

신보활석광산 주변에 형성된 우라늄 이상치가 지표수계 환경에 미치는 영향

나춘기* · 정재일**

Environmental Impact Assessment of Uranium Anomaly in Stream System around the Shinbo Talc Mine

Choon-Ki Na* and Jae-Il Chung**

ABSTRACT: In order to evaluate the environmental impact of U anomaly in the drainage system around the Shinbo talc mine area, U contents, their distribution patterns, bioaccumulation and α -radioactivity in stream water, stream sediments and aquatic organisms were investigated. The U contents of stream water attenuated with increasing distance from the mine area. The same attenuation pattern is shown in stream sediments from mine to 0.75 km downstream, although these contain highly enriched U contents (24~83 mg/kg) comparing with the international average concentration of surface soils (0.79~11 mg/kg). However, U content increases abruptly in sediment at 1.5 km downstream, probably due to detrital migration and rediposition of U enriched sediments. Furthermore, enriched U in downstream sediments occur in high proportions of carbonate and Fe-Mn oxide bounded forms, which show high potential of a secondary pollution source. For aquatic organisms, bio accumulation degree of U are in the order: aquatic larvae>black snail>mountain frog>crawfish. Cultured trout by the U enrich groundwater (387 $\mu\text{g/l}$) shows U accumulation in the part of branchia (CRs 5.25) and bones (CRs 11.2) but not in flesh (CRs 0.03). Total α -radioactivity have been measured in the level as 0.47 nCi/l for groundwater, 2.94~18 nCi/kg · DW for organisms and 93~328 nCi/kg · DW for sediments.

서 론

지구상에 가장 많이 존재하는 방사성 원소는 ^{40}K , ^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th 으로, 그 중 우라늄은 원자력 에너지를 얻는 중요한 핵연료로 이용되고 있다. ^{238}U 은 총 14회의 연속적인 변환을 거쳐 최종 ^{208}Pb 로 안정화되는 우라늄 붕괴계열의 어미원소이며, ^{235}U 은 총 11회의 변환을 거쳐 최종 ^{207}Pb 로 안정화되는 악티늄 붕괴계열의 어미원소로 붕괴과정에서 수많은 중간 생성물 및 α 선과 γ 선을 포함한 방사선을 방출한다. 이들 방사

선은 내부피폭 또는 외부피폭에 의해 허용선량 이상 피폭될 경우 인체에 신체적 영향과 유전적 영향을 끼치게 되므로 그 허용선량을 엄격하게 규제하고 있다. 특히 우라늄 광상처럼 방사성 원소가 자연적으로 부화된 지역 주변에서는 자연적 배경값보다 훨씬 높은 농도의 방사성 원소들이 지하수, 지표수 및 토양환경 중에 존재함으로써 직접 또는 생물학적 농축과정과 먹이 연쇄를 통해 인체에 유입, 방사선 피폭을 유발할 수 있기 때문에 이를 방지하기 위해서 이들 원소들의 환경내 이동성, 제어 또는 저감방안 및 생물학적 농축정도 등에 대한 정보를 얻고자 수많은 조사 및 연구가 수행되어 왔다 (ICRP, 1978; 1996; NCRP, 1984; Federal Register, 1995; Barnes and Cochran, 1993; Duff and Amrhein, 1996; Hsi and Langmuir, 1985; Phillips *et al.*, 1995; Yanase *et al.*, 1995; Abdelouas *et al.*, 1998; 1999; Linsalata *et al.*, 1991; Martin

* 목포대학교 환경공학과 (Department of Environmental Eng., Mokpo National University, Chonnam 534-729, Korea), E-mail: mack@chungkye.mokpo.ac.kr

** 전북대학교 지구환경과학부 (Department of Earth and Environmental Sciences, Chonbuk National University, Chonju 560-756, Korea)

et al., 1998).

국내에서도 핵연료인 우라늄 자원을 확보하기 위하여 많은 탐사가 실시된 바 있으나 (김중환 등, 1981; 서효준 등, 1986; 오천혁 등, 1989), 아직 경제적으로 가행가치가 있는 광상은 발견되지 않고 있다. 그러나 몇몇 지역에서는 비록 광상으로는 가치가 없을 지라도 주변 지하수 및 지표수계 환경에서 자연적 배경값보다 훨씬 높은 농도의 우라늄 이상대가 형성되어 있음이 밝혀져, 이들 이상대가 인간을 포함한 주변 생태계에 적지 않은 영향을 미칠 것으로 예상됨에도 불구하고 단지 탐사적 관점에서의 연구만이 수행되었을 뿐 지표환경 내에서 우라늄의 순환거동 및 그 과정에서 끼칠 수 있는 환경 보건적 영향 등에 대한 관점에서의 연구는 아직 수행된바 없는 실정이다. 특히 진안분지 북서쪽에 위치한 신보활석광산 지역은 향내수를 발원수로 하는 지표수계에서 매우 높은 함량의 우라늄이 검출되고 있을 뿐만 아니라 지하수계에서도 미국의 우라늄 오염방지 기준치 44 $\mu\text{g/l}$ (Federal Register, 1995) 및 음용수 기준치 20 $\mu\text{g/l}$ (EPA, 1991; WHO, 1993)를 훨씬 초과하는 우라늄이 검출되고 있어 (정재일 등, 1998), 고농도 우라늄이 주변 환경 생태계에 미치는 영향에 대한 체계적인 연구가 무엇보다도 시급한 실정이다.

이 연구의 목적은 우라늄 이상대를 형성하고 있는 신보 활석광산 주변의 지표수계를 대상으로 지표수, 하상 퇴적물, 생물 간에 보여지는 우라늄의 이동 및 생물 농축 특성을 규명하여 우라늄 이상대의 환경 영향성을 파악하는데 있어 기초자료를 제시하고자 하는데 있다.

지질 및 수계특성

조사지역은 전북 전주시에서 진안방면으로 약 30 km 거리에 위치한 전북 완주군 소양면 신촌리, 시원리 일대와 진안군 부귀면 세동리 지역 (동경 127° 15' ~127° 20', 북위 35° 47' 30" ~35° 52' 30") 으로 기발간 1:25000 지형도의 신정도폭에 해당하며, 지질도폭으로는 전주·진안도폭 (1924)의 북서단과 용담도폭 (김정환, 이인기, 1973)의 남서단에 속하는 지역이다. 조사지역의 지질 (Fig. 1)은 선헤브리아기에 해당하는 흑운모-녹니석편암, 규암, 백운질 석회암, 흑연질 편암 등의 변성퇴적암류를 기반으로하여 이들을 관입한 거정질 화강암과 유라기 대보화강암, 그리고 이들 모두를 부정합으로 덮고 있는 역암, 역질사암, 혈암, 화산암질 암석 등의 백악기 진안층군과 다시 이들을 관

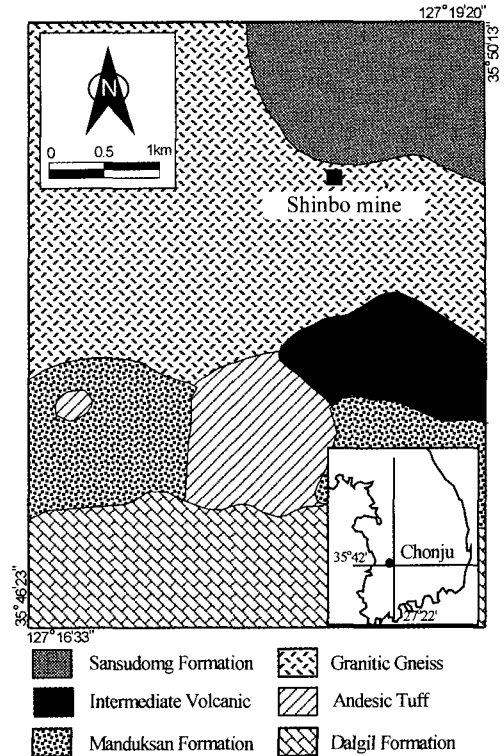


Fig. 1. Geologic map of the Shinbo talc mine area.

