이천지역 시추공 지하수와 시추코어내 자연방사성물질 산출 특성

정찬호^{1*} · 김동욱¹ · 김문수² · 이영준² · 김태승² · 한진석² · 조병욱³

¹대전대학교 지반방재공학과, ²국립환경과학원 토양지하수연구과,

³한국지질자원연구원

Occurrence of Natural Radioactive Materials in Borehole Groundwater and Rock Core in the Icheon Area

Chan Ho Jeong^{1*}, Dong Wook Kim¹, Moon Su Kim², Young Joon Lee²,
Tae Seung Kim², Jin Seok Han², and Byung Uk Jo³

¹Dept. of Geotechnical Engineering, Daejeon University

²National Institute of Environmental Research

³Korea Institute of Geoscience and Mineral Resources

본 연구에서는 기존조사에서 지하수내 U과 Rn-222의 산출이 높은 지역으로 알려진 경기도 이천시 관고동 민방위비상용 지하수공지역 인근에 새로운 시추공을 시추하여 지하수내 자연방사성물질의 산출특성과 암석화학적 상관관계를 알아보고자 하였다. 연구지역은 흑운모화강암 지질로 114 m 심도의 시추공을 확보하고, 더블패커를 이용하여 심도별로 지하수를 채취하여 U, Th를 포함한 화학성분과 Rn-222를 분석하였다. 그리고 시추코어 암석의 방사성물질 함유 특성을 비롯한 화학성분을 분석하였다. 심도별 4개 구간에 대해서 2차례 채취한 지하수의 pH는 6.5~8.6의 범위를 보이고, 화학적 유형은 Ca-HCO₃ 형으로 속한다. 심도별 및 시기별로 수리화학적 특성 및 자연방사성물질의 함량에서 큰 차이를 보인다. 지하수내 우라늄과 라돈-222의 함량은 8.81~1,101 ppb와 5,990~11,970 pCi/L를 각각 보여 우라늄은 3개 구간에서 Rn-222는 전 구간에서 미국 EPA 기준을 초과한다. 암석내 우라늄과 토륨의 함량은 각각 최고 18.3 ppm와 17.5 ppm을 보인다. 현미경관찰과 전자현미분석(EPMA)을 통한 자연방사성원소(U, Th)를 함유하는 광물로는 K장석, 흑운모내 포획된 광물인 모나자이트, 일메나이트, 인회석으로 확인되었다. U과 Th 성분은 광물의 주요 구성원소를 치환하여 존재하는 것으로 보인다. 시추코어내 우라늄 함량이 특징적으로 높지 않은 조건에서 지하수내 우라늄과 라돈-222 농도가 높은 것은 화학적 조건보다는 대수층 파쇄대의 파쇄정도와 지하수 유동량과 같은 물리적 요소가 더 큰 작용을 한 것으로 보인다. 라돈-222는 불활성가스인 영속기체 동위원소(³He/⁴He, ⁴He/²⁰Ne) 상관관계 분석을 통하여 간접적으로 기원을 해석할 수 있을 것이다.

주요어 : 우라늄, 라돈-222, 시추코어, 흑운모화강암, 더블패커, 수리화학, 지하수

This study investigated the relationship between the geochemical environment and the occurrence of natural radioactive materials (uranium and Rn-222) in borehole groundwater at an Icheon site. The drill core recovered from the study site consists mainly of biotite granite with basic dykes. The groundwater samples were collected at four different depths in the borehole using the double-packed system. The pH range of the groundwater was 6.5~8.6, and the chemical type was Ca-HCO₃. The ranges of uranium and Rn-222 concentrations in the groundwater were 8.81~1,101 ppb and 5,990~11,970 pCi/L, respectively, and concentrations varied greatly with depth and collection time. The ranges of uranium and thorium contents in drill core were 0.53~18.3 ppm and 6.66~17.5 ppm, respectively. Microscope observations and electron microprobe analyses revealed the presence of U and Th as substituted elements for major composition of monazite, ilmenite, and apatite within K-feldspar and biotite. Although the concentration of uranium and thorium in the drill core was not high, the groundwater contained a high level of natural radioactive materials. This finding indicates that physical factors, such as the degree of fracturing of an aquifer

*Corresponding author: chjeong@dju.kr

and the groundwater flow rate, have a greater influence on the dissolution of radioactive materials than does the geochemical condition of the groundwater and rock. The origin of Rn-222 can be determined indirectly, using an interrelationship diagram of noble gas isotopes ($^3\text{He}/^4\text{He}$ and $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$).

Key words: Uranium, Rn-222, drill core, biotite granite, double packer, hydrochemistry, groundwater

서론

지하수내에 자연적으로 발생하는 주된 방사성물질은 우라늄과 라돈-222이다. 우라늄은 높은 이동성과 긴 반감기 때문에 지하수에 비교적 높게 검출되는 미량원소이다. 자연상에서 우라늄이 인체에 노출되는 경우는 주로 지하수를 통하여 음용하는 경우이며, 음용수 우라늄이 인체에 미치는 유해성은 방사선적 영향보다는 화학적 영향에 의한 신장질환의 유발에 더 큰 유해성을 두고 있다(CEPA, 2001). 라돈-222는 불활성기체로 호흡기를 통해 흡입시 폐암을 유발하는 발암성의 유해성을 가지고 있다. 따라서 미국 EPA에서는 음용수내 우라늄과 Rn-222의 함량을 각각 30 ppb와 4,000 pCi 이하로 권고하고 있다.

