

## 마산만에서 Ra 동위원소의 농도를 결정하는 인자

김영일<sup>(1)</sup>, 정창수, 김석현, 문덕수, 박준건, 서승모,  
최준선, 양동범, 홍기훈

## The Controlling Factors of Ra Isotopes in Masan Bay

by

Young Ill Kim<sup>(1)</sup>, Chang Soo Chung, Suk Hyun Kim,  
Duk Soo Moon, Jun Kun Park, Sung Mo Seo, Jun Sun Choi,  
Dong Beom Yang and Gi Hoon Hong

### 요 약

마산만에서 Ra 동위원소의 농도를 결정하는 요인을 살펴보기 위해 1개 고정정점에서 1999년 5월에서 8월까지 총 4회에 걸쳐 해수 중의  $^{226}\text{Ra}$ 과  $^{228}\text{Ra}$ 을 수심별로 측정하였다.  $^{226}\text{Ra}$ 과  $^{228}\text{Ra}$ 의 농도는 강수량이 많은 하계(8월 1일)에 비교적 높으나, 그 외의 조사시기에는 비교적 낮다. 마산만 표층수의  $^{226}\text{Ra}$ 의 시계열 변화는 염분과 높은 부의 상관관계를 보여 표층수의  $^{226}\text{Ra}$  농도는 저염분의 높은  $^{226}\text{Ra}$  내만수와 고염분의 낮은  $^{226}\text{Ra}$ 의 외양수의 혼합에 지배적인 것으로 사료된다.  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 의 방사능비는 표층수 보다 저층수에서 낮고, 이는 저층수에 과량의  $^{226}\text{Ra}$  공급원이 존재한다는 것을 의미한다. 그러나 해수의 Ra 동위원소의 주요 공급원인 퇴적물 및 간극수는  $^{226}\text{Ra}$ 에 비해 상대적으로 풍부한  $^{228}\text{Ra}$ 을 함유하기 때문에 저층수의 낮은  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  비는  $^{226}\text{Ra}$ 이 풍부한 해저지하수의 누출 가능성을 의미한다. 따라서 마산만에서 해저지하수 누출은  $^{226}\text{Ra}$ 의 농도분포를 결정하는 또다른 중요한 기작으로 사료되며, 이에 대한 집중적인 연구가 요망된다.

### Abstract

$^{226}\text{Ra}$  and  $^{228}\text{Ra}$  analysis were carried out at the representative station of Masan Bay from May to August, 1999. The high activities of  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{228}\text{Ra}$  in the surface water were appeared in rainy season (August, 1). However, there is no significant variation in concentrations in the other season. A high negative linear correlation between  $^{226}\text{Ra}$  activities and salinity in the surface water suggests that  $^{226}\text{Ra}$  activity in the surface water was controlled by simple mixing between the two end-members low salinity high  $^{226}\text{Ra}$  activity water of inner Bay and a high salinity low  $^{226}\text{Ra}$  activity water of the continental shelf water out of Bay.  $^{228}\text{Ra}$  activities below the surface mixed layer were higher than those of expected level from the  $^{226}\text{Ra}$  versus salinity. And also  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$

(1) 정회원, 한국해양연구원 해양환경기후본부, yikim@kordi.re.kr

ratios in the bottom water were lower compared to those in surface water due to the presence of potential source of  $^{226}\text{Ra}$  below the surface mixed layer. However, it is known that  $^{228}\text{Ra}$  compared to  $^{226}\text{Ra}$  is enriched in bottom sediments and pore water. Therefore, the most probable source for low  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  activity ratio is submarine ground water discharge. Further studies are required to quantify the various sources of  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{228}\text{Ra}$  and their relative contributions.

Keywords : Natural Radionuclide,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$

## 1. 서 론

Ra은 알칼리 토족에 속하는 금속원소로써 자연계에는 어미핵종인  $^{230}\text{Th}$  ( $t_{1/2}=8.0\times 10^4$  yr)  $^{232}\text{Th}$  ( $t_{1/2}=1.41\times 10^{10}$  yr),  $^{228}\text{Th}$  ( $t_{1/2}=1.9$  yr),  $^{227}\text{Th}$  ( $t_{1/2}=18.17$  day)의 방사붕괴에 의해 각각 생성되는  $^{226}\text{Ra}$  ( $t_{1/2}=1622$  yr),  $^{228}\text{Ra}$  ( $t_{1/2}=6.7$  yr),  $^{224}\text{Ra}$  ( $t_{1/2}=3.64$  day),  $^{223}\text{Ra}$  ( $t_{1/2}=11.7$  day)과 같은 동위원소가 존재한다. Ra의 화학적 성질은 하천수와 지하수에서는 입자에 강하게 흡착되어 있고, 이온강도가 큰 해수에서는 용존상태로 존재한다 (Li et al.[1977]; Li and Chan[1979]). 따라서 이들 Ra 동위원소는 화학적 성질과 각각의 반감기의 차이를 이용하여, 해당되는 시간규모의 해수의 유동 및 혼합 과정을 조사하는 유용한 추적자로 이용되어 왔다(Broecker et al.[1976]; Nozaki 1989)).

$\text{Ra}$  동위원소는 주로 하천수 및 퇴적물을 통해 하구역으로 공급된다. Li et al. [1977]은 New York의 Hudson강 하구역에서  $^{226}\text{Ra}$ 의 농도가 해수에 비해 높은 것에서 하천수 입자표면에 흡착되어 있는 Ra이 이온강도가 큰 하구역 해수와의 접촉에 의해 탈착되어 공급된다고 했다. 따라서 하구역에서 염분에 대해 역의 상관관계를 나타낸다 (Elsinger and Moore[1980], [1983]). 그리고, Hudson강의 하구역이 전세계의 전형적인 하구역이라고 가정할 때 해양표층수의  $^{226}\text{Ra}$  중 30%가 하천수기원 입자로부터 탈착된 것이라고 추정했다. Elsinger and Moore [1980]은 Winyah만의  $^{226}\text{Ra}$ 의 농도가 하천수 유입이 적을 때 높고, 퇴적물 중의  $^{226}\text{Ra}$ 과  $^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th}$ 의 방사능비가 해양으로 갈수록 작아지는 것을 발견하고, 하구역에 퇴적된 하천기원 입자에 흡착되어 있던  $^{226}\text{Ra}$ 이 탈착되어 수주중의  $^{226}\text{Ra}$ 의 함량을 조절한다고 했다.  $^{228}\text{Ra}$ 역시  $^{226}\text{Ra}$ 과 같이 입자로부터 탈착되어

해수에 공급되지만,  $^{226}\text{Ra}$ 과 다른 점은 주로 하천수 보다는 하구역 퇴적물로부터 공급된다. 그리고  $^{226}\text{Ra}$ 에 비해 반감기가 짧기 때문에 퇴적물이  $^{228}\text{Ra}$ 의 효과적인 조절자가 된다 (Moore[1981]).

