

화강암 지역 암반 지하수 내 불소 이온의 기원 및 거동: 충북 보은 삼승면 일대의 현장 조사와 실내 실험 연구

채기탁¹ · 고동찬^{1*} · 최병영²

¹한국지질자원연구원 지구환경연구본부, ²한국원자력연구원 고준위폐기물처분연구부

The Origin and Geochemical Behavior of Fluoride in Bedrock Groundwater: A Case Study in Samseung Area (Boeun, Chungbuk)

Gi-Tak Chae¹, Dong-Chan Koh^{1*}, and Byoung-Young Choi²

¹Korea Institute of Geoscience & Mineral Resources

²Korea Atomic Energy Research Institute

불소 오염이 심각한 곳으로 파악된 충북 보은 삼승면 일대 지역의 오염의 현황과 원인 규명을 위하여 수리지구화학 연구와 물암석 반응 실험 연구가 수행되었다. 조사 지역 암반 지하수의 불소 함량은 최대 3.9 mg/L에 이르며, 먹는물 수질기준의 불소 항목(1.5 mg/L)을 초과율은 23%에 이른다. 불소 이온의 평균 함량은 1.0 mg/L이나, 낮은 값으로의 왜도(1.3)가 크기 때문에 중앙값은 평균에 비하여 크게 적은 0.5 mg/L으로 나타난다. 불소 농도는 화강암 분포 지역에서 심부 지하수에 해당하는 NaHCO₃ 유형 지하수에서 상대적으로 높게 나타나고 있다. 불소와 질산염 이온(NO₃)은 뚜렷한 부의 상관관계를 나타내고 있어 불소는 지표 오염과 상관없는 지질기원이며, 상대적으로 심부 암반 지하수에 부화되었을 가능성을 지시한다. 이것은 조사 지역의 암석을 사용한 실내 실험에서 확인되었다. 순수흑운모 화강암 반응 실험 결과 불소 함량은 96시간 후에 최대 1.2 mg/L까지 증가하였다. 그러나 불소 농도와 지하수 관정 심도, 지구화학적으로 물암석 반응의 정도를 지시할 수 있는 인자(Na⁺, HCO₃⁻, pH 등)들의 값과는 뚜렷한 상관관계를 나타내고 있지 않았다. 이는 불소 이온이 물암석 반응 정도와 상관없이 함불소 광물의 국지적인 분포에 영향을 받을 수 있다는 것을 암시한다. 고농도의 불소를 함유하는 지하수의 공간분포는 선구조 분포와 연관되어 있음을 보여주고 있어, 물암석 반응이 상당히 진행되어 불소 함량이 높은 심부 암반 지하수가 선구조 분포 지역의 파쇄대를 통하여 배출되었음을 지시한다. 하지만, 선구조 분포와 불소 농도는 전체적으로는 일치하지 않아, 파쇄대의 분포가 불규칙적이고, 심부 지하수와 천부 지하수의 혼합과 정도 불균질함을 지시하는 것으로 추정된다.

주요어 : 불소 이온, 암반 지하수, 보은, 수리지구화학, 파쇄대

Hydrogeochemical study in Samseung area (Boeun, Chungbuk) and waterrock interaction experiment using rock samples from the area were performed to elucidate the fluoride source in groundwater and explaining geochemical behavior of fluoride ion. Fluoride concentration of public water supply mostly using groundwater in Boeun area was significantly higher in South Korea. The maximum fluoride concentration of the study area was 3.9 mg/L, and 23% of samples exceeded the Korean Drinking Water Standard of fluoride (1.5 mg/L). The average concentration of fluoride was 1.0 mg/L and median was 0.5 mg/L. Because of high skewness (1.3), median value is more appropriate to represent fluoride level of this area. The relationships between fluoride ion and geochemical parameters (Na⁺, HCO₃⁻, pH, etc.) indicated that the degree of waterrock interaction was not significant. However, high fluoride samples were observed in NaHCO₃ type on Piper's diagram. The negative relationship between fluoride and NO₃ ion which might originate from surface contaminants was obvious. These results indicate that fluoride ion in groundwater is geogenic origin. The source of fluoride was proved by waterrock interaction batch test. Fluoride concentration increased up to 1.2 mg/L after 96 hours of reaction between water and biotite granite. However, the relationship between well depth and fluoride ion, and groundwater age and fluoride ion was not clear. This indi-

*Corresponding author: chankoh@kigam.re.kr

cates that fluoride ion is not correlated with degree of waterrock interaction in this area but local heterogeneity of fluoriderich minerals in granite terrain. High fluoride concentration in Boeun area seems to be correlated with distribution of permeable structures in hard rocks such as lineaments and faults of this area. This entails that the deep bedrock groundwater discharges through the permeable structures and mixed with shallow groundwater.

Key words : fluoride ion, bedrock groundwater, Boeun, hydrogeochemistry, fractured aquifer

서 론

지하수 내 함유된 불소 이온은 대표적인 지질기원의 건강상 위해 물질이다. 불소(fluorine)는 지각을 구성하는 원소 중 13번째로 많은 원소이며, 마그마의 분화과정 중 광물정출의 마지막 단계 또는 가스상에 부화된다. 따라서 불소는 마그마 분화 후기에 생성되는 화강암이나 열수 광화대의 다양한 광물 내에 존재 할 수 있다. 불소 이온의 이온 반경(1.23~1.36 Å)은 수산화이온(1.37~1.40 Å)의 이온반경과 유사하다. 따라서 광물의 OH기를 치환하여 광물 내에 함유된다. 또한 불소는 주기율표 상의 원소 중에서 전기음성도(electronegativity)가 가장 높기 때문에 가장 강한 전자수용체로서 수용액에서는 1가 음이온(F^-)으로 존재한다. 불소 이온은 이동성이 매우 좋으며, 흡착이나 침전 등의 작용을 통해 저감되기 어려운 것으로 알려졌다. 자연수에서의 평균 불소 농도는 바닷물에서 가장 높으며($F^- = 1.3 \text{ mg/L}$) 담수 중에서는 지하수(0.33 mg/L)에서 높게 나타난다(Reimann and Caritat, 1998).

먹는물에 포함된 불소 이온은 1.5 mg/L 이상의 농도에서 반상치(斑狀齒, dental fluorosis)를 일으키며, 6 mg/L 이상에서는 골불소증(skeletal fluorosis)을 유발할 위험이 높은 것으로 알려져 있다(Fawell *et al.*, 2006). 국내에서도 지하수를 먹는물로 사용하는 사람들에게서 높은 불소 함량에 의한 반상치 사례가 자주 보고되었다. 충남 아산 및 도고 온천 지역 초등학생 5, 6학년을 대상으로 반상치 발생에 관한 역학조사 결과, 이 지역 아동들은 타 지역 아동보다 반상치 빈도가 높으나, 치아 우식증은 타 지역에 비해 낮은 특징을 나타내었다(신승철 외, 1998). 이는 먹는물로 사용하는 지하수의 높은 불소 농도(3.67 mg/L)에 기인한 것으로 판단되었다. 김해시 진영읍 지역 반상치 사례 조사에서는(최승혁 외, 2004) 이 지역 초등학교 학생을 대상으로 반상치 역학조사 결과, 일부 아동들에게서 반상치 관찰되었다. 이들이 사용하는 먹는물을 검사한 결과 불소 농도는 1.58~1.76 mg/L 이고, 주변 지하수 2개 관정의 불소 농도는 각각 5.96 mg/L, 0.73 mg/L 이었다. 연구자들은 반상치 억제