지하수내 함유된 자연방사성물질에 대한 근원적으로 대처하기 위해서는 방사성물질에 대한 정확한 기원에 대한 규명이 먼저 선행되어야 한다. 우라늄 광물은 구조와 화학조성이 다양하고 복잡하므로 지표 부근이나 수성환경에서 산출하는 경우에는 지구화학적 환경의 지

시자로서 널리 활용되어져 왔다(Langmuir, 1997; Finch and Murakami, 1999; Murphy and Shock, 1999). 그러나 우라늄은 주로 암석내의 부성분으로 함유되기 때문에 광석으로 이용될 만큼 함유도가 높은 것은 많지 않다(박맹언과 김근수, 1998). 일반적인 광물들 중에서 약 5% 정도만이 결정구조적인 필수성분으로 우라늄을 함유하는 것으로 알려져 있다(Mandarino, 1999). 현재까지 우라늄을 함유하는 광물은 218종이지만, 국제광물학협회(International Mineralogical Association, IMA)가 공인한 광물은 216종이다(Gaines et al., 1997). 우라늄 광물은 지하수중 방사성 물질의 일차적인 근원물질이므로 암석 내 방사성 원소를 함유하는 광물들의 존재형태와 광물학적 정보가 중요한 요소이다(추창오, 2002).

일반적으로 비광화대에서의 U, Th과 같은 자연방사성원소의 기원은 주로 화강암과 관련되며, 화강암중에서도 흑운모와 같은 운모류 광물에 주로 함유되어 있는 것으로 알려져 있다(추창오, 2002). 그러나 정작 암석내 방사성원소를 함유하는 광물들이 어떠한 상태로 존재하

Fig. 1. Location map showing the borehole site (IC-1) in the Icheon area.

는가를 파악하는 것은 여전히 어려운 문제이다. 그 이유는 우라늄광화대 지역을 제외하면, 대부분의 암석에서 우라늄광물은 수 μm 크기의 미립자로 산출되거나, 부분 분 광물에 극소량으로 포함되고, 화학조성이 복잡하고 매우 다양하기 때문이다(Burns and Finch, 1999). 따라서 광물내 함유된 방사성원소의 농도가 특이할 정도로 높지 않는 경우 지하수내 자연방사성 물질의 기원을 해석하기에 한계성을 가질 수 있다.

본 연구의 목적은 지하수내 존재하는 자연방사성물질과 지구화학적 상관관계를 규명하기 위하여, 기존에 알려진 지하수중 자연방사성물질의 농도가 높았던 지역을 선정하여 시추지질조사와 시추코어의 암석화학적 특성 분석, 더블패커를 이용한 심도별 지하수의 자연방사성 물질 및 지화학적 성분 변화를 분석하였다. 그리고 이를 종합적으로 조명하여 자연방사성물질의 산출을 지배하는 주요 암석광물과 지하수의 화학적 상관성을 해석하였다.

시추지점으로 선정된 연구지역은 지질학적으로 흑운 모화강암지역이며, 시추지점은 행정구역상 경기도 이천시 관고동 218-2번지로 좌표 N37°16'54", E127°25'55" 지점을 연구대상 시추지역으로 선정하였다(Fig. 1). 시추지점에서 약 80 m 이격된 지점에 민방위 비상용급수 시설로 지정된 기존의 지하수공이 존재하며, 환경부 조사결과와 자연방사성물질이 높게 검출되어 현재는 음용수로 사용이 중단되었고, 생활용수로만 사용하고 있다.

연구방법

시추조사

연구대상지역의 지하지질특성과 심도별 지하수의 화학적 특성을 알아보기 위하여 시추조사를 실시하였다. 연구용 시추공의 심도는 지표하 114 m이며, 시추구경은 NX(76 mm) 규격이다. 시추공의 케이싱 심도는 지하 10 m이며, 시추공 내 지하수위는 -3.48 m에서 확인되었다. 시추를 통하여 얻어진 시추코어를 이용하여 수직적 지질특성을 기술한 지질주상도를 작성하였다. 시추코어는 화학성분 및 현미경관찰에 활용되었다.

암석광물 화학분석

시추코어 암석에 대한 지화학적 성분을 분석하기 위하여 암석종류별로 8개 시료(IC-1, IC-2, ... IC-7, IC-8)를 구간별로 채취하였다. 암석의 구성광물과 자연방사성

원소의 함유특성을 알아보기 위하여 8개의 암석박편을 제작하여 암석현미경관찰을 실시하였다. 그리고 미세조직의 관찰과 자연방사성 물질의 산출과 광물내 우라늄과 토륨의 함량을 포함한 광물의 화학성분에 조성을 알아보기 위해 후방산란전자영상(back scattered electron image, BSE)과 에너지분산분광기(Energy dispersive spectrometer, EDS)를 이용하였다. 사용한 기기는 경북대학교 공동기기센터의 EPMA(Shimadzu 1600 electron microprobe 모델)를 이용하였다. 암석의 전암분석으로 우라늄과 토륨 등 우라늄계열을 포함한 미량원소(Cr, Pb, Zn, Ni, Cu, Co, Ce, Nd, La, Ba, Sr, Be, Rb, Cs, Pr, Eu, Gd, Dy, Ho, Er, Tm, Yb) 등을 분석을 위하여 서울대학교 농업생명과학대학 농생명과학공동기기원에서 유도결합플라즈마질량기(Fison model PQ III, ICP-MS)를 이용하였다.

지하수 시료채취 및 현장수질측정

시추공에서 지하수 시료채취는 더블패커(Double-packer)로 10 m 구간별로 지하수를 채취하였다. 더블패커 시스템에 대한 모식도는 Fig. 2와 같다. 더블패커의 설치는 두개의 패커를 10 m 구간의 길이만큼 연결봉으로 연결한 후 시험구간까지는 상부 패커 위에 액셀과이프(15 mm)를 연결하여 패커를 장착시키고, 물을 이용하여 20~25 kpa의 압력으로 패커를 팽창시켜 상하부를 격

Fig. 2. Schematic diagram of the double-packer system installed in the borehole.

리시켰다. 지하수는 그린드포스사의 수중모터펌프와 Waterra사의 Power pump를 이용하여 채취하였다.

지하수 시료채취는 심도 114 m부터 10 m씩 상향 이동하면서 채취하였으며, 지하수가 존재하는 대수층 구간은 4개 구간으로 심도는 -94~-104 m 구간(IC-GG1), -84~-94 m 구간(IC-GG2), -24~-34 m 구간(IC-GG3), -0~-24 m 구간(IC-GG4)이다. 지하수 산출구간은 대체로 암석코어상의 파쇄대 구간과 대체로 일치하며, 지하수의 토출량도 파쇄정도와 대체로 비례한다.