Ra의 또다른 공급원은 최근 발견되기 시작한 것으로 해저로 유입되는 지하수이다. Moore [1996]는 South Atlantic Bight의 해수중  $^{226}\text{Ra}$  농도는 하천기원 입자 및 퇴적물로부터의 확산만으로는 관측된 농도에 미달하므로, 염분이 높은 지하수 (brackish ground water)에 의해 상당량 공급된 것으로 규명하였다. Moore는 또한 연안으로 유입되는 하천유량의 약 40%를 지하수 경로가 차지하고 있는 것을 규명하였다. 또한 정 등[2000]도 마산만에서  $^{222}\text{Rn}$ 을 이용하여 해저지하수의 누출 가능성과 풍부한 영양염을 함유한 해저지하수의 누출은 또다른 부영양화 인자로 작용할 수 있다고 보고하였다.

이에따라 본 연구는 Ra 동위원소의 화학적 성질과 반감기 및 유입원의 차이로부터 기인하는 분포특성으로부터 마산만 내의 Ra 동위원소 분포를 결정하는 요인을 파악하여 마산만에서의 해수의 유동과 유입되는 화학물질의 플럭스 산정을 위한 기초 정보와 해저지하수의 누출가능성을 재확인하는데 주안점을 두었다.

Table 1 Location of sampling station in the Masan Bay.

Sample ID	Location		Sampleing date	Water depth (m)	Sampling depth (m)
	Lat.	Long.			
MS990516	128.58°N	35.19°E	99/05/16	8m	0, 2, 4, 6
MS990618			99/06/18	8m	0, 2, 4, 6
MS990801			99/08/01	9m	0, 2, 4, 8
MS990825			99/08/25	8m	0, 2, 4, 6

## 2. 재료 및 방법

### 2.1 마산만 해양특성

마산만의 해상 총면적은 650km<sup>2</sup>, 육상집수 구역 면적은 약 1000km<sup>2</sup>에 달하는 반폐쇄성 내만이다. 동서로는 가덕도 동두밭에서 거제대교로, 남북으로는 마산 내만에서 장승포시 양지에 이르는 지역으로, 만내의 해수교환은 주로 가덕수로를 통해서 조류에 의해서 이루어진다. 연중 평균기온은 14.8℃, 연평균 강우량은 1509mm이다 (정 등 [2000]). 마산만으로 유입되는 하천유량은 평균 975,000m<sup>3</sup>/day로 약 80%가 장원천, 남천 및 산호천을 통해 유입된다.

### 2.2 시료채취 및 분석방법

본 연구는 1999년 5월부터 8월에 걸쳐 총 4회 마산만 내의 1개 고정정점에서 수심별로 시료를 채취하여 해수중 용존 <sup>226</sup>Ra과 <sup>228</sup>Ra을 측정하였다. 관측점 및 시료채취 시기와 수심을 Table 1과 Fig. 1에 나타내었다.

Ra 동위원소는 1개의 부유입자를 여과하는 0.5 μm polypropylene threaded cartridge filter와 2개의 MnO<sub>2</sub> 포화 polypropylene cartridge filter를 직렬로 연결한 필터 카트리지를 사용하여 해수로부터 추출하였다 (Baskaran et al.[1993]). 즉 각 수심별로 양수펌프를 이용하여 해당 수심의 해수를 선상으로 끌어 올려 펌핑속도 20L/min로 200L 이상을 통과시켰다.

해수를 통과시킨 MnO<sub>2</sub> 포화 필터는 증류수로 세척하여 염분을 제거한 후 필터를 절개하여 회화로에서 550℃로 6시간 이상 회화하였다. 그리고 남은 재의 무게를 측정한 후 감마 측정용 용기에 넣어 밀봉 후 <sup>226</sup>Ra의 딸핵종인 <sup>222</sup>Rn과 <sup>228</sup>Ra과 <sup>228</sup>Ac이 방사평형을 이루도록 20일 경과한 후에 <sup>214</sup>Pb과 <sup>228</sup>Ac의 감마선을 각각 측정하였다.

사용한 감마 검출기는 Canberra(R)사의 GCW 2523형의 HPGe으로 깊이 59mm, 직경 57.5 mm인 closed-end coaxial well crystal이고 결정의 활성 부피 (active volume)은 138.6 cm<sup>3</sup>인 가로형과 세로형 2종류를 사용하였다. 감마선을 정량적으로 측정하기 위해 미국 IPI사에서 구입한 감