와 우식증 예방을 위해서 급수의 불소농도를 0.8 mg/L로 유지하도록 지하수와 수도물을 적절히 배합할 것을 제안하였다. 또한, 먹는물의 높은 불소 농도는 비타민, 지방, 효소, 미네랄 대사에 방해 작용을 한다. 불소를 과다 섭취하면 골경화증, 골격기형, 인대석회화, 암, 위점막 손상, 기형아출산 등의 증상이 나타나는 것으로 알려져 있으며, 급성 중독 시 신장염, 간 장애, 심장 장애 등을 일으킨다(Meenakshi and Maheshwari, 2006). 이에 따라 세계 각국은 먹는물에서의 불소 이온의 농도를 철저히 통제하고 있다. 세계 보건기구는 우리나라, 영국, 호주, 캐나다, 독일, 러시아와 같이 1.5 mg/L를 수질기준으로 삼고 있으나, 미국은 4 mg/L로 불소의 위험을 과소평가 하고 있으며, 일본의 경우 0.8 mg/L로 불소의 위험을 심각하게 관리하고 있다.

지하수의 불소 함량에 관한 연구는 꾸준히 수행되고 있다. 국내에서는 지하수 내 불소의 기원, 불소 이온의 지구화학적수리지질학적 기작에 대한 연구가 활발히 수행되었다. 이중운 외(1997)는 국내 화강암질 암석이 분포하는 지역에서 심부 지하수의 주요 용존 이온 함량을 비교 설명하면서, 지하수의 산출 심도가 증가할수록 물 암석 반응시간이 길어지므로 광물로부터 용탈되는 불소의 양이 증가한다고 보고하였다. 이들에 따르면, 화강암 지역에서 심도 300 m 이상의 경우 불소 이온의 평균값은 4.47 mg/L(중앙값 2.56 mg/L)로 심도 100~300 m 관정의 불소 이온의 평균값 0.22 mg/L와 심도 100 m 미만 관정의 불소 이온 평균값 0.17 mg/L 보다 현저히 높은 값을 나타내었다. 한편, Chae *et al.*(2007)에 따르면, 온천으로 개발 된 심부 지하수의 경우 불소 이온의 평균 농도는 5.7 mg/L에 달한다. 특히 변성암지역(평균 8.7 mg/L; 중앙값 7.1 mg/L)과 화강암지역(평균 6.0 mg/L; 중앙값 5.6 mg/L)의 불소 이온 함량이 퇴적암 지역(평균 3.6 mg/L; 중앙값 1.6 mg/L)와 화산암지역(평균 2.9 mg/L; 중앙값 2.1 mg/L)에 비해 통계적으로 유의한 수준에서 차이가 나타났다. 온천을 개발을 위해 조성된 지하수 관정은 특히 대수층 상부의 천층 지하수 유입을 막기 위하여 케이싱을 깊게 설치 하는 등 관정 시설이 양호하기 때문에 온천 관정에서 산출되는 지하수는 심부 암반

대수층의 특징을 잘 반영하는 것으로 해석된다. 따라서 온천 지하수의 수질은 지하수에 용존된 이온의 물암석 반응 관계를 대표적으로 설명할 수 있는 장점이 있다. Kim *et al.*(2005)은 온양 온천의 수질 자료를 해석하면서, 관정의 심도가 깊어질수록 NO₃ 함량은 감소하고, 불소 이온의 함량이 증가하는 현상을 발견하고, 불소 이온을 심부 지하수 화학성분을 지시하는 특성 인자로 삼아서 지하수의 혼합모형을 성공적으로 적용한 바 있다. Chae *et al.*(2006a)은 경기도 포천 온천지역의 심부 지하수 관정들의 수리지구화학을 해석하는데, 불소 이온의 농도(최대 19.7 mg/L)와 함께 주요 용존 이온함량의 차이를 이용하여 심부 지하수와 천부 지하수를 구분하고 지구화학적 반응 모델을 제시하였다. 한편, 화강암 분포 지역의 지하수에서 불소 이온 함량이 높게 나타나는 것은 불소를 함유하는 광물의 풍화 반응에 기인한 것으로 생각된다. 불소 이온을 함유하는 광물은 토파즈(Al₂(F,OH)SiO₄), 형석(CaF₂), 플루오라파타이트(Ca₁₀(PO₄)₆F₂), 빙정석(Na₃AlF₆), 각섬석((Ca,Na,K)₀₋₁(Ca,Fe,Li,Mg,Mn,Na)₂(Al,Cr,Fe,Mg,Mn,Ti)₃(Al,Si,Ti)₈O₂₂(OH,F,Cl)₂), 운모류(K,Na,Ca,Ba)(Al,Cr,Fe,Li,Mg,Mn,V,Zn)₂₋₃(Al,Be,Fe,Si)₄O₁₀(OH,F)₂)로 알려져 있다. Chae *et al.*(2006b)은 증원지역 화강암과 흑운모에 대해서 배치 실험을 수행한 결과, 화강암 분말과 증류수를 반응시킨 결과 불소 농도가 500시간 만에 약 10.0 mg/L까지 증가 후 감소하였다. 흑운모 분말과 증류수를 반응시킨 결과 불소 농도가 500시간 만에 약 6.7 mg/L까지 증가 후 계속 증가하는 것으로 보고 한 바 있다. 지하수 내 불소 함량은 불소의 기원이 되는 암상(lithology)뿐만 아니라, 지하수의 유동과도 연관이 있다. 특히 대규모 단층대와 같이 심부 지하수의 상승류가 우세한 지역(배출지역)에서는 함불소 광물과 반응을 오래 거친 지하수의 유입으로 인하여 지하수 내 불소 이온 함량이 증가한다. Kim and Jeong (2005)은 포항경주 양산 단층대 주변의 고불소 지하수 산출지역의 422개의 간이 상수원 지하수 조사 결과 고불소 지하수는 양산 단층대와 화강암류의 분포와 밀접한 관련이 있다는 결론을 제시하였다.

지하수 내 불소 함량에 대한 과학적인 관리 방안을 제시하기 위해서는 불소 오염의 다양한 원인과 불소 이온의 지구화학적 거동에 대한 개별적인 사례가 더 수집될 필요가 있다. 본 연구의 목적은 불소 오염이 심각한 지역으로 파악된 충북 보은 지역의 불소 오염의 현황을 보고하고 실내 실험을 통해 불소 오염의 원인을 규명하는데 있다. 충북 보은지역은 고생대 퇴적암, 유라

기 화강암, 백악기 화강암과 용회암 등 다양한 지질이 분포하고 있어 지질기원의 불소를 연구하기 위해서는 좋은 조건을 갖추고 있다. 지하수기초조사 자료에 따르면 관정의 용도에 상관없이 먹는물 수질기준을 적용하였을 경우 약 15%의 지하수가 불소의 먹는물 수질기준을 초과하고 있는 것으로 나타나고 있어(한국지질자원연구원, 2007), 불소오염의 원인 규명과 관리방안 도출에 최적의 조건을 갖추고 있다. 이 연구를 기반으로 지하수의 불소 오염에 대응하는 과학적이고 경제적인 관리 방안의 도출이 기대된다.