시료채취는 1차(2011년 8월 21일)와 2차(2011년 10월 16일) 2차례에 걸쳐 이루어졌다. 지하수 시료 채취는 각 구간별로 토출관을 통해 나오는 지하수를 충분히 안정화시킨 후 대기와의 공기 접촉시키지 않는 조건에서 수소이온농도(pH), 전기전도도(EC), 산화환원전위(Eh), 용존산소량(DO), 중탄산(HCO_3)을 측정하였다. 지하수의 현장수질측정은 Orion 5 star 모델의 휴대용 측정기를 이용하였으며, 중탄산(HCO_3)은 0.05 N 농도의 HCl로 산중화적정법으로 구하였다. 지하수의 주요 양이온과 미량원소 분석, 음이온 분석, 그리고 산소와 수소의 동위원소 분석을 위하여 원수를 0.45 μm 공극을 갖는 여과지를 통과시켜 부유물질을 제거한 후 각각 60 mL의 취하여 폴리에틸렌 용기에 담았다. 이 때 양이온 시료에는 용존 이온이 용기에 흡착과 침전을 방지하기 위하여 적정량의 농질산을 첨가하여 pH를 2 이하로 유지하였다.

지하수 화학성분 및 라돈 분석

채취된 물 시료는 분석하기 전까지 냉장 보관하였으며, 물 시료에 대한 주요 양이온과 미량원소는 한국기초과학지원연구원 오창센터에서 유도결합 플라즈마 원자 방출분광기(ICP-mass optima 4300 DV, ICP-AES), 유도결합 플라즈마질량분석기(Fison model PQ III, ICP-MS)등의 장비로 분석하였다. 음이온 성분 (Cl^- , SO_4^{2-} , NO_3^- , F^-)은 기초과학지원연구원 부산센터에서 이온크로마토그래피(IC, Dionex 120i)를 이용하여 분석하였다.

라돈가스 분석을 위한 시료는 대기와의 노출을 최소화하여 22 mL시료 용기에 지하수 8 mL와 액체섬광물질(Optiphase Hisafe3) 12 mL를 첨가하여 충분히 혼합시킨 후 액체섬광계측기로 측정하였다. 라돈-222 측정은 한국지질자원연구원에서 이루어졌다.

시추코어의 지질 및 암석화학

연구지역의 지질은 쥐라기 대보화강암류인 흑운모화

Fig. 3. Geological map of the study area, showing the location of the borehole.

강암으로 주로 구성되며, 부분적으로 백악기 암맥이 관입 분포하고 있다(Fig. 3). 연구지역에 대한 일반지질에 대한 설명은 이천도폭(여상철과 임주환, 1974)을 인용하여 간략하게 기술하였다.

연구지역에 넓게 분포하고 있는 흑운모화강암은 중생대 쥐라기에 해당되는 저반형태로 관입된 대보화강암으로 심한 풍화를 받아 신선한 노두를 발견하기 어렵고 낮은 지형을 이루고 있다. 주로 담녹색이나 유백색, 남회색, 회녹색, 회갈색, 또는 담홍색을 띄며 주 구성광물은 석영, 장석, 흑운모등이며 간혹 녹리석이 소량 함유하고 있다. 중립질로서 입상 또는 등립상조성을 나타내고 있으며, 특히 장석과 석영의 입자들이 양적으로 비슷하게 함유될 경우는 대단히 풍화가 잘되어 저구릉을 형성하며, 풍화물은 유수에 의하여 운반 퇴적되어 주위에 넓은 충적층을 형성되기도 한다. 산성맥암, 석영맥, 거정질화강암맥이 흑운모화강암을 관입하고 있다.

지질주상도

시추코어의 암석특성, 단열충전광물 특성, 파쇄대, 코어 회수율 등을 포함하는 정밀한 주상도를 작성하였다(Fig. 4). 시추공의 수직적 지질특성을 보면 지표에서 -1.0 m까지 매립층이며, -1.0~-5.0 m 구간은 황갈색의 실트질 모래 풍화토로 구성된다. -5.0~-12.58 m 구간은 모암인 흑운모화강암이 풍화된 풍화암 구간이다. 풍화암 구간중 -12.58~-14.34 m 구간에서는 풍화를 받은 파쇄대 구간이며, -14.34~-43.5 m 구간은 비교적 신선한 흑운모화강암이 확인되며, -44.52~-48.7 m 구간은 신선한 복운모화강암이 확인된다. -48.7~-89.0 m 구간은 흑운모화강암이 주된 암석이며, 암회색의 중성내지 염기성암맥이 3개 구간에서 흑운모화강암과 반복적으로 나타난다.

Fig. 4. Geological column of the borehole, including the distribution of radioactive materials in groundwater and rock samples.

그리고 단열내에는 주로 석영맥이 충전되어 있으며, 일부에서는 점토질 물질이 확인되었다. -89.0~ -99.2 m 구간은 약간 어두운 회색의 암석이 주된 암석이며, -99.2 ~ -103.0 m는 흑운모화강암으로 구성되어있고 -109.6 ~ -110.2 m 구간은 심한 풍화를 받은 파쇄대가 확인된다.

파쇄대 발달 구간의 코어회수율(RQD)은 67~85%로 비교적 낮고, 상부구간인 -12.58~ -14.34 m 구간에서는 파쇄대의 발달로 코어회수율(RQD)이 67%로 낮은 값을

보인다. 그 외 구간에서는 코어회수율(RQD)이 88~100% 정도로 견고한 암질상태를 보인다.

암석 화학성분

시추코어에 대한 우라늄(U)와 토륨(Th)을 포함한 미량원소 분석결과를 Table 1에 제시되어있다. 우라늄의 함량은 0.56~18.3 ppm의 범위를 보이고 있고, 토륨은 6.66~17.5 ppm의 범위를 보인다. 가장 높은 우라늄 함량

Table 1. Concentration of trace elements in rock cores from the Icheon site.

