한국지하수토양환경학회 춘계학술발표회
2005년 4월 14~15일 공 주 대 학 교

국내 심부 암반지하수의 수리지구화학 진화와 관련된 고농도 불소 산출 특성

김경호, 윤성택, 채기탁, 김성용*, 권장순, 고용권**
고려대학교 지구환경과학과 및 천부지권환경연구실
**한국지질자원연구원*
***한국원자력연구소*
(E-mail: styun@korea.ac.kr)

Abstract

To understand the geologic and hydrogeochemical controls on the occurrence of high fluoride concentrations in bedrock groundwaters in South Korea, we examined a total of 367 hydrochemistry data obtained from deep groundwater wells (avg. depth = 600 m) that were drilled for exploitation of hot springs. The fluoride concentrations were generally very high (avg. 5.65 mg/L) and exceeded the Drinking Water Standard (1.5 mg/L) in 72% of the samples. A significant geologic control of fluoride concentrations was observed: the highest concentrations occur in the areas of granitoids and granitic gneiss, while the lowest concentrations in the areas of volcanic and sedimentary rocks. In relation to the hydrochemical facies, alkaline Na-HCO_3 type waters had remarkably higher F concentrations than circum-neutral to slightly alkaline Ca-HCO_3 type waters. The prolonged water-rock interaction occurring during the deep circulation of groundwater in the areas of granitoids and granitic gneiss is considered most important for the generation of high F concentrations. Under such condition, fluoride-rich groundwaters are likely formed through hydrogeochemical processes consisting of the removal of Ca from groundwater via calcite precipitation and/or cation exchange and the successive dissolution of plagioclase and F-bearing hydroxyl minerals (esp. biotite). Thus, groundwaters with high pH and very high Na/Ca ratio within granitoids and granitic gneiss are likely most vulnerable to the water supply problem in relation to the enriched fluorine.

Key words: fluoride, deep bedrock groundwater, hydrogechemical evolution, water-rock interaction

1. 서론

국내 암반대수층 지하수에서는 불소가 허용기준(1.5 mg/L; WHO, 1994)을 초과하여 검출되는 사례가 자주 보고되었으며(김규환과 최현정, 1998; 김건영 외, 2000; 정기영 외, 2003; Kim and Jeong, 2004), 그 분포가 매우 넓고 불규칙하여 음용수를 목적으로 하는 암반지하수의 개발 이용에 가장 큰

장애 요인이 되고 있다. 특히, 온천수나 심부지하수에서 높게 검출되는 경향을 나타낸다. 그렇지만, 국내 부존 지하수 내에서의 불소의 기원에 대한 연구는 충분히 수행되지 못하였다. 황정(2001)은 형석광화대 부근 지하수에서의 고농도 불소 산출이 백악기 화강암류의 분포와 밀접하게 관련됨을 보고하였다. Yun *et al.* (2005)은 중생대 화강암 시료를 이용하여 화강암 및 흑운모 분말에 대한 뱃치(batch) 용해 평형실험을 체계적으로 수행하여 '함불소 흑운모의 용해가 고농도 불소 산출의 일차적인 원인이 됨'을 제안하였다. 그렇지만, 실제 지하수계를 모사 또는 재현한 물-암석 반응을 수행하여 불소의 기원과 거동을 정확하게 해석한 연구는 전무한 실정이다.

이에 본 논문에서는 그동안 국내 온천 개발 과정에서 취득된 총 367개의 지하수화학 분석 자료를 종합적으로 해석함으로써, 국내 심부 암반지하수 내에서의 불소 산출 특성을 일반화하고, 지하수의 수리지구화학적 진화, 즉 수-암 반응과 관련하여 고농도 불소의 산출 원인을 해석코자 하였다.

