

# 지하수 내 우라늄-238 및 라돈-222 산출과 헬륨 동위원소와의 상관성 연구

정찬호<sup>1</sup> · 이유진<sup>2\*</sup> · 이용천<sup>2\*</sup> · 홍진우<sup>3</sup> · 김천환<sup>3</sup> · Keisuke Nagao<sup>4</sup> · 김영석<sup>5</sup> · 강태섭<sup>5</sup>

<sup>1</sup>대전대학교 건설안전방재공학과 교수, <sup>2</sup>대전대학교 건설안전방재공학과 박사과정,  
<sup>3</sup>대전대학교 건설안전방재공학과 석사과정, <sup>4</sup>한국해양과학기술원 극지지구시스템연구부 연구원,  
<sup>5</sup>부경대학교 지구환경과학과 교수

## Occurrence of Uranium-238 and Rn-222 in Groundwater and Its Relationship with Helium Isotope

Chan Ho Jeong<sup>1</sup> · Yu Jin Lee<sup>2\*</sup> · Yong Cheon Lee<sup>2\*</sup> · Jin Woo Hong<sup>3</sup> · Cheon Hwan Kim<sup>3</sup> · Keisuke Nagao<sup>4</sup> · Young-Seog Kim<sup>5</sup> · Tae-Seob Kang<sup>5</sup>

<sup>1</sup>Professor, Department of Construction Safety and Disaster Prevention Engineering, Daejeon University

<sup>2</sup>Ph.D. Student, Department of Construction Safety and Disaster Prevention Engineering, Daejeon University

<sup>3</sup>Master Student, Department of Construction Safety and Disaster Prevention Engineering, Daejeon University

<sup>4</sup>Researcher, Division of Polar Earth System Science, Korea Polar Research Institute

<sup>5</sup>Professor, Department of Geological Environmental, Pukyong National University

### Abstract

The purpose of this study is to elucidate the relationship between occurrence of natural radioactive materials such as <sup>238</sup>U and <sup>222</sup>Rn and original mixing ratio of helium isotope of groundwater from various geology, and to suggest the underground aquifer environment from helium original mixing data. 9 groundwater samples were collected from five study areas, and <sup>238</sup>U, Rn-222 and helium isotope were analyzed. A high <sup>238</sup>U content of the range of 218~477 µg/L in the groundwater occurs in the two-mica granite. <sup>4</sup>He air-crust mixing ratio and the Rn-222 content show a rough relation, that is, Rn-222 content increases according to the increase of <sup>4</sup>He crust mixing ratio. Because of helium and radon are an inert gas, their behavior in underground environment is assumed as an analogous. The <sup>238</sup>U content and He isotope in groundwater does not show any distinct correlation. The groundwater can be classified as three groups (air, air-crust mixing, crust-mantle mixing origin) on the diagram of <sup>3</sup>He/<sup>4</sup>He vs <sup>4</sup>He/<sup>20</sup>Ne, which is composed of original mixing line from air-crust-mantle end members. This original mixing of helium can provide the information of underground aquifer characteristic such as the connection with surface environment or isolation condition from air environment.

**Keywords:** U-238, Rn-222, He isotope, two-mica granite, air-crust helium mixing ratio

### 초 록

본 연구는 다양한 지질의 지하수(대전, 청원, 춘천, 이천, 괴산 지역) 내 우라늄-238 및 라돈-222와 같은 자연방사성물질의 산출과 헬륨 동위원소와의 상관성을 해석하고, 헬륨의 기원별 혼합비를 분석하여 대

### OPEN ACCESS

\*Corresponding author: Yu Jin Lee  
E-mail: geoabby20@naver.com

\*Co-corresponding author: Yong Cheon Lee  
E-mail: dydcjs159@naver.com

Received: 10 December, 2021

Revised: 13 December, 2021

Accepted: 14 December, 2021

© 2021 The Korean Society of Engineering Geology



This is an Open Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

수층의 지표환경과의 연관성을 추론하고자 하였다. 이를 위하여 연구지역에서 9개의 지하수 시료를 채취하여 우라늄-238, 라돈-222,  $^3\text{He}/^4\text{He}$  동위원소를 분석하였다. 분석결과 복운모화강암 지역의 지하수에서 우라늄-238의 농도가 218~477  $\mu\text{g/L}$ 의 범위로 높은 함량을 보여주었다. 지하수의  $^4\text{He}$  대기-지각 혼합비와 라돈-222 함량과는 상관성 있는 경향을 보여준다. 즉, 지각기원  $^4\text{He}$ 비가 높을수록 라돈의 함량이 높은 경향을 보인다. 그러나 헬륨과 우라늄-238과의 상관성은 거의 보여주지 않는다. 헬륨과 라돈은 불활성기체이므로 지하환경에서 거의 유사한 거동을 보이는 반면, 무기이온인 우라늄-238과 불활성기체인 헬륨은 그들의 거동 자체가 다르기 때문이다. 대기-지각-맨틀 기원의 헬륨 혼합비를 보여주는  $^3\text{He}/^4\text{He}$  vs  $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$  상관관계도에서 지하수는 3개의 그룹(대기, 대기-지각혼합, 지각-맨틀 혼합)으로 구분된다. 연구결과는 헬륨의 기원별 혼합비를 통하여 지하수 대수층의 환경과 지표환경과의 상관성 해석을 위한 도구로 활용될 수 있음을 시사한다.