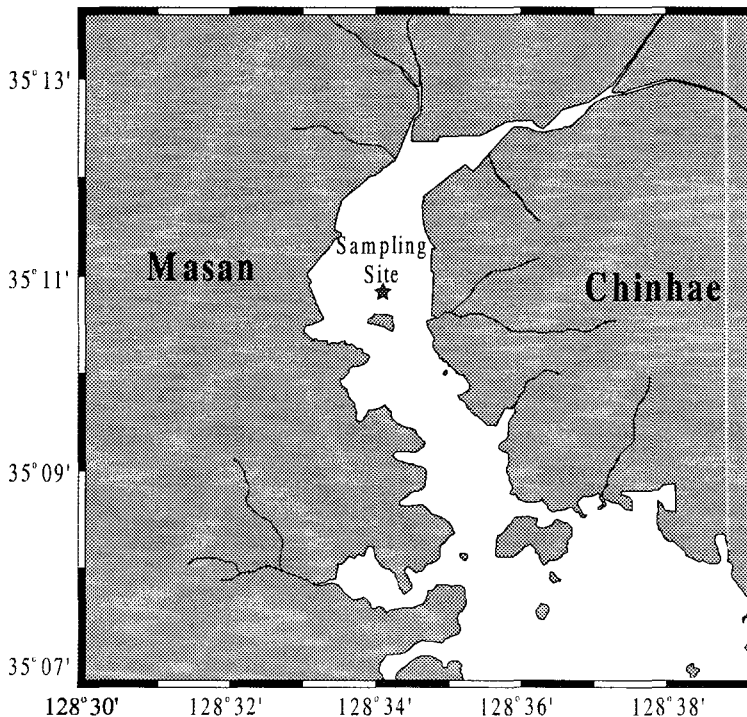


Fig. 1 Sampling location for four sampling periods in the Masan Bay.

마표준선원 (341-30 시리즈)를 사용하여 각 채널 당 에너지를 할당하고, 각 에너지당 검색효율은 Knee high 값의 왼쪽부분에는 적당한 표준선원이 없기 때문에 에너지당 검색효율식을 구하지 못하였고, 단지 100keV 이상의 부분에서만 보정식을 구하였다. IPL사의 7개 점표준선원을 well 중심에서 6cm 높이에 두고 계측하여 상대적인 검색효율곡선을 구한 후 Natural U 표준용액 (미국 EPM 표준시료 1843-1) 시료로부터 영속평형을 이루고 있는 딸핵종  $^{234}\text{Th}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ 의 피크로부터 절대 검색효율을 구하였다. 이들의 상대 검색효율과 절대검색효율을 비교하여 인자를 구한 후 영속평형에 도달되었다고 믿어지는 저어콘에 포함된  $^{238}\text{U}$ 의 딸핵종들의 감마선을 측정하여 보정결과를 검증하였다. 그리고 이 값들을 사용하여 회귀곡선을 구한 후 직접 측정하지 못한 에너지에서 검색효율을 내삽법에 의거 산출하였다. 이 에너지-검색효율의 관계식은 시료 높이가 20mm일 때

$$\log(\epsilon) = -1.00817 \times (\log E)^2 + 3.793754 \times \log E - 3.7071$$

이고, 여기서  $\epsilon$ 는 검색효율, E는 에너지이다. 시료의 well 내의 높이효과의 보정은 2000 dpm의 Uranyl actate 용액을 희석하여 7~35mm의 시료

높이에 대한 단위시간당 누적계수를 측정하였다. 이렇게 하여 구한 높이효과의 인자는

$$F = -0.0005 \times H^2 + 0.01542 \times H + 0.8916$$

이었다.

이렇게 하여 계산한  $^{228}\text{Ra}$ 의 검색효율은 0.249 이었고, intensity는 0.124이었다. 이 값을 이용하여  $^{228}\text{Ra}$ 의 계수값을 보정하여 농도로 환산하였다.  $^{226}\text{Ra}$ 은 액체 및 해저 퇴적물 표준물질 (Standard Reference Material) 및 보증물질 (Certified Reference Material)을 사용하여 여러 가지 geometry 별로 검정하였다 (IAEA/RGU-1, Isotope Products Laboratory 제공  $^{226}\text{Ra}$  용액). 이렇게 구한 표준시료의  $^{226}\text{Ra}$ 에 대한 dpm/cpm비는 세로형에서 18.54, 가로형에서는 15.31이었다. 이들 dpm/cpm비를 이용하여 측정된 시료의 cpm 값을 곱하여  $^{226}\text{Ra}$ 의 농도를 계산하였다.

해수로부터의 추출 효율은 2개의 필터에 대한 상대적인 효율로부터 계산하였다. 2개의 필터 상태가 동일하다고 가정하면 추출효율은  $\eta = 1 - F2/F1$ 이 된다. 여기서 F1과 F2는 각각 첫 번째와 두 번째 필터에서의 Ra 동위원소의 농도이다. 추출효율의 제한요인에 관해서는 Baskaran et al. [1993]에 자세하게 기술되어 있다.

Table 2 Ra isotope concentrations of the Masan Bay.

Sample ID	Sampling Depth (m)	Temp (°C)	Salinity (psu)	$^{226}\text{Ra}$ (dpm/100L)	$^{228}\text{Ra}$ (dpm/100L)	$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ Ratio
MS990526	0	20.0	29.0	10.13 ± 0.76	39.43 ± 1.31	3.89 ± 0.32
	2	17.8	31.4	11.75 ± 1.12	34.63 ± 1.63	2.95 ± 0.31
	4	16.5	32.3	14.81 ± 1.02	37.21 ± 1.20	2.51 ± 0.19
	6	16.0	32.6	17.22 ± 1.19	39.15 ± 2.03	2.27 ± 0.20
MS990618	0	22.6	23.0	15.69 ± 0.56	38.76 ± 0.97	2.47 ± 0.11
	2	19.3	32.4	15.97 ± 1.27	20.60 ± 2.49	1.29 ± 0.19
	4	18.8	32.6	15.50 ± 0.46	37.92 ± 0.86	2.45 ± 0.09
	6	18.7	32.8	12.87 ± 0.36	32.69 ± 0.58	2.54 ± 0.08
MS990801	0	23.9	6.1	23.55 ± 1.05	74.90 ± 1.56	3.18 ± 0.16
	2	23.6	9.9	19.21 ± 0.67	41.60 ± 1.22	2.17 ± 0.10
	4	23.2	28.8	30.59 ± 2.78	41.51 ± 2.28	1.36 ± 0.14
	8	22.7	29.8	19.04 ± 0.88	47.39 ± 1.42	2.49 ± 0.14
MS990825	0	25.0	24.1	11.70 ± 0.75	37.78 ± 1.07	3.23 ± 0.23
	2	24.7	25.3	15.36 ± 2.25	21.41 ± 1.63	1.39 ± 0.23
	4	24.0	26.9	17.90 ± 2.00	37.31 ± 1.57	2.09 ± 0.25
	6	22.7	27.2	22.01 ± 3.87	20.02 ± 1.87	0.91 ± 0.18

### 3. 결과 및 고찰

수온 및 염분의 수직분포를 Table 2와 Fig. 2에 나타내었다.