(unit: ppm)

	IC-1	IC-2	IC-3	IC-4	IC-5	IC-6	IC-7	IC-8
Rock type	BG	BG	LG	MG	BD	BG	BD	BD
Depth (m)	-13.89	-29.09	-34.50	-47.90	-67.75	-76.34	-98.88	-105.6
Cr	0.88	1.38	N.D	1.93	N.D	0.72	N.D	0.68
Pb	5.52	5.65	3.83	10.8	27.2	9.12	32.6	7.37
Zn	27.9	28.4	6.49	46.3	21.7	39.5	16.8	48.2
Ni	0.49	0.82	N.D	1.70	0.23	0.85	0.46	0.69
Cu	0.21	0.35	0.33	7.54	0.61	1.00	0.85	2.72
Co	1.32	1.41	0.11	2.03	1.39	1.74	0.88	1.65
Ce	11.9	21.4	4.98	17.3	17.9	17.2	10.91	22.1
Nd	6.12	9.51	2.89	9.94	9.52	9.46	4.58	9.94
La	5.70	9.51	1.73	8.03	8.50	8.43	5.43	9.59
Ba	30.8	27.0	2.41	30.8	7.29	26.2	12.5	8.93
Sr	3.90	9.38	5.19	7.88	44.9	24.4	52.0	28.8
Be	0.27	0.14	0.10	0.15	0.39	0.19	0.75	0.40
Rb	2.45	1.28	N.D	2.76	0.49	2.44	0.49	2.20
Cs	1.32	1.39	0.13	1.99	2.79	1.65	3.24	0.85
Pr	1.55	2.47	0.70	2.59	2.43	2.44	1.24	2.67
Eu	0.16	0.19	0.02	0.16	0.33	0.23	0.14	0.28
Gd	1.16	1.53	0.71	1.89	1.50	1.68	0.57	1.60
Dy	0.87	0.81	0.43	1.25	0.78	1.08	0.14	0.95
Ho	0.16	0.13	0.06	0.23	0.13	0.19	0.02	0.16
Er	0.40	0.34	0.18	0.61	0.34	0.53	0.06	0.44
Tm	0.05	0.03	0.03	0.08	0.04	0.07	0.01	0.05
Yb	0.30	0.20	0.19	0.55	0.22	0.39	0.03	0.30
Th	7.41	17.5	6.66	16.9	13.4	14.4	6.34	13.5
U	0.59	2.06	10.1	18.3	1.70	4.30	0.56	1.14

BG: biotite granite, LG: Leucogranite, MG: two mica granite, BD: basic dyke

을 보이는 암석은 복운모화강암(IC-4)이며, 염기성암맥(IC-7)에서 가장 낮은 우라늄 함량을 보인다.

토륨의 경우 가장 높은 함량을 보이는 암석은 흑운모화강암(IC-2)이며, 우백질화강암(IC-3)에서 가장 낮은 함량을 보인다.

U와 Th 성분 함량은 희토류원소(REE)와 중금속, 알칼리 및 알칼리토금속등의 함량과 특별한 관계를 보이지는 않는다.

지하수의 수리화학 특성

현장 수질측정 결과

시추공 심도별로 채취된 4개 지하수 시료에 대해 현장에서 수소이온농도(pH), 산화-환원전위(Eh), 전기전도도(EC), 용존산소량(DO)을 측정하였으며, 그 결과는 Table 2에 제시되어있다.

Fig. 5에서는 시추공 심도에 따른 지하수의 pH, EC, Eh, DO의 시기별 변화특성을 보여준다. 구간별 지하수

산출량은 2.3~8.1 m³/day으로 구간에 따라 차이를 보인다. IC-GG1와 IC-GG2 구간에서 비교적 높은 산출량을 보이며, IC-GG3, IC-GG4 구간에서는 소량의 지하수 토출량을 보인다. 따라서 시추공의 주요 대수층 구간은 심도 -84~-94 m, 심도 -94~-104 m 구간이다.

2차례 현장수질 측정결과 지하수의 pH는 6.5~8.6의 범위를 보이며, 1차 시료에서는 상부에서 하부로 갈수록 pH는 6.5에서 7.3으로 증가하는 경향을 보인다. 2차 시료에서는 pH 7.2에서 8.6으로 약간 증가한 pH 특성을 보인다.

지하수의 산화-환원전위(Eh)는 -139~164 mV의 범위를 보이며, 심도별 시기별 차이를 보인다. 1차 시기는 하부로 갈수록 낮아져 음(negative)의 값을 보이고, 2차 시기는 심도 -30 m까지는 감소하는 경향을 보이다가 하부로 갈수록 다시 증가하는 경향을 보여 1차와는 반대

의 경향을 보인다.

지하수의 전기전도도는 173~279 μ S/cm의 범위를 보

Table 2. Chemical composition of groundwater samples collected at the different depth of the borehole in the Icheon site. (unit: mg/L)

Sample ID	Depth (m)	Sampling date	pH	Eh (mV)	EC (μ S/cm)	DO (mg/L)	K	Na ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Sr ²⁺	Si	Fe	HCO ₃ ⁻	Cl ⁻	SO ₄ ²⁻	F ⁻	NO ₃ ⁻	E (%)	#Q (sec)
IC-GG1	94~104	21/08/11	7.29	-139	279	0.86	3.12	16.1	41.3	3.57	1.36	9.04	0.06	153	11.7	10.8	1.05	1.94	-3.74	-
		16/10/11	8.57	-21	187	2.5	4.75	16.4	24.9	2.07	1.11	7.52	0.05	98	6.63	6.99	2.60	0.20	4.0	25
IC-GG2	84~94	21/08/11	7.04	19	265	1.81	2.67	14.8	37.1	3.35	1.17	8.74	0.39	141	10.0	10.1	0.82	2.44	-4.3	-
		16/10/11	8.48	-14	187	2.9	3.47	15.9	23.2	1.83	1.11	7.40	0.03	101	6.10	6.54	2.60	1.68	-0.7	23
IC-GG3	24~34	21/08/11	6.78	89	223	7.55	4.54	11.6	33.3	3.31	0.39	9.88	1.64	122	7.58	8.29	0.70	3.55	0.11	-
		16/10/11	7.38	-128	247	4.4	4.83	15.3	29.9	2.99	0.93	7.99	0.57	107	24.1	9.84	1.34	2.04	-3.4	81
IC-GG4	0~24	21/08/11	6.49	164	173	9.13	3.86	9.72	21.9	2.72	0.18	10.3	1.60	76	7.65	8.35	0.33	4.50	1.41	-
		16/10/11	7.17	-63	265	5.1	5.14	14.1	32.3	3.30	0.78	8.19	0.51	99	30.1	11.5	0.83	3.09	-2.2	63

*pumping time(second) required to fill a bottle of 1 liter

Fig. 5. Variations in pH, EC, Eh, and DO of groundwater samples collected from four different levels in the borehole at the Icheon site.