입하고 있는 규장암맥과 석영반암 등의 산성 맥암류인 후기 관입체로 구성되어있다 (대한광업진흥공사, 1977, 1979, 1983; 서효준 등, 1986).

조사대상 수계 (Fig. 2)는 신보활석광산의 향내수가 약 100 m의 폐석더미를 복류한 후 침출되는 물을 발원수로 하고 유허과정 중 다수의 지류와 합류되어 점차 수량이 증가되는 전형적인 수지상의 수계로서 상류 지역의 하상은 모두 편암류인 기반암으로 이루어져 있으며 비교적 경사가 급한 반면 하류지역은 심한 침식으로 인해 깊은 V자형 협곡을 이루고 경사도 완만하였으나 하상 퇴적물은 비교적 적었다. 한편 광산에서 1 km 하부에서부터는 하천의 폭이 급격히 넓어져 유속이 매우 느리고 하상은 대부분 점토질 퇴적물로 덮여 있었으며, 2 km 이하부터는 인위적인 하천정비가 이루어져 콘크리트 제방과 자갈질 하상이 형성되어 있을 뿐만 아니라 농업폐수 및 생활하수의 유입으로 인한 인위적 오염이 현저하였다.

시료채취 및 분석

지표수계 환경에서 우라늄의 지화학적 거동을 파악

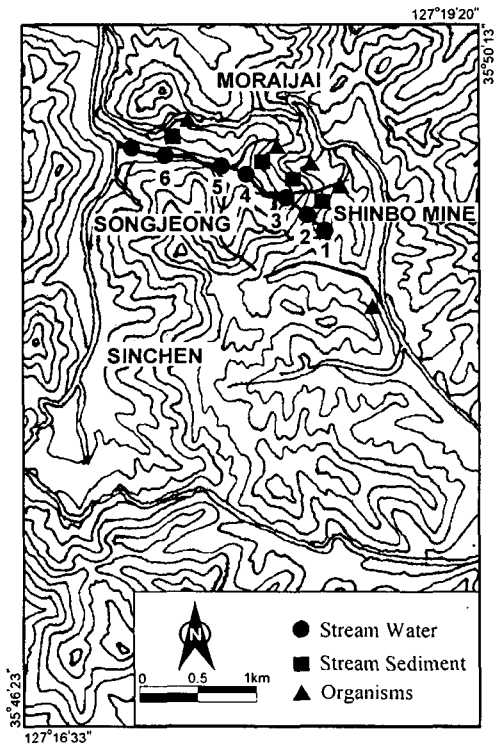


Fig. 2. Hydrologic system in the Shinbo mine area and sample points.

하기 위하여 신보활석광산의 항내수를 발원수로 하는 지표수계의 주 수계를 따라 7개의 하천수와 4개의 하상 퇴적물을 채취하였으며, 또한 각 하상 퇴적물 채취점에 서식하는 수생 또는 수변생물(유충, 가재, 개구리, 다슬기)을 채집하였다 (Fig. 2). 하천수 시료는 현장에서 pH (Orion pH meter 250A)를 측정하고 0.45 μm 여과지로 여과하여 부유물질을 제거한 후 산처리된 100 ml의 폴리에틸렌 시료병에 채취하고 침전 및 흡착을 방지하기 위해 순수 질산을 2~3방울 가하여 pH 2~3정도로 산성화시켰다. 하상 퇴적물 시료는 표층 퇴적물층을 대나무 삽을 이용하여 가능한 채취점을 대표할 수 있도록 하천 폭 전체에 걸쳐 소량씩 채취, 혼합한 시료를 200 g 이상씩 채취하였다. 수생 생물은 채집한 후 현장에서 증류수로 수회 세척한 다음 비닐봉지에 담아 밀봉하였다. 또한 고농도 우라늄을 함유한 지하수를 이용하여 양식된 송어를 채취하였으며, 채취된 송어는 각 부위별 우라늄 농축정도를 파악하기 위하여 아가미, 뼈, 살로 분리한 다음 각 부분을 비닐봉지에 담아 실험실까지 운반하였다. 실험실로 운반된 하상 퇴적물 및 생물시료는 즉시 전기 건조기를 이용

하여 80°C에서 완전 건조시켰다. 건조된 하상 퇴적물 시료는 체분리하여 100 mesh 이하의 입도만을 분리, 이를 대상으로 혼합산 (HF+HNO₃+HClO₄)에 의한 완전용해법 및 다양한 용매를 이용한 연속추출법 (Tessier *et al.*, 1979)에 의해 전처리하여 분석용 시료를 제조하였다. 한편 건조된 생물시료는 아게이트 유발을 이용하여 적절한 크기로 분쇄한 후 적량을 백금도가니에 취해 900°C의 전기로에서 1시간 회화시킨 다음 혼합산을 이용하여 완전 용해시키는 방식으로 분석용 시료를 제조하였다. 하천수 시료 및 전처리된 하상 퇴적물과 생물시료의 U 등 방사성 원소와 Pb 등 기타 원소는 기초과학연구원 서울분소에 의뢰, ICP-AES 및 ICP-MS를 이용하여 정량 분석하였다. 또한 각 시료에서 방출되는 방사능량을 알아보기 위하여 하천수 시료 및 용액화된 기타 시료의 일정량을 분취, 적정 배수로 농축한 다음, 그 농축액을 대상으로 각 시료의 총알파방사능량을 기초과학연구원 서울분소의 자연방사선 측정기 (α , γ -ray spectrometry)를 이용하여 측정하였다.

결과 및 고찰

하천수 중의 방사성 원소분포

신보활석광산의 항내수를 발원수로 하는 주 수계에서 채취된 하천수 시료에 대한 U, Ba, Sr 등 방사성

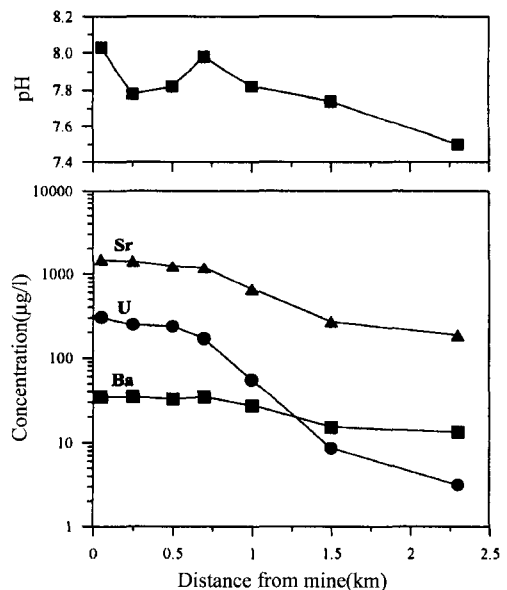


Fig. 3. Variation of pH and radionuclide content in stream water depending on distances from mine.