#### 3.1 수온 및 염분의 수직분포

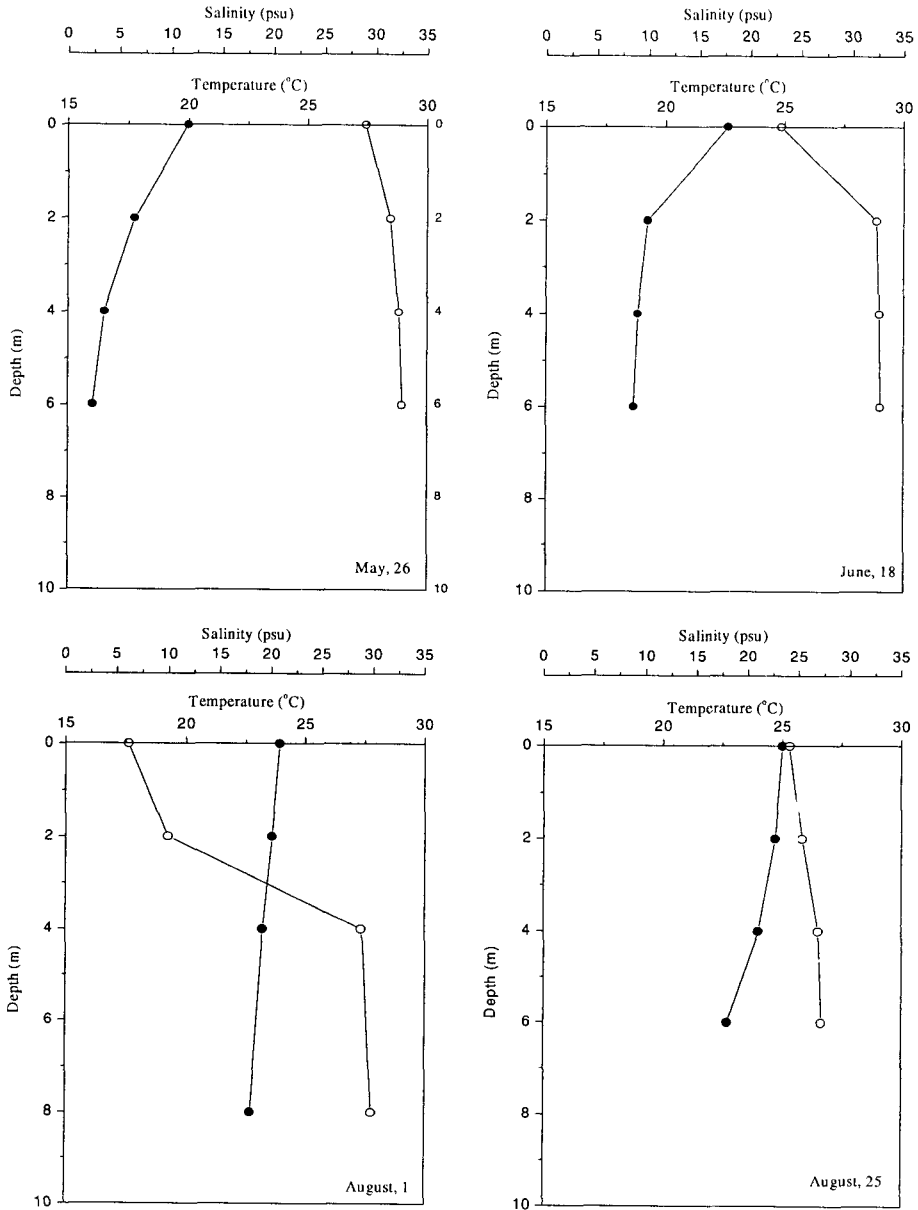


Fig. 2 The vertical profiles of salinity (open circle) and temperature (closed circle) in the Masan Bay.

표층수온은 5월에 20.0°C로 낮고, 8월로 갈수록 점차로 일사량의 증가에 의해 높아져서 8월 25일에는 25.0°C를 나타내었다. 수직분포는 0.5°C 기준으로 볼때 표면혼합층 (surface mixed layer)은 5월과 6월에는 2m보다 낮고, 8월 1일에는 2m, 8월 25일에는 4m 이었다.

표층수의 염분은 8월 1일에 6.1psu로 가장 낮고, 갈수기로 하천수의 유입이 적은 5월 26일에 29.0psu로 가장 높았다. 염분의 수직분포는 5월과 6월에는 2m까지 염분약층이 나타나지만 6월이 5월에 비해 현저하다. 특히 8월 1일에는 2~4m 사이에서 강한 염분약층을 보였고, 8월 25일에는 전 수심에서 일정한 농도를 나타내었다.

### 3.2 Ra 동위원소의 수직분포특성

각 시기별, 수심별  $^{226}\text{Ra}$  및  $^{228}\text{Ra}$  그리고  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  방사능비를 Table 2에 나타내었다. 해수중  $^{226}\text{Ra}$ 의 농도범위는  $10.13 \pm 0.76 \sim 30.59 \pm 2.78$  dpm/100L로 남해 표층수의 범위 (7.0~31.7 dpm/100L, 홍[1998]) 내에 들어가고, 낙동강 하구역의 염분 10psu 이상의 해역 (8.0~25.0

dpm/100L, 평균 11.6 dpm/100L, Hwang et al., personal communication)과 양쯔강 하구역 ( $9.4 \pm 0.6 \sim 26.8 \pm 1.8$  dpm/100L, Elsinger and Moore [1983])에 비해 다소 높은 값을 나타내었다 (Fig. 3).