이며, 상부에서 하부로 갈수록 1차 시기는 증가하는 반면, 2차 시기에서는 감소하는 반대의 경향을 보인다.

지하수의 용존산소량은 상부에서 하부구간으로 향할수록 0.86~9.13 mg/L의 범위를 보이며, 심도별로 상부에서 하부로 갈수록 감소하는 경향을 보인다. 1차 시기에 비해 2차 시기에는 용존산소의 함량이 구간별 차이가 줄어들었다.

시기별 지하수의 수질특성중 전기전도도의 변화와 산화환원전위의 변화가 반대의 경향으로 특이한 특성을 보이는데, 이는 8월과 10월의 강수의 영향에 의한 것인지, 시추과정에서 주입된 시추수의 잔류 영향인지는 명확하지 않다. 시추용 주입수는 인근에서 사용되는 기존 지하수를 이용하여 주입되었으며, 시추 3주 후에 1차 시료를 채취하여 시추수의 영향을 최소화하고자 하였다. 그러나 시기별 수리화학적 변화 경향을 파악하기 위해서는 대수층이 안정화된 후 장기적 관측이 필요할 것으로 보인다.

Fig. 6은 지하수의 pH-Eh 상관관계를 보여준다. 1차 시료는 pH가 증가할수록 Eh는 감소하는 경향을 보이는데, 이는 심부로 향할수록 보여주는 일반적인 지하수의 진화환경을 보이는 반면, 2차 시료는 대체적으로 pH 증가에 따라 약간 증가하는 경향을 보인다. 이와 같은 경향과 용존산소의 심도별 차이가 크게 줄어든 것과 같이 볼 때, 2차 시기에 지하수는 상부와 하부구간 사이에 혼

Fig. 6. Relationship between pH and Eh of groundwater samples from the borehole at the Icheon site.

합이 이루어진 것으로 추정된다.

화학성분

지하수의 주요화학성분에 대한 자료는 Table 2에 제시되어있다. 지하수의 심도별 및 시료채취 시기별 지하수내 주요이온의 함량변화는 Fig. 7과 같다.

지하수내 가장 풍부한 양이온인 Ca^{2+} 은 21.9~41.3 mg/L의 범위를 보이고, Mg^{2+} 은 1.83~3.57 mg/L의 범위를 보인다. Na^+ 은 9.7~16.4 mg/L의 범위를 보이고, K^+ 은 2.67~5.14 mg/L의 범위를 보인다. Ca^{2+} 은 시기별로 차이를 보이는데 1차 시료의 경우 심도가 깊어질수록 증가

Fig. 7. Variations of the contents of major chemical composition in groundwater samples collected from four different levels in the borehole at the Icheon site.

하는 경향을 보이는 반면, 2차 시료는 감소하는 경향을 보인다. Na⁺은 지하수의 심도가 깊어질수록 증가하는 경향을 보이며, K⁺와 Mg²⁺은 차이를 보이지 않는다.

지하수내 가장 풍부한 음이온의 경우 탄산염 광물의 용해, 대기와 토양 내 CO₂ 가스의 용해와 같은 자연적 반응으로 인해 기원하는 지하수내 HCO₃⁻은 76~153 mg/L의 범위를 보인다. 심도별로 보면 1차 시료는 심도가 깊어질수록 증가하는 경향을 보이는 반면, 2차 시료는 전반적으로 농도가 낮아지며 심도별 큰 차이를 보이지 않는다. Cl⁻은 6.63~30.1 mg/L의 범위를 보이며,

SO₄²⁻은 6.99~11.5 mg/L의 범위를 보인다. Cl⁻, SO₄²⁻의 경우 1차 시료에서는 심도가 깊어질수록 약간 증가하는 반면, 2차 시료에서는 반대로 감소하는 경향을 보인다. 특히 SO₄²⁻의 함량은 상부구간에서 크게 증가하여 심부로 향할수록 크게 감소하는 경향을 보인다. F는 1차 시료에서는 상당히 낮은 함량을 보이며, 경향이 뚜렷하지 않지만, 2차 시료에서는 농도가 전반적으로 높아지면서 심도가 깊어질수록 뚜렷히 증가하는 경향을 보여 0.33~2.6 mg/L의 범위를 보인다. NO₃⁻의 농도는 0.2~4.5 mg/L의 범위를 보인다. NO₃⁻는 토양층의 유기물과의 반

Table 3. Stable isotope composition of groundwater samples collected from the borehole at the Icheon site.

Sample ID	Sampling date	$\delta^{18}\text{O}$ (‰)	δD (‰)
IC-GG1	21/08/11	-8.45	-59.4
	16/10/11	-9.08	-63.7
IC-GG2	21/08/11	-8.23	-57.0
	16/10/11	-9.10	-64.5
IC-GG3	21/08/11	-8.22	-59.7
	16/10/11	-8.82	-62.3
IC-GG4	21/08/11	-8.38	-58.2
	16/10/11	-8.69	-60.7

응과 같은 자연적인 반응에 의한 일부기원을 제외하면 생활하수나 축산폐기물 등의 인위적 오염에 의해 기원 하기 때문에 지하수 오염의 지표가 된다(Appelo and Postma, 1996). 시추공 지하수내의 함량은 비교적 낮은 값으로 지표오염의 영향은 거의 없는 것으로 보인다.