**주요어:** 우라늄-238, 라돈-222, 헬륨 동위원소, 복운모화강암, 대기-지각 헬륨 혼합비

## 서론

지하수 내 우라늄-238과 라돈과 같은 자연방사성물질의 기원은 지하수가 접촉하는 대수층 암석 내 함유된 우라늄-238과 토륨으로부터 화학적 반응에 의해 용해될 수 있다. 권고치(기준치) 이상의 우라늄-238을 함유한 지하수를 장기간 음용할 경우 신장독성을 유발할 수 있으며(WHO, 2011), 우라늄-238의 붕괴산물인 라돈-222는 폐암을 유발할 수 있는 것으로 알려져 있다(USEPA, 1999). 이와 같은 자연방사성물질의 유해성에 관한 연구는 세계적으로 많은 연구가 있었으며, 특히, 음용수로 사용하는 지하수 내 고함량 우라늄-238, 라돈-222 산출에 대한 많은 보고되었다. 국외의 경우, 1960년대 이후부터 지하수 내 우라늄-238과 라돈에 대한 연구가 시작되었고, 화강암 지역에서 이들의 농도가 높은 것으로 알려졌다(Wathen, 1987; Betcher et al., 1988; Banks et al., 1998). 국내의 경우, 음용수로 사용하는 지하수 내 우라늄-238, 라돈-222 산출에 대해서 Han and Park(1996)에 의해 최초로 보고된 이후 관련한 연구가 지속되었다(Kim et al., 2014; Jeong et al., 2011, 2012, 2013, 2016a; Yun et al., 2018; Lee et al., 2019). 비광화대에서 우라늄-238이 함유되는 암석은 주로 흑운모 화강암과 복운모화강암이며, 화강암의 주요 구성광물인 흑운모와 사장석 내 함유된 모나자이트, 저어콘, 에피도트와 같은 미량광물에 우라늄-238이 함유되어 있다고 보고되었다(Jeong et al., 2013; Choo, 2002). 우라늄-238은 이동성과 긴 반감기로 상대적으로 지하수 내 다량으로 함유된다(Cowart and Osmond, 1980). 라돈-222는 3.82일의 반감기를 가지고 있어 지하수 내 우라늄-238보다 이동성이 떨어지지만, 지하수와 접하는 암석의 영향을 직접적으로 받는 것으로 알려져 있으며(Michel, 1990), 화강암과 화강편마암 지역이 화산암이나 퇴적암 지역 지하수보다 더 높은 농도로 산출되는 것으로 보고되었다(King et al., 1982; Loomis, 1987; Cho, 2018).

헬륨 동위원소비( $^3\text{He}/^4\text{He}$ )는 지질환경이나 시간에 따라 큰 차이를 보이며,  $^3\text{He}$ 는 지구 형성 초기나 운석 내 포획된 원시 헬륨이고,  $^4\text{He}$ 는 암석 내 함유된 우라늄-238, 토륨의  $\alpha$  붕괴 시 생성된다.  $^3\text{He}$ 과  $^4\text{He}$ 는 각각 뚜렷한 기원을 가지고 있어 헬륨동위원소비는 지하수 및 지열수 연구에 많이 적용되고 있다. 국외의 경우, 헬륨 동위원소비( $^3\text{He}/^4\text{He}$ )를 이용한 대수층에서의 지하수 이동과정,  $^4\text{He}$ 를 통한 지하수 연대 측정, 지하수 기원 및 순환과정의 추적자(tracer) 역할로서 헬륨과 라돈-222의 특성연구 등 비활성기체의 동위원소 조성비를 이용한 연구가 진행되어왔다(Aka et al., 2001; Andrews, 1985; Solomon et al., 1996; Quattrocchi et al., 1999; Top et al., 2001; Morikawa et al., 2005; Kulongoski and Hilton, 2012). 국내의 경우, Jeong et al.(2007)에 의해 온천수 내 헬륨동위원소 특성이 처음 소개되었으며, 이후 온천수의 수온과 헬륨과의 상관성 및 헬륨가스의 혼합기원 연구가 진행된 바 있다(Jeong et al., 2016b; 2019).

본 연구에서는 지하수 내 우라늄-238, 라돈-222와 같은 자연방사성물질이 높게 검출되는 대전, 청원, 춘천, 이천, 괴산 지역의 대표적 지하수를 대상으로 헬륨, 네온과 같은 노블가스 동위원소( $^3\text{He}/^4\text{He}$ ,  $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ )의 존재비를 분석하여, 다양한 지질에 따른 지하수 내 우라늄-238, 라돈-222 산출과 헬륨 동위원소와의 상관성을 해석하고자 하였다.

## 연구 방법

### 지하수 시료 채취

이 연구를 위하여 5개 지역에서 9점의 지하수 시료를 채취하였다. 세부적으로 대전 3지점(DJ1, DJ2, DJ3), 청원 2지점(CW1, CW2), 춘천 2지점(CC1, CC2), 이천 1지점(IC25), 괴산 1지점(GS1)에서 지하수 시료를 채취하여 우라늄-238, 라돈-222, 헬륨 및 네온 동위원소를 분석하였다.

### 우라늄-238 및 라돈-222 분석

채취된 지하수 시료는 0~4°C 냉장 보관 상태로 보존하였고, 지하수 내 우라늄-238은 유도결합플라즈마 질량분석기(Fison model PQ, ICP-MS)를 사용하여 분석하였다. 라돈-222는 반감기가 3.82일인 점을 고려하여 시료를 대기와의 접촉을 최대한 최소화 하였고, 22 mL 유리용기에 지하수 시료 15 mL와 액체섬광물질(MINERAL OIL) 5 mL를 첨가하여 5 분 동안 충분히 혼합시킨 후, 액체섬광계측기를 사용하여 분석하였다. 이상의 분석은 한국기초과학지원연구원 오창센터에서 분석하였다.

### 노블가스 동위원소 분석

지하수 내 노블가스 동위원소 분석을 위해 동경대학교 지각화학연구실에서 사용하는 특수 개발한 양쪽 고진공 개폐기가 있는 진공유리용기를 이용하여 채취하였으며, 용기의 체적은 약 50 cm<sup>3</sup>이고 물속에 용존된 노블가스는 금속재질로 제작된 토플러펌프시스템으로 추출하였다. 토플러펌프시스템은 극 저준위의 영족기체 배경치를 가진 환경에서 측정할 수 있는 장치이며, 토플러 펌프를 이용하여 지하수에서 영족기체 두 개의 Ti-Zr 포집자를 이용하여 정화시켰다. 그리고 참숯 포집자와 저온 냉각된 스테인리스 강철 포집자를 이용하여 He, Ne 가스군으로 분리하였다. 영족기체의 절대량과 He, Ne 동위원소비는 VG5400(MS-Ⅲ) 동경대학교 지각화학연구실의 영족기체 질량분석기로 분석하였다. 질량분석기의 민감도와 동위원소 질량분리능의 수정 요소는 알려진 표준대기의 가스함량을 측정함으로 결정하였다.

## 연구지역 지질

5개 지역 지하수 관정지역 지질은 괴산도폭(Lee and Kim, 1972), 가평도폭(Kim et al., 1974), 청주도폭(Kwon and Jin, 1974), 이천도폭(Yeo and Lim, 1974), 유성도폭(Park et al., 1977), 대전도폭(Lee et al., 1980b), 미원도폭(Lee et al., 1980a), 양구도폭(Choi et al., 2007)의 1:50,000 지질도를 참조하여 간략하게 기술하였다(Fig. 1).

