

《原著》

## 국내 변성암 지역 음용지하수 중 자연방사성물질( $^{238}\text{U}$ , $^{222}\text{Rn}$ )의 환경 특성 연구

주병규 · 김문수 · 정도환 · 홍정기 · 김동수 · 노회정 · 윤정기 · 김태승\*

국립환경과학원 토양지하수연구과

## Environmental Characteristics of Naturally Occurring Radioactive Materials ( $^{238}\text{U}$ , $^{222}\text{Rn}$ ) Concentration in Drinking Groundwaters of Metamorphic Rock Areas; Korea

Byoung Kyu Ju · Moon Su Kim · Do Hwan Jeong · Jung Ki Hong · Dong Su Kim  
Hoe Jung Noh · Jeong Ki Yoon · Tae Seung Kim\*

Soil and Groundwater Division, National Institute of Environmental Research

### ABSTRACT

This study has investigated naturally occurring radioactive materials (N.O.R.M.;  $^{238}\text{U}$ ,  $^{222}\text{Rn}$ ) for 353 drinking groundwater wells in metamorphic rock areas in Korea. Uranium concentrations ranged from N.D (not detected) to 563.56  $\mu\text{g/L}$  (median value, 0.68  $\mu\text{g/L}$ ) and radon concentrations ranged from 108 to 11,612 pCi/L (median value, 1,400 pCi/L). Uranium and radon concentrations in the groundwater generally are similar to USA with similar geological setting. Uranium concentrations in 9 wells (2.6%) exceeded 30  $\mu\text{g/L}$ , which is the maximum contaminant level (MCL) by the US environmental protection agency (EPA), radon concentrations in 46 wells (13%) exceeded 4,000 pCi/L, which is the Alternative MCL (AMCL) by the US.EPA. The log-log correlation coefficient between uranium and radon was 0.32. The correlation coefficient between uranium and pH was 0.12 and the correlation coefficient between radon and temperature was -0.01. The correlation coefficient between uranium and  $\text{HCO}_3^-$  was 0.09 and the correlation coefficient between uranium and Ca was 0.11. The median value of uranium was high Chung-Buk (1.78  $\mu\text{g/L}$ ), Gyeong-Buk (1.37  $\mu\text{g/L}$ ), In-Cheon (1.06  $\mu\text{g/L}$ ) for each province. On the other hand, the median value of radon was high In-Cheon (2,962 pCi/L), Chung-Buk (2,339 pCi/L), Jeon-Buk (2,165 pCi/L) for each province. Jeon-Buk for log-log correlation coefficient is the highest (0.63) among provinces.

**Key words :** NORM (Uranium, Radon), Metamorphic rock, Groundwater, Correlation coefficient, MCL and AMCL

### 1. 서 론

환경 중 자연적으로 발생하는 방사성 물질은 크게 3가지 모핵종( $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ )에서 기원하며 대기, 물, 동·식물, 토양 및 암석에서 다양한 형태와 함량으로 존재한다. 지하수 중 자연방사성 물질은 강수가 지표에 도달하면 지하로 침투하여 토양 및 암석과 반응하고 지속적으로 방출된다. 우리나라는 중금속으로써 약 99% 이상이  $^{238}\text{U}$ 의 형태로 존재한다. 또한 반감기가  $4.468 \times 10^9$ 년으로 매우

길고 장기간 섭취시 암과 신장독성의 가능성이 있다고 보고됐다(US EPA, 2000). WHO에서는 우리나라의 위해를 방사성 독성보다는 화학적 독성에 기준하여 정하고 있다(WHO, 2011). 라돈( $^{222}\text{Rn}$ )은  $^{226}\text{Ra}$ 의 딸핵종으로 반감기가 3.82일이며 무색, 무취, 무미의 비활성 기체이고, 장기간 흡입시 폐암을 일으키는 것으로 보고됐다(WHO, 2011).

외국의 경우 자연방사성물질에 대한 조사가 1950년대부터 이루어져 미국은 약 200,000개 이상, 스웨덴은 약

\*Corresponding author : tskim99@korea.kr

원고접수일 : 2013. 4. 10 심사일 : 2013. 6. 18 게재승인일 : 2013. 6. 18

질의 및 토의 : 2013. 8. 31 까지

35,000개 이상, 핀란드는 약 30,000개 이상의 조사개수를 보이거나(USGS, 1962; Health Canada, 1968; Wrenn et al., 1975; Arvela et al., 1979; Hess et al., 1985), 우리나라의 경우 조사개수는 약 2,300여개 정도이며 인구수 대비하여 외국에 비해 적은 편이다(Kim et al., 2011). 선진국의 연구 결과에 의하면 화강암 지역에서 우라늄과 라돈이 높은 함량 값을 보이고 있는 것으로 보고되고 있다(Wathen, 1987; Cothorn and Rebers, 1990; Michel, 1990; Banks et al., 1998; David et al., 2009).

국내 화강암 지역 지하수의 자연방사성물질에 대한 연구는 일부 수행된 바 있으나(Han and Park, 1996; Cho et al., 2011; Jeong et al., 2011), 변성암 지역에 대한 연구는 미흡한 실정이다. 이에 본 연구는 1) 변성암 지역 지하수를 대상으로 현장 수질 측정 및 양·음이온 분석, 자연방사성물질(우라늄, 라돈) 분석, 우라늄과 라돈의 상관성 분석, 주요이온과 자연방사성물질과의 상관성 분석, 지역별 변성암 지역 지하수의 함량 등을 통하여 국내 변성암 지역 지하수에서 자연방사성 물질의 함량과 환경 특성을 파악하고, 2) 변성암 지역 지하수도 화강암 지역만큼 자연방사성 물질의 중요 조사지역임을 인식시키고자 하였다.

## 2. 지질조사 및 시료채취지점 선정

우리나라의 지질은 선캄브리아기부터 신생대까지 다양한 지층과 암석이 존재한다. 선캄브리아기 변성암류와 중생대의 심성암류는 우리나라 지질의 반 이상을 차지하며 선캄브리아시대의 변성암은 주로 경기육괴와 영남육괴로 나뉜다(Sigma Press, 1992).

지질 조사는 한국지질자원연구원의 1 : 50,000 및

1 : 250,000 지질도를 이용하였다. 조사지점의 지질은 시대별로 선캄브리아기 287개 지점, 시대미상 65개 지점, 중생대 1개 지점으로 선캄브리아기 변성암이 조사지질의 81%를 차지하였다(Table 1).