표층수의 농도분포는 5월 26일에  $10.13 \pm 0.76$  dpm/100L로 가장 낮았고, 8월 1일에  $23.55 \pm 1.05$  dpm/100L로 가장 높았다. 8월 1일에 높은 농도를 나타내는 것은 염분에서도 나타나는 것과 같이 7월말의 많은 강수로 인해 하천수와 함께 유입된 많은 입자물질로부터 탈착된  $^{226}\text{Ra}$ 의 영향으로 생각된다. 수직분포는 5월 26일과 8월 1일에는 수심의 증가에 따라 증가하였지만, 6월 18일과 8월 1일에는 해저 인접 수층에서 표층에서의 농도보다 감소하는 수직분포 경향을 보인다.

$^{228}\text{Ra}$  농도는  $20.02 \pm 1.87 \sim 74.90 \pm 1.56$  dpm/100L의 범위로 남해 표층수  $6.7 \sim 99.3$  dpm/100L (홍[1998])의 범위내에 포함되지만, 양쯔강 하구역  $16.3 \pm 3.5 \sim 52.6 \pm 4.0$  dpm/100L(Elsinger and Moore[1983])에 비해 다소 높고, 낙동강 하구역의 염분 10% 이상의 해역값인 16.7~70.6

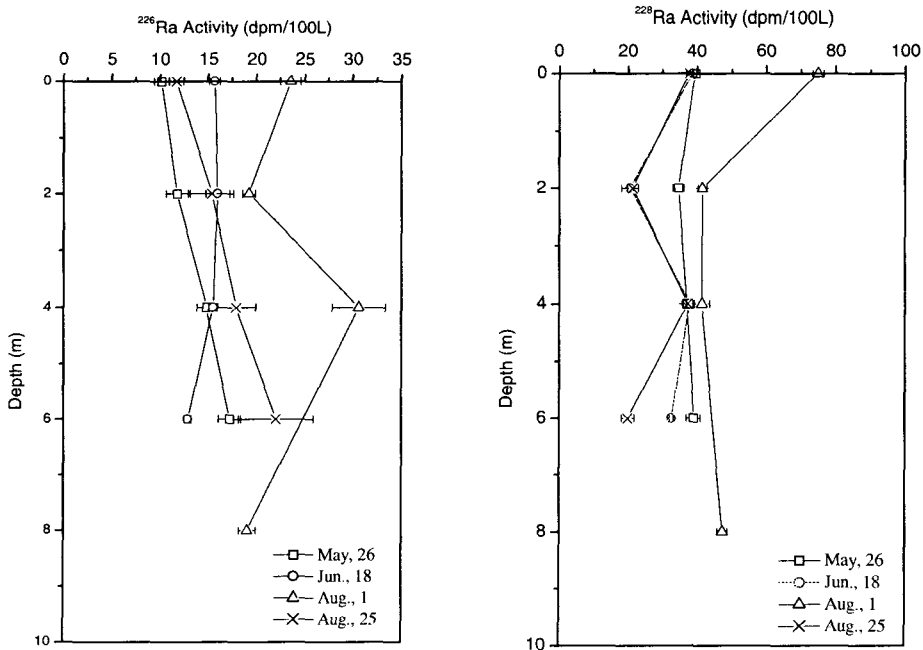


Fig. 3 The vertical profiles of  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{228}\text{Ra}$  concentration in the Masan Bay.

dpm/100L(Hwang et al., personal communication)와 비슷하다. 표층수의 농도는 8월 1일을 제외하고 모두 오차범위 내에서 일정하고 8월 1일에 비해 1.9배 낮은 농도를 나타내었다 (Fig. 3). 수직분포는 각 조사시기별로 모두 표층에서 다소 높은 농도를 보이고, 2m 이심에서는 낮은 농도를 나타내었다. 그리고 8월 1일에 전 수심에 걸쳐 타 시기에 비해 높았다. 5월 26에는 전수심에서 일정한 농도를 나타내었고, 6월 18일과 8월 25일은 4m까지는 동일한 분포를 나타내고, 저층에서 8월 25일이 낮았다.

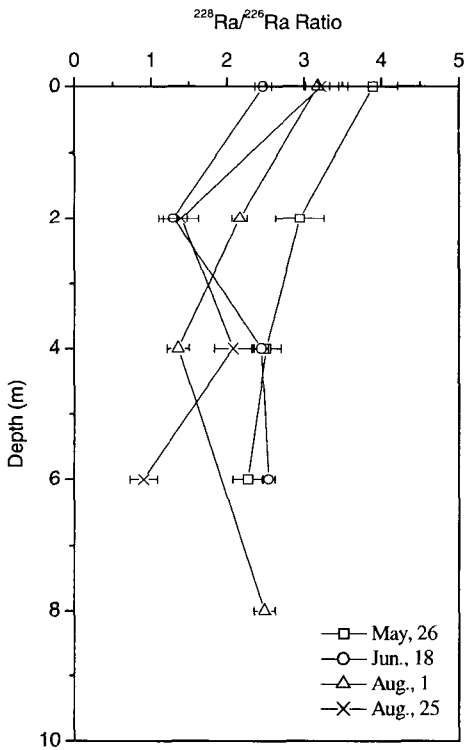


Fig. 4 The vertical profiles of  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  activity ratio in the Masan Bay.

$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  방사능비는  $0.91 \pm 0.18 \sim 3.89 \pm 0.32$ 로 범위로 남해 표층수의  $0.46 \sim 3.67$  (홍[1998]), 양쯔강 하구역의  $1.43 \pm 0.31 \sim 3.40 \pm 0.24$  (Elsinger and Moore[1983])와는 동일한 범위를 보이지만 1996년 9월의 마산만 입구의  $4.04 \pm 0.06$  (이와 김 [1998])에 비해서는 다소 낮은 값을 나타내었다.

또한 5월에  $3.89 \pm 0.32$ 로 가장 높고, 6월에  $2.47 \pm 0.11$ 로 가장 낮았다 (Fig. 4). 수직분포는 모든 시기에 표층에서 높고, 2m에서 낮아지고, 5월 26일은 저층까지 점차로 낮아지지만, 8월 1일은 저층에서 다시 증가한다. 그리고 6월 18일과 8월 25일에는 4m에서 다시 증가한 후 6월 18일은 저층까지 일정하지만, 8월 25일은 다시 감소하는 분포를 나타내었다.