대전지역 DJ1 지점은 대전광역시 유성구 외삼동으로 지질은 시대미상의 중립질 편상화강암으로 이루어져 있고, 주로 석영, 사장석, 미사장석, 흑운모로 구성되어 있다. 흑운모편마암을 관입하고 있으며, 복운모화강암, 홍색장석화강암 및 산성암맥류에 의하여 관입 당하고 있다. DJ2 지점은 대전광역시 서구 정림동으로 중생대 쥐라기 중립질 복운모화강암으로 이루어져 있고, 페그마타이트를 함유하고 있다. 주요 광물은 사장석, 흑운모, 미사장석, 석영, 정장석 등이다. DJ3 지역은 대전광역시 서구 갈마동으로 중생대 중립질 내지 세립질 복운모화강암으로 구성되어 있다. 주로 페타이트, 석영, 사장석, 미사장석 및 흑운모를 구성되어 있으며, 홍색장석화강암, 그레노파이어 등의 맥암류가 관입하고 있다.

청원지역 CW1 지점은 충청북도 청원군 미원면 옥화리이며, 지질은 고생대 오도비스기-캠브리아기 옥천누층군 화전리층으로 이루어져 있다. 화전리층은 석회암세일과 니질암이 우세한 하부층과 석회암이 우세한 상부층으로 구분되며 방해석맥이나 석영의 세맥이 충전하고 있다. 구성광물은 흑운모, 백운모, 석영, 방해석 그리고 탄질물로 되어 있으며, 여기에

녹니석과 불투명광물이 수반되며, 곳에 따라 흑운모와 방해석으로만 이루어지는 부분도 있다. CW2 지점은 충청북도 청원군 부용면 갈산리 지역으로 지질은 중생대 쥐라기 반상화강암으로 이루어져 있다. 주로 석영, 정장석, 흑운모, 각섬석으로 구성되어 있으며, 흑운모 호상편마암이나 화강암질 편마암을 관입하고 있다.

춘천지역 CC1 지점은 강원도 춘천시 사북면 고성리 지역으로, 지질은 중생대 쥐라기 복운모화강암으로 이루어져 있다. 중립질 내지 조립질의 화강암이며, 주로 석영, 사장석, 알칼리 장석, 흑운모, 백운모로 구성되어 있고 부분적으로 석류석을 함유하고 있다. CC2 지점은 강원도 춘천시 남산면 광판 1리 지역으로 지질은 선캄브리아기 의암층군 동산층으로 이루어져 있다. 하위층은 안상편마암층이고 상위층은 호상편마암층으로 구성되어 있다.

이천시 IC25 지점은 경기도 이천시 관고동 지역으로 지질은 중생대 쥐라기 중립질 흑운모화강암으로 이루어져 있다. 주로 석영, 장석, 흑운모로 구성되어 있으며, 간혹 녹니석이 소량 함유되어 있으며, 석영맥이나 반화강암맥, 규장암맥 혹은 거정질화강암맥과 그 이외 작은 중성암맥들이 다양한 방향으로 관입 되어 있다.

괴산지역 GS1 지점은 충청북도 괴산군 연풍면 유하리 지역으로 지질은 고생대 오르도비스기 옥천층군 화전리층과 중생대 백악기 불국사 화강반암으로 구성된다. 주로 하부로부터 암회색점판암 내지 운모편암, 결정질석회암 및 흑색석회규산암으로 구성되며, 화강반암에 부분적으로 애플라이트가 혼재되어 있다.

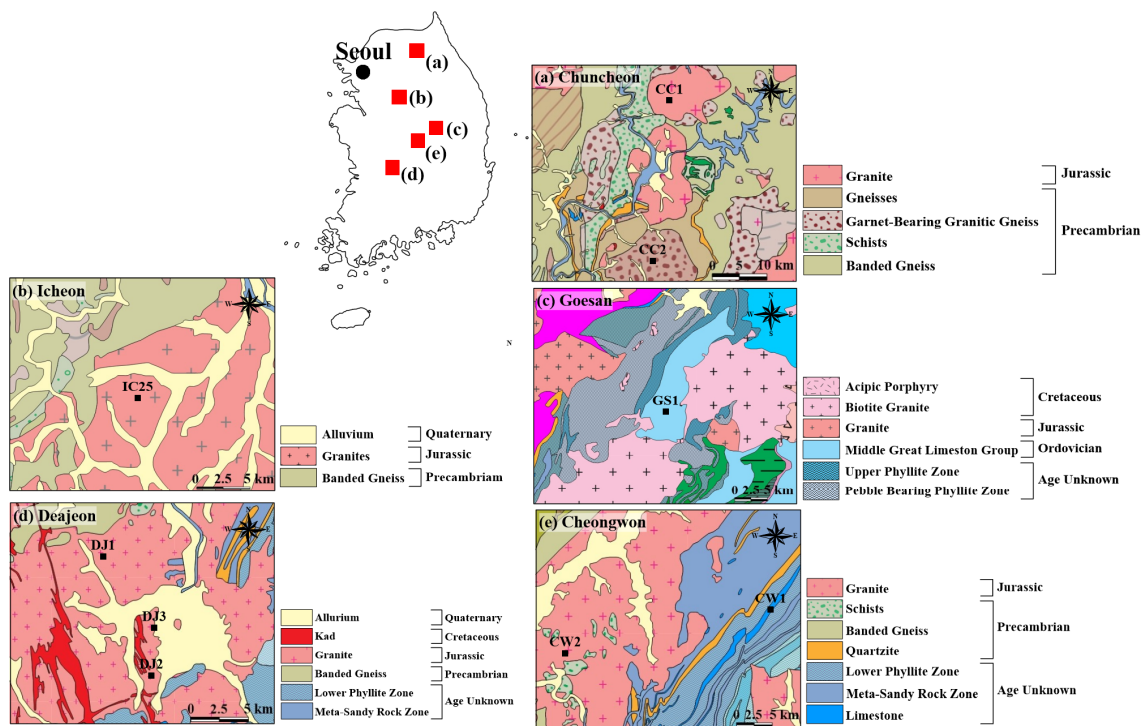


Fig. 1. Location and geologic maps of the study areas.