연구방법

연구지역

지하수 내 불소 오염의 현황의 파악과 원인을 규명하기 위해 불소 오염이 심각하게 여겨지는 충북 보은 지역에 대해 세부적인 조사 연구를 수행하였다. 연구 지역은 충청북도 보은군 삼승면, 외속리면, 탄부면과 보은읍 일부를 포함하는 지역으로 동경 127° 42' 24"~127° 51' 36", 북위 36° 22' 58"~36° 30' 18"에 위치하며, 총면적은 103.5 km²이고, 동서로 13.8 km, 남북으로 13.6 km의 범위이다(Fig. 1(a)).

보은군은 충청북도 남부의 내륙에 위치하고 지형적으로 소백, 노령 양대 산맥으로 둘러 쌓여 커다란 분지형태를 띠고 있다. 소백산맥이 위치한 보은군의 동쪽은 속리산(1,057 m)을 중심으로 형제봉, 문장대, 관음봉, 비로봉 등 고도 800~1,000 m의 비교적 높은 산악지형이 발달해 있다. 보은군 서쪽은 해발 500 m 내외의 산들로 이루어져 있다. 평야지대는 보청천 주변으로 발달해 있다(한국지질자원연구원, 2007). 보은군 지역은 한강권역과 금강권역의 경계에 위치한다. 이 중 본 조사지역은 금강권역의 보청천 유역에 속하는 삼가천과 삼가천합류점 유역에 포함된다(Fig. 1(b)). 보은군 지역의 선구조 밀도는 고생대 퇴적층과 유라기 화강암 경계부에 높게 나타나고 있다.

보은 지역의 연평균 기온은 10.7°C이며, 연평균 강수량은 1,260 mm로서 비교적 강수량이 적은 지역에 속하지만, 2003년 2,078 mm, 2004년 1,365 mm, 2005년 1,536 mm 등 평년 강수량보다 많은 비가 내렸으며, 조사가 진행된 2007년 11월 16일까지 누적 강수량은 1,507 mm로 최근 들어 평년 값을 웃도는 강수량을 나타내고 있다. 1994년 이후로 강수량이 계속 증가하는 추세를 보이고 있으나, 강수일은 크게 늘어나지 않고 있다. 50 mm 이상의

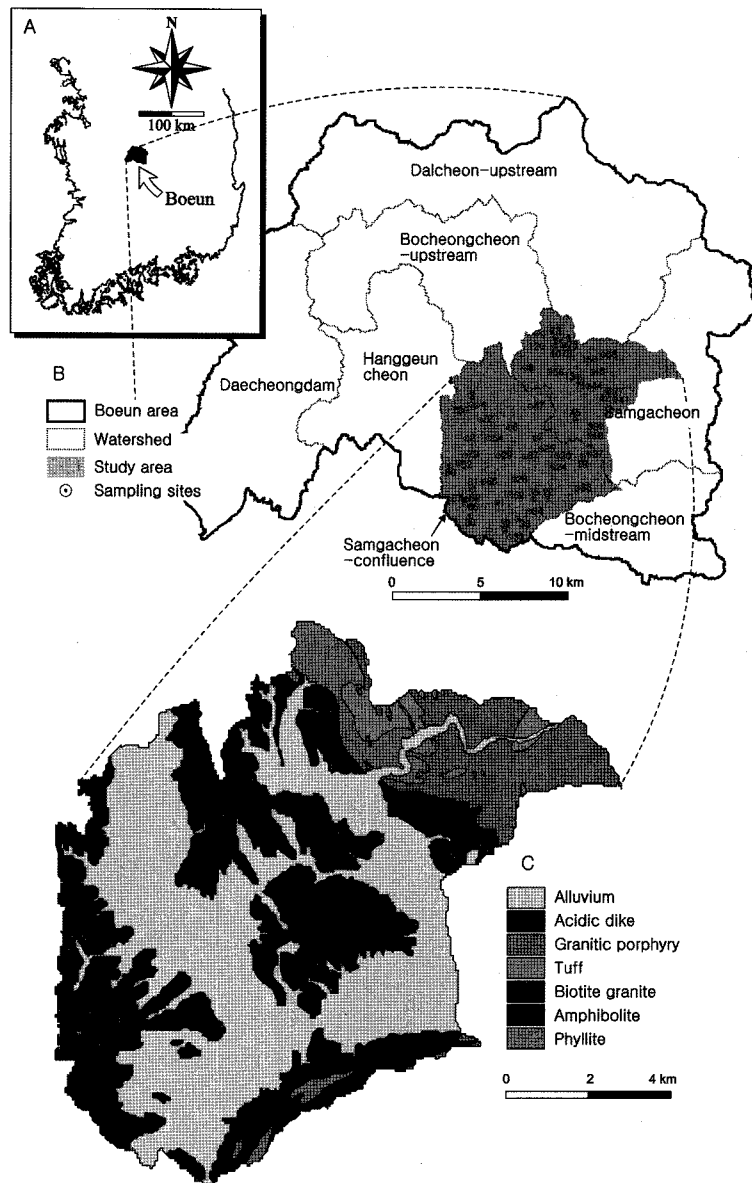


Fig. 1. Location of the study area (A), watershed and sampling location (B), and the geology of study area (C).

호우 일수가 점점 늘고 있으며, 강우 강도 또한 1994년 이후로 점점 커지고 있다. 보은지역의 평균 상대습도는 우리나라 연평균 상대습도인 70.9% 보다 높은 72.1%이다(한국지질자원연구원, 2007).

보은군 지역의 지질은 고생대 퇴적암, 쥐라기 화강암, 백악기 화강암과 응회암, 층적층으로 구성되어 있다. 이중 본 연구 지역은 주로 쥐라기 화강암이 대부분을 차지하며, 조사지역의 동북쪽으로 화강반암과, 천매암, 응

회암이 일부 분포하고 있다(Fig. 1(c)). 본 조사지역인 보은속리산 지역의 암석 및 광물의 화학조성 연구에서는 보은읍과 외속리면 일대의 암석과 흑운모 화학 분석이 수행된 바 있다(Cho *et al.*, 1994). 흑운모 내 불소 함량은 KSGR(= KPGR + KBGR 백악기 화강암)에서 0.4~1.0를 차지하고 있고(이 값은 불소 농도가 아니라 22물 산소에 대한 몰분율임), 반면 JPGD(쥐라기 화강암)는 0.3으로 나타났다. 이 연구에서는 암석 내 불소는 흑

온도의 OH⁻기를 치환하여 존재함을 밝힌 바 있다.

연구지역에 대한 기존에 조사된 강수에 대한 지하수 함양률을 보면 유출량 분석에서 14%, 동위원소 추적자 분석에서 17%, 지하수 수위 강하곡선 분석에서 14%로서, 지하수 개발가능량은 유출량 분석에서 9만 8천 m³/년으로 각각 추정되었다. 보은 연구지역에서의 공극성 대수층의 투수량계수는 300 m²/day 이상으로 산출성이 좋으며, 양수량은 100 m³/day 이하로 사용되고 있는 것으로 나타났다. 또한, 보은지역의 유라기 화강암 대수층에서 평균 투수량 계수는 19 m²/day, 평균 양수량은 130 m³/day를 보이고 있어 대체로 산출성은 좋은 것으로 평가된 바 있다(한국지질자원연구원, 2007).