Table 1. Total and each fractional content of major and trace elements in stream sediments collected from the drainage system of the Shinbo talc mine.

sample	Ca		Fe		Mn		Ba		Sr		Pb		Cs		Th		U		
	mg/kg	%	mg/kg	%	mg/kg	%	mg/kg	%	mg/kg	%	μg/kg	%	μg/kg	%	μg/kg	%	μg/kg	%	
NO 2	#1	2086	39.81	2.04	0.01	17.11	6.22	4.46	3.19	28.62	37.78	80	0.52	23	0.61	0.62	0.01	46	0.05
	#2	339	6.48	2.63	0.01	50.20	18.25	3.15	2.25	4.54	5.99	8806	5.75	57	1.47	1.59	0.03	15740	18.88
	#3	601	11.47	1869	10.49	57.84	21.03	8.67	6.19	6.05	7.99	4913	32.13	341	8.88	25.25	0.47	27409	32.88
	#4	131	2.49	97.6	0.55	5.82	2.12	3.91	2.80	0.00	0.00	364	2.38	112	2.92	9.07	0.17	3487	4.18
	#5	2083	39.75	15843	88.94	144.10	52.39	119.71	85.57	48.24	9054	59.21	3307	86.12	5388	99.32	36676	44.00	
total	5240		17812		275.07		139.90		75.76	15290		3840		3840		5425		83358	
NO 3	#1	1119	23.85	0.00	9.34	3.45	4.23	2.16	19.68	27.05	49	0.38	14	0.39	0.37	0.01	28	0.06	
	#2	217	4.64	2.16	0.01	46.96	17.37	3.73	1.91	3.22	4.43	663	5.23	45	1.26	2.02	0.04	9596	21.48
	#3	472	10.07	2101	11.77	88.25	32.65	8.27	4.22	1.50	2.06	4648	36.70	404	11.26	23.86	0.43	13299	29.76
	#4	137	2.91	73.5	0.41	4.43	1.64	0.81	0.41	0.00	0.0	378	2.99	154	4.28	4.81	0.09	2785	6.23
	#5	2745	58.53	15671	87.80	121.34	44.89	178.82	91.39	48.36	66.46	6927	54.69	3970	82.80	5531	99.44	18974	42.46
total	4690		17848		270.32		195.86		72.76	12665		3587		3587		5562		44682	
NO 4	#1	2515	35.41	1.49	0.01	35.76	11.00	8.79	2.69	11.04	10.03	80	0.49	3	0.09	0.52	0.01	9	0.04
	#2	293	4.13	2.79	0.01	51.84	15.94	5.42	1.66	1.91	1.74	544	3.32	7	0.21	3.54	0.04	4466	18.27
	#3	713	10.03	2299	11.23	113.20	34.81	14.51	4.44	0.00	0.00	4836	29.56	55	1.53	35.84	0.45	10320	42.22
	#4	101	1.42	171.7	0.84	7.25	2.23	1.61	0.49	0.00	0.00	574	3.51	15	0.42	11.45	0.14	1584	6.48
	#5	3480	49.01	17993	87.90	117.15	36.03	296.77	90.73	97.12	88.23	10329	63.12	3506	97.77	7967	99.36	8064	32.99
total	7102		20468		325.17		327.10		110.07	16363		3586		3586		8019		24443	
NO 6	#1	1927	28.14	0.19	0.00	20.75	5.14	8.93	2.29	24.24	16.26	43	0.25	3	0.08	0.62	0.01	62	0.04
	#2	234	3.42	2.17	0.01	51.45	12.73	6.53	1.67	3.76	2.52	632	3.62	8	0.21	2.37	0.03	46595	27.03
	#3	559	8.16	2253	9.83	166.31	41.16	17.07	4.37	1.19	0.80	5443	31.20	80	2.13	38.77	0.52	59462	34.49
	#4	144	2.11	80.9	0.35	10.41	2.57	2.31	0.59	0.00	0.00	578	3.31	21	0.57	10.34	0.14	7797	4.52
	#5	3985	58.17	20590	89.81	155.18	38.40	356.15	91.09	19.89	80.42	10749	61.62	3632	97.01	7354	99.30	58492	33.92
total	6849		22976		404.10		390.99		149.08	17445		3744		3744		7406		172408	

#1: exchangeable fraction, #2: carbonate fraction, #3: adsorbed fraction on Fe-Mn oxides, #4: organic bounded fraction, #5: residual fraction.

원소의 분석결과를 자연수 환경을 나타내는 pH와 Eh 특성과 함께 광산으로부터 거리에 따라 Fig. 3에 도시하였다. 분석대상 하천수 시료 중의 Cs와 Th 함량은 대부분 검출 하한선 (<0.1 µg/l) 이하의 값을 보여 이를 논외로 하였다. Fig. 3에서 보여지는 방사성 원소의 거리별 함량분포특성은 방사성 원소들의 유입원인 항내수 유출지에서 멀어질수록 점차 감소하는 경향을 보였다. 김옥배, 나춘기 (1987)에 의하면 하천수계 내에 유입된 원소들의 유거거리에 따른 함량감소는 각 원소의 지구화학적 특성에 따라 주변지류의 혼입에 의한 희석작용에 의해 지배되거나 수리화학적 환경변화에 의해 지배되는 것으로 대별될 수 있으며, 전자는 주로 희석작용에 의해 함량변화를 일으키는 Ca⁺²나 SO₄⁻²이온의 함량변화에 의해 그 정도를 파악할 수 있으며, 후자는 자연수의 수리환경적 변화에 따른 각 원소의 이동성 변화 및 철-망간산화물 혹은 유기물질 및 점토입자 등과의 흡착능력에 따라 그 이동이 제한될 수 있다고 하였다. 본 연구의 조사대상 지역은 Fig. 2에 나타난 바와 같이 다수의 지류가 합류되는 복합수계로서 단일수계와는 달리 많은 양의 지류수가 혼입되고 있어 상당한 희석작용이 예상된다는 점과, 수계내의 pH 변화폭도 8.03~7.50의 범위로, 비록 광산에서 멀어질수록 알칼리성이 약화되는 경향을 보이기는 하지만, 그 변화폭이 매우 작다는 점을 고려할 때, 대상 수계에서 보여지는 방사성 원소들의 함량변화는 주로 지류들에 의한 희석작용에 의한 것으로 판단된다. 그러나 주변 지류의 평균 방사성 원소 함량을 이용하여 각 방사성 원소에서 보여지는 함량 변화를 일으킬 수 있는 지류 혼입율을 계산한 결과, U의 경우 본류 수량 대비 약 180배의 지류수가 혼입되어야 하는 반면 Ba는 약 5배, Sr은 약 12배의 지류수가 혼입되어야 함을 나타내, 대상 수계내에서 보여지는 방사성 원소들, 특히 U의 함량감소현상을 단지 지류수의 혼입에 의한 희석작용만으로 설명하기는 어려웠다. 따라서 희석작용 이외의 방사성 원소 제거 메커니즘 즉, 흡착-공침에 의한 스카벤징 효과 등도 대상 수계 내의 방사성 원소함량을 제어하는 요인으로 작용함을 추론할 수 있다. 특히 흡착-공침에 의한 제거 메커니즘은 비록 수질 그 자체는 자연정화되었다 할지라도 궁극적으로 하상 퇴적물에 방사성 원소를 농축시키는 역할을 함으로써 2차적 수질오염원으로 작용할 수 있을 뿐만 아니라 퇴적물의 쇄설성 이동에 의한 오염원 확산 및 방사성 원소의 지속적 누적에 따른 퇴적물 그 자체의 방사능 오염원화를 유발시킬 수 있다는 또 다른 문제점을 안고 있다 (나춘기, 전서령, 1995).

