 자연방사성물질의 특성을 알기 위해 지하수 681개소에 대하여 우라늄과 라돈의 분석하였다.

Table 3. Uranium and radon concentrations in groundwater from selected countries

Studied area (No. of sample)	U median (Min.~Max.)	Rn median (Min.~Max.)
Norway ¹⁾ (193)	16 µg/L (~750 µg/L)	700 Bq/L (~19,900 Bq/L)
Pennsylvania, USA ²⁾ (116)	-	(49~1,300 pCi/L)
Illinois, USA ³⁾ (116)	1.3 µg/L (0~17 µg/L)	267 pCi/L (< 80~1,300 pCi/L)
North Carolina, USA ⁴⁾ (117)	9.3 nM (ND~593 nM)	77 Bq/L (< 3~1,113 Bq/L)
Poland (654)	-	(0~92.5 Bq/L)

¹⁾ Frengstad (2000) ²⁾ USGS (2000), ³⁾ USGS (2001), ⁴⁾ David et al. (2009), ⁵⁾ Tadeusz Andrzej Przylibski et al. (2004)

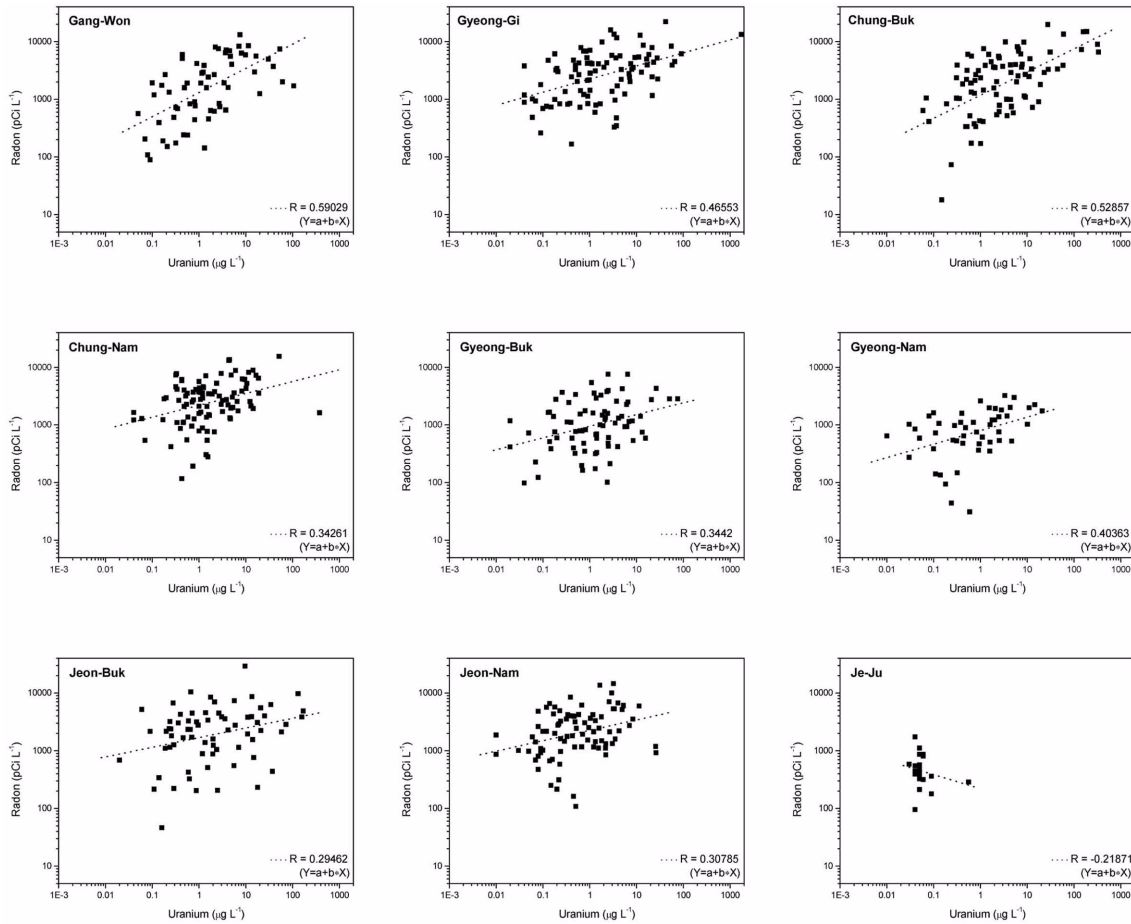


Fig. 4. Relationship between U vs Rn concentration in groundwater of the nine Provinces.