시료채취지점의 선정은 전국의 변성암 지역에 위치한 관정을 대상으로 수행하였으며, 음용수로 이용하고 있는 마을상수도를 대상으로 채수가 가능한 관정을 우선 선정하였다. 지역별로 조사지점수를 균등하게 선정하고자 하

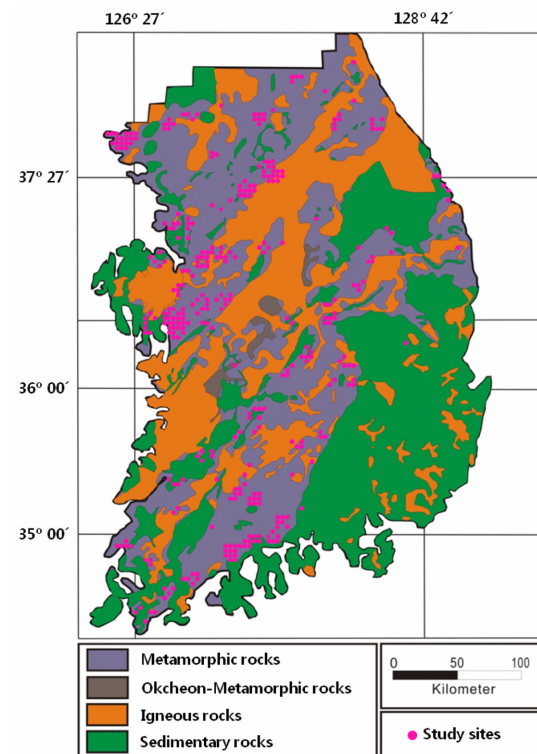


Fig. 1. The maps showing the location of sampling sites and geological setting.

Table 1. Geological age and sample sites of each province

Province	Precambrian	Unknown age	Mesozoic	Total
Gyeong Gi	81			81
Jeon Nam	42	33		75
Chung Nam	63	7	1	71
Gyeong Buk	26	9		35
Gang Won	25			25
In Cheon	19			19
Jeon Buk	12	6		18
Gyeong Nam	9	9		18
Chung Buk	8	1		9
Gwang Ju	2			2
Total	287	65	1	353

**Table 2.** QA, QC of  $^{238}\text{U}$ , anions, and cations

Species	Analytical instrument	LOD (mg/L)	LOQ (mg/L)	Measuring Conc. (mg/L)	Accuracy (%)	Precision (%)
$^{238}\text{U}$	ICP-MS	0.00001	0.00024	0.001	88.85	2.11
$\text{K}^+$	ICP-MS	0.01233	0.03927	0.5	103.49	4.09
$\text{Ca}^{2+}$	AAS	0.00825	0.02628	0.5	97.222	0.511
$\text{Na}^+$	ICP-OES	0.07387	0.23527	1.0	104.600	2.405
$\text{Mg}^{2+}$	ICP-OES	0.05617	0.17890	1.0	97.231	1.739
$\text{Si}^{4+}$	ICP-OES	0.02985	0.09507	0.5	95.622	1.818
$\text{F}^-$	IC	0.00247	0.00787	0.2	99.291	0.391
$\text{Cl}^-$	IC	0.00613	0.01952	0.2	98.592	0.962
$\text{NO}_2^-$	IC	0.00540	0.01718	0.2	99.291	0.853
$\text{NO}_3^-$	IC	0.00885	0.02820	0.2	100.287	1.414
$\text{PO}_4^{2-}$	IC	0.00699	0.02225	0.2	90.323	1.005
$\text{SO}_4^{2-}$	IC	0.00901	0.02870	0.2	99.150	1.423

였으나 변성암 지역이 많이 분포하면서 채수가 가능한 지점이 많은 경기, 전남, 충남 지역이 상대적으로 많았다 (Table 1, Fig. 1).

### 3. 시료채취 및 분석방법

#### 3.1. 시료채취

지하수 시료는 주민들이 음용으로 이용하고 있는 마을 상수도의 원수를 대상으로 채취하였다. 지하수의 현장시료 채취, 보관방법은 국립환경과학원의 지하수 중 자연방사성물질 함유실태 조사에 제시된 시험방법(안)에 준하여 행하였다(Kim et al., 2007). 우라늄 시료는 원수를 멤브레인필터(0.45  $\mu\text{m}$ , mixed cellulose ester, advantec)로 여과한 후 폴리에틸렌(Poly Ethylene) 병(125 mL)에 넣고 침전 및 흡착을 방지하기 위해 질산을 첨가하여 pH를 약 2 이하로 조절하였다. 라돈 시료는 섬광용액(Optiphase Highsafe 3, Perkin Elmer) 12 mL를 넣은 폴리에틸렌 바이알(22 mL)을 미리 준비하여 현장에서 원수 8 mL를 피펫으로 넣고 밀봉한 후 약 30회 정도 세 개 흔들어 물 중 라돈이 섬광용액으로 확산하도록 하였다. 라돈이 비활성 기체라는 점을 감안하여 인위적인 방출을 최소화 하도록 주의하였다. 양이온은 원수를 멤브레인필터로 여과한 후 폴리에틸렌 병에 넣고 질산을 첨가하여 pH를 2이하로 조절했고 음이온은 여과 후 산처리 없이 폴리에틸렌 병에 넣었다.

#### 3.2. 분석방법

분석항목은 자연방사성 물질( $^{238}\text{U}$ ,  $^{222}\text{Rn}$ ) 2항목, 양·음

**Table 3.** Measurement efficiency of  $^{222}\text{Rn}$  using  $^{226}\text{Ra}$  standard solution

Std. No.	Efficiency (%) LSC-1	Efficiency (%) LSC-2
1	90.53	89.83
2	88.86	84.26
3	92.08	85.31
Average	90.49 $\pm$ 1.61	86.38 $\pm$ 1.38

이온(Si, Na, K, Mg, Ca, F, Cl,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{SO}_4$ ,  $\text{NO}_3$ ,  $\text{PO}_4$ ,  $\text{HCO}_3$ ) 12항목, 현장항목(온도, pH, Eh, EC, DO) 5항목이다.