하상퇴적물 중의 방사성 원소분포

완전용해법 및 연속추출법에 의해 처리된 하상 퇴적물 시료에 대한 방사성 원소, 주성분 및 미량원소의 분석결과를 Table 1에 나타냈다. 또한 본 연구의 주대상 원소인 U의 지표수계 환경내 이동거리별 분산상을 Fig. 4에 나타냈다. 하상 퇴적물 내 U의 총 함량은 광산부근 수계에서 83 mg/kg으로 나타나 표층토양의 세계 평균 U 함량 범위인 0.79~11.0 mg/kg·DW (Pendias and Pendias, 1984)를 훨씬 초과하는 수준이었으며, 하류로 갈수록 44 mg/kg, 24 mg/kg으로 감소하다 광산으로부터 1.5 km 하류에서 172 mg/kg으로 급격히 증가하는 경향을 보였다. 이처럼 하류의 퇴적물에서 U이 재부화되는 현상은 부화지점이 급경사의 협곡으로 하상 퇴적물이 거의 없는 상류와는 달리 경사가 완만해지고 하천폭이 급격히 넓어지며 하상에 두터운 점토층이 퇴적되어 있는 점으로 미루어 수류에 의해 운반되는 상류의 U 부화 퇴적물이 재퇴적될 수 있는 이 지점의 지형적 특성을 반영한 결과일 것으로 추측된다. 한편 또 다른 방사성 원소인 Th의 경우 하상 퇴적물 내 총 함량은 5.4~8.0 mg/kg의 범위로 광산에서 멀어질수록 증가하는 경향을 보이다가 U이 급증하는 1.5 km에서는 7.4 mg/kg으로 다시 약간 감소하는 경향을 보였다. 그러나 Th의 경우 하천수 시료 대부분에서 검출되지 않을 정도로 미량 존재하고

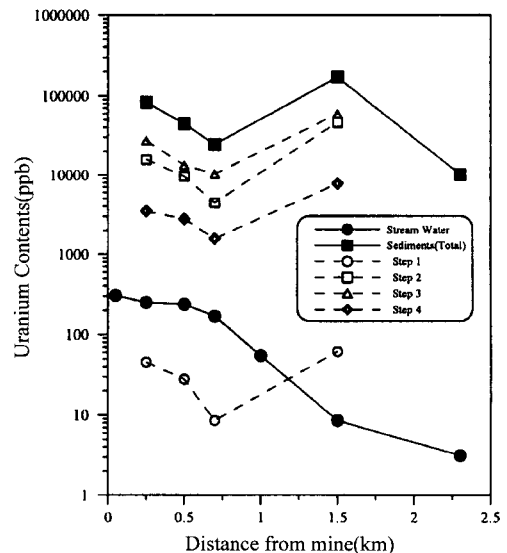


Fig. 4. Variation of uranium contents of total and each occurrence modes in stream sediments comparing with those of stream water.

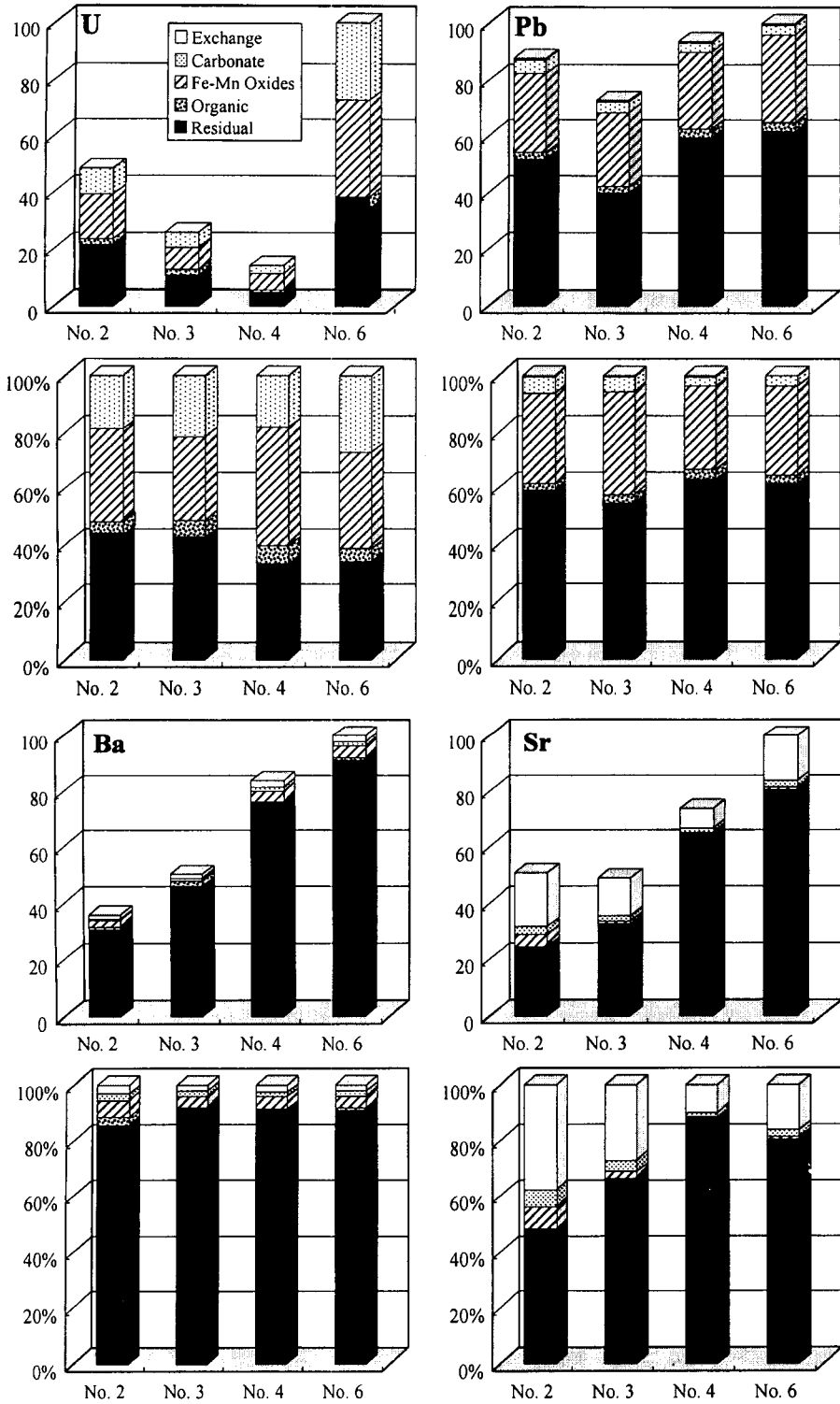


Fig. 5. Fraction distribution of elements in stream sediments collected from the drainage system of the Shinbo talc mine.