### 3.3 마산만에서 Ra 동위원소의 농도분포를 결정하는 요인

마산만 내에서 Ra 동위원소의 농도분포는 다음의 4가지 요인에 의해 결정될 수 있다.

1. 마산만으로 부터 유입되는 하천수 및 부유입자 중의 Ra 동위원소의 농도
2. 만의의 남해해수와 의 혼합
3. 퇴적물로부터 어미핵종인  $^{230}\text{Th}$ 과  $^{228}\text{Th}$ 의 방사붕괴
4. 해저지하수의 유출영향

먼저 마산만으로 유입되는 하천수 및 부유입자 중의 Ra 동위원소의 농도가 만내의 Ra의 농도에 미치는 영향을 살펴보면, 마산만으로 유입되는 남천의 상류인 남산천에서 Ra 동위원소를 측정해본 결과 용존  $^{226}\text{Ra}$ 이  $3.74 \pm 0.27$  dpm/100L,  $^{228}\text{Ra}$ 이  $5.55 \pm 0.86$  dpm/100L로 만내의 해수에 비해서 1자릿수 낮은 값을 나타내었지만, 하천수의 유입이 가장 많았던 8월 1일에  $^{226}\text{Ra}$ 과  $^{228}\text{Ra}$  모두 마산만 정점의 전 수심에 걸쳐 타 시기에 비해 높았다. 특히 표층에서 그 차이는 현저하였다. 하천수의 부유입자 농도 및 부유입자 중의 Ra의 농도에 대한 자료의 부족으로 하천수로 부터의 Ra 플럭스를 정량적으로 평가할 수 없지만, 하천수 유입량의 변화가 만내의 Ra 농도를 조절하는 중요한 인자임을 시사하고 있다.

만의의 남해해수와 의 혼합의 효과에 대해 살펴 보면 김과 한 [2000]이 5월에 마산만 외해역에서 측정된  $^{226}\text{Ra}$ 과  $^{228}\text{Ra}$ 의 농도는 각각 8.52 dpm/100L 및 13.38 dpm/100L로 본 연구해역인 만내에 비해  $^{226}\text{Ra}$ 은 16%,  $^{228}\text{Ra}$ 은 67% 낮은 농도를 나타내었다. 그리고  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 의 농도비는 1.58 (김과 한[2000])로 본 연구해역이 2.5배나 높았다. 그러나 1996년 9월에 보다 만입구에 가까운 정점에서 이와 김 [1998]이 측정 한 값은  $4.04 \pm 0.06$ 으로 본 연구에서 측정된 값인  $3.89 \pm 0.32$

와 오차범위 내에서 차이를 나타내지 않았다. 이렇게 만 입구와 만내에서  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 의 방사능비가 만의해역에 비해 높은 것은 상대적으로 수심이 낮고, 연안퇴적물 기원의  $^{228}\text{Ra}$ 의 공급이 많았기 때문으로 생각된다.

일반적으로 하천수는 연안역의 주된 Ra 공급원 중의 하나이다. 즉 하천에 의해 운반되는 많은 입자상 물질에는 2가의 양이온이 많이 흡착되어 있고, 이러한 양이온이 하천수와 해수의 혼합역에서 탈착된다 (Kharkar et al.[1968]; Hanor and Chan[1977]). 이와같이 Ra도 주로 하천수에 용존된 형태와 입자에 흡착된 형태로 해양으로 유입되어 해수와의 혼합에 의해 입자에서 탈착되어 해양으로 유입된다. 따라서 하구역에서 염분에 대해 용존 Ra 동위원소의 농도를 도시하면 염분 16psu이하에서 증가하는 경향을 보인다 (Elsinger and Moore[1980], [1983]). Fig. 5에 모든 기간 및 수심별로 염분에 대한  $^{226}\text{Ra}$ 의 상관관계를 나타내었다. 전 시료채취 기간에 걸쳐 염분이 6~32psu까지 변동하고 있고, 표층부근 약 2m까지는 염분 증가에 따라 직선적으로 감소하고 있다. 따라서 표층에서의  $^{226}\text{Ra}$  농도는 마산만내로 유입되는 하천수의 부유입자가 해수와 만나 혼합된 후 탈착됨으로써 높은  $^{226}\text{Ra}$  농도를 가진 만내의 혼합수가 만의 해수와의 일차원적인 단순 혼합에 의해  $^{226}\text{Ra}$  농도가 결정되는 것으로 생각된다. 그러나 4m 이하의 수심에서는 염분이 25psu 이상이고, 표층수와는 달리 단순 혼합에 의해 예상되는 농도보다 높다. 이것은 마산만 내에 하천수 이외에 다른  $^{226}\text{Ra}$ 의 공급원이 존재함을 시사한다.

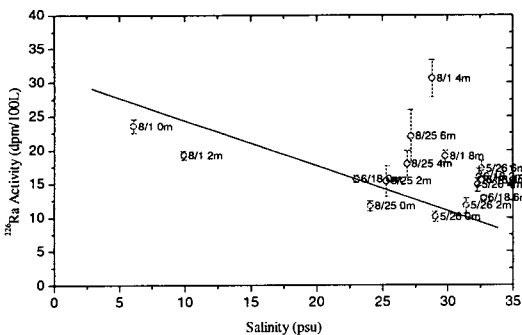


Fig. 5 The plot of salinity versus  $^{226}\text{Ra}$  concentration in the Masan Bay.

Li et al. [1977]은 실내실험에서 하구의 저층 퇴적물에서 해수로 Ba과 Ra이 용출되는 것을 확인하고, 하구역에서 높은  $^{226}\text{Ra}$  농도는 주로 하천에서 유입된 입자 및 수중 또는 퇴적물 표면에서 용출된 것이라고 결론지었다. 따라서 본 연구해역에서도 수심 4m 이하의 고염 해수에서 예상되는 것보다 높은  $^{226}\text{Ra}$ 은 대부분이 퇴적물에 존재하는 어미핵종  $^{230}\text{Th}$ 의 방사붕괴에 의해 생성된  $^{226}\text{Ra}$ 이 공급된 것으로 생각된다. 이러한 하구역에서의 Ra의 비보존적 거동은 다른 하천에서도 보고되어 있다 (Elsinger and Moore[1980], [1983]; Moore[1981], Key et al.[1985]; Moore and Scott[1986]).