## 결과 및 토의

### 우라늄-238, 라돈-222의 산출 특성

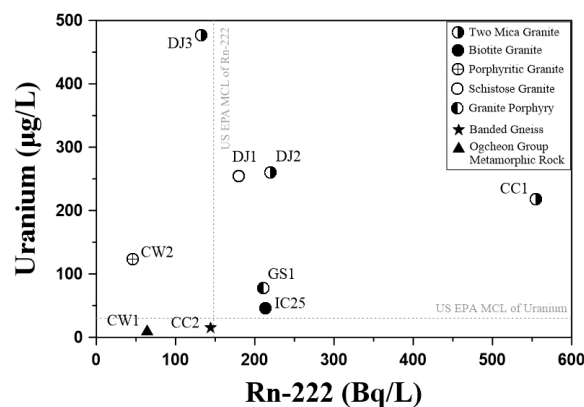
연구지역의 9개 지하수 시료에 대한 우라늄-238과 라돈 분석 결과는 Table 1과 같다. 우라늄-238은 2.0~477  $\mu\text{g/L}$ 의 범위로 CW1, CC2 지하수를 제외하고, 환경부 음용수 수질기준인 30  $\mu\text{g/L}$ 을 모두 초과하며, 대전지역 지하수의 우라늄-238

함량은 254~477  $\mu\text{g/L}$  범위로 연구지역중 가장 높은 값을 보인다. 라돈-222의 함량은 46.2~555 Bq/L의 범위를 보이며, CW1, CW2, CC1 시료를 제외한 지하수는 먹는물 수질 감시기준 148 Bq/L를 초과한다. CC1 지하수에서 가장 높은 라돈 함량을 보인다. 지질별로는 우라늄-238과 라돈의 산출은 쥐라기 복운모화강암에서 가장 높은 함량을 보이고, 흑운모화강암, 편상화강암, 화강반암과 같은 화강암류, 그리고 편마암과 변성퇴적암류의 순서를 보인다. Jeong et al.(2013)에 의해 보고된 바와 같이 거정질 백운모가 확인되는 페그마타이트질 복운모화강암의 흑운모 내 미량광물로 존재하는 모나자이트, 에피도트, 저어콘과 같은 광물 내 함유된 우라늄-238의 용해가 주요 공급원으로 보인다.

**Table 1.** Concentrations of helium, neon, uranium and radon-222 of groundwater in the study area

Sample ID.	$^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$	$^3\text{He}/^4\text{He}$ (E-6)	$^4\text{He}$ (ccSTP/g)	$^{20}\text{Ne}$ (E-7) (ccSTP/g)	Uranium ( $\mu\text{g/L}$ )	Rn-222 (Bq/L)	Rock types
DJ1	0.95	0.65	3.00E-07	3.16	254	180	Schistose granite (age-unknown)
DJ2	4.10	0.13	1.70E-06	4.15	260	220	Two mica granite (jurassic)
DJ3	0.24	1.30	5.77E-08	2.40	477	132	Two mica granite (jurassic)
CW1	0.40	1.15	7.90E-08	1.98	2.00	64.0	Ogcheon group metamorphic rock (late ordovician)
CW2	0.27	1.24	4.95E-08	1.83	123	46.2	Porphyritic granite (jurassic)
CC1	70.0	0.23	2.00E-05	2.86	218	555	Two mica granite (jurassic)
CC2	0.30	2.00	6.80E-08	2.27	4.8	144	Banded gneiss (pre-cambrian)
IC25	1.50	0.40	5.90E-07	3.93	45.7	213	Biotite granite (jurassic)
GS1	141	0.17	2.90E-05	2.06	77.6	211	Granite porphyry (cretaceous) & Ogcheon metasedimentary rocks

비록 라돈이 기원적으로 우라늄-238의 붕괴과정에서 생성되는 산물이지만 지하수 내 우라늄-238과 라돈-222 함량사이에는 뚜렷한 상관성을 보이지 않는다(Fig. 2). 기존의 국내 지하수 내 우라늄-238과 라돈 상관성 연구에서도 뚜렷한 상관성을 찾기가 어려운 것으로 보고된 바 있다(Cho et al., 2010, 2011, 2012, 2013, 2014, 2017; NIER, 2008). 이러한 결과들은 우라늄-238의 경우 지하수에 용해되어 근원암으로부터 멀리 이동되지만, 라돈의 경우 반감기가 3.82일에 불과하여 이동거리의 제한이 있으며(Atkins et al., 2016), 라돈은 가스이므로 공극을 통한 확산이동으로 우라늄-238의 이동형태와는 달라 지하수 내 우라늄-238과 라돈과의 상관성은 거의 없다고 보고되었다(Yun et al., 2018).



**Fig. 2.** Relationship between Rn-222 and uranium of groundwater samples in the study area.



## 헬륨동위원소 특성

대기, 지각(암석), 지구내부(마그마, 맨틀)에 존재하는 휘발성원소인 헬륨, 네온가스의 동위원소비( $^3\text{He}/^4\text{He}$ ,  $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ )는 기원에 따라서 뚜렷이 다른 값(대기;  $^3\text{He}/^4\text{He} = 1.384 \times 10^{-6}$ ,  $^4\text{He}/^{20}\text{Ne} = 0.317$  (Hulston and Lupton, 1996), 지각;  $^3\text{He}/^4\text{He} = 0.01 \times 10^{-6}$ ,  $^4\text{He}/^{20}\text{Ne} > 10,000$  (Graham, 2002), MORB-형 맨틀기원;  $^3\text{He}/^4\text{He} = 12 \times 10^{-6}$ ,  $^4\text{He}/^{20}\text{Ne} > 10,000$  (Ballentine and Burnard, 2002)을 보여 휘발성가스의 순환과 혼합연구에 유력한 추적자의 역할을 할 수 있다.

연구지역 지하수의 헬륨과 네온 동위원소에 대한 분석자료는 Table 1에서 제시하였다. 지하수 내  $^3\text{He}/^4\text{He}$ 의 비율은  $0.13 \sim 2.0(\text{E}-6)$ 의 범위를,  $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 의 비는  $0.24 \sim 141(\text{E}-7 \text{ ccSPT/g})$ 의 범위를 각각 보인다.  $^4\text{He}$ 의 함량은  $2.00 \cdot \text{E}-05 \sim 7.90 \cdot \text{E}-08$  범위를 보인다.