하상 퇴적물 중의 함량도 토양의 세계 평균 함량범위 (3.4~10.5 mg/kg) 내라는 사실로 미루어 대상 지역에서 유발되는 오염원으로 간주하기는 어렵다. 기타 원소들 중 Ca, Fe, Sr, Pb는 광산하류 500 m까지 감소하다가 이상에서는 다시 부화되는 경향을, Al, Mn, Ba은 광산에서 멀어질수록 점차 증가하는 경향, Cs은 하상 퇴적물에서 3.6~3.8 mg/kg의 매우 좁은 범위의 함량 분포를 보여 광산과의 거리와 관계없이 거의 일정한 경향을 각각 보였다. 또한 이들 기타 원소들의 평균함량 및 표준편차는 Fe $1.98 \pm 0.21\%$, Ba 263 ± 100 mg/kg, Cs 3.69 ± 0.11 mg/kg, Sr 102 ± 31 mg/kg, Pb 15.4 ± 1.8 mg/kg으로 Naidenov, Travesi (1977)과 Shacklette, Boerngen (1984)가 제시한 토양의 평균함량범위 (Ba=265~835 mg/kg, Cs=2.2~16.7 mg/kg, Sr=110~490 mg/kg) 및 Persaud *et al.* (1989)이 제시한 퇴적물 오염정도 판별 기준치 (Pb=31~40 mg/kg, Fe=1.7~3.0%)와 대비해볼 때 오염된 수준이라고 보기 어려웠다.

퇴적물 중에 함유된 원소들의 존재형태를 고찰하기 위하여 Tessier *et al.* (1979)이 제시한 연속추출법에 의해 제조된 시료의 분석치 (Table 1)를 토대로 대상 수계의 퇴적물에서 유일하게 오염수준을 보이는 U과 특징적 분산형태를 보이는 Pb, Ba 및 Sr의 존재형태별 비율을 계산하여 Fig. 5에 나타냈다. 주 오염원소인 U의 경우 타 원소와는 달리 광산하부로 갈수록 잔류형이 감소하는 반면 탄산염형과 철-망간산화물과 결합형태의 존재비율이 우세해지는 경향을 보임이 특징적이다. 이러한 존재상태는 U이 아라고나이트 (CaCO₃)와 공침할 수 있고 (Abdelouas *et al.*, 1999), Fe-산화물에 의해 효과적으로 흡착, 고정될 수 있다 (Sato *et al.*, 1997)는 기존 연구결과와도 잘 일치한다. 한편 Halbach *et al.* (1980)는 U의 순환과정에 수축은 결정

적인 역할을 하며 특히 유기물질에 대한 U의 수축은 U을 효율적으로 농축시킬 수 있는 메커니즘으로 작용한다고 하였으나 대상 지역의 퇴적물에서는 유기물과 결합형태로 존재하는 U의 비율은 4.2~6.8%로 탄산염형이나 철-망간염에 비해 매우 낮았다. Pb의 경우 대부분 잔류형과 철-망간산화물형으로, Ba은 대부분 잔류형으로, Sr은 잔류형과 이온교환형으로 존재하는 특성을 보였으며, 이들 모두는 비록 잔류형이 우세하면서도 광산에 가까워질수록 잔류형의 존재비가 하류에 비해 감소하는 경향을 보였다. 이러한 경향은 이들 원소 역시 비록 그 양이 적어 오염원으로 작용할 우려는 없지만 항내수에 의해 운반되고 있음을 시사하고 있다.

이상의 결과로부터 신보활석광산에서 유출되는 항내수에 수반하여 본 수계내에 유입되는 원소 중 U의 퇴적물내 축적은 매우 심각한 오염수준을 나타내고 있을 뿐만 아니라 그 축적현상이 광산 주변이 아닌 촌락과 가까운 하류지역에서 일어나고 있고 축적된 U의 60% 이상이 환경변화에 따라 쉽게 재용출-이동할 수 있는 탄산염형과 철-망간산화물형으로 존재하고 있어 이의 환경 위해성에 대한 적절한 평가와 대책이 매우 시급한 현안임을 알 수 있었다.

생물체내의 농축정도

하천수 및 하상 퇴적물에서의 U 오염 및 기타 원소의 부화현상이 수생생물에 미치는 영향을 고찰하기 위하여 각 하상 퇴적물 채취점 내에서 서식 또는 발견되는 유충과 개구리 (채취점 No. 3), 가재 (No. 5), 다슬기 (No. 6)를, U을 387 µg/함유하는 심부 지하수를 이용하여 송어양식을 하는 양식장에서 1년간 송어를 채집하여 분석한 결과 Table 2와 같았다. 생물체내 U의 함량은 저서생물인 유충에서 가장 높게 나타났으며

Table 2. Elemental content of organisms lived in/around the stream system of the Shinbo talc mine. Concentration ratios of uranium relative to stream water and total sediment were calculated. (Unit. mg/kg·DW)

	U	Concentration ratios		Ba	Cs	Pb	Sr	Th
		Co/Cw*	Co/Cs*					
Aquatic Larvae	20.13	80.5	0.24	34.58	0.349	14.97	1133	0.333
Mountain Frog	4.63	18.5	0.06	67.64	0.108	1.76	197	0.037
Crawfish	3.79	18.9	0.08	98.32	0.240	0.795	935	0.036
Black Snail	10.16	725	0.06	58.01	0.030	0.971	727	0.040
Flesh	0.013	0.03	-	0.99	0.036	3.11	1.0	0.008
Trout								
Bones	4.33	11.2	-	4.20	0.005	0.658	278	0.013
Branchia	2.03	5.25	-	1.74	0.014	2.19	111	0.007