동위원소 특성

경기도 이천 시추공지하수에 대한 산소, 수소 동위원소를 분석하여 Table 3에 제시하였다. 연구지역 시추공 지하수 4점(IC-GG1, 2, 3, 4)에 대한 $\delta^{18}\text{O}$ 와 δD 값은 -9.10~-8.23‰과 -64.5~-57.0‰의 범위를 각각 보인다.

Fig. 8에서는 시추공 지하수의 δD 와 $\delta^{18}\text{O}$ 의 상관관계를 보여주는 다이어그램으로 지하수의 산소-수소 동위원소 상관관계식은 $\delta\text{D}=6.989\delta^{18}\text{O}-0.439$ 로서 이는 Craig (1961)이 제시한 순환수선(global meteoric water

Fig. 8. $\delta^{18}\text{O}$ versus δD values of groundwater samples collected from the borehole at the Icheon site.

line: $\delta\text{D}=8\delta^{18}\text{O}+10$)보다 다소 하향 이동되어 도시된다. 시기별로는 1차 지하수보다 2차 지하수 시료에서 보다 낮은 동위원소조성 값을 보인다. 이와 같은 변화가 강수의 영향인지에 대해서는 현재로서는 명확하지 않으며, 지속적인 관측이 필요할 것으로 보인다. 아울러 심도별로도 약간의 차이를 보여주어 함량지역의 고도 차이를 작은 폭이나마 반영하고 있다.

수리화학적 유형

심도별 지하수의 수질을 파이퍼도(Piper, 1944)에 도시하였다(Fig. 9). 시추공내 지하수의 화학적 유형은 Ca-HCO_3 유형으로 분류된다. 지하수의 음이온의 성분은

Fig. 9. Piper diagram showing the chemical composition of borehole groundwater samples from the Icheon site.

HCO₃⁻의 함량이 우세하고 양이온 성분은 시기별로 다소 차이가 있지만 상대적으로 Na+K의 함량이 낮고, Ca가 우세하다. 이는 화강암 대수층내 Ca²⁺ 및 HCO₃⁻ 성분

의 공급이 가능한 탄산염광물이나 Ca-장석의 영향을 반영하며 지하수의 진화초기단계로 해석될 수 있다. 즉, 정찬호 외(1997)에 의하면 화강암과 화강편마암 대수층에

Table 4. Uranium and radon-222 content in groundwater samples collected from the borehole at the Icheon site.

Sample ID	Depth (m)	Sampling date	Rn-222 (pCi/L)	Uranium (ppb)
IC-GG1	94~104	21/08/11	5,990	1,101
		16/10/11	10,570	137
IC-GG2	84~94	21/08/11	6,680	658
		16/10/11	10,270	120
IC-GG3	23~24	21/08/11	6,550	24.7
		16/10/11	9,710	41.4
IC-GG4	0~23	21/08/11	7,390	8.81
		16/10/11	11,970	29.5

Fig. 10. Relationship between radioactive materials (U and Rn-222) and chemical composition (pH, Eh and HCO₃) of groundwater samples collected from the borehole at the Icheon site.

서 지하수의 지화학적 진화단계는 초기 단계에서는 Ca-HCO_3 유형에서 시작하여 진화과정을 거치면서 Na(Ca)-HCO_3 유형과 Na-HCO_3 유형으로 점진적으로 진화되는 경향을 보이는 것으로 제시하였다.

1차 시기 지하수의 화학성분은 심도별 유형의 차이가 거의 없이 한 지점에 도시된다. 반면 2차 시기 지하수는 음이온의 함량차이로 심도별로 약간 구분되는 특성을 보인다.

자연방사성물질

우라늄과 같은 방사성 광물이 지하수중 방사성물질의 일차적인 근원물질이며, 우라늄은 천연에 존재하는 원소 중에서 가장 무거운 방사성 원소이다. 본 연구에서는 지하수내 우라늄의 화학적 독성의 측면에서 우라늄 성분을 분석하였다. 시추공 심도별 지하수내 우라늄의 함량은 8.81~1,011 ppb의 범위로 심도별 큰 차이를 보여준다. 특히 심도 -94~-104 m, -84~-94 m 구간은 미국 EPA의 기준치인 30 ppb를 초과하였다(Table 4). 시기별

로는 IC-GG3, IC-GG4 지하수는 2차에 채취된 지하수 시료가 1차에서 채취한 시료보다 우라늄 함량이 약간 증가했지만, 심부구간인 IC-GG1은 1,101 ppb에서 137 ppb로 IC-GG2 지하수는 658 ppb에서 120 ppb로 크게 감소하였다.

연구지역 시추공내 지하수의 라돈-222의 함량은 5,990~11,970 pCi/L가 검출되어, 미국 EPA의 AMCL인 4,000 pCi/L를 4구간 모두에서 초과하였다. 시기별로는 2차에 채취한 시료가 1차에 채취한 시료보다 라돈-222 함량이 크게 증가하였다. 우라늄과 Rn-222의 함량 변화는 지질주상도에 제시되었다(Fig. 4).

Fig. 10은 지하수내 우라늄과 라돈-222 함량특성과 현장수질 측정자료(pH, Eh, HCO_3)의 상관관계를 보여준다. 우라늄의 함량은 pH, Eh와는 뚜렷한 상관관계를 보여주지 않지만, HCO_3 는 1차 자료에서는 약간의 상관관계를 보여준다. Rn-222는 pH, Eh, HCO_3 와는 뚜렷한 상관관계를 보이지 않는다.

일반적으로 알려진 지하수내 우라늄의 용존에 용이한

Fig. 11. Photomicrographs showing biotite, quartz, feldspar, and muscovite in biotite granite. (a) and (c) under crossed nicols, (b) and (d) under open nicols.

조건은 중성내지 약알칼리성이며, 산화환경이고, 중탄산의 함량이 높은 환경으로 이러한 지하수환경하에서 우라늄은 우라닐탄산염 형태로 주로 존재하는 것으로 알려져 있다. 시추공 지하수의 화학적 조건과 우라늄의 함량은 일반적으로 알려진 조건과는 명확하게 일치하지는 않는다.