환경부의 상수도 통계에 의하면, 보은군의 상수도 급수 인구는 2006년 현재 보은군 전체 인구 36,711 명 중 15,595 명으로 상수도 보급률은 47%에 지나지 않는다(환경부, 2008). 나머지 53%인구는 간이상수도, 소규모 급수시설, 기타 우물 또는 샘을 주된 용수원으로 이용하는 것으로 파악되었다. 조사지역인 보은읍과 삼승면은 2004년 현재 상수도 보급률이 각각 71%와 31%이고, 외속리면과 탄부면은 상수도가 보급되지 않아서 생활용수와 먹는물은 전적으로 지하수에 의존하고 있는 실정이다.

시료채취 및 분석

시료 채취는 2007년 7월에 45개 관정에서 수행되었다. 2007년 10월에는 1차 조사 관정 중 불소 오염이 심각하고 먹는물로 이용되는 관정(34개)과 신규 조사 관정(12개)을 포함하여 57개 관정에 대해 조사를 수행하였다. 본 조사는 암반 관정을 대상으로 하였으나, 이 중 심도가 불분명한 관정은 22개이며 심도가 알려진 관정의 평균 심도는 117 m 이다(범위 30~370 m). 본 연구 수질 항목들의 공간분포는 1차와 2차 시료의 평균값을 이용하여 나타내었고, 이온간의 관계를 나타내거나 지구 화학적인 해석을 수행할 경우 모든 시료를 이용하였다(91개 시료; Fig. 1(b)).

지하수 시료는 온도와 전기전도도가 안정될 때까지 충분히 양수 한 후 현장 측정 및 시료를 채취하였다. 현장 측정은 지하수가 흐르는 상태에서 온도, pH, 전기전도도(EC)를 측정하였다. 온도는 SAITO사의 SK2500WPIIK 온도계를 이용하여 측정하였고, pH는 HACH사의 HQ 40d pH/DO multi meter를 사용하여 측정하였다. EC는 WTW사의 340i EC meter를 사용하여 측정하였다. pH의 경우 조사 전에 보정(calibration)을 수행하였다. 알

칼리도는 산중화 적정법을 이용하여 측정하였으며, 온도, pH와 탄산염의 평형반응식을 이용하여 HCO₃⁻ 농도를 결정하였다. 시료는 Advantec 사의 0.45 μm 셀룰로오즈 막 여과지에 여과 한 후 양이온 및 음이온 분석용 시료를 제조하였다. 양이온 분석용 시료에는 질산을 투여하여 pH를 2 이하로 유지하였다. 지화학적 해석을 위해서 주요 용존 이온(Na⁺, K⁺, Ca²⁺, Mg²⁺, HCO₃⁻, Cl⁻, SO₄²⁻, NO₃⁻, F⁻)을 분석하였으며, 지화학 시료는 한국지질자원연구원 지하수환경연구실의 IC(Dionex ICS1500)을 이용하여 분석하였다. 시료 중 일부는 분석 결과의 교차검증을 위하여 중부대학교 산학협력단 생명과학분석센터에서 NO₃⁻, F⁻ 농도의 분석이 수행되었다. 분석 자료의 정확도를 검증하기 위하여 한국표준연구원(KRIS)의 표준물질(CRM: Certified Reference Material)을 분석하여 시료 분석 자료와 비교/검증 하였다. 포화지수(Saturation Index) 등 열역학 계산은 PHREEQC를 이용하여 계산하였다(Parkhurst and Appelo, 2001).

물-암석 반응

물암석 반응 실험을 위해서 연구지역에서 2종의 암석, 흑운모 화강암, 화강반암을 채취하였다. 암석 시료는 분쇄하여 고르게 혼합 한 후 네 등분으로 나누어 0.25~0.6 mm(60~30 mesh) 크기로 선별 한 후에 다시 시료를 합하여 반응 암석 시료를 준비하였다.

물 시료는 3차 증류수(deionized water)와 초기 pH를 약 4로 맞춘 물 시료(0.1 N HNO₃ 1 mL를 1 L의 증류수에 첨가)와 초기 pH를 약 10으로 맞춘 물 시료(0.1 N NaOH 1 mL를 1 L의 증류수에 첨가)를 준비하였다. 또한, 각 pH 조건에 이온강도(ionic strength)의 변화를 주기 위해서 1 mM, 2 mM, 5 mM의 NaNO₃를 첨가하였다. 1 mM의 NaNO₃ 용액의 TDS는 약 85 mg/L, 2 mM의 NaNO₃ 용액의 TDS는 약 170 mg/L, 5 mM의 NaNO₃ 용액의 TDS는 약 425 mg/L 정도 되는 것으로 계산할 수 있다. 이를 통하여 TDS 또는 EC가 다양한 물이 암석과 접촉하였을 경우 물암석 반응의 정도를 관찰 할 수 있다.

반응은 폴리프로필렌 재질의 50 mL 원심분리기 용기에 암석 분말 2 g과 물 40 mL(암석 : 물=1 : 20 wt)에 넣고 항온 교반기(25°C, 150 rpm)에서 반응시켰다. 위 실험 배치를 각각 반응 0시간, 24시간, 48시간, 96시간, 192시간 반응시켰다. 따라서 pH에 대한 factor가 3개(deionized water, pH=4, pH=10), 이온강도에 대한 factor 4개(0, 1 mM, 2 mM, 5 mM), 시간에 따른 factor

Table 1. Statistical summary of hydrogechemical constituents of bedrock groundwater from Samsung area (Boeun).

Statistics	T	pH	EC	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Na ⁺	K ⁺	HCO ₃ ⁻	Cl ⁻	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	F ⁻
Mean	16.0	7.2	205.6	22.2	3.7	15.7	0.7	78.8	8.2	7.0	14.4	1.0
Median	15.8	7.2	187.0	20.0	2.8	12.9	0.5	62.1	6.2	4.7	10.1	0.5
Standard deviation	1.4	0.5	83.7	12.2	2.9	9.0	0.5	49.8	5.4	7.0	14.6	0.9
Minimum	13.4	6.1	82.0	6.4	1.0	6.3	0.2	10.3	2.3	0.3	0.0	0.1
Maximum	19.5	8.5	568.0	98.6	14.4	58.1	3.1	296.9	27.2	29.2	79.8	3.9

가 5개(0, 24, 48, 96, 192시간), 암석에 대한 factor가 2 개로써 반응에 사용된 총 반응 시료는 120개이다. 반응 시간에 따라서 반응용기를 향한 교반기에서 꺼내어 시료를 채취 하였고, pH, EC를 측정하였다. 반응 후, 물 시료는 30 ml 주사기를 이용하여 취하였고, 여과 후 양이온 및 음이온 분석용 시료를 제조하였다. 양이온 분석용 시료에는 질산을 투여하여 pH를 2이하로 유지하였다.

연구 결과 및 토의

수리지구화학 현장 조사 결과

보은 지역 암반지하수에 대해 2차에 걸친 조사에서 채취된 지하수에 대한 지화학 분석 결과의 통계자료는 Table 1에 나타내었다. 또한 불소 이온의 통계분포는 Fig. 2에 나타내었다. 조사 결과 불소 함량은 최대 3.9mg/L 이고, 먹는물 수질기준의 불소 항목(1.5mg/L)을 초과하는 시료는 분석된 91개 시료 중 21개로 불소 항목의 부적합율이 23%이다(1차 18%, 2차 28%). 위 부적합율은 관정의 용도에 상관 없이 먹는물 수질 기준을 적용한 결과이고, 2차 시료는 1차 조사 시 불소 농도가

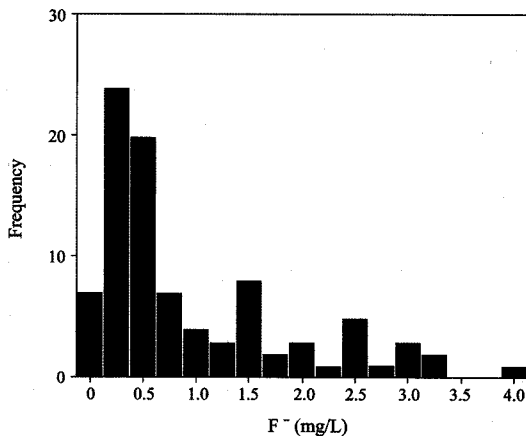


Fig. 2. Fluoride concentration of bedrock groundwater from Boeun area.