*Co: conc. of organism, Cw: conc. of stream water, Cs: conc. of stream sediment

패각류인 다슬기, 파충류인 개구리, 갑각류인 가재 순으로 낮아졌다. 한편 생물농축 정도를 가늠할 수 있는 농도비는 하천수 대비시 다슬기>유충>가재≥개구리 순으로 낮아졌으나 퇴적물 대비시에는 그 순서가 유충>가재>개구리≥다슬기 순으로 달라지는 특성을 보였다. 이러한 차이는 각 생물체의 서식특성 및 먹이사슬과 연관되어 있는 것으로 생각된다. 즉 유충의 경우 U이 고농도로 농축된 하상 퇴적물 내에 서식하며 퇴적물내의 부식질 유기물을 먹이로 하기 때문에 상대적으로 높은 농도의 U를 함유하게 되는 것으로 판단된다. 한편 개구리와 가재는 활동반경이 상대적으로 넓고 먹이사슬도 수계내 생물에 국한되지 않는다는 점이 유충에 비해 U의 농축정도가 상대적으로 낮은 이유일 것으로 판단된다. 특히 이들은 서식환경이 상이함에도 불구하고 농축정도가 매우 유사한 경향을 보이고 있어 이들이 유사한 먹이사슬을 가지고 있으며 또한 U의 생체내 축적이 대부분 먹이사슬에 의해 이루어지고 있음을 시사하고 있다. 다슬기의 경우 그 서식지가 하류로 하천수 중의 U이 이미 자연정화되어 매우 낮음 (14 µg/l)에도 불구하고 체내에는 하천수에 비해 725배의 U (10 mg/kg)을 함유하고 있었다. 이는 다슬기 역시 유충과 비슷하게 저서생물이고 서식지의 하상 퇴적물이 가장 높은 농도의 U (172 mg/kg)을 함유하고 있다는 점을 감안할 때 다슬기 체내의 U이 대부분 하상 퇴적물로부터 유래된 것임을 유추할 수 있게 한다. 다슬기의 U 농축정도는 하상 퇴적물과 대비시 농도비가 0.06으로 나타나 개구리나 가재와 생존활동양식이 현저히 다름에도 불구하고 극히 유사한 농축정도를 보임

이 특징적이다. 한편 기타 원소들의 경우 Ba를 제외하고는 모두 유충에서 가장 높은 함량을 보였으며 나머지 생물들도 U과는 달리 생체내 함량과 퇴적물내 함량비가 생물종에 따라 현저하게 달라지는 특성을 보여 선택적 농축이 일어나고 있음을 나타내고 있다. 원소별 생물체내 농축정도는 Sr의 경우 가재>다슬기>개구리, Ba과 Cs은 가재>개구리>다슬기, Pb는 개구리>다슬기>가재의 순으로 농축되는 경향을 보였다. Th은 유충 (0.333 mg/kg)을 제외하고는 모두 거의 같은 함량 (0.036~0.040 mg/kg)을 보여 생체내 농축이 거의 일어나지 않고 있음을 보였다. 이는 하상 퇴적물에 존재하는 Th의 대부분 (>99%)이 생물이 섭취할 수 없는 잔류형으로 존재하기 때문인 것으로 생각된다.

양식 송어의 경우, 오염 퇴적물이 없고 먹이 역시 인공사료를 이용하기 때문에 순수하게 자연수 중에 용존된 원소만을 섭취한다는 점에서 자연수의 원소함량에 대비한 생체내 농축정도를 판단하는데 있어 가장 이상적인 조건을 제공할 수 있다. 주 오염원소인 U의 경우 부위별 농축정도는 뼈>아가미>살의 순으로 서식 환경수인 지하수 농도와 비교하여 뼈는 11.2배, 아가미는 5.25배로 농축되는 특성을 나타내는 반면 사람의 주 섭취대상인 살은 0.03배로 오히려 환경수에 비해 30배 이상 낮은 함량을 보였다. 이처럼 낮은 농도비는 IAEA (1994)가 제시한 자연환경에서의 물고기 살과 서식 환경수간의 농도비 2~50에 비해서도 훨씬 낮은 값으로 이는 양식이라는 특수환경과 자연환경의 차이를 반영한 결과라고 판단된다. 기타 원소들의 경우 Ba, Sr, Th은 뼈에, Cs과 Pb는 살에 주로 농축되는 경향을 보

Table 3. Total α -radioactivity measurements of water, organism and sediment collected from the stream around the Shinbaltalc mine, and calculated internal, external and effective doses.

	Analyzed Value		Calculated Value		Internal Dose ¹⁾	Effective Dose ²⁾
	pCi/ml	std.	nCi/kg	Bq/kg	Gy/year	µSv
Underground water	0.47	0.13	0.47	17.39	3.75×10^{-4}	7.5
Mountain Frog	0.13	0.11	3.66	135.42	2.92×10^{-3}	58.5
Crawfish	0.13	0.11	2.94	108.78	2.35×10^{-3}	46.5
Black Snail	0.45	0.18	18.0	666	1.44×10^{-2}	282
Flesh	<0.10	-	<0.10	<3.7	$<8 \times 10^{-5}$	<1.6
Trout						
Bones	0.16	0.12	6.99	258.63	5.58×10^{-3}	110
Branchia	0.25	0.14	3.71	137.27	2.96×10^{-3}	58.6
Sediment No. 2	1.02	0.26	188	6956	0.15	$*6.5 \times 10^{-5}$
Sediment No. 3	0.55	0.19	111	4107	8.8×10^{-2}	$*3.9 \times 10^{-5}$
Sediment No. 4	0.46	0.18	92.9	3437	7.4×10^{-2}	$*3.2 \times 10^{-5}$
Sediment No. 6	1.61	0.32	328	12136	0.26	$*1.1 \times 10^{-5}$

1) DCFs taken from Amiro (1997), 2) for an adult, DCFs taken from ICRP (1996),

*External dose calculated by DCFs of Amiro (1997).

였으며 아가미는 모든 원소에서 항상 뼈와 살의 중간 정도로 농축되는 경향을 보임이 특징적이다.

환경위해성 평가 및 대책

지표환경에 유출되는 U의 환경위해성을 평가하기 위한 일환으로서 각 대상시료에서 발생하는 총 알파방사능량을 측정하고 이를 바탕으로 내부선량 (internal dose) 및 유효선량 (effective dose)을 계산하여 Table 3에 나타냈다. 총 알파방사능량은 U의 방사능에 ⁴⁰K 및 ²³²Th에서 발생하는 방사능이 더해진 값이나 대체로 각 시료들의 U함량과 매우 높은 상관성을 보였다. 가장 고농도의 U를 함유하고있는 지하수의 총 알파방사능량은 1 t당 0.47 nCi (17.39Bq)로 나타났으며 이를 섭취했을 경우 연간 내부피폭량은 3.75×10^{-4} Gy, 성인에 대한 유효피폭량은 7.5 μ Sv/로 계산되었다. 이 값은 ATSDR (1989)에서 제시한 음용수에 의한 평균 U 폭로량 0.6~2.0 pCi/d (성인 1일 음용량 평균 2 l 기준)를 훨씬 초과하고 있을 뿐만 아니라 이 지하수를 성인 (체중 70 kg 기준)이 320 ml/d 이상 음용할 경우 EPA (1993)이 제시한 RfD (Reference Dose)값 0.003 mg/kg/d를 초과하는 것으로 나타나고 있어, 이를 식수로 장기간 섭취할 경우 그 위해성이 심각할 것으로 예상되었다. 총 알파방사능량은 U 농축정도가 심한 수생생물, 하상 퇴적물로 갈수록 점점 높아져 수생생물의 경우 건조물 기준 1 kg당 2.94~18 nCi가 검출되었으며, 그 중 최하부 즉, 수질 그 자체로만은 청정지역인 하류지역의 다슬기에서 가장 높은 방사능이 검출되어 연간 내부피폭량이 14 mGy, 성인에 대한 유효피폭량은 282 μ Sv에 달하는 등 심각한 방사능 오염 수준을 보였다. 또한 퇴적물의 경우 이를 섭취하는 일은 없겠지만 저서생물군에 미치는 내부피폭 및 외부피폭량이 각각 0.07~0.26 Gy/year, 0.07~0.1 μ Sv로 계산되었다. 특히 하류 지역의 퇴적물같이 고농도 U를 함유하는 퇴적물은 수류에 의한 이차 분산작용과 하천 주변으로부터 침식되어 유입되는 비오염 퇴적물의 혼입에 의해 재분배와 희석작용을 받게 되지만 (Hawkes, 1976), 원 오염원이 제거되지 않는 한 계속 누적되는 축적성 오염이 진행될 것이며 누적된 오염원은 수계환경의 변화에 따라 쉽게 재용출·이동될 수 있어 주변 환경에 대한 2차적 오염원으로 작용할 수 있다는 점을 고려할 때 방사성 원소의 확산을 방지하기 위하여 이를 제어할 수 있는 대책이 필요할 것으로 판단된다.