$^3\text{He}/^4\text{He}$ 과  $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$  상관 관계도는 대기-맨틀-지각 기원 사이에 헬륨가스의 혼합관계를 보여주며, 연구지역 지하수의 시료는 전반적으로 대기기원과 대기-지각 혼합영역에 도시된다(Fig. 3). 그리고 지하수 내 헬륨, 네온가스의 기원별 혼합비에 따라 3개의 그룹(A, B, C)으로 구분할 수 있다. 그룹 A 지하수(CC2, CW1, CW2, DJ3)는 대기기원 영역에 분포하여 대기기원의 우세하여 천부형 지하수임을 지시한다. 그룹 B 지하수(DJ1, DJ2, IC25)는 대기-지각 혼합영역에 도시되어 대기기원과 지각기원의 헬륨과 네온이 일정한 비율로 용해되었음을 보여준다. 그룹 C 지하수(CC1, GS1)의 경우 지각기원의 헬륨과 네온이 99% 이상으로 대기기원의 헬륨은 거의 존재하지 않음을 보여주고, 맨틀기원의  $^3\text{He}$ 이 1~2% 소량 혼합되었음을 보여준다. 그룹 C 지하수는 대수층이 대기과 비교적 잘 격리된 심부의 환경과 단층대의 발달로 심부의 헬륨이 소량 유입된 것으로 추정된다.

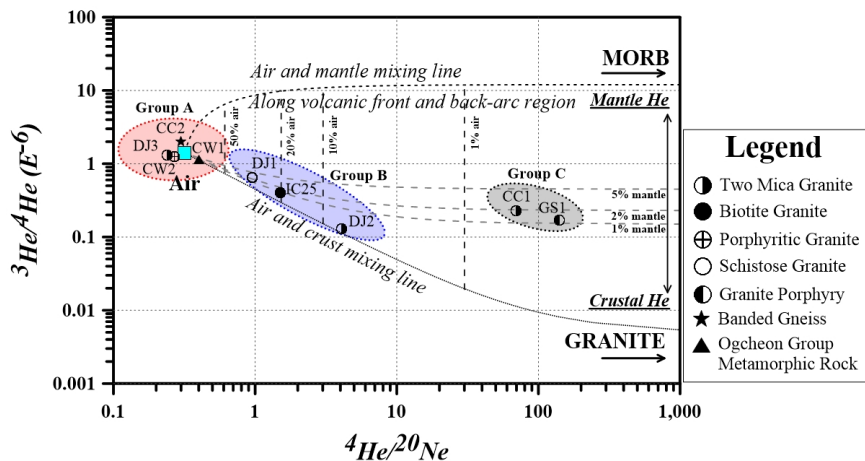


Fig. 3.  $^3\text{He}/^4\text{He}$  versus  $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$  ratios for the groundwater samples in the study area.

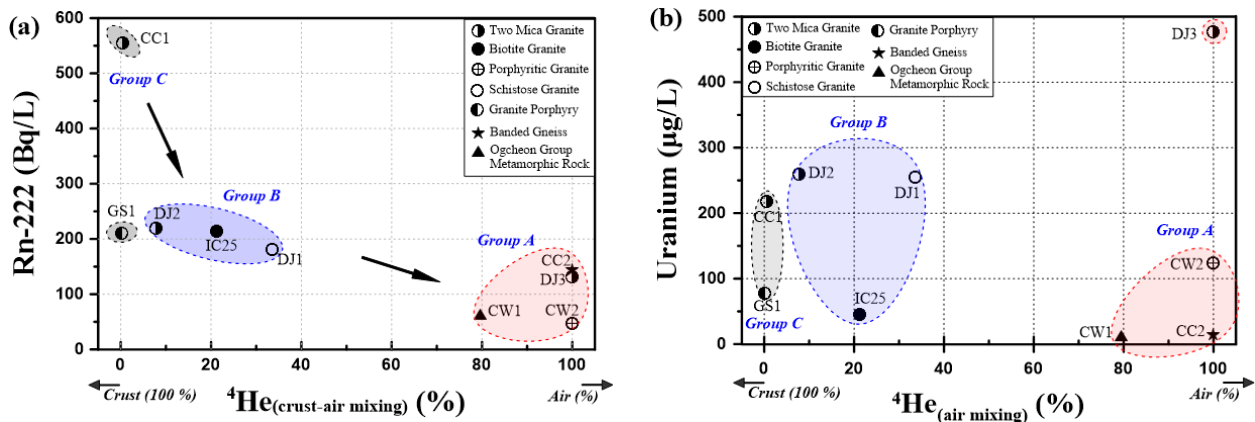
$^3\text{He}$ ,  $^4\text{He}$ ,  $^{20}\text{Ne}$  각각에 대해서 그들의 기원(대기, 지각, 맨틀)에 따른 혼합비를 계산하여 Table 2에 제시하였다. 혼합비 계산은 Kotarba and Nagao(2008)의 방법을 사용하였다.  $^4\text{He}$ 는 그룹 A에서 대기기원 79.5% 이상, 그룹 B에서 대기기원 7.80~33.5%, 지각기원 65.0~92.2%, 그룹 C에서 지각기원 97.7% 이상을 보여준다.  $^3\text{He}$ 는 그룹 A, B에서 심부기원 28.2% 이하, 그룹 C에서 맨틀(마그마)기원 95.2% 이상을 보여준다.  $^{20}\text{Ne}$ 는 그룹 모두에서 대기혼합 98.6% 이상을 보여준다.

**Table 2.** Mixing ratios of three sources of  $^3\text{He}$ ,  $^4\text{He}$  and  $^{20}\text{Ne}$  in the study area

Sample ID.	$^4\text{He}$			$^3\text{He}$			$^{20}\text{Ne}$		
	Air (%)	Mantle (%)	Crust (%)	Air (%)	Mantle (%)	Crust (%)	Air (%)	Mantle (%)	Crust (%)
DJ1	33.5	1.50	65.0	71.3	28.2	0.50	100	0.00	0.00
DJ2	7.80	0.20	92.0	82.6	13.9	3.50	100	0.00	0.00
DJ3	100	0.00	0.00	100	0.00	0.00	100	0.00	0.00
CW1	79.5	0.40	20.1	95.7	4.20	0.10	100	0.00	0.00
CW2	100	0.00	0.00	100	0.00	0.10	100	0.00	0.00
CC1	0.50	1.80	97.7	2.70	95.2	2.10	99.3	0.00	0.70
CC2	100	0.00	0.00	73.3	26.7	0.00	100	0.00	0.00
IC25	21.2	0.90	77.9	73.2	25.7	1.00	100	0.00	0.00
GS1	0.20	1.40	98.4	1.80	95.3	2.90	98.6	0.00	1.40