현장수질 항목 측정은 KS 표준에 따랐고 측정기기는 Orion 5 star(Thermo)를 사용하였다. 양이온 분석은 Standard Method 3120에 준하여 수행하였고 분석기기는 ICP-OES(Horiva & Jobin Yvon)를 사용하였다. 음이온 분석은 먹는물 공정시험기준에 준하여 수행하였고 분석기기는 IC(Metrohm 850C)를 사용하였다. 우라늄 분석은 Standard Method 3125에 준하여 수행하였고 ICP-MS(Agilent 7500 Series)를 사용하였다. 라돈 분석은 액체섬광계수법(Shin et al., 1999)을 사용하였으며 LSC(Perkin Elmer, Quantulus 1220)를 사용하였다. 우라늄 및 양·음이온의 정도관리는 Table 2에 정리하였고 라돈의 측정효율은 Table 3에 정리하였다. 라돈의 측정효율은  $^{222}\text{Rn}$ 의 표준선원이 없기 때문에 모핵종인  $^{226}\text{Ra}$  표준선원(NIST SRM 4966A, 약 287 Bq/g)을 사용하였다.  $^{226}\text{Ra}$  표준선원액을 14.35 Bq/g으로 희석한 후 섬광용액 12 mL를 미리 담은 폴리에틸렌 vial에 증류수 7 mL와 표준선원 용액(14.35 Bq/g) 1 mL를 첨가한다. vial을 30회 정도 세

**Table 4.** Statistical summary of  $^{238}\text{U}$ ,  $^{222}\text{Rn}$ , Temp., pH, EC, Eh, DO, anions, and cations

	Minimum	Maximum	Average	Median	Skewness
$^{238}\text{U}$ ( $\mu\text{g/L}$ )	ND	563.56	5.48	0.68	15.10
$^{222}\text{Rn}$ (pCi/L)	108	11,612	2,118	1,400	2
Temp. ( $^{\circ}\text{C}$ )	8.0	19.8	15.7	15.4	0.1
pH	5.30	8.32	6.94	6.87	0.42
EC ( $\mu\text{S/cm}$ )	42	1487	242	209	3
Eh (mv)	18	604	219	201	1
DO (mg/L)	0.50	7.80	4.06	4.18	
K (mg/L)	0.00	7.01	1.67	1.27	1.38
Na (mg/L)	1.67	227.57	13.93	10.69	8.79
Ca (mg/L)	4.42	279.33	25.13	20.72	6.87
Mg (mg/L)	0.32	100.12	6.42	4.73	8.04
Cl (mg/L)	1.70	779.09	22.43	9.62	8.57
$\text{SO}_4$ (mg/L)	1.10	63.55	12.52	9.95	2.16
F (mg/L)	0.01	1.90	0.35	0.27	2.04
$\text{NO}_3$ (mg/L)	0.43	121.40	18.81	13.74	2.13
$\text{HCO}_3$ (mg/L)	6.10	280.60	78.71	70.15	1.36

\*  $^{238}\text{U}$  ND (Not Detected) :  $\leq 0.01 \mu\text{g/L}$ 

게 혼든 후 LSC로 측정된 초기값과 암소에서 30일 이상 방치한 후의 나중값( $^{226}\text{Ra}$  및 딸핵종이 방사평형된 값)을 Equation 1에 대입하여 효율(%)을 산정하였다. 식 (1)은 LSC의 라돈측정 효율값을 산정하기 위한 식이며 라돈의 함량이 빠르게 반감되기 때문에 붕괴상수와 경과시간을 고려하여 효율을 산정한다. 측정된 효율값은 라돈 함량을 산정하는 계산식에 사용된다.

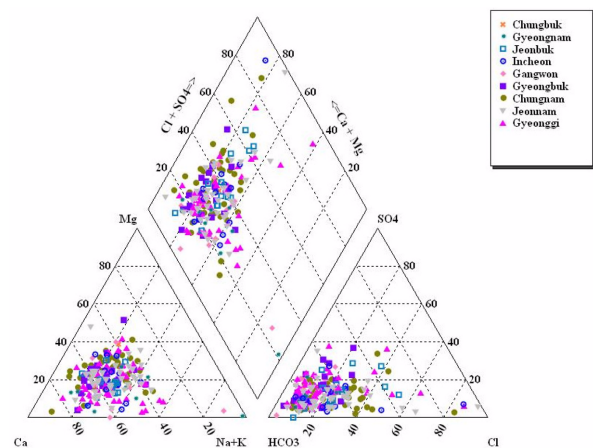
$$\varepsilon = \frac{R^* - R_0}{A_s(1 - \exp^{-\lambda t}) \times 60} \quad (1)$$

 $\lambda$ :  $^{222}\text{Rn}$  붕괴상수(0.182/일) $t$ : 채취 시부터 측정시간까지의 경과시간(일) $A_s$ : 표준선원의 방사능(Bq) $R^*$ :  $\alpha$ -선의 총 피크영역 계수율, 나중값(cpm) $R_0$ :  $\alpha$ -선의 총 피크영역에서의 백그라운드 계수율, 초기 값(cpm)

#### 4. 결과 및 토의

##### 4.1. 우라늄과 라돈의 함량 및 현장항목, 양·음이온 결과

353개 조사지점의 우라늄과 라돈 함량 및 현장항목, 양·음이온 결과값을 Table 4에 정리하였다. 전체 조사지역중에서 이온전하균형(charge balance)이 절대값 10 이내인 201개 지점의 양·음이온 데이터를 Piper diagram으로 도시하였다(Fig. 2). 양이온은 Ca 우세형, 음이온은  $\text{HCO}_3$

**Fig. 2.** Piper diagram of groundwaters in the study area.

우세형을 보인다. 대부분의 수질유형은 Ca-Na- $\text{HCO}_3$ 로 이는 화강암과 변성암에 흔히 존재하는 광물인 장석류에 존재하는 Ca, Na가 용해되었을 것으로 보인다. 이 결과는 기존에 변성암 지역에서 연구되었던 유형과 유사하다(Sung et al., 1998). Na-Cl이 다소 높은 지역은 서해안에 위치한 지역으로 해수의 영향을 고려할 수 있으며, 일부 관정은  $\text{NO}_3$  값이 높아 천부지하수의 유입과 지하수의 오염 가능성을 보여주었다.

우라늄 함량분포는 불검출( $\leq 0.01 \mu\text{g/L}$ )~563.56  $\mu\text{g/L}$ 이며, 평균값은 5.48  $\mu\text{g/L}$ , 중앙값은 0.68  $\mu\text{g/L}$ 로 나타났다. 변성암 지역에서 우라늄의 함량이 563.56  $\mu\text{g/L}$ 로 나타난

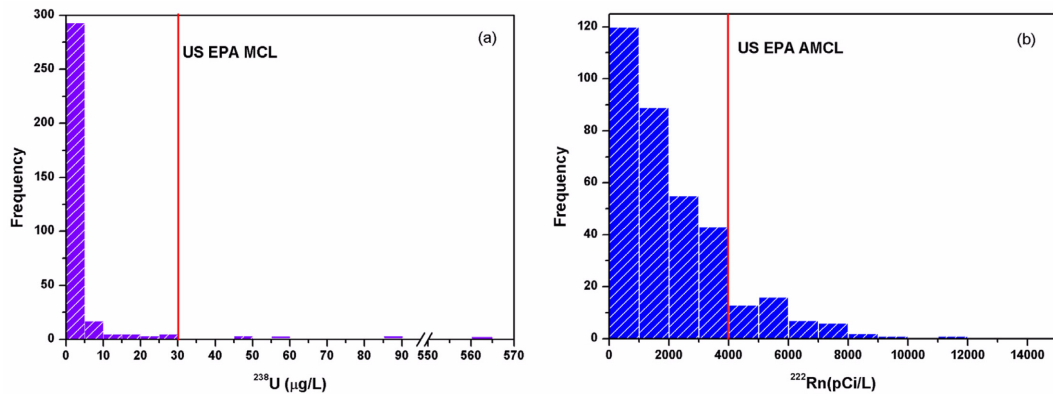


Fig. 3. Histograms of  $^{238}\text{U}$ (a) and  $^{222}\text{Rn}$ (b) concentrations in 353 groundwater samples.