한편 고농도 U를 함유한 지하수를 이용하여 양식한

송어의 경우 U의 함량과 마찬가지로 총 알파방사능량도 주 섭취대상인 살에서는 거의 검출되지 않는 수준을 보여 동일 지하수를 음용수로 이용하지 않는 한 어떠한 방사능 오염도 우려할 필요가 없었다. 다만 지하수를 계속 양수하여 주변 하천에 배수할 경우 주 수계에서와 마찬가지로 퇴적물 및 수생생물계에 U의 농축을 유발시킬 수 있을 뿐만 아니라 방사성 원소를 지표 환경에 확산시킬 수 있다는 점에서 그 이용을 한정하거나 대체수원을 개발할 필요성이 있다고 판단된다.

결 론

신보활석광산 주변 지표수계 중에 형성된 우라늄 이상치가 지표수계 환경에 미치는 영향을 파악하고 그 환경 위해성을 고찰하기 위하여, 광산 항내수를 발원수로 하는 지표수계를 대상으로 하천수, 하상 퇴적물, 수생생물을 채취하여 방사성 원소를 포함한 원소 화학적 특성 및 총 알파방사능량을 고찰한 결과 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

1. 항내수로부터 지표수계의 하천수에 유입된 우라늄은 광산으로부터 멀어짐에 따라 그 농도가 점차 감소하여 광산 하부 약 2.5 km 지점에서 거의 배경값 수준으로 낮아졌다. 이는 주변 지류의 유입에 의한 희석작용과 동시에 부유물질 또는 철망간-산화물 등에 의한 흡착, 공침 등에 의한 하천수의 자연정화작용이 일어났기 때문이다.

2. 반면 하상 퇴적물은 광산부근에서 우라늄의 농도가 83 mg/kg에 이를 정도로 부화되어 있으며 하류로 감에 따라 감소하다가 하천폭이 커져 유속이 느려지는 1.5 Km 하류부근에서 재농축되는 경향을 보였으며 그 농도는 무려 172 mg/kg에 달하여 표층토양의 세계 평균값 0.79~11 mg/kg을 훨씬 초과하였다.

3. 하상 퇴적물에 함유된 기타 원소들의 평균함량 (\pm 표준편차)은 Fe $1.98 \pm 0.21\%$, Ba 263 ± 100 mg/kg, Sr 102 ± 31 mg/kg, Pb 15.4 ± 1.8 mg/kg으로 토양평균값 및 퇴적물 오염정도 판별 기준값과 대비할 때 오염된 수준이라고 보기 어려웠다.

4. 퇴적물 중에 함유된 우라늄의 존재형태는 이온교환형이 0.04~0.06%, 탄산염형이 18.3~27.0%, 철-망간산화물형이 29.8~42.2%, 유기물형이 4.2~6.5%, 잔류형이 33.0~44.0%였으며 하류로 감에 따라 잔류형이 감소하는 대신 탄산염+철-망간산화물형의 비율이 증가하는 경향을 보여, 유하거리가 증가함에 따라 하천수로부터 우라늄이 이들 형태로 흡착, 침전 제거됨을

알 수 있었다.

5. 하천수계에 서식하는 생물체내의 우라늄 함량은 유충 (20 mg/kg), 다슬기 (10.2 mg/kg), 개구리 (4.6 mg/kg), 가재 (3.8 mg/kg) 순으로 부화되어 있었으며, 각 생물체의 우라늄 농축계수를 가늠할 수 있는 하천수 및 퇴적물과의 농도비는 각각 유충이 80.5와 0.24, 다슬기가 725와 0.06, 개구리가 18.5와 0.06, 가재가 18.9와 0.08로 나타나 하천수 대비로는 매우 큰 폭의 농도비를 보이는 반면 퇴적물 대비로는 저서생물인 유충을 제외하고는 매우 유사한 농도비를 보임이 특징적이다.

6. 한편 고농도 우라늄을 함유한 지하수를 이용하여 양식한 송어의 각 부위별 우라늄 농축정도는 뼈>아가미>살의 순으로 서식 환경수인 지하수의 우라늄 농도에 비해 뼈는 11.2배, 아가미는 5.25배 농축되어 있으나 살은 0.03배로 오히려 서식 환경수에 비해 낮았다. 기타 원소들의 경우 Ba, Sr, Th은 뼈에, Cs과 Pb는 살에 농축되는 경향을 보였으며 아가미는 모든 원소에 서 항상 뼈와 살의 중간정도였다.

7. 각 시료에 대한 총 알파방사능은 가장 우라늄을 고농도로 함유하는 지하수가 0.47 nCi/l, 가재가 2.94 nCi/kg, 개구리가 3.66 nCi/kg, 다슬기가 18 nCi/kg, 퇴적물은 93~328 nCi/kg이었으며 양식송어의 경우 아가미 3.71 nCi/kg, 뼈 6.99 nCi/kg인 반면 살은 검출 하한인 0.1 nCi/kg 이하로 나타나 거의 방사능을 방출하지 않았다.

8. 이상의 결과로부터 신보활석광산의 향내수를 매개로 지표수계 환경에 유출되는 우라늄은 하상 퇴적물 및 생물에 농축되는 경향을 보였으며 특히 하류의 하상 퇴적물에 고농도로 집적되는 경향을 보여 이의 쇄설성 이동 및 재용출에 의해 하류 수계환경에 광범위한 우라늄 확산을 일으킬 우려가 매우 높아 이에 대한 대책이 요구되었다.

사 사

이 논문은 98 과학기술기초중점연구지원과제 (기초과학연구소 1998-015-D00269)의 연구비 지원에 의하여 연구된 것임을 밝히며, 이에 감사한다.