2. 본론

조사된 심부지하수 367개 시료의 평균 불소 농도는 5.65 mg/L로서 매우 높은 값을 나타내었으며, 특히 전체 중 92%에서 국내 먹는물 수질기준(1.5 mg/L)을 초과하였다. 이와 같이 국내 심부지하수의 불소 농도가 매우 높은 것은 남한 전 지역에 걸쳐 화강암류와 화강암질 편마암이 넓게 분포하는 것과 유관한 것으로 보인다. 심부지하수 시료를 대수층 지질에 따라 화강암류, 화강편마암, 화산암, 변성퇴적암, 퇴적암, 여러 지질이 혼재된 혼합층의 6개 집단으로 분류하고, 각 집단 내의 평균 불소 함량을 고찰하여 보았다. 그 결과, 불소의 평균값은 지질 집단별로 의미있는 차이를 보여주었다. 특히, 화강편마암 지역(평균 8.31 mg/L)과 화강암류 분포지역(평균 6.08 mg/L)에서 가장 높은 불소 함량을 나타내었으며, 평균 불소 함량이 낮아지는 순서는 화강편마암, 화강암류, 화강암과 편마암의 혼합층, 변성퇴적암, 퇴적암, 화산암의 순이었다(Fig. 1A). 이러한 결과는 국내 심부 암반지하수 내의 불소 함량이 기본적으로 대수층의 지질 특성에 의해 조절됨을 지시하고 있다. 특히, 화강암류 및 화강편마암류가 분포하는 지역에서 매우 높은 불소의 농도가 나타나고 있음을 보여준다. 또한, 연구 대상 심부지하수의 수질은 크게 4가지 수리지구화학상(hydrogeochemical facies), 즉 Ca(Na)-HCO_3 유형, Na(Ca)-HCO_3 유형, Na(Ca)-Cl 유형 및 산성(acidic)의 Ca-HCO_3 유형으로 분류되었다. 한편, 이들 상(相)은 모든 대수층 지질에서 나타났는데, 이는 국내 심부 암반지하수의 수리지구화학적 진화경로(즉, 지하수의 수질을 좌우하는 중요한 물-암석 반응)가 크게 보면 지질특성에 상관없이 유사함을 지시해준다. 심부지하수의 수리지구화학 유형에 따른 불소의 평균 농도의 분포를 보면(Fig. 1B), 수질유형에 따라 불소의 평균 농도가 뚜렷한 차이를 나타냄을 알 수 있다. 특히, Na(Ca)-HCO_3 유형과 Ca(Na)-HCO_3 유형간의 차이가 가장 뚜렷하였는데, 총 367개 중 196개 시료에서 인지된 Na(Ca)-HCO_3 유형에서 불소의 평균 농도가 7.62 mg/L로서 가장 높았으며, 48개 시료가 속한 Ca(Na)-HCO_3 유형에서는 가장 낮은 평균 농도값(1.79 mg/L)을 나타내었다. 수질 유형에 따라 불소의 평균 농도가 유의한 차이를 가지는지를 평가하기 위해 분산분석(t-test)을 실시한 결과, Na(Ca)-Cl 유형과 산성의 Ca-HCO_3 유형 간에는 유의수준(p-value)이 0.05 이상으로서 불소의 평균농도의 차이가 통계적으로 유의하지 않으나 나머지 유형들 간에는 평균 농도의 차이가 매우 유의함(p값<0.05)을 알 수 있었다.

이러한 결과들은 국내 심부 암반지하수에서의 고농도 불소의 산출이 지질 요인에 따라 일차적으로 결정되지만, 동일한 지질 분포 내에서도 지하수의 심부 순환에 수반되는 물-암석 반응의 정도, 즉 지하수의 수리지구화학적 진화 경로에 더욱 좌우됨을 지시한다. 결국, 화강암류 및 화강편마암이 분포하는 지역 중에서도 Na(Ca)-HCO_3 유형의 지하수를 생성할 수 있는 물-암석 반응이 진행되는 심부 대수층 환경에서 가장 높은 농도의 불소가 생성됨을 추론할 수 있다. 실제로, 본 연구에서 수집된 화강암류

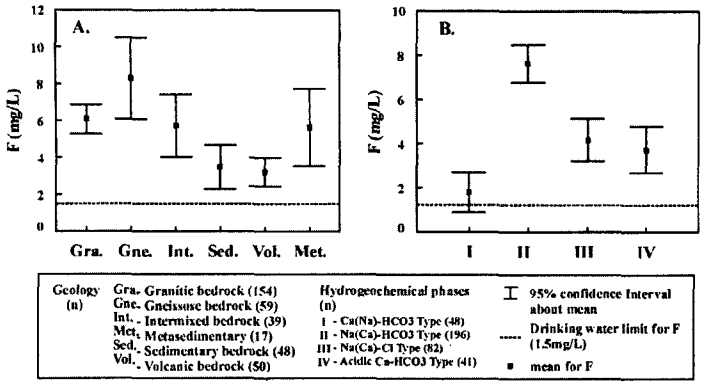

Fig. 2. Concentrations of fluoride in deep groundwaters in relation to the geology (in A) and hydrogeochemical facies (in B). The range of bars shows the 95% confidence interval with a mean concentration.

분포지역 심부지하수 내의 여러 용존 성분과 불소 농도와의 상관관계를 살펴보면 (Fig. 2), 불소 농도는 Na 농도 및 pH와 양호한 양(+)의 상관관계를 나타내지만 Ca 농도와는 반비례하였다. 이러한 경향은 Na 농도 및 pH를 증가시키는 사장석의 풍화와 더불어 오히려 Ca를 제거시키는 기작이 발생하면서 불소의 농도는 증가함을 지시한다. 또한, 우리나라 심부지하수 내에서의 불소의 농도 및 거동을 설명하고 예측하는데 있어 Ca, Na, pH 등의 파라메터가 효과적인 지시자로 활용될 수 있음을 의미하고 있다.