자연방사성물질의 산출특성

시추코어 암석화학 및 자연방사성물질 분포

암석내 방사성물질의 존재와 분포특성을 밝히기 위하여 암석현미경관찰 및 EPMA분석을 실시하였다. Fig. 11은 흑운모화강암내 구성광물의 조직과 특징을 보여주는데 벽계가 잘 발달한 갈색 내지 흑갈색의 흑운모 및 선록색을 띠는 백운모와 균열을 보이는 석영이 관찰된다.

흑운모화강암의 일부 흑운모는 풍화를 받아 지저분한 상태이며, 암맥내 광물은 비교적 신선한 편이다. 흑운모내 주로 관찰되는 방사성붕괴에 의한 방사성환

(radioactive halo)은 본 암석에서는 거의 확인되지 않았다.

광물내 방사성원소의 존재 상태를 보다 정확하게 알아보기 위하여 전자현미분석(EPMA)을 실시하였다. 후방산란 전자영상(back scattered electron image, BSE)으로 방사성원소의 존재 상태를 명암으로 확인하고, 확인된 입자에 에너지분산분광기(energy dispersive spectrometer, EDS)의 전자빔을 주사하여 정성 및 반정량 분석을 실시하여 방사성원소 존재를 확인하였다.

암석내 방사성원소를 함유 할 수 있는 부수광물로는 모나자이트(monazite), 금홍석(rutile), 인회석(apatite), 일메나이트(ilmenite) 등으로 알려져 있다(정찬호 외, 2011). 또한 일부 석영 및 장석의 입자에서도 확인되는 것으로 알려져 있다(추창오, 2002). 본 연구에서 확인된 우라늄 및 토륨을 함유하는 광물로는 모나자이트(monazite), 일메나이트(ilmenite), 인회석(apatite)으로 이들 광물은 K-장석, 염기성암맥 그리고 흑운모내 포획되어 존재한다.

Fig. 12는 IC-3 시료에 대한 BSI 영상사진과 EDS분

Fig. 12. Back-scattered electron image (BSI) and energy dispersion spectrum (EDS) showing a uranium peak in ilmenite (IC-3) included in K-feldspar.

Fig. 13. Back-scattered electron image (BSE) and energy dispersion spectrum (EDS) showing contents of U and Th in monazite inclusions (IC-5, IC-8).

석 자료이다. 분석결과 기질인 K-장석내 일메나이트(밝은 색 부분)가 장석의 기질 또는 작은 균열부분을 따라 소규모로 분포하며 일메나이트내에 우라늄 성분의 함유를 보여준다. 3개의 지점에서 상대적인 함량의 차이는 있지만 EDS 피크를 보면 장석의 주성분인 Si, Al, K,

O 피크가 확인되고 일메나이트인 Fe, Ti, O 성분과 함께 U 성분의 피크가 확인되었다.

Fig. 13은 IC-5, IC-8 시료에 대한 BSE 사진 및 EDS 피크로 IC-5-1, 2와 IC-8-1, 2 지점에서의 광물은 모나자이트로 P, O, Ce, La 성분과 함께 소량의 Pr,

Fig. 14. Back-scattered electron image (BSI) and energy dispersion spectrum (EDS) showing contents of U and Th in inclusions of monazite (IC-5-3) and apatite (IC-5-4).

Sm 성분과 함께 Th와 U 성분이 확인된다.

Fig. 14는 IC-5시료의 BSI 사진 및 EDS 피크로 IC-5-3 지점에서의 광물은 모나자이트로 P, O, Ce, La 성분과 함께 소량의 Pr, Sm 성분과 함께 Th와 U 성분이 소량 존재함이 확인된다. IC-5-4는 인회석으로 Ca, P, O, F, 와 함께 소량의 U성분이 확인되었다.

토의 및 결론

지하수내 자연방사성 물질의 산출특성을 규명하기 위하여 경기도 이천시 관고동 연구용 부지에 시추한 114 m 심도의 시추공의 모암은 주로 흑운모 화강암으로 구성되며, 복운모 화강암, 석영맥, 페그마타이트, 세립질 암맥이 곳곳에서 수반된다. 암석내 우라늄과 토륨의 함량은 각각 최고 18.3 ppm과 17.5 ppm으로 특징적인 고 함량은 보이지는 않으며, 뚜렷한 방사성환등은 확인되지 않는다. 전자현미경 분석결과 우라늄을 함유하는 광물로는 K-장석, 흑운모내 포획된 광물인 모나자이트, 일메나

이트, 인회석으로 확인되며, 우라늄은 이들 광물의 주요 구성원소를 치환하여 존재하는 것으로 보인다.

더블팩터를 이용한 4개 구간 심도별 지하수 수질화학 성분특성은 1차 시기(2011년 8월)에는 심도별 뚜렷한 차이를 보이지만, 2차 시기(2011년 10월)에는 심도별로 수질차이가 많이 감소되었다. 이는 강수의 영향인지 혹은 지하수의 구간별 혼합에 의한 영향인지는 현재로서는 명확하지 않다. 지하수의 화학적 유형은 Ca-HCO_3 형을 보인다. 지하수내 우라늄과 라돈-222의 함량도 8.81~1,011 ppb와 5,990~11,970 pCi/L의 범위를 각각 보여 심도에 따라 큰 차이를 보이며, 미국 EPA의 기준을 1개 구간의 우라늄을 제외하고는 나머지 구간 모두에서 기준을 초과한다.

지하수내 우라늄의 함량은 중탄산의 함량과 대략적으로 정의 상관관계를 보이지만 다른 수질요소와는 뚜렷한 상관관계를 보이지 않는다. 암석내 우라늄과 토륨등 방사성 원소의 함량이 특별히 높지 않는 지질조건과 지하수의 화학적 조건도 우라늄 용해에 이론적으로 이상

적인 조건이 아님에도 불구하고 시추공 지하수내 높은 우라늄과 라돈-222의 높은 함량 특성에 대한 설명은 단순한 지화학적 측면에서 접근하는데 한계가 있는 것으로 보인다.