지역별 지하수의 우라늄과 라돈 함량범위는 강원도(67개소) < 0.01~106.22 µg/L 89~13,145 pCi/L, 경기도(96개소)는 < 0.01~1,757.00 µg/L과 167~22,059 pCi/L, 충북(91개소)은 0.06~335.50 µg/L과 3~19,773 pCi/L, 충남(99개소)은 < 0.01~378.70 µg/L과 117~15,467 pCi/L, 경북(84개소)은 < 0.01~75.97 µg/L과 68~7,589 pCi/L, 경남(56개소)은 < 0.01~21.04 µg/L과 31~3,241 pCi/L, 전북(70개소)은 < 0.01~170.25 µg/L과 46~29,222 pCi/L, 전남(97개소)은 < 0.01~26.21 µg/L과 108~14,516 pCi/L, 제주(21개소)는 0.03~0.56 µg/L과 95~1,736 pCi/L의 함량을 각각 보였다. 618개 지하수의 우라늄 함량은 대부분 10 µg/L 이하였으며 경남과 제주의 경우 미국의 라돈 제안치인 4,000 pCi/L를 초과한 지점이 없었다.

중생대 화강암과 선캠브리아기 편마암이 주로 분포하는 경기, 충북, 전북, 충남 지역의 지하수에서 우라늄과 라돈의 함량이 퇴적암과 화산암 지역인 경남과 제주에 비하여 높게 나타났다. 광역도별 우라늄과 라돈의 상관관계 결과

강원, 충북, 경기에서 약한 상관관계를 보였다.

사 사

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

참 고 문 헌

김문수, 유순주, 김동호, 윤정기, 노희정, 정혜성, 정동일, 정도환, 주병규, 임태숙, 박이훈, 홍상규, 2009, 지하수 중 자연방사성물질 함유실태 조사(III), 국립환경과학원, p. 227.

김용제, 조수영, 윤운열, 이길용, 2006, 극저준위 액체삼광계수기를 이용한 지하수 중 라돈(222Rn) 측정법 등 연구, 지하수토양환경, 11(5), 59-66.

김태승, 박종겸, 엄익춘, 윤정기, 정도환, 강기철, 윤대근, 권지철,

- 2007, 지하수 중 방사성물질 함유실태 조사(I), 국립환경과학원, p. 155.
- 노회정, 김태승, 박중겸, 윤정기, 김문수, 정일록, 정도환, 주병규, 전상호, 심영은, 백용욱, 2008, 지하수 중 방사성물질 함유실태 조사(II), 국립환경과학원, p. 195.
- 성익환, 조병욱, 김대업, 김건한, 박덕원, 박중권, 윤윤열, 이봉주, 이병대, 이종철, 임현철, 정강섭, 조수영, 홍영국, 장우석, 양재하, 신동천, 한인섭, 2002, 지하수 중 방사성물질 함유실태에 관한 조사연구(IV), 국립환경과학원, p. 357.
- 조병욱, 김건한, 김연기, 성익환, 안주성, 윤욱, 윤윤열, 이길용, 이병대, 이홍진, 임현철, 조수영, 홍영국, 2006, 지하수 중 방사성물질 함유실태 조사, 국립환경과학원, p. 200.
- 조병욱, 추창오, 김문수, 이영준, 윤욱, 이병대, 2011, 이천 화강암 지역 지하수의 우라늄과 라돈 함량 특성, 대한지질공학회, **21**(3), 259-269.
- 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.
- Cothern, C.R. and Rebers, P.A., 1990, Radon, radium and uranium in drinking water, Lewis publishers, p. 283.
- David S. Vinson., Avner Vengosh., Daniella Hirschfeld., Gary S. Dwyer., 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 Marcos Bonotto., 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.
- Langmuir, D., 1978, Uranium solution-mineral equilibria at low temperatures with applications to sedimentary ore deposits, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **42**, 547-569.
- Standard Method, 21st Edition, 2005.
- STUK, 2005, 238U-series radionuclides in Finnish groundwater-based drinking water and effective doses, STUK-A123, p. 94.
- Tadeusz Andrzej Przylibski, Kalina Mamont-Cie la, Monika Kusk, Jerzy Dorda, and Beata Kozowska, 2004, Radon concentration groundwaters of the Polish part of the Sudety Mountains (SW Poland), *Journal of Environmental Radioactivity*, **75**, 193-209.
- 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.
- 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 Liquid Water, *Chem. Revs*, **77**(2), 219-262.
- Wrenn, W.M., Spitz, H., Och, C.N., 1975, "Design of a continuous digital output environmental radon monitor." IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-22, 645.