높은 관정과 그 인근 관정, 마을 상수도를 위주로 선정되었기 때문에 2차 시료의 불소 이온 부적합율이 더 높게 나타나는 점을 고려하여야 한다. 보은 연구지역 지하수의 불소 이온의 평균 함량은 1.0mg/L이나, 낮은 값으로의 왜도(1.3)가 크기 때문에 중앙값은 0.5mg/L으로 나타난다(Fig. 4).

한편, 온도의 범위는 13.4~19.5°C(평균 16.0, 중앙값 15.8°C)로 나타났다. 온도와 불소 함량과는 뚜렷한 상관관계를 나타내지 않는다(Fig. 3(a)). 일반적으로 온도가 높은 암반 관정의 경우 물암석반응이 보다 많이 진행되었다고 예상되고, 이로 인해 온천과 같은 심부 암반 지하수에서 불소 함량이 높게 관찰되고 있다(Kim *et al.*, 2005; Chae *et al.*, 2006). 충북 보은 지역은 지하수의 온도와 불소 함량이 뚜렷한 상관관계를 나타내고 있지 않는 바, 지하수 내 불소 함량은 화강암의 물암석 반응의 정도 이외에 화강암의 불소 함량, 심부 지하수와 천부 지하수의 혼합 등의 작용이 복합적으로 작용하는 것으로 판단된다. pH의 경우 6.1~8.5의 범위를 나타내고 평균과 중앙값은 7.2이다. pH도 온도와 마찬가지로 불소 함량과 뚜렷한 상관관계를 나타내고 있지 않다(Fig. 3(b)). 일반적으로 흑운모와 같이 불소를 포함하는 화강암의 조암광물은 수소이온을 소모하는 산성기수분해반응이기 때문에, 암반지하수에서는 pH와 불소가 동반하여 증가하게 된다. 그러나 보은지역에서는 불소 함량과 수소이온과의 뚜렷한 상관관계는 발견되지 않는다. 다만 불소 함량이 높은 일부 시료에서 pH가 낮은 경향을 나타내는데(Fig. 3(b)의 점선아래), 이는 불소와 함께 산(酸)이 공급되는 지화학 반응이 있을 가능성을 의미한다. 일반적으로 대수층에 공급되는 산은 주로 충전되는 지하수가 토양층을 통과할 때 유기물의 산화에 의해 발생된 이산화탄소로서 이산화탄소는 물과 반응하여 탄산을 생성한다. 탄산의 해리에 의해 발생된 산은 광물의 풍화반응에 의해 소모되므로 이 경우 지하수의 pH와 중탄산염·탄산염(HCO₃⁻, CO₃²⁻)은 증가하게 된다. 이와 같은 일반적인 경우 이외에, 황화광물의 산화반응, 질소의 산화 등에 의해서도 지하수의 산도(acidity)가 증가할 수 있다.

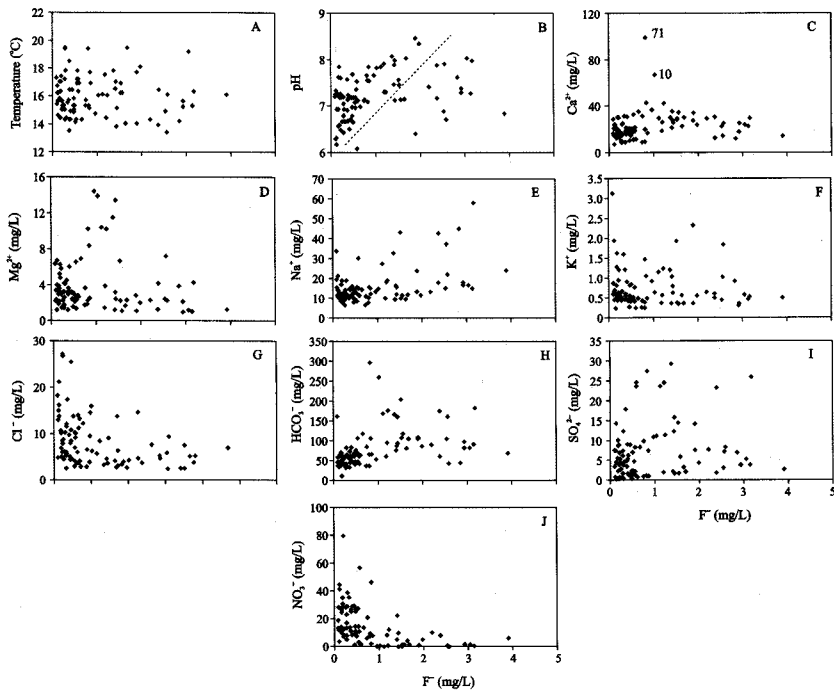


Fig. 3. The relationships between fluoride ion and temperature (A), pH(B), Ca^{2+} (C) Mg^{2+} (D), Na^+ (E), K^+ (F), Cl^- (G), HCO_3^- (H), SO_4^{2-} (I), NO_3^- (J).

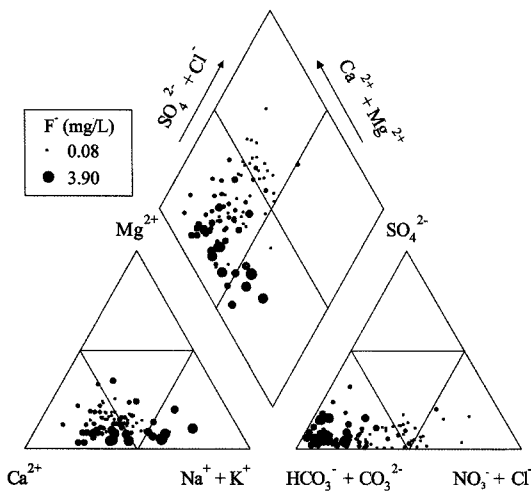


Fig. 4. Piper diagram of major ion composition of bedrock groundwater from Bocun area. The size of dots represents the concentration of fluoride.

단층대를 따라 산출되는 탄산온천과 탄산약수와 같이 심부 기원의 이산화탄소의 유입으로 인해 지하수의 pH가 극단적으로 낮아질 수 있는 가능성도 있다. 이 경우 용

존 이온 함량과 알칼리도도 동반하여 상승하는 현상이 관찰되기도 한다. 본 연구지역의 경우 불소가 높은 관정에서 탄산염 알칼리도($\text{HCO}_3^- + 2 \cdot \text{CO}_3^{2-}$)나 질산염(NO_3^-)의 함량이 낮고, 황산염(SO_4^{2-}) 함량은 불소 함량과 상관관계가 낮은 것으로 보아서, 위에서 언급한 지화학적인 산의 공급은 설명되기 어렵다(불소와 기타 이온들과의 관계는 아래에서 논의 되었다). 따라서 불소 함량이 높은 지하수에서 상대적으로 낮은 pH에 대해서는 추가적인 고찰이 필요하다.