Table 5. Distribution of  $^{238}\text{U}$  and  $^{222}\text{Rn}$  concentrations in groundwater throughout the study area

$^{238}\text{U}$ ( $\mu\text{g/L}$ )	Number (%)	$^{222}\text{Rn}$ (pCi/L)	Number (%)
< 1.00	214 (60.6)	< 300	20 (5.7)
1.01-5.00	95 (26.9)	300-1000	100 (28.3)
5.01-30.00	35 (9.9)	1001-4000	187 (53.0)
30.01-100.00	7 (2.0)	4001-8100	43 (12.2)
100.01 ≤	2 (0.6)	8101 ≤	3 (0.8)
Total	353 (100)	total	353 (100)

것은 화강암지역(Cho et al., 2011) 만큼이나 높은 결과다. 우라늄의 평균값과 중앙값이 최고함량에 비해 크게 낮은 이유는 대부분의 지점이 낮은 함량을 보이기 때문이다. 우라늄 함량을 일정한 범위로 구분하여 히스토그램으로 나타낸 결과, 대부분의 지점이 5  $\mu\text{g/L}$  이하를 보였다(Fig. 3(a)). 우라늄 함량 5  $\mu\text{g/L}$  이하의 지점은 309개(87.5%), 5.01~30.00  $\mu\text{g/L}$  지점은 35개(9.9%)로 조사지점의 대부분을 차지한다(Table 5). EPA의 음용수중 우라늄 기준치인 30  $\mu\text{g/L}$ 를 초과하는 지점은 총 9개(2.6%)로 나타났다. 최고값인 563.56  $\mu\text{g/L}$  지점의 지질은 선캄브리아기편마암이며 인근에 유리기흑운모화강암이 관입되어 있었다. 따라서 이 지점의 대수층이 흑운모화강암과 접촉하는 지하수에 영향을 받은 것으로 예상되지만, 지하수공의 시추를 통한 암석박편의 현미경 관찰, EPMA등을 통한 자연방사성 물질 함유 광물 파악과 지하수의 수리지화학적 특성 등 많은 연구가 필요하다. 두 번째로 높은값인 100  $\mu\text{g/L}$  지점의 지질은 선캄브리아기편마암이며 인근에 백악기퇴적암 지대가 분포하고 있었다. 이 결과는 변성암이 우세한 지질에서도 화강암지질 지역만큼 높은 방사성물질 함량을 보여준다고 할 수 있다.

라돈 함량분포는 108 pCi/L~11,612 pCi/L이며, 평균값은 2,118  $\mu\text{g/L}$ , 중앙값은 1,400  $\mu\text{g/L}$ 로 나타났다. 라돈 함량을

일정한 범위로 구분하여 히스토그램으로 나타낸 결과, 저함량이 많이 분포하고 있는 우라늄과는 달리 대부분의 지점이 4,000 pCi/L 이하이지만 그 이상의 지점도 다소 있음을 알 수 있다(Fig. 3(b)). 이를 좀 더 세분화하면 라돈 함량이 300 pCi/L 미만인 지점은 20개(5.7%), 300~4,000 pCi/L 범위의 지점은 287개(81.3%)이고, EPA의 음용수중 라돈 제안치인 4,000 pCi/L를 초과하는 지점은 46개소(13%)이며 핀란드 제안치인 8,100 pCi/L를 초과하는 지점은 3개소(0.8%)로 나타났다(Table 5). 최고값인 11,612 pCi/L 지점은 우라늄 함량이 최고인 지점이며, 두 번째로 높은 함량인 9,721 pCi/L 지점 역시 우라늄 함량이 두 번째로 높은 지점이었다. 라돈 함량이 4,000 pCi/L 초과인 지점 46개 중 우라늄이 10  $\mu\text{g/L}$  이상인 지점은 13개 지점(28.3%)이었고, 1,001~4,000 범위인 지점 187개 중 우라늄이 10  $\mu\text{g/L}$  이상인 지점은 13개 지점(7%) 이었다. 1,000 pCi/L 이하인 지점 120개 지점 중 우라늄이 10  $\mu\text{g/L}$  이상인 지점은 단 한 지점 이었다. 이런 결과로 보아 우라늄 함량이 높은 지역은 라돈 함량도 높을 가능성이 있는 것으로 보이며, 변성암 지질의 지역에서도 EPA의 기준치 및 제안치를 초과하는 고함량의 자연방사성물질이 일부 검출됨을 알 수 있다.

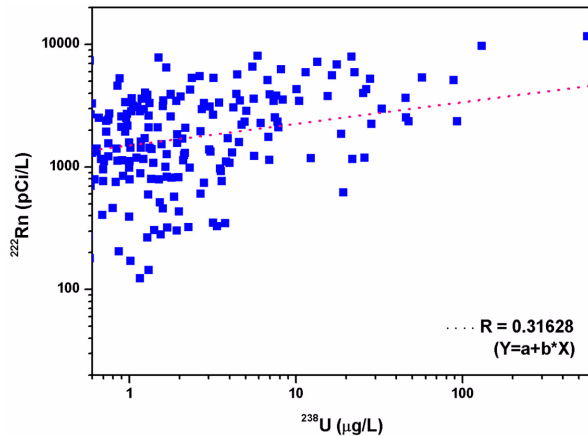


Fig. 4. Correlation between  $^{222}\text{Rn}$  and  $^{238}\text{U}$  in the groundwaters in the study area.