### 우라늄-238, 라돈-222과 헬륨 동위원소의 상관성

Fig. 4는  $^4\text{He}$ 의 지각-대기 혼합비와 라돈-222, 우라늄-238 함량 사이에 상관관계도로 대기 혼합비가 높을수록 라돈-222 함량이 감소하는 상관성을 보여준다(Fig. 4a). 즉, 그룹 C→B→A 지하수의 순서로 라돈 함량의 감소와 함께 대기기원의  $^4\text{He}$  비율이 높아지는 경향을 보인다. 그룹 A 지하수의 경우 대수층은 파쇄대나 단열을 통하여 지표수와 유입과 혼합이 비교적 활발한 특성으로 대기기원  $^4\text{He}$ 이 우세하며, 토양 및 지하수에서 생성되는 라돈의 함량은 상대적으로 낮은 특성을 보인다. 반면 C 그룹의 지하수는 지표수를 통한 대기기원의  $^4\text{He}$ 의 유입이 비교적 잘 차단된 대수층으로 해석되며, 지각기원의  $^4\text{He}$ 이 우세하므로 암석 내 우라늄-238의 붕괴에 의한 공급이 주요 요인으로 보인다. 이와 더불어 라돈의 함량도 높은 농도를 보인다. B그룹의 지하수는 대기와 지각기원의  $^4\text{He}$ 이 혼합된 특성으로 라돈의 함량도 그룹 A와 C지하수 사이에 전이적 특성을 보인다. 라돈과 헬륨은 불활성기체이므로 지하환경에서 그들의 거동이 비슷한 경향을 보이는 것으로 판단된다.  $^4\text{He}$ 의 지각-대기 혼합비와 우라늄-238의 농도관계의 경우, 헬륨의 지각-대기 혼합비 기준으로 지하수는 3개 그룹으로 구분할 수 있지만 우라늄-238 농도와는 상관성을 보이지 않는다(Fig. 4b). 그룹 B와 C 지하수는 대기 혼합비가 40% 이하에서 약 50~300  $\mu\text{g/L}$ 의 함량을 보이는 반면에 그룹 A 지하수의 경우 DJ3 시료를 제외하고 대부분 높은 대기 혼합비(80~100%)에서 상대적으로 낮은 우라늄-238의 함량(약 0~120  $\mu\text{g/L}$ )을 보인다.

**Fig. 4.** Relationship between  $^4\text{He}_{(\text{air mixing})}$  and Rn-222, uranium in groundwater samples in the study area.

지하수 내  $^4\text{He}$ 의 절대량과 라돈-222, 우라늄-238 함량 사이에 상관관계는 Fig. 5에서 보여준다.  $^4\text{He}$  절대량과 라돈-222 함량의 상관관계에서는 대체로  $^4\text{He}$  절대량이 증가함에 따라 라돈-222 함량이 미약하나마 증가하는 경향을 보여준다(Fig. 5a). 반면에 지하수 내  $^4\text{He}$  절대량과 우라늄-238 함량의 상관성은 거의 없음을 보인다(Fig. 5b). 이러한 상관성 경향은 Fig. 4와 유사한 결과이다.

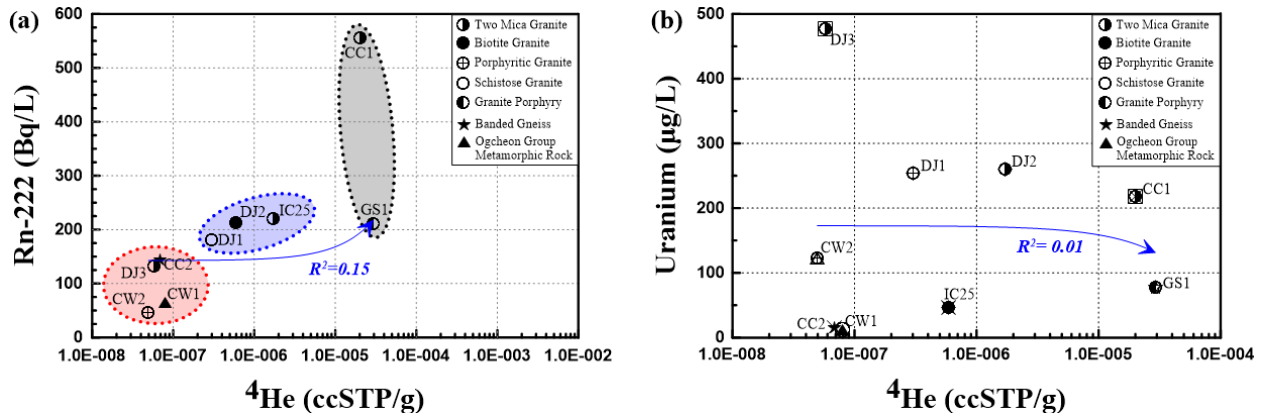


Fig. 5. Relationship between  $^4\text{He}$  and Rn-222, uranium of groundwater samples in the study area.

## 결론

대전, 청원, 춘천, 이천, 괴산지역 지하수 내 우라늄-238, 라돈-222와 같은 자연방사성물질의 산출과 지질 및 헬륨 동위원소와의 상관성을 분석결과 지하수 내 우라늄-238 및 라돈-222 함량은 각각 최대  $477 \mu\text{g/L}$ ,  $555 \text{Bq/L}$ 의 범위를 보이며, 지질별로는 복운모화강암 > 편마암 > 화강반암 > 변성퇴적암의 순서로 높은 산출을 보인다.

연구지역 지하수는 헬륨, 네온 동위원소의 대기, 지각, 맨틀 기원별 혼합비에 따라 3개의 그룹(A, B, C)으로 구분할 수 있다. 그룹 A 지하수의  $^3\text{He}/^4\text{He}$ 비는  $1.15 \times 10^{-6} \sim 2.00 \times 10^{-6}$ 이며,  $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 비는 0.24~0.40으로 대기기원( $^3\text{He}/^4\text{He} = 1.4 \times 10^{-6}$ ,  $^4\text{He}/^{20}\text{Ne} = 0.317$ )에 근접하여 도시되고, 79.5% 이상의 대기기원  $^4\text{He}$  혼합물을 보여준다. 그룹 B 지하수의  $^3\text{He}/^4\text{He}$ 비는  $0.13 \times 10^{-6} \sim 0.65 \times 10^{-6}$ 이며,  $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 비는 0.95~4.10으로  $^3\text{He}/^4\text{He}$ 비가 대기기원  $1.4 \times 10^{-6}$ 보다 낮은 값을 보여 지각기원  $^4\text{He}$ 이 97.7% 혼합물로 우세하다. 그룹 C 지하수의  $^3\text{He}/^4\text{He}$ 비는  $0.17 \times 10^{-6} \sim 0.23 \times 10^{-6}$ 이며,  $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 비는 70.0~141으로 지각기원  $^4\text{He}$ 이 우세하다. CC1, GS1는 각각 97.7%, 98.4%의 지각기원 혼합물을 보여주고, 1.80%, 1.40%의 MORB-형 맨틀기원의  $^3\text{He}$ 가 일부 혼합되었다. 그리고 대기기원  $^4\text{He}$ 의 혼합비과 라돈-222 상관관계에서 헬륨의 대기 혼합비가 높을 수록 라돈-222의 함량이 감소하는 경향을 보인다. 이러한 헬륨동위원소의 기원적 특성을 고려할 때 그룹 A 지하수의 대수층은 지표환경과 자유로운 물 순환시스템임을 지시하며, 그룹 C 지하수의 대수층이 지표환경과 비교적 잘 차단된 환경임을 시사한다. 그룹 B 지하수는 그룹 A와 C의 사이의 전이적 특성을 갖는 것으로 해석된다.