3. 결론

본 논문에서는 온천수 개발 목적의 지하수 관정(평균 심도 약 600 m)에서 획득된 국내 심부 암반 지하수 총 367개 시료에 대하여 수리지구화학 연구를 수행함으로써, 심부 암반 지하수 환경에서의 불소의 기원 및 거동(특히, 지질 및 지구화학적 조절 요인)에 대하여 고찰하였다. 연구 대상 심부지하수 중의 불소의 평균농도는 5.65 mg/L로 매우 높으며, 특히 전체 시료의 72%에서 먹는물 수질기준(1.5 mg/L)을 초과하였다. 따라서 고농도 불소 산출은 우리나라 심부지하수의 일반적이고도 중요한 특징이며, 또한 취수원으로 개발 이용할 때 가장 문제가 되는 항목임이 확인되었다. 지질특성별로 불소의 농도 변화 추이를 살펴보면, 화강암류, 화강편마암, 그리고 이들의 혼합층 지역에서 뚜렷이 높음이 확인되었다. 반면 화산암 및 퇴적암 분포 지역에서는 대부분이 낮은 농도 수준을 나타내었다. 또한, 심부지하수의 수리지구화학(수질) 유형은 크게 4가지 유형으로 분류되었다. 국내 심부지하수에서는 Na(Ca)-HCO_3 유형이 가장 우세하였으며, 이 들은 그 다음으로 많은 Ca(Na)-HCO_3 유형의 지하수에 비하면 물-암석반응에 의해 보다 진화된 지하수로 해석된다. 여기서, 수리지구화학적 유형에 따라 불소 함량은 Ca(Na)-HCO_3 유형에서 Na(Ca)- HCO_3 유형으로 진화할 때 뚜렷이 증가하였다. 따라서 사장석 등의 용해에 의해 주도되는 점진적인 물-암석 반응에 따른 수리지구화학상의 진화가 불소의 용탈에 의한 농도 증가와 관련되어 동시에 발생한다고 판단된다.

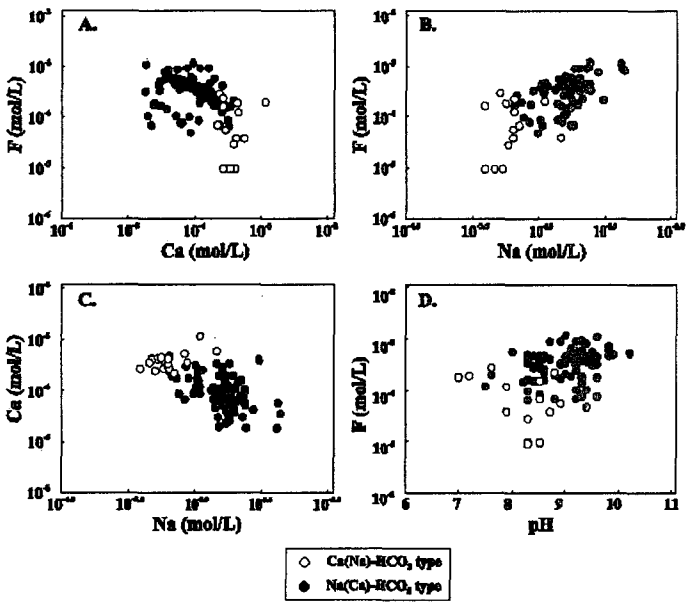

Fig. 2. Relationships among F concentrations and some related parameters such as pH, Ca, and Na concentrations in deep groundwaters in granitoid area.

4. 참고문헌

김건영, 고용권, 김천수, 배대석, 박맹언 (2000) 유성지역 지하수의 지구화학적 특성 연구. 지하수환경학회지, 7권, p. 32-46.

김규한, 최현정 (1998) 남한의 온천지역의 열수와 지하수의 지구화학적 연구. 한국지구과학회지, 19권, p. 22-34.

정기영, 김강주, 김종용, 박재형, 이도형, 박순길 (2003) 포항-경주지역 양산단층대 주변의 고불소 지하수 산출 특성. 지질학회지, 39권, p. 371-384.

황정 (2001) 금주-완주 지역 형석광화대내 석회암 및 화강암 지역 지하수의 불소 분포특성 및 저감방안. 자원환경지질, 34권, p. 105-117.

Kim, K. and Jeong, G. Y. (2005) Factors influencing natural occurrence of fluoride-rich groundwaters: a case study in the southeastern part of the Korean Peninsula. Chemosphere, in press.

Yun, S. T., Chae, G. T., Kwon, M. J., Kim, Y. S. and Bernhard, M. (2005) Batch dissolution of granite and biotite in water: implication for fluorine geochemistry in groundwater. Geochem. Jour., in press.