Fig. 6에  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  방사능비의 염분에 대한 상관관계를 나타내었다. 그림에서 보는 것과 같이 염분 25 psu 이상에서는 대부분이 수심 2m 이하의 시료들이 차지하고 있고, 또한 표층에 비해서도 낮은 방사능 비를 나타낸다. 일반적으로 하구역 퇴적물에는  $^{228}\text{Ra}$ 이  $^{226}\text{Ra}$ 에 비해 많이 존재한다 (Cochran [1979]; Moore [1981]).

Cochran [1979]은 Long Island Sound와 Naragansett Bay에서 퇴적물과 공극수 중의 Ra 동위원소를 측정하여  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  방사능 비가 하천수에서는 0.89, 퇴적물에서는 1.1~1.2이지만, 공극수 중에서는 7.2~8.9로 높고, 퇴적물로부터의  $^{228}\text{Ra}$ 의 플럭스가 0.8~1.3 dpm/cm<sup>2</sup>/day로  $^{226}\text{Ra}$ 의 0.003~0.011 dpm/cm<sup>2</sup>/day 비해 크다고 보고했다.

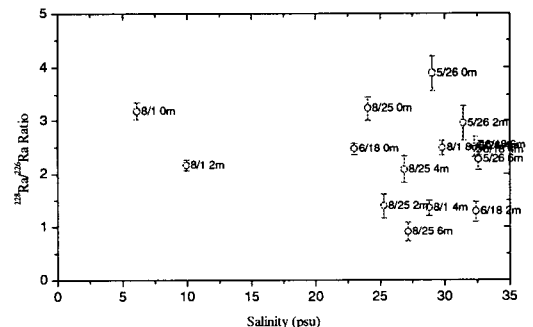


Fig. 6 The plot of salinity versus  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  activity ratio in the Masan Bay.

퇴적물 중 어미핵종으로부터 반감기 차이에 의해 생성되는  $^{226}\text{Ra}$ 과  $^{228}\text{Ra}$ 의 생성비를 계산하면



240이다. 따라서 동일한 속도로 공극수로 Ra이 용출된다고 하면 공극수 중의 방사능 비 역시 240이 되어야 할 것이다. 그러나  $^{228}\text{Ra}$ 의 반감기가  $^{226}\text{Ra}$ 에 비해 짧고, 연안역 표층퇴적물과 공극수는 해수와 접해 있고, 조석등의 영향으로 혼합되고 있기 때문에 이론치보다는 낮은 값을 나타내는 것으로 생각된다. 또한 Moore [1980]는  $^{226}\text{Ra}$ 은 하구역으로 유입된 입자로부터 공급되고,  $^{228}\text{Ra}$ 은 하구역 퇴적물로부터 공급된다고 했다. Key et al [1985]도 아마존 하구역에 대한 연구에서 대부분의 excess  $^{226}\text{Ra}$ 은 하천기원의 입자에서 탈착된 것이고, excess  $^{228}\text{Ra}$ 은 하구역 퇴적물에서부터 공급된 것이라고 했다. 따라서 해수중의 Ra 동위원소비도 저층부근에서는 높게 나타나야 하지만, 본 연구해역에서는 오히려 표층보다 다소 낮은 방사능 비를 나타내고 있다. 따라서 본 연구해역 저층부근의 높은  $^{226}\text{Ra}$  농도는 퇴적물로부터 이류, 확산 및 혼합에 의한  $^{226}\text{Ra}$ 의 공급만으로는 설명을 할 수 없고, 또 다른  $^{226}\text{Ra}$ 의 공급원이 마산만에 존재함을 시사한다. 정 등[2000]은 마산만의 저층수에서  $^{226}\text{Ra}$ 의 딸핵종인  $^{222}\text{Rn}$ 의 농도분포로부터 마산만내에 강수량이 많은 하계에 퇴적물로부터 해저지하수 누출의 가능성을 보고하였다. 실제 마산만 연안주변의 육상지하수 중의  $^{226}\text{Ra}$ 의 농도는 147~225 dpm/100kg으로 만내의 해수에 비해 1자리 높다 (정 등[2000]). 따라서 퇴적물로부터 지하수가 누출되면 그 영향으로 저층부근의  $^{226}\text{Ra}$  농도에도 영향을 줄 수 있다. Moore[1996]는 South Atlantic Bight에서 과량의  $^{226}\text{Ra}$  농도는 하천기원 입자 및 퇴적물로부터의 확산으로는 설명할 수 없어, 염분이 높은 해저지하수 (brackish groundwater)에 의해 공급된 것으로 설명하였고, 연안수로 유입되는 담수의 약 40%가 지하수에 의해 기여된다고 보고하였다. 본 조사 정점에서  $^{226}\text{Ra}$ 의 농도변화는 저층에서 증가할 때 (5월 26일, 8월 25일)는 최저조위로 썰물때이었고, 감소할 때 (6월 18일, 8월 1일)는 밀물 때를 나타내었다 (Fig. 3). 따라서 조석에 의한 해면의 수위 변화에 의해 해저지하수의 누출이 결정되는 것으로 사료된다. 즉 썰물때 해수면이 낮아짐에 따라 해저퇴적물에 작용하는 압력이 약해져서 퇴적물 내의 높은  $^{226}\text{Ra}$ 과 함께 지하수가 누출되는 것으로 생각된다.  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 의 방사능비 역시 썰물때 높은  $^{226}\text{Ra}$  농도의 영향으로 저층에서 낮고, 밀물때 높았다. 그러나

$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  방사능비가 낮은 인접해수가 유입된 결과일수도 있기 때문에 차후 조석 주기별  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  방사능 비의 변동에 대한 자세한 조사가 요망된다.