## 사사

본 연구는 산업통상자원부(MOTIE)와 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원(과제번호: 20201510100020)과 한국연구재단의 지원(과제번호: 2021R1F1A1060573)을 받아 수행되었습니다.



## References

- Aka, F.T., Kusakabe, M., Nagao, K., Tanyileke, G., 2001, Noble gas isotopic compositions and water/gas chemistry of soda springs from the islands of Bioko, São Tomé and Annobon, along with Cameroon Volcanic Line, West Africa, *Applied Geochemistry*, 16(3), 323-338.
- Andrews, J.N., 1985, The isotopic composition of radiogenic helium and its use to study groundwater movement in confined aquifers, *Chemical Geology*, 49(1-3), 339-351.
- Atkins, M.L., Santos, I.R., Perkins, A., Mather, D.T., 2016, Dissolved radon and uranium in groundwater in a potential coal seam gas development region (Richmond River Catchment, Australia), *Journal of Environmental Radioactivity*, 154, 83-92.
- Ballentine, C.J., Burnard, P.G., 2002, Production, release and transport of noble gases in the continental crust, *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, 47, 481-538.
- Banks, D., Frengstad, B., Midtgard, A.K., Krog, J.R., Strand, T., 1998, The chemistry of Norwegian groundwater: I. The distribution of radon, major and minor elements in 1604 crystalline bedrock groundwaters, *Science of the Total Environment*, 222(1), 71-91.
- Betcher, R.N., Gascoyne, M., Brown, D., 1988, Uranium in groundwaters of southeastern Manitoba, Canada, *Canadian Journal of Earth Sciences*, 25(12), 2089-2103.
- Cho, B.W., 2018, Radon concentration in groundwater of Korea, *The Journal of Engineering Geology*, 28(4), 661-672 (in Korean with English abstract).
- Cho, B.W., Choo, C.O., Kim, M.S., Lee, Y.J., Yun, U., Lee, B.D., 2011, Uranium and radon concentrations in groundwater near the Icheon granite, *The Journal of Engineering Geology*, 21(3), 259-269 (in Korean with English abstract).
- Cho, B.W., Choo, C.O., Yun, U., Lee, B.D., Hwang, J.H., Kim, M.S., 2014, Hydrogeochemical characteristics, occurrence, and distribution of natural radioactive materials (uranium and radon) in groundwater of Gyeongnam and Gyeongbuk provinces, *The Journal of Engineering Geology*, 24(4), 551-574 (in Korean with English abstract).
- Cho, B.W., Kim, M.S., Kim, H.G., Hwang, J.H., Cho, S.Y., Choo, C.O., 2017, Hydrochemical characterization of natural radionuclides uranium and radon in groundwater, Jeonnam province, *The Journal of Engineering Geology*, 27(4), 501-511 (in Korean with English abstract).
- Cho, B.W., Kim, M.S., Kim, T.S., Han, J.S., Yun, U., Lee, B.D., Hang, J.H., Choo, C.O., 2012, Hydrochemistry and distribution of uranium and radon in groundwater of the Nonsan area, *The Journal of Engineering Geology*, 22(4), 427-437 (in Korean with English abstract).
- Cho, B.W., Kim, M.S., Kim, T.S., Yun, U., Lee, B.D., Hwang, J.H., Choo, C.O., 2013, Characteristics of occurrence and distribution of natural radioactive minerals, uranium and radon in groundwater of the Dayang area, *The Journal of Engineering Geology*, 23(4), 477-491 (in Korean with English abstract).
- Cho, B.W., Yun, U., Choo, C.O., 2010, Uranium and radon concentration in groundwater of the Taejeon area, Korea, *Proceedings of the 38th International Association of Hydrogeologists Conference*, Krakow, Poland, 61-62.
- Choi, P.Y., Lee, S.R., Lim, S.B., 2007, Geological report of the Yanggu sheet (scale 1:50,000), Korea Institute of Geoscience and Mineral Resources, 45p.
- Choo, C.O., 2002, Characteristics of uraniferous minerals in Daebong granite and significance of mineral species, *Journal of Mineralogical Society of Korea*, 15(1), 11-21 (in Korean with English abstract).
- Cowart, J.B., Osmond, J.K., 1980, Uranium isotopes in groundwater as a prospecting technique, *US Dept. Energy Report*, GJBX-119, 112p.
- Graham, D.W., 2002, Noble gas isotope geochemistry of mid-ocean ridge and ocean island basalts: Characterization of mantle source reservoirs, *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, 47(1), 247-317.
- Han, J.H., Park, K.H., 1996, Abundances of uranium and radon in groundwater of Taejeon area, *Economic and Environ-*