질산염(NO_3^-)을 제외한 주요 용존 이온들은 불소 함량과 뚜렷한 상관관계를 나타내지 않는다(Fig. 3(c)에서 (j)). NO_3^- 는 대표적으로 지표의 오염을 지시하는 항목으로 불소 이온이 이에 반비례한다는 것은 명백히 불소 이온은 지표의 영향을 받지 않음과 동시에 대수층의 심부 암반, 즉 자연적인 기원임을 지시한다(Fig. 3(j)). 일반적으로 불소 함량이 높은 경우 지하수의 Na^+ , HCO_3^- 함량이 높게 나타나는 경향이 있다(Meenakshi and Maheshwari, 2006; Chae *et al.*, 2007). 그러나 본 연구에서는 Na^+ , HCO_3^- 와 불소 함량의 정의 상관관계는 관찰되지 않는다(Fig. 3(e), (h)). 다만 Piper's diagram 상에서 주요 용존 이온의 상대적인 함량비와 불소 이온

의 농도를 비교하여 도시하였을 경우, 양이온에서는 Na^+ 이온의 비율이 높아질수록, 음이온에서는 HCO_3^- 이온의 비율이 높아질수록 불소 이온의 농도는 증가하는 경향이 관찰된다(Fig. 4). 따라서, 불소 이온의 함량은 대체로 NaHCO_3 유형의 지하수에서 높게 나타난다는 기존의 연구와 일관적인 결과를 나타내고 있다. 불소를 포함하는 화강암은 조암광물 중 Na 사장석(albite)의 비율이 높다. 따라서 암반 지하수에서 Na^+ 이온은 물암석반응의 정도를 지시할 수 있는 인자로 활용될 수 있다. HCO_3^- 이온의 경우 화강암의 풍화반응에 산을 공급한 탄산의 해리에 의해서 증가하므로, 이 또한 화강암의 풍화 반응 정도를 지시한다. 충북 보은지역의 암반지하수는 Na^+ , HCO_3^- 와 불소의 관계는 뚜렷하지 않으나 Piper's diagram상에서 Na-HCO_3 유형에 불소 이온이 부화되는 것으로 보아 물화강암 반응의 진행에 따라 불소 이온이 증가한 것으로 사료된다.

한편, 보은 지역의 암반지하수의 전반적인 수질을 지배하는 지구화학적 반응은 방해석과 같은 탄산염 광물의 용해로 판단된다. 일반적으로 규산염광물보다 반응속도가 빠른 탄산염광물의 용해반응은 암반 대수층에서 물암석반응의 초기 화학성분을 지배한다. 보은 지역의 지하수에서 Ca^{2+} , Mg^{2+} , HCO_3^- 이온은 지하수의 EC가 증가하면서 증가하는 양상을 나타내며(Fig. 5(a), (b), (c)), Piper's diagram 상에서도 대부분의 시료가 Ca-Mg-HCO_3 유형에 속하는 바(Fig. 4), 수질 성분의 대부분은 탄산염 광물의 풍화 반응의 결과로 생각된다. 일반적으로 방해석의 용해반응이 주로 발생하는 경우 불소 이온은 증가할 수 없다. 방해석의 용해반응에 의해 용탈된

Ca^{2+} 이온은 불소 이온과 결합하여 형석의 침전을 일으키기 때문이다. 형석의 용해도곱 상수는 $10^{-10.6}$ 으로 방해석의 용해도곱 상수($10^{-8.5}$)에 비해 낮기 때문에 방해석이 용해되는 대수층에서는 형석의 침전으로 말미암아 불소 이온의 함량이 높게 증가할 수 없기 때문이다. 이는 방해석의 용해반응이 주로 발생하는 암반 대수층의 천층에서 불소 함량이 낮게 나타나는 이유이다. 그러나 본 연구 지역과 같이 방해석의 용해반응이 주로 발생하는 암반지하수의 물암석 반응의 초기단계로 여겨지는 암반 대수층에서 불소 함량이 다른 지역에 비해 상대적으로 높게 나타나는 것은 이례적이다. 다만, 시료 71과 10을 제외할 경우, 칼슘 이온은 불소 이온이 증가함에 따라 감소하는 약한 상관관계를 나타내고 있다(Fig. 3(c)). 이는 형석의 침전에 의해서 Ca^{2+} 이온이 감소하기 때문으로 사료된다. Chae *et al.*(2007)이 PHREEQC를 이용하여 반응 경로를 모사한 결과, 칼슘 이온 함량이 높은 지하수에 형석의 용해 이외의 반응으로 불소가 공급될 경우 불소 이온은 증가하나 Ca^{2+} 이온은 감소할 수 있음을 밝힌 바 있다.

보은 지역 암반지하수에서 형석의 지구화학적 평형 상태를 알아보기 위해서 지구화학 모델링 프로그램인 PHREEQC를 이용하여 형석의 포화지수(Saturation index)를 구하였다. 포화 지수가 음수이면 광물은 해당 지하수에서 불포화상태로 용해반응이 일어날 수 있고, 양수이면 광물은 해당 지하수에서 과포화 상태로 침전반응이 발생할 수 있다. 1, 2차 조사에서 채취된 지하수 시료 모두 형석에 대해서 불포화 조건에 놓여 있다(Fig. 5(d)). 그러나 열역학데이터의 불확실성을 고려하면(포화지수

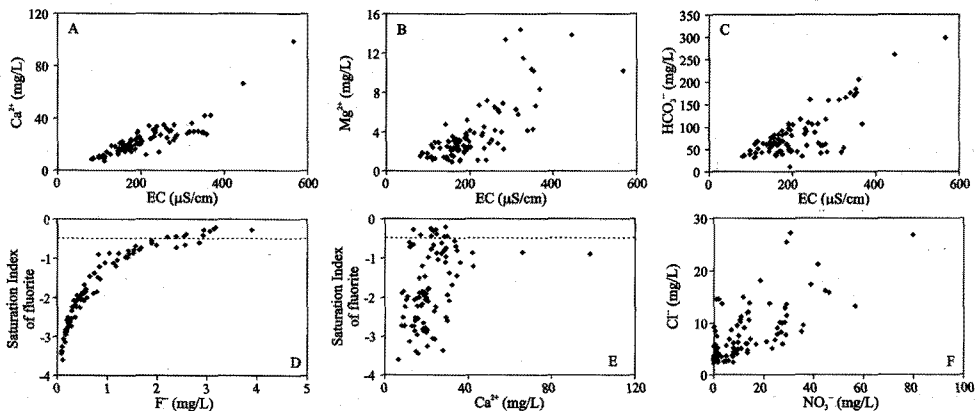


Fig. 5. The relationships between EC and Ca^{2+} (A), Mg^{2+} (B), and HCO_3^- (C). Saturation index of fluoride is shown versus F^- (D) and Ca^{2+} (E). The relationship between NO_3^- and Cl^- (F) is also shown.