#### 4. 결론

1999년 5월에서 8월까지 4회에 걸쳐 마산만 내의 1개 고정정점에서 수심별로 해수의 유동 추적자인 Ra 동위원소를 측정하여 마산만 내에서 Ra 동위원소의 농도를 결정하는 요인에 대해 살펴본 결과 :

1. 염분에 대한  $^{226}\text{Ra}$ 의 농도의 상관관계로부터 표층수 중의  $^{226}\text{Ra}$ 은 농도가 높은 만내의 해수와 상대적으로 낮은 농도를 가진 만외 해수와 단 순혼합에 의해 결정되는 것으로 나타났다.
2. 중층 (4m) 이하의 수심에서는 대부분 퇴적물로부터 공급된  $^{226}\text{Ra}$ 이 만내의 농도분포를 결정하는데 큰 요인으로 작용하는 것으로 사료된다.
3. 그리고 퇴적물로부터  $^{226}\text{Ra}$ 의 공급기작은 퇴적물로부터 이류나 확산에 의한 것 보다는 썰물 때 높은  $^{226}\text{Ra}$  농도를 가진 해저지하수 (특히 강수량이 많은 하계)가 누출되어 만내 저층  $^{226}\text{Ra}$ 의 농도를 결정하는 것으로 생각된다.

이와같이 연안역에 해저 지하수가 유입되면, Ra 동위원소 뿐만 아니라, 중금속, 영양염류, 각종 육상오염물질 역시 지하수로 통해 유입될 것이다. 그러나 현재 연안역에서의 화학물질 및 오염물질의 거동과 순환에 있어서는 지하수의 영향은 거의 고려되지 않고 있다. 본 연구는 단지 1개의 정점에서 수주중의  $^{226}\text{Ra}$ 분포만을 고찰한 것으로, 향후 보다 정확한 Ra의 거동을 밝히기 위해서는 퇴적물과 지하수 중의 Ra 농도로부터 이들의 유입량을 정확히 조사하여, 연안역으로 유입되는 물질의 순환과 거동에 있어서 해저지하수의 영향을 정량적으로 평가하는 것이 반드시 필요하다고 생각된다.

#### 후기

본 연구는 한국해양연구소 (PE00784-01)와 과학기술부 (PN0040000) 지원으로 수행되었다.

## 참고문헌

- [1] 김기현, 한정희, 2000, "라듐 동위원소와 염분을 이용한 동중국해, 남해 및 대한해협 해수의 기원과 혼합비율", 한국해양학회지, 제5권, 3호, 216-223.
- [2] 이동섭, 김기현, 1998, " $^{228}\text{Ra}$ 을 이용한 이상저염 대마난류수의 기원 추적연구", 한국해양학회지, 제3권, 4호, 175-182.
- [3] 정창수, 홍기훈, 김석현, 김영일, 문덕수, 박준건, 최준선, 양동범, 2000, "마산만 환경평가를 위한 해저지하수의 중요성", 한국 해양환경공학회지, 제3권, 4호, 23-36.
- [4] 홍기훈, 1998, 남해대륙붕 물질순환과 생지화학 환경연구 (2차년도), 한국해양연구소, BSPE 98706-00-11389-4.
- [5] Baskaran, M., Murray, D. J., Santschi, P. H., Orr, J. C. and Schink, D. R., 1993, "A method for rapid in situ extraction and laboratory determination of Th, Pb, and Ra isotopes from large volumes of seawater", Deep-Sea Research, Vol. 40, 849-865.
- [6] Broecker, W., Goddard, S. J. and Sarmiento, J. L., 1976, "The distribution of Ra-226 in the Atlantic Ocean", Earth Planet. Sci. Lett., Vol. 32, 220-225.
- [7] Cochran, J. K., 1979, The geochemistry of  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{228}\text{Ra}$  in marine deposits, Ph. D. dissertation, Yale University, 260pp.
- [8] Elsinger, R. J. and Moore, W. S., 1980, " $^{226}\text{Ra}$  behavior in the Pee Dee River - Winyah Bay Estuary", Earth Planet. Sci. Lett., Vol. 48, 239-249.
- [9] Elsinger, R. J. and Moore, W. S., 1983, " $^{226}\text{Ra}$  and  $^{228}\text{Ra}$  in the mixing zones of the Pee Dee River-Winyah Bay, Yangtze River and Delaware Bay Estuaries", Est. Coast. Shelf Sci., Vol. 18, 601-613.
- [10] Hanor, J. S. and Chan, L. H., 1977, "Nonconservative behavior of barium during mixing of Mississippi River and Gulf of Mexico waters", Earth Planet. Sci. Lett., Vol. 37, 242-250.
- [11] Key, R. M., Stallard, R. F., Moore, W. S. and Sarmiento, J. L., 1985, "Distribution and flux of Ra-226 and Ra-228 in the Amazon River estuary", J. Geophys. Res., Vol. 90, 6695-7004.
- [12] Kharkar, D. P., Turekian, K. K. and Bertine, K. K., 1968, "Stream supply of dissolved silver, molybdenum, antimony, selenium, chromium, cobalt, rubidium and cesium to the ocean", Geochim. Cosmochim. Acta, Vol. 32, 285-241.
- [13] Li, Y.-H., Mathieu, G. G., Biscay, P. and Simpson, H. J., 1977, "The flux of Ra-226 from estuarine and continental shelf sediment", Earth planet. Sci. Lett., Vol. 37, 237-241.
- [14] Li, Y.-H. and Chan, L. H., 1979, "Desorption of Ba and Ra-226 from riverbone sediment in the Hudson Estuary", Earth Planet. Sci. Lett., Vol. 43, 343-350.
- [15] Moore, D. G. and Scott M. R., 1986, "Behavior of  $^{226}\text{Ra}$  in the Mississippi River mixing zone", J. Geophys. Res., Vol. 91, 14317-14329.
- [16] Moore, W. S., 1981, "Radium isotopes in the Chesapeake Bay", Est. Coast. Shelf Sci., Vol. 12, 713-723.
- [17] Moore, W. S., 1996, "Large groundwater inputs to coastal waters revealed by  $^{222}\text{Rn}$  enrichments", Nature, Vol. 380, 612-614.
- [18] Nozaki, Y., 1989, "Mean residence time of the shelf water in the East China and the Yellow Seas determined by  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  measurements", Geochem. Res. Lett., Vol. 16, No. 11, 1297-1300.