참고문헌

김옥배, 나춘기 (1987) 금속광상의 탐사를 위한 자연수 지구화학탐사법의 개발에 관한 연구. 광산학회지, v. 24,

- p. 255-266.
- 김정환, 이인기 (1973) 한국지질도 용담도폭설명서 (1:50,000), 국립지질광물연구소.
- 김종환, 김종대, 정태진, 오천혁 (1981) 가평지역 우라늄 광역광화대 조사연구. 한국동력자원연구소, 우라늄-8, p. 7-94.
- 나춘기, 전서령 (1995) 모악 금·은광산에 방치된 폐석이 주변 수계 및 생태계에 미치는 환경적 영향, 대한자원 환경지질학회지, v. 28, p. 221-229.
- 대한광업진흥공사 (1977) 광상시추조사보고 제3호, p. 859-860.
- 대한광업진흥공사 (1979) 광상시추조사보고 제4호, p. 886-888.
- 대한광업진흥공사 (1983) 탐광굴진 제6호, p. 264-265.
- 서효준, 신성천, 윤현수, 김통권 (1986) 전주-진안 일대의 우라늄 지화학 탐사 연구. 한국동력자원연구소 연구보고 86-3, p. 21-55.
- 오천혁, 박중권, 서효준, 김통권, 채수천, 고상모 (1989) 전북 진안 신보 광산지역 우라늄 광상조사연구. KIGAM89-, p. 81-106.
- 島村新兵衛 (1924) 전주-진안도폭 (1:50,000), 국립지질조사소.
- 정재일, 이무성, 나춘기 (1998) 신보활석광산 주변에 형성된 우라늄 이상체에 관한 지화학적 연구 (I). 대한자원 환경지질학회지, v. 31, p. 101-110.
- Abdelouas, A., Lu., Y., Nuttall, E., and Lutze, W. (1998). Reduction of U (VI) to U (IV) by indigenous bacteria in contaminated ground water. J. Contam. Hydrol. v. 35, p. 217-233.
- Abdelouas, A., Lutze, W., and Nuttall, H.E. (1999) Oxidative dissolution of uraninite precipitated on Navajo sandstone. Journal of Contaminant Hydrology. v. 36, p. 353-375.
- Amiro, B.D. (1997) Radiological dose conversion factors for generic non-human biota used for screening potential ecological impacts. J. Environ. Radioactivity, v. 35, p. 37-51.
- ATSDR (Agency for Toxic Substances and Disease Registry) (1989) Toxicological profile for Uranium (Draft). U.S. Public Health Service, U.S. Department of Health and Human Services, Atlanta, GA.
- Barnes, C.E., and Cochran, J.K. (1993) Uranium geochemistry in estuarine sediments : controls on removal and release processes. Geochim. Cosmochim. Acta v. 57, p. 555-569.
- Duff, M.C., and Amrhein, C. (1996) Uranium (VI) adsorption on goethite and soil in carbonate solutions. Soil Sci. Soc. Am. J. v. 60, p. 1393-1400.
- EPA (U.S. Environmental Protection Agency) (1991) National primary drinking water regularions for radionuclides, proposed rule, June, 1991. Washington, D.C., Office of Ground Water and Drinking Water, EPA Fact Sheet, Radionuclides in Drinking Water, 570/9-71-700.
- EPA (U.S. Environmental Protection Agency) (1993) Integrated Risk Information System (IRIS) on Uranium, Soluble Salts. Environmental Criteria and Assessment Office, Office of Health and Environmental Assessment, Office of Research and Development, Cincinnati, OH.
- Federal Register (1995) Environmental Protection Agency (EPA), CFR 40 Part 192, Groundwater Standards for

- Remedial Actions at Inactive Uranium Processing Sites, Table 1, November 1995, p. 2866.
- Halbach, P., Borstel, D. and Gundermann, K.D. (1980) The uptake of uranium by organic substances in a peat bog environment on a granitic bedrock. *Chem. Geol.*, v. 29, p. 117.
- Hawkes, H.E. (1976) The downstream dilution of stream sediment anomalies. *J. Geochem. Exploration*, v. 6, p. 345-358.
- Hsi, C.K.D., and Langmuir, D. (1985) Adsorption of uranyl onto ferric oxyhydroxides : application of the surface complexation site-binding model. *Geochim. Cosmochim. Acta* v. 49, p. 1931-1941.
- IAEA (1994) Handbook of parameters for the prediction of radionuclide transfer in temperature environments. Technical Reports Series No 364, IAEA, Vienna.
- ICRP (1978) Radionuclide release into the environment: Assessment of doses to man. ICRP Publication 29. Pergamon Press, Oxford.
- ICRP (1996) Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides: Part 5 compilation of ingestion and inhalation dose coefficients, ICRP publication 72. Pergamon Press, Oxford.
- Linsalata, P., Morse, R., Ford, H., Eisenbud, M., Franca, E.P., de Castro, M.B., Lobao, N., Sacht, I. and Carlos, M. (1991) Th, U, Ra and rare earth element distributions in farm animal tissues from an elevated natural radiation background environment. *J. Environ. Radioactivity*. v. 14, p. 233-257
- Martin, P., Hancock, G.J., Johnston, A. and Murray, A.S. (1998) Natural-series radionuclides in traditional north Australian aboriginal foods. *J. Environ. Radioactivity*, v. 40, p. 37-58.
- Naidenov, M. and Travesi, A. (1977) Nondestructive neutron activation analysis of Bulgarian soils. *Soil Sci.*, v. 124, p. 152.
- NCRP (1984) Radiological assessment: predicting the transport, bioaccumulation, and uptake by man of radionuclides release to the environment. National Council on Radiation Protection and Measurement, Bethesda, MD.
- Pendias, A.K. and Pendias, H. (1984) Trace elements in soils and plants. CRC Press, Florida, p. 149.
- Persaud, D., Jaagumagi, R. and Hayton, A. (1989) Development of provincial sediment quality guidelines. Ontario Ministry of the Environment, Water Resources Branch, Aquatic Biology Section, Toronto, Ontario, Canada.
- Phillips, E.J.P., Landa, E., and Lovely, D.R. (1995) Remediation of uranium contaminated solids with bicarbonate extraction and microbial U (VI) reduction. *J. Industr. Microbial.* v. 14, p. 203-207.
- Sato, T., Murakami, T., Yanase, N., Isobe, H., Payne, T., and Airey, P.L. (1997) Iron nodules scavenging uranium from groundwater. *Environ. Sci. Technol.* v. 31, p. 2854-2858.
- Shacklette, H.T. and Boerngen, J.G. (1984) Element concentrations in soil and other surficial materials of the conterminous United States. *U.S. Geol. Surv. Prof. Pap.*, v. 1270.
- Tessier, A., Campbell, P.G.C. and Bisson, M. (1979) Sequential extraction procedure for the speciation of particulate trace metals. *Anal. Chemistry*, v. 51, p. 844-851.
- Yanase, N., Payne, T., and Sekine, K. (1995) Groundwater geochemistry in the Koongarra ore deposit, Australia (I): implications for uranium migration. *Geochem. J.* v. 29, p. 1-29.
- World Health Organization (1993) Guidelines for drinking water quality. WHO Publications, Geneva.