±0.5), 일부 시료는 포화 조건에 놓여있을 수도 있다 (Fig. 5(d) 점선). 불소 이온과 형석의 포화지수의 관계에서는 불소 함량이 증가할수록 불소 함량이 증가하는 경향을 나타낸다(Fig. 5(d)). 이는 형석의 포화지수는 오로지 불소 함량에 의해 결정된다는 것을 의미하며, Ca^{2+} 이온이 형석의 용해 반응과는 상관없이 증가하고 일부 시료는 형석의 침전에 의해 Ca^{2+} 이온이 감소 하고 있음을 나타낸다. 이는 Ca^{2+} 이온과 형석의 포화지수의 관계에서도 확인 할 수 있다(Fig. 5(e)). 즉, Ca^{2+} 이온의 함량과는 상관없이 형석의 포화지수는 증가한다. 따라서 본 연구 지역에서는 방해석의 용해 반응이 주로 발생하고 이러한 대수층에 불소 함량이 높은 지하수의 유입과 형석의 침전으로 인하여 칼슘함량이 일부 감소하고, 높은 불소 함량은 유지되는 것으로 판단된다.

대표적인 지표 기원 오염물질인 질산염 이온(NO_3^-)의 경우는 1, 2차 조사 시료 91개 가운데 4개 시료(4.4 mg/L) 만 먹는물 수질기준을 초과하고 있다. 수질기준을 초과하는 관정은 농업용으로 개발된 암반 지하수이다. 질산염과 염소 이온(Cl⁻)은 대체로 정의 상관관계를 나타내고 있다(Fig. 5(f)). 이는 염소 이온도 질산염과 같이 인위적인 오염원으로부터 기원했을 가능성이 높으며, 이는 농업지역에 살포되는 분뇨의 영향이 있음을 암시한다. 따라서 일부 농업지역의 암반지하수는 지표의 오염물질 뿐만 아니라 오염물질을 포함하는 천부의 지하수의 유입에 의해서 수질이 결정되는 것으로 판단된다. 지표로부터 빠르게 유입되는 지하수의 비율이 클수록 불소함량이 낮은 것으로 판단되고, 따라서 앞서 말한 바와 같이 불소 이온은 지하수의 반응 정도 및 이 지역에서의 지하수 유동을 예상하는 하나의 변수로 사용될 수 있을 것으로 판단된다.

불소 이온의 공간분포

불소 이온의 공간분포를 Fig. 6(a)에 나타내었다. 연구 지역의 대부분의 지질이 화강암 지역이므로 지질에 따른 불소 함량의 차이를 설명하는 것은 어렵다. 관정 심도에 따라서 불소 농도가 차이 날 수 있으나 심도불소농도 관계에서 보면 어떤 경향은 나타나지 않는다(Fig. 6(b)). 이번 연구에서는 심도를 알 수 없는 관정이 다수(57개 관정 중 22개 관정) 포함되어 있으므로 지하수 심도와 불소 함량과의 관계를 완전히 설명하기 어렵다. 다만 47, 54, 58번 관정을 제외하면 대체로 심도증가와 함께 불소 함량이 증가하는 것으로 보이나, 이러한 관계 또한 뚜렷하지 않다. 심도불소 관계를 설명하기 위해서는 추

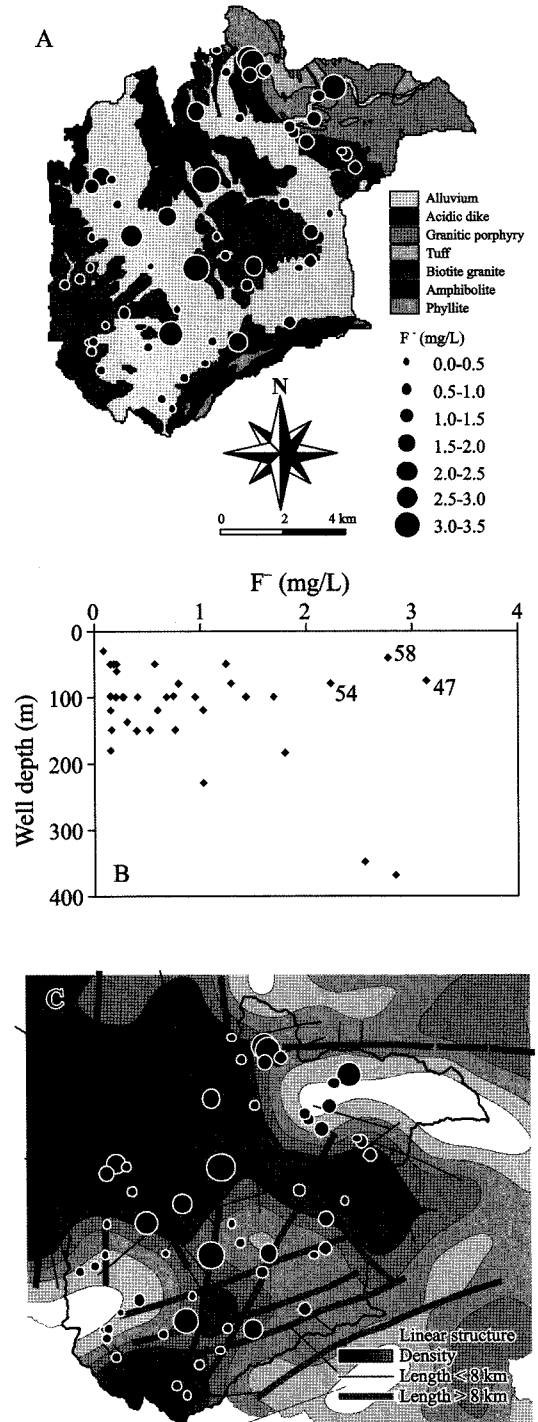


Fig. 6. Bubble plot of fluoride concentration is shown on geological map of Boeun area (A). The relationships between fluoride and well depth (B) and the density and length of linear structure of Boeun area is also shown (C).

가적인 지하수 심도 측정과 아울러 보다 넓은 지역에서 많은 시료를 분석할 필요가 있다. 현재 결과를 가지고 심도별 불소 농도의 관계를 일반화하기 어렵다.

Fig. 6(c)에는 선구조와 선구조 밀도를 불소 이온의 공간분포와 함께 나타내었다. 선구조와 선구조 밀도는 한국지질자원연구원의 기초조사 자료를 인용하였다(한국지질자원연구원, 2007). 선구조 중에서 선구조의 길이가 다른 선구조에 비하여 월등히 긴 경우 굵은 붉은선으로 표시하였다. 보은지역 암반 지하수 관정 중 불소 함량이 1.5 mg/L 이상인 관정은 대체로 대규모 선구조를 따라서 위치하고 있다. 본 논문에서는 위의 결과를 정량화 하기는 어려우나 높은 불소 함량은 선구조와 연관성이 있는 것이 분명한 것으로 사료된다. 게다가 대체로 불소 함량이 높은 관정은 선구조 밀도가 높게 나타나는 지역에서 높은 경향을 나타내고 있다. 따라서 보은지역 암반 지하수의 불소 이온은 선구조 주변의 파쇄대를 따라 배출(discharge)되는 심부 지하수로부터 유래하였을 가능성이 있다. 이에 따라 관정 심도와 불소 이온 함량의 관계가 일반적인 설명을 따르지 않을 수 있으며, 천부의 지하수와 혼합되어 불암석 반응을 지지하는 이온종들과 불소간의 상관관계가 뚜렷하게 나타나지 않았을 수 있다.