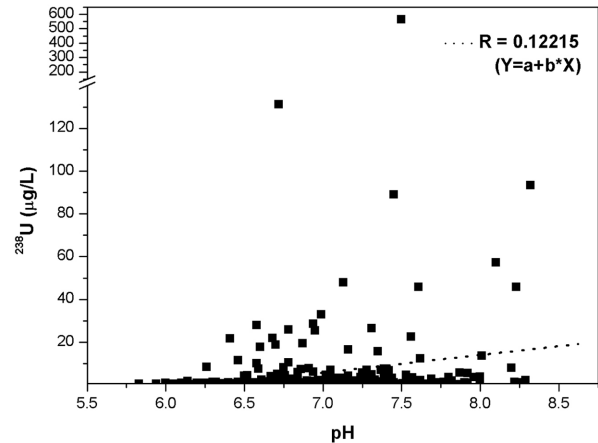


Fig. 6. Relationship between  $^{238}\text{U}$  and pH.

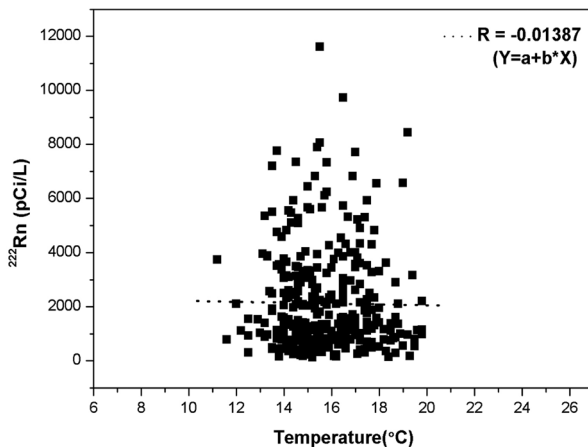


Fig. 5. Relationship between  $^{222}\text{Rn}$  and Temperature.

#### 4.2. 우라늄과 라돈 및 다른 항목들과의 상관관계

조사한 전체 지점의 우라늄과 라돈간의 상관계수를 log-log 스케일로 표현해 보았다(Fig. 4). 우라늄과 라돈의 상관계수는 0.32로 이천화강암지역(0.18; Cho et al., 2011) 보다는 높았고 노르웨이 결정질 암석지역(0.58; Frengstad, 2000)보다는 낮았다.

우라늄, 라돈은 여러 가지 환경요인에 영향을 받는다고 알려져 있는데, 먼저 라돈은 수질에 영향을 받지 않고 온도에 큰 영향을 받으며 서로 반비례하는 경향을 갖는다(STUK, 2005; Wilhelm et al., 1997). 본 연구에서는 라돈과 온도의 상관관계가 -0.01로 낮은 부의 상관관계로 나타났다(Fig. 5).

우라늄은 라돈과는 달리 모암의 우라늄 함량, 지하수의 산화·환원환경, 지하수에 용존 되어 있는 중탄산염 함량 등 다양한 영향을 받으며 pH의 범위에 따라 다양한 결합

형태를 보인다(STUK, 2005). 우라늄은 pH가 클수록 용해도가 증가한다고 알려져 있어(Langmuir, 1978) 그래프를 그려본 결과 약한 정의 상관관계(0.12)로 나타났다(Fig. 6). 본 연구에서는 조사지점 전체 지하수의 pH 범위가 약 6.0~8.3 정도로 나타났는데, 이 범위에서는 우라늄이  $\text{UO}_2\text{CO}_3$ 와  $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2$ 의 결합형태가 우세하다(Ivanovich and Harmon, 1982). 이에 따라 우라늄과 중탄산의 상관관계를 나타내 보았으나 약 0.09로 이천화강암지역(0.71; Cho et al., 2011)에 비해 낮게 나타났다(Fig. 7(a)). 물·암석 반응에 의해 용해되는 주요이온 중 많은 부분을 차지하는 Ca 이온과도 상관관계를 나타내 보았으나 약 0.11로 낮게 나타났다(Fig. 7(b)). 이는 조사지역이 전국으로 분포돼 있어 이천화강암지역에 비해 보다 다양한 수질의 영향을 받고, 천부지하수의 영향으로 상관관계가 낮게 나왔을 가능성이 있다.

#### 4.3. 지역별 우라늄과 라돈 함량

조사한 지점을 지역별(도·광역시)로 구분하여 기존에 전국적으로 조사한 결과(Jeong et al., 2011)와 비교해 보았다(Table 6). 우라늄의 중앙값은 충북(1.78  $\mu\text{g/L}$ ), 경북(1.37  $\mu\text{g/L}$ ), 인천(1.06  $\mu\text{g/L}$ ) 순으로 높았다. 최대값은 충남(563.56  $\mu\text{g/L}$ ), 전북(131.13  $\mu\text{g/L}$ ), 충북(93.24  $\mu\text{g/L}$ ) 순으로 높았고(조사지점이 2개인 광주를 제외하였음), 평균값은 전북(17.59  $\mu\text{g/L}$ ), 충북(12.09  $\mu\text{g/L}$ ), 충남(9.95  $\mu\text{g/L}$ ) 순으로 높았다. 원수가 위치한 지질은 모두 동일한 변성암 지역이지만 대수층 주변에 접촉한 상세지질에 따라 값의 편차가 발생하는 것으로 판단된다. 지질을 구분하지 않고 연구한 기존의 결과(Jeong et al., 2011)와 비교하면 다소 차이를 보인다. EPA의 기준치를 초과한 지점은 경



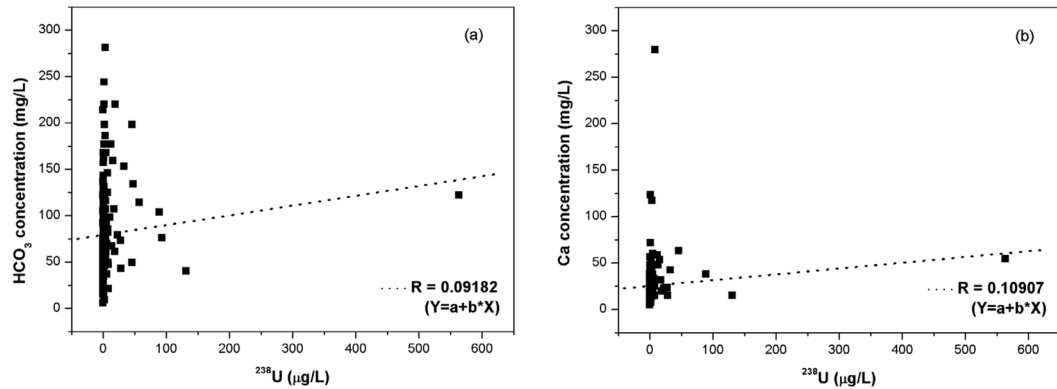


Fig. 7. Relationship between  $^{238}\text{U}$  and  $\text{HCO}_3^-$ (a), Ca(b).