- mental Geology, 29(5), 589-595 (in Korean with English abstract).
- Hulston, J.R., Lupton, J.E., 1996, Helium isotope studies of geothermal fields in the Taupo Volcanic Zone, New Zealand, *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 74(3), 297-321.
- Jeong, C.H., Kim, D.W., Kim, M.S., Lee, Y.J., Kim, T.S., Han, J.S., 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 (in Korean with English abstract).
- Jeong, C.H., Kim, M.S., Lee, Y.J., Han, J.S., Jang, H.G., Jo, B.U., 2011, Hydrochemistry and occurrence of natural radioactive materials within borehole groundwater in the Cheongwon area, *The Journal of Engineering Geology*, 21(2), 163-178 (in Korean with English abstract).
- Jeong, C.H., Lee, B.D., Yang, J.H., Nagao, K., Kim, K.H., Ahn, S.W., Lee, Y.C., Lee, Y.J., Jang, H.W., 2019, Geochemical and isotopic compositions and geothermometry of thermal waters in the Magumsan area, South Korea, *Water*, 11(9), 1774.
- Jeong, C.H., Lee, Y.J., Lee, Y.C., Kim, M.S., Kim, H.K., Kim, T.S., Jo, B.U., Choi, H.Y., 2016a, Hydrochemistry and occurrences of natural radioactive materials from groundwater in various geological environment, *The Journal of Engineering Geology*, 26(4), 531-549 (in Korean with English abstract).
- Jeong, C.H., Lee, Y.C., Lee, Y.J., Choi, H.Y., Koh, G.W., Moon, D.C., Jung, C.Y., Jo, S.B., 2016b, Origin and hydrochemical characteristics of natural carbonated water at Seogwipo, Jeju Island, *The Journal of Engineering Geology*, 26(4), 515-529 (in Korean with English abstract).
- Jeong, C.H., Ryo, K.S., Kim, M.S., Kim, T.S., Han, J.S., Jo, B.U., 2013, Geochemical occurrence of uranium and radon-222 in groundwater at test borehole site in the Daejeon area, *The Journal of Engineering Geology*, 23(2), 171-186 (in Korean with English abstract).
- Jeong, C.H., Sung, H.H., Nagao, K., Kim, K.H., 2007, Hydrochemical and isotopic characteristics, and orion of noble gas for low-temperature hot spring waters in the Honam Area, *Economic and Environmental Geology*, 40(5), 635-649 (in Korean with English abstract).
- Kim, M.S., Yang, J.H., Jeong, C.H., Kim, H.K., Kim, D.W., Jo, B.U., 2014, Geochemical origins and occurrences of natural radioactive materials in borehole groundwater in the Goesan area, *The Journal of Engineering Geology*, 24(4), 535-550 (in Korean with English abstract).
- Kim, O.J., Kim, S.U., Yoo, B.H., Park, B.K., 1974, Explanatory text of the geological map of Gapyeong sheet (scale 1:50,000), Geological and Mineral Institute of Korea, 50p.
- King, P.T., Michel, J., Moore, W.S., 1982, Ground water geochemistry of  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{220}\text{Rn}$ , *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 46, 1173-1182.
- Kotarba, M.J., Nagao, K., 2008, Composition and origin of natural gases accumulated in the Polish and Ukrainian parts of the Carpathian region: Gaseous hydrocarbons, noble gases, carbon dioxide and nitrogen, *Chemical Geology*, 255(3-4), 426-438.
- Kulongoski, J.T., Hilton, D.R., 2012, Applications of groundwater helium, *Handbook of Environmental Isotope Geochemistry*, 285-304.
- Kwon, Y.I., Jin, M.S., 1974, Explanatory text of the geological map of Cheongju sheet (scale 1:50,000), Geological and Mineral Institute of Korea, 17p.
- Lee, B.D., Cho, B.U., Moon, H.S., Hwang, J.H., 2019, Hydrogeochemistry and occurrences of natural radionuclides uranium and radon in groundwater of Wonju area, *The Journal of Engineering Geology*, 29(4), 495-508 (in Korean with English abstract).
- Lee, C.H., Kim, J.H., 1972, Explanatory text of the geological map of Geosan sheet (scale 1:50,000), Geological Survey of Korea, 63p.
- Lee, C.H., Lee, M.S., Park, B.S., 1980a, Explanatory text of the geological map of Miweon sheet (scale 1:50,000), Korea Research Institute of Geoscience and Mineral Resources, 51p.

- Lee, S.M., Kim, H.S., Na, K.C., 1980b, Explanatory text of the geological map of Daejeon sheet (scale 1:50,000), Korea Research Institute of Geoscience and Mineral Resources, 54p.
- Loomis, D.P., 1987, Radon-222 concentration and aquifer lithology in North Carolina, Ground Water Monitoring, Review, 7(2), 33-39.
- Michel, J., 1990, Relationship of radium and radon with geological formations, Radon, Radium and Uranium in Drinking Water, 23(4), 83-95.
- Morikawa, N., Kazahaya, K., Yasuhara, M., Inamura, A., Nagao, K., Sumino, H., Ohwada, M., 2005, Estimation of groundwater residence time in a geologically active region by coupling  $^4\text{He}$  concentration with helium isotopic ratios, Geophysical Research Letters, 32(2), 1-4.
- NIER (National Institute of Environmental Research), 2008, An investigation of the radionuclide concentration in the groundwater (I), Report, 293p (in Korean).
- Park, H.I., Lee, J.D., Cheong, J.G., 1977, Explanatory text of the geological map of Yuseong sheet (scale 1:50,000), Geological and Mineral Institute of Korea, 45p.
- Quattrocchi, F., Guerra, M., Pizzino, L., Lombardi, S., 1999, Radon and helium as pathfinders of fault systems and groundwater evolution in different Italian areas, Il Nuovo Cimento, 22(3-4), 309-316.
- Solomon, D.K., Hunt, A., Poreda, R.J., 1996, Source of radiogenic helium 4 in shallow aquifers: Implications for dating young groundwater, Water Resources Research, 32(6), 1805-1813.
- Top, Z., Brand, L.E., Corbett, R.D., Burnett, W., Chanton, J., 2001, Helium and radon as tracers of groundwater input into Florida Bay, Journal of Coastal Research, 859-868.
- USEPA, 1999, Proposed radon in drinking water rule, Office of Water, EPA 815-F-99-006.
- Wathen, J.B., 1987, The effect of uranium siting in two-mica granites on uranium concentrations and radon activity in ground water, radon, radium, and other radioactivity in groundwater, Proceedings of the NWWA Conference, Somerset, U.S.A., 31-46.
- WHO, 2011, Guidelines for drinking water quality, Chapter 9. Radiological aspects, 4th ed., World Health Organization, Geneva.
- Yeo, S.C., Lim, J.H., 1974, Explanatory text of the geological map of Icheon sheet (scale 1:50,000), Geological and Mineral Institute of Korea, 30p.
- Yun, U., Kim, M.S., Jeong, D.H., Hwang, J.H., Cho, B.W., 2018, Uranium and radon concentrations in groundwater of the Daejeon granite area: Comparison with other granite areas, The Journal of Engineering Geology, 28(4), 631-643 (in Korean with English abstract).