즉, 우라늄의 용해를 높이기 위해서는 지하수의 유동 조건에 만족하는 파쇄대 대수층의 물리적 조건이 보다 중요할 것으로 판단된다. 즉, 대수층 구간의 암석내 우라늄의 함량이 국지적으로 높으며, 대수층을 이루는 파쇄대의 파쇄정도에 따라서 우라늄의 절대 용해량이 달라질 수 있을 것이다. 연구지역 시추공 하부의 파쇄대 대수층 구간에서 높은 자연방사성물질의 산출특성은 우라늄의 용해가 화학적 조건뿐만 아니라, 물리적 조건 즉, 우라늄 함유 하는 암석의 파쇄정도와 지하수의 유동량과 같은 요소가 중요할 것으로 보인다. 파쇄가 심하게 진행된 경우 암석내 우라늄의 용출이 보다 용이하며, 충분한 지하수의 유동조건을 갖춘다면 지하수내 우라늄의 용출은 보다 용이하게 진행될 것으로 보이며, 일단 지하수로 용출된 우라늄 성분이 탄산염등과의 복합체 형성이나 침전물의 생성 등을 지배하는 것은 2차적으로 고려해야할 지하수의 화학적 조건이 될 것이다.

라돈-222와 우라늄과도 뚜렷한 상관관계를 보이지 않아 라돈-222의 생성기원이 암석기원보다는 심부기원의 영향도 배제할 수 없을 것이다. 이에 대한 상관성을 규명하기 위해서는 지하수내 라돈가스와 더불어 동일 속에 속하는 불활성기체인 영족기체의 동위원소($^3\text{He}/^4\text{He}$, $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$) 조성비를 분석을 통하여 간접적인 해석이 가능할 것으로 보인다.

사 사

이 연구는 환경부의 "지하수중 자연방사성물질 정밀 조사연구('11)" 과제의 연구비로 수행되었다. 현장조사에 도움을 준 지반방재공학과 지반환경공학실험실 학부생들에게 감사한다.

참고문헌

- 박맹언, 김근수, 1998, 계명산층 페그마타이트에 수반되는 우라늄토륨 광상의 지구화학적 특성, 자원환경지질, 31(5), 365-376.
 여상철, 임주환, 1974, 한국지질도, 1:50,000(이천도폭), 국립지질광물연구소, 15p.
 정찬호, 김문수, 이영준, 한진석, 장호근, 조병욱, 2011, 청원지역 시추공 지하수의 수리화학 및 자연방사성물질 산출특성, 지질공학, 21(2), 163-178.
 정찬호, 김천수, 김통권, 김수진, 1997, 편마암-물 반응계

- 에서 지하수의 지화학적 진화 및 이차광물 생성에 관한 반응경로 모델링, 광물학회지, 10(1), 33-44.
 추창오, 2002, 대보화강암내 함우라늄 광물의 산출특징과 존재형태의 중요성, 광물학회지, 15(1), 11-21.
 Appelo, C. P. J. and Postma, D., 1996, Geochemistry, groundwater and pollution, A. A. Balkema Publisher, Rotterdam, 536p.
 Burns, P. C. and Finch, R.(eds.), 1999, Uranium: Mineralogy, Geochemistry and the Environment, Reviews in Mineralogy, Vol. 38, Miner. Soc. America, Washington, 679p.
 CEPA (California Environmental Protection Agency), 2001, Public health goals for uranium in drinking water. CEPA, California, 30p.
 Craig, H., 1961, Isotopic variation in meteoric water, Science, 133, 1702-1703.
 Finch, R. and Murakami, T., 1999, Systematic and Paragenesis of Uranium Minerals. In: Burns, P. C. and Finch, R. (eds.), Uranium: Mineralogy, Geochemistry and the Environment. Reviews in Mineralogy, 38, Miner. Soc. America, 91-179.
 Gaines, R. V., Skinner, H. C. W., Food, E. E., Mason, B., Rosenzweig, A., King V. T., and Dowty, E., 1997, Dana's new Mineralogy, 8th Ed. Wily and Sons, New York, 1819p.
 Langmuir, D., 1997, Aqueous Environmental Geochemistry. Prentice-hall. New Jersey. 600p.
 Mandarino, J., 1999, Fleischer's Glossary of Mineral Species. Mineralogical Record, Tucson, Arizona, 326p.
 Murphy, W. M. and Shock, E. L., 1999, Environmental aqueous geochemistry of actinides. In: Burns, P. C. Finch, R. (eds.), Uranium: Mineralogy, Geochemistry and the Environment. Reviews in Mineralogy, Vol. 38, Miner. Soc. America, 221-253.
 Piper, A. M., 1944, A graphic procedure in the geochemical interpretation of water analyses. Transactions of American Geophysical Union, 25, 914-923.

2012년 2월 15일 원고접수
 2012년 3월 16일 수정일자
 2012년 3월 19일 게재확정

정찬호

대전대학교 지반방재공학과
 300-716 대전광역시 동구 용운동 96-3
 Tel: 042-280-2573
 E-mail: chjeong@dju.kr

김동욱

대전대학교 지구시스템공학과
 3000-716 대전광역시 동구 용운동 96-3
 Tel: 042-280-2577
 E-mail: hoppy3@nate.com

김문수

국립환경과학원 토양지하수연구과
인천시 서구 난지로 184 (경서동 종합환경연구단지)
Tel: 032-560-7907
E-mail: hyd009@korea.kr

이영준

국립환경과학원 금강물환경연구소
충북 옥천군 옥천읍 지용리
Tel: 043-730-5600
E-mail: 8djoony@korea.kr

김태승

국립환경과학원 토양지하수연구과
인천시 서구 난지로 184 (경서동 종합환경연구단지)
Tel: 032-560-8360
E-mail: tskim99@korea.kr

한진석

국립환경과학원 환경기반연구부
인천시 서구 난지로 184 (경서동 종합환경연구단지)
Tel: 032-560-8300
E-mail: nierhan@me.go.kr

조병욱

한국지질자원연구원 환경지질연구본부
대전광역시 유성구 과학로 92
Tel: 042-868-3083
E-mail: cbw@kigam.re.kr