Table 6. Statistical summary of uranium ( $^{238}\text{U}$ ) and radon ( $^{222}\text{Rn}$ ) concentrations of each province

(A) Uranium ( $\mu\text{g/L}$ )										
Province	Sampling sites		Minimum		Maximum		Average		Median	
	Jeong <sup>1)</sup>	This study	Jeong <sup>1)</sup>	This study	Jeong <sup>1)</sup>	This study	Jeong <sup>1)</sup>	This study	Jeong <sup>1)</sup>	This study
Gyeong Gi	96	81	<0.01	<0.01	1,757.00	57.21	25.70	5.24	1.31	0.90
Jeon Nam	97	75	<0.01	<0.01	26.21	25.83	1.72	1.59	0.43	0.32
Chung Nam	99	71	<0.01	<0.01	378.70	563.56	7.47	9.95	1.25	0.58
Gyeong Buk	84	35	<0.01	<0.01	75.97	26.46	4.26	2.82	1.34	1.37
Gang Won	67	25	<0.01	<0.01	106.22	16.55	6.86	1.88	1.29	0.66
In Cheon	—	19	—	0.14	—	17.63	—	2.85	—	1.06
Jeon Buk	70	18	<0.01	<0.01	170.25	131.13	13.20	17.59	1.54	0.87
Gyeong Nam	56	18	<0.01	<0.01	21.04	1.00	1.99	0.37	0.46	0.28
Chung Buk	91	9	0.06	0.05	335.50	93.24	18.64	12.09	2.45	1.78
Gwang Ju	—	2	—	0.05	—	19.36	—	9.71	—	9.71

(B) Radon (pCi/L)										
Province	Sampling sites		Minimum		Maximum		Average		Median	
	Jeong <sup>1)</sup>	This study	Jeong <sup>1)</sup>	This study	Jeong <sup>1)</sup>	This study	Jeong <sup>1)</sup>	This study	Jeong <sup>1)</sup>	This study
Gyeong Gi	96	81	167	155	22,059	7,895	3,875	1,888	3,162	1,254
Jeon Nam	97	75	108	108	14,516	8,432	2,948	2,436	2,147	2,085
Chung Nam	99	71	117	179	15,467	11,612	3,397	2,175	2,662	1,581
Gyeong Buk	84	35	68	123	7,589	4,311	1,488	1,378	952	1,130
Gang Won	67	25	89	143	13,145	6,438	2,830	1,797	1,744	1,213
In Cheon	—	19	—	432	—	7,762	—	3,444	—	2,962
Jeon Buk	70	18	46	203	29,222	9,721	3,198	2,539	2,299	2,165
Gyeong Nam	56	18	31	214	3,241	7,335	1,025	1,238	801	750
Chung Buk	91	9	3	170	19,773	6,101	3,373	2,586	2,284	2,339
Gwang Ju	—	2	—	615	—	5,649	—	3,132	—	3,132

1) Jeong et al., 2011

기가 4개 지점, 전북이 3개 지점, 충북과 충남이 1개로 나타났다.

라돈의 중앙값은 인천(2,962 pCi/L), 충북(2,339 pCi/L),

전북(2,165 pCi/L) 순으로 높았다. 최대값은 충남(11,612 pCi/L), 전북(9,721 pCi/L), 전남(8,432 pCi/L) 순으로 높았고, 평균값은 인천(3,444 pCi/L), 충북(2,586 pCi/L), 전북

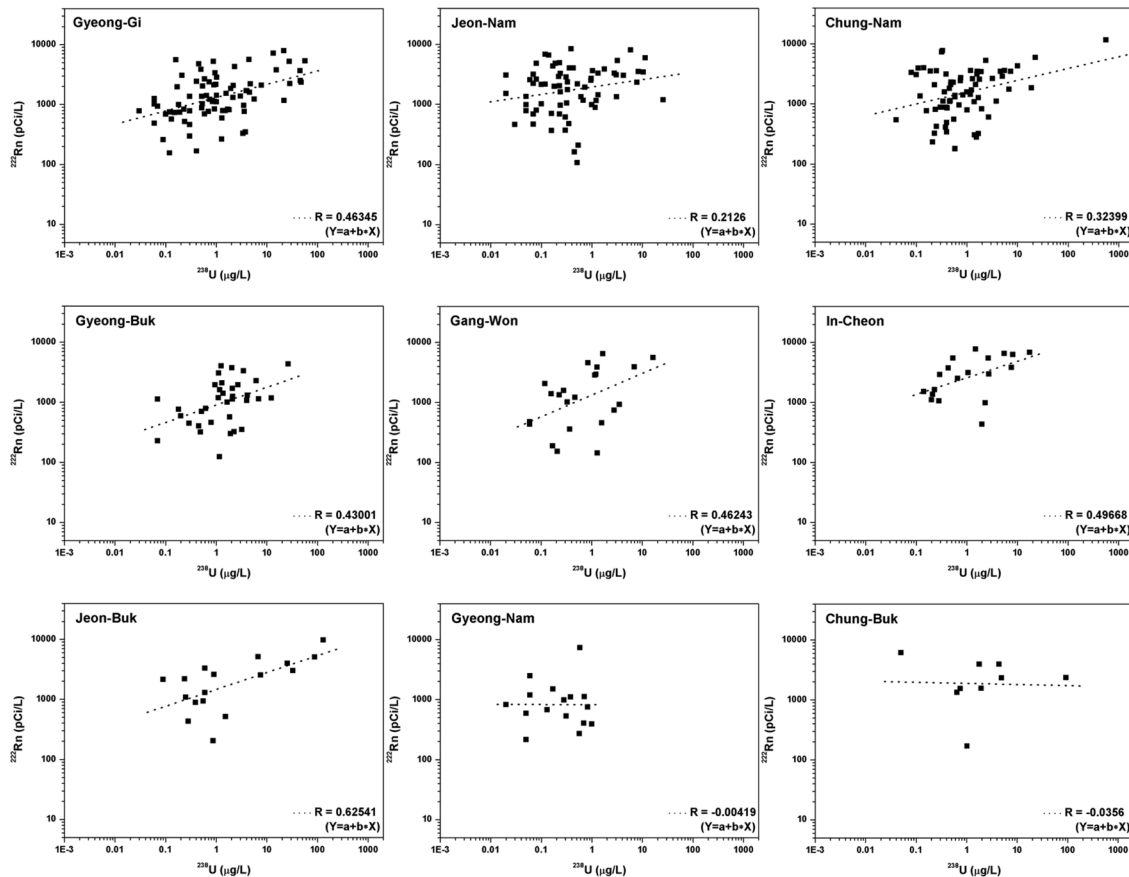


Fig. 8. Relationship between  $^{238}\text{U}$  and  $^{222}\text{Rn}$  concentration in groundwater of the provinces.

Table 7. Statistical summary of  $^{238}\text{U}$  ( $\mu\text{g/L}$ ) and  $^{222}\text{Rn}$  ( $\text{pCi/L}$ ) concentrations

Studied area	Samples	$^{238}\text{U}$ Median value (Min~Max)	$^{222}\text{Rn}$ Median value (Min~Max)
This study	353	0.68 (ND~563.56)	1,400 (108~11,612)
USA <sup>1)</sup>	61	< 0.40~1.00 (0.01~1.76)	
USA <sup>1)</sup>	346		884~2,500 (48~53,000)
Brazil <sup>2)</sup>	88	0.0835 (< 0.2~0.667)	(< 81~2,015)
Poland <sup>3)</sup>	654		(0~2,498)

1) USGS (2004), 2) Almeida et al. (2004), 3) Tadeusz et al. (2004)

\*  $^{238}\text{U}$  ND(Not Detected) :  $\leq 0.01 \mu\text{g/L}$

(2,539 pCi/L) 순으로 높았다. 전남지역은 변성암과 퇴적암이 우세한 지질이지만 화강암 지역도 일부 존재하기 때문에 높게 나타난 반면, 대부분의 지역이 퇴적암 위주로 분포되어 있는 경남지역은 다른지역에 비해 상당히 낮은 함량을 보여주는데 이 결과는 기존의 연구와 유사하다 (Jeong et al., 2011).

각 지역별 우라늄과 라돈의 상관관계를 분석해 본 결과 전북( $r=0.63$ ), 인천( $r=0.50$ ), 경기( $r=0.46$ ), 강원( $r=0.46$ ), 경북( $r=0.43$ )은 다른 지역보다 높은 상관관계를 보였다

(Fig. 8). 특히 전북지역은 다른 지역에 비해 가장 높은 상관관계를 보이는데 대해 추후 여러 요인들과의 상관분석을 연구해볼 필요가 있다.

#### 4.4. 국외 변성암 지역의 우라늄과 라돈 함량

국외 변성암 지역 지하수에 대한 우라늄과 라돈의 함량을 Table 7에 정리하였다. 미국의 경우 우라늄 함량의 범위는  $0.01\sim 1.76 \mu\text{g/L}$ 로 최대값이 우리나라와 비교하여 많이 낮았고, 중앙값은  $<0.40\sim 1.00 \mu\text{g/L}$ 로 대체로 유사했



다(USGS, 2004). 라돈 함량의 범위는 48~53,000 pCi/L로 최대값이 우리나라에 비해 5배 정도 높았으나 중앙값은 884~2,500 pCi/L로 대체로 유사하게 나타났다(USGS, 2004). 브라질의 경우에는 우라늄의 중앙값이  $8.35 \times 10^{-3}$  µg/L로 우리나라와 비교하여 많이 낮았고, 라돈 함량의 범위는 81~2,015 pCi/L로 편차가 다소 있으나 우리나라에 비해 낮았다(Almeida et al., 2004). 폴란드의 경우에도 라돈의 함량의 범위가 0~2,497 pCi/L로 편차가 다소 있으나 우리나라에 비해 낮았다(Tadeusz et al., 2004). 간추려보면 우리나라와 미국은 우라늄, 라돈 함량이 대체로 유사하게 나타났고 브라질과 폴란드는 우리나라에 비해 대체로 낮은 함량으로 나타났다. 하지만 보다 타당한 결과를 얻기 위해서는 국내 조사개수를 충분히 확보하고 외국 문헌자료를 지속적으로 축적하는 것이 필요하다고 생각한다.

## 5. 결론 및 고찰

본 연구는 국내 변성암지역 지하수에서의 자연방사성물질의 환경 특성을 알기 위하여 마을상수도로 사용되어지고 있는 지하수공 353개소에 대하여 자연방사성물질(우라늄, 라돈)과 지하수 수질(현장수질, 주요 양이온)을 분석하였다. 연구 지역의 변성암을 지질시대별로 분류하면 선캄브리아기 287개소, 시대미상 65개소, 중생대 1개소로 나타났다. 선캄브리아기 변성암이 조사지점의 81%를 차지하였다.

조사지역의 수질유형은 Ca-Na-HCO<sub>3</sub> 유형이 우세했고, 일부 관정은 NO<sub>3</sub> 값이 높아 천부지하수의 유입 혹은 오염의 가능성을 보여주었다.

우라늄 함량분포는 불검출( $\leq 0.01$  µg/L)~563.56 µg/L이며, 평균값은 5.48 µg/L, 중앙값은 0.68 µg/L로 나타났다. 우라늄 함량 5 µg/L 이하의 지점은 309개소(87.5%), 5.01~30.00 µg/L 지점은 35개소(9.9%), EPA의 음용수중 우라늄 기준치인 30 µg/L를 초과하는 지점은 9개소(2.6%)로 나타났다. 라돈 함량분포는 108 pCi/L~11,612 pCi/L이며, 평균값은 2,118 µg/L, 중앙값은 1,400 µg/L로 나타났다. 라돈함량이 300 pCi/L 미만인 지점은 20개(5.7%), 300~4,000 pCi/L 범위의 지점은 287개(81.3%)이다. EPA의 음용수중 라돈 제안치인 4,000 pCi/L를 초과하는 지점은 46개소(13%)이며 핀란드 제안치인 8,100 pCi/L를 초과하는 지점은 3개소(0.8%)로 나타났다. <sup>222</sup>Rn은 <sup>238</sup>U의 딸 핵종이기 때문에 밀폐된 공간에서 방사성붕괴가 지속적으로 발생할 경우 정비례관계가 성립되지만 일반적으로 자

연계에서 <sup>222</sup>Rn과 <sup>238</sup>U는 상관관계가 높지 않은 것으로 보고됐다. 본 연구에서는 우라늄과 라돈의 log-log scale 상관관계가 0.32로 나타나 우라늄 농도가 높은 지역이 반드시 라돈 농도가 높은 지역이 아님을 보여주었다. 이렇게 상관관계가 낮은 가장 큰 이유는 대수층의 여러 가지 복잡한 환경조건 및 우라늄과 라돈의 성상특성에 기인한다. 이 밖에 영향을 미치는 요인은 조사지점이 전국적으로 분포된 점과 일부 관정에 천부지하수의 유입으로 인한 점 등이 있다. 낮은 상관관계는 전국적으로 우라늄과 라돈이 다양한 농도로 존재함을 의미하기 때문에 위해성 평가, 저감 방법 적용, 조사되지 않은 지역의 농도예측 등에 독립적으로 적용되어야 한다는 것을 의미한다.

우라늄과 pH는 약한 정의 상관관계(0.12)를 보였고, 라돈은 온도와 약한 부의 상관관계(-0.01)를 보였다. 주요 이온들 중 우라늄과 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>의 상관관계는 0.09, 우라늄과 Ca의 상관관계는 0.11로 낮게 나타났다. 이 결과들은 우라늄과 라돈이 지중의 여러 요인들에 영향을 받기 때문이며, 현장항목 및 주요이온 등의 결과로 우라늄과 라돈을 예측하기는 매우 어려울 것으로 판단된다.

지역별 우라늄의 중앙값은 충북(1.78 µg/L), 경북(1.37 µg/L), 인천(1.06 µg/L)이 다른 지역에 비해 높게 나타났으며, 라돈의 중앙값은 인천(2,962 pCi/L), 충북(2,339 pCi/L), 전북(2,165 pCi/L)이 다른 지역에 비해 높게 나타났다.

지역별 우라늄과 라돈의 상관관계는 전북( $r=0.63$ )이 가장 높게 나타났으며, 인천( $r=0.50$ ), 경기( $r=0.46$ ), 강원( $r=0.46$ ), 경북( $r=0.43$ )지역이 다른 지역보다 높게 나타났다.

우리나라와 미국은 우라늄, 라돈의 중앙값이 대체로 유사하게 나타났으나, 브라질과 폴란드의 함량은 우리나라에 비해 대체로 낮은 것으로 나타났다.

결론적으로 변성암 지역의 지질에서도 고함량의 우라늄과 라돈이 일부 검출되는 것을 확인하였으며, 변성암 지역도 지속적인 연구가 필요한 것으로 판단된다. 향후의 연구는 조사지점의 지질뿐만 아니라 인근의 우세한 지질을 고려한 연구 및 천부지하수의 영향이 적은 관정을 위주로 진행하는 것이 필요하다.

## 사 사

본 연구는 국립환경과학원 지하수환경영향평가 중 ‘지하수 중 자연방사성물질 함유실태 조사’ 연구사업의 일환으로 수행되었습니다.

## 참 고 문 헌

- 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.
- Almeida, R.M.R., Lauria, D.C., Ferreira, A.C., and Sracek, O., 2004, Groundwater radon, radium and uranium concentrations in Regiao dos Lagos, Ril de Janeiro State, Brazil, *J. Environ. Radioact.*, **73**, 323-334.
- Banks, D., Bjorn, 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, *Sci. Total Environ.*, **222**, 71-91.
- Cothern, C.R. and Rebers, P.A., 1990, Radon, radium and uranium in drinking water, Lewis publishers, ISBN 0-87371-207-2, 286 p.
- 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 Incheon Granite, *The J. Eng. Geol.*, **21**(3), 259-269.
- David, S.V., Avner, V., Daniella, H., and Gary, S.D., 2009, Relationships between radium and radon occurrence and hydro-chemistry in fresh groundwater from fractured crystalline rocks, North Carolina (USA), *Chem. Geol.*, **260**, 159-171.
- 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, *Sci. Total Environ.*, **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 Phys.*, **48**, 553-586.
- Han, J.H. and Park, K.H., 1996, Abundances of Uranium and Radon in Groundwater of Taejeon Area, *KSEEG*, **29**(5), 589-595.
- Ivanovich, M. and Harmon, R.S., 1982, (Eds.) Uranium Series Disequilibrium. Applications to Environmental Problems, Clarendon Press, Oxford.
- Jeong, C.H., Kim, M.S., Lee, Y.J., Han, J.S., Jang, H.G., and Cho, B.W., 2011, Hydrochemistry and Occurrence of Natural Radioactive Materials within Borehole Groundwater in the Cheongwon Area, *The J. Eng. Geol.*, **21**(2), 163-178.
- Jeong, D.H., Kim, M.S., Ju, B.K., and Kim, T.S., 2011, Distribution Characteristics of Uranium and Radon Concentration in Groundwaters of Provinces in Korea, *Journal of KoSSGE*, **16**(6), 143-149.
- 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, 155.
- Kim, M.S., Han, J.S., Lee, Y.J., Kim, T.S., Kim, D.H., Kim, H.G., Noh, H.J., Kim, H.J., Yoo, J.Y., Park, S.H., Jeong, D.H., Ju, B.K., Park, Y.H., Hong, S.K., and Kim, D.S., 2011, Study on Naturally Occurring Radioactive Materials (N.O.R.M.) in Groundwater in South Korea ('11), NIER Report.
- Langmuir, D., 1978, Uranium solution-mineral equilibria at low temperatures with applications to sedimentary ore deposits, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **42**, 547-569.
- Michel, J., 1990, Relationship of radium and radon with geological formations. In C. R. Cothern, & P. A. Rebers, Radon, radium and uranium in drinking water. MI, USA: Lewis Publishers, Inc.
- Sigma Press, 1992, Geology of Korea.
- Sung, I.H., Choo, C.O., Cho, B.W., Lee, B.D., Kim, T.K., and Lee, I.H., 1998, Hydrochemical Properties of the Groundwater Used for the Natural Mineral Waters in Precambrian Metamorphic Terrains, Korea, *Journal of KoSSGE*, **5**(4), 203-209.
- Shin, H.S., Lee, C.W., Lee, M.H., Cho, Y.H., H, K.H., and Choi, G.S., 1999, A Study of the Rn-222 and Ra-226 Analysis in Aqueous Samples with a Low-Level Liquid Scintillation Counter and Pulse-Shape Analysis, *J. Anal. Sci. Technol.*, **12**(5).
- STUK, 2005,  $^{238}\text{U}$ -series radionuclides in Finnish groundwater-based drinking water and effective doses, STUK-A123.
- 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), *J. Environ. Radioact.*, **75**, 193-209.
- USGS, 1962, Data on uranium and radium in groundwater in the USA, Professional Paper No. 426.
- USEPA, 2000, National Primary Drinking Water Regulations; Radionuclides; Final Rule Federal Register, **65**.
- USGS, 2004, Chester County Ground-Water Atlas, Chester County, Pennsylvania, open-file report.
- 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.
- 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.

Wilhelm, E., Battino, R., and Wilcox, R.J., 1977, Low-pressure Solubility of Gases in Liquid Water, *Chem. Rev.*, **77**, 219-262.

Weihai, Z., Takao, I., and Xiaotong, Y., 2001, Occurrence of  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$  and U in groundwater in Fujian Province,

China, *J. Environ. Radioact.*, **53**, 111-120.

WHO, 2011, 4rd Edition of Guidelines on Drinking Water Quality.