물-암석 반응 실험 결과

흑운모 화강암 시료와 물간의 반응 실험결과를 Fig. 7에 나타내었다. 불소 함량의 변화를 살펴보면, 증류수(pH 7), pH 4, pH 10인 모든 배치에서 불소 함량이 증가하는 경향을 나타낸다(Fig. 7(a), (b), (c)). 증류수와

암석이 반응한 경우 불소 함량은 지속적으로 증가하여 0.4 mg/L까지 증가하였다. 이온강도에 따른 물암석 반응 정도의 차이는 미미하지만, 대체로 이온강도가 증가할수록 불소 함량이 증가하는 경향을 나타내고 있다. 일반적으로 광물의 용해도는 이온강도가 증가할수록 증가한다. 그러나 이온강도에 따른 차이가 통계적으로 의미가 있는지에 대해서는 추가적인 분석이 요구된다. 질산에 의해서 초기 용액의 pH가 4로 조절된 반응 배치의 경우 반응 96시간(4일) 이후 불소 이온의 농도가 최대 1.2 mg/L까지 증가한다. 그러나 192시간(8일) 반응 후에는 불소 농도가 다시 0.9 mg/L로 감소한다. 불소 함량의 증가 후 감소경향에 대해서는 향후 보다 면밀한 해석이 요구된다. 그러나, 불소의 함량 증가하는 경향과 아울러 반응 4일 후 최대 1.2 mg/L까지 증가하는 것은 명백히 불소 이온이 화강암으로부터 기원하고 있음을 나타내고 있다. 한편, 초기 pH가 10으로 조절된 반응 배치의 경우는 위의 경우와 마찬가지로 불소 이온의 함량이 지속적으로 증가하는 경향을 나타내고 있다. pH 10 배치에서도 불소 이온의 농도는 반응 후 96시간에 최대값(0.9 mg/L)를 나타낸다. 이 후 192 시간 후에는 불소 이온의 농도가 0.6 mg/L까지 감소하는 현상이 나타난다. 이러한 현상은 pH 4의 경우와 pH 10의 경우에서 동시에 나타나기 때문에 실험의 오류로 보기 어려운 점이 있다. 따라서 이는 형석(fluorite)의 침전 등 불소 이온의 농도를 통제하는 지구화학적 기작이 있는 것으로 판단된다.

한편 화강반암에 대한 반응 실험의 결과도 Fig. 7에 나타내었다. 물화강반암의 반응에서 불소 이온 함량은 흑운모 화강암에 비해서 매우 낮은 수준에 머물러 있다.

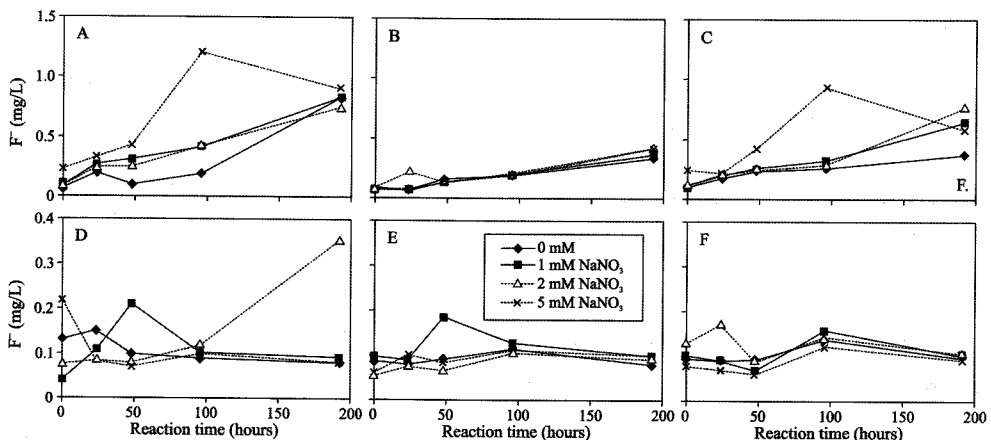


Fig. 7. The results of waterrock interaction batch tests. Biotite granite reacted with water of pH = 4(A), pH = 7(B), and pH = 10(C), and granite porphyry reacted with water of pH = 4(D), pH = 7(E), and pH = 10(F).

게다가 시간에 따라서 증가하는 경향을 전혀 나타내지 않는다. 다만 초기 pH가 4인 경우 이온강도가 2mM인 용액과 화강반암의 반응 결과는 최대 0.35 mg/L까지 증가하는데, 같은 pH 조건에서 다른 이온강도와 반응한 결과와 일관성을 나타내지 않는 바, 이는 시료의 불균질성에 기인하는 것으로 판단된다.

결론적으로 화강암에 대한 물-암석 반응 실험을 통해서 암반지하수의 불소 이온이 암석 기원임을 실험을 통하여 밝혔다. 특히 물암석(흑운모 화강암) 반응을 통해 불소 이온의 농도가 최대 1.2 mg/L까지 증가하는 것을 관찰하였다. 본 조사에서 수행된 물암석 반응은 짧은 시간 동안(192 시간, 8일) 이루어졌기 때문에 향후 조사에서는 보다 긴 시간 동안 반응 실험을 수행하여 불소의 발생과 지구화학적 기작에 대해 보다 정량적인 해석을 수행하여야 할 필요가 있다.

결 론

충북 보은군 삼승면 일대의 화강암 분포 지역의 암반 지하수에 대한 불소 오염을 중심으로 한 수리지구화학적 조사와 실내 실험을 실시하였다. 조사 지역에서 지하수의 불소 농도는 최대 3.9 mg/L이고, 불소의 먹물 수질기준을 초과하는 시료는 전체 조사 시료의 23%였다. 질산염 이온 농도는 불소 농도와 반비례 관계를 보여 불소는 심부 암반대수층으로부터 유래되는 자연 기원임을 지지하였다. Na와 HCO₃ 이온 농도는 불소 이온 농도와 뚜렷한 비례 관계를 보이지는 않았으나, 수질 유형에서 대체로 NaHCO₃형의 지하수에서 불소 이온 농도가 증가하는 경향을 보여 물화강암 반응의 진행에 따라 불소 이온이 증가한 것으로 사료된다. 조사 지역에 분포하는 흑운모 화강암과 순수를 이용한 실내 반응 실험 결과, 불소 함량은 96시간 후에 최대 1.2 mg/L까지 증가하는 것으로 관찰되었다. 현장 조사와 실내 실험 결과로부터 조사 지역에서 산출되는 지하수에 용존된 고농도의 불소 이온은 화강암의 풍화반응으로부터 용탈되는 것으로 판단된다.

그러나, 물암석 반응의 정도를 지시할 수 있는 수리지구화학적 인자 (Na⁺, HCO₃⁻, pH 등)와 지하수 심도 등과 불소 함량 사이에 뚜렷한 상관 관계를 보이지 않았다. 이러한 특징은 화강암 내에서 불소 함량의 불균질성 또는 물암석 반응의 정도가 높은 심부 지하수와 천부 지하수가 혼합되기 때문으로 사료된다. 높은 불소 함량을 나타내는 관정의 공간적인 분포와 선구조의 분포

와 유사성은 심부 암반지하수와 천부 암반지하수의 혼합이 선구조와 연관되어 있음을 제시하며, 선구조 주변의 파쇄대가 심부 기원의 지하수가 유출(discharge)되는 통로라고 볼 수 있다. 지질도에 동일하게 기재된 화강암 내에서도 불소를 함유하는 광물의 분포에 따라서 불소 함량이 다르게 나타날 수 있으며, 정확한 불소 기원 광물을 밝히기 위해서는 광물화학적 연구가 병행되어야 한다. 이러한 불균질성으로 말미암아 조사 지역 지하수의 불소 함량 분포는 일정한 경향을 나타내지 않는 것으로 보인다.

사 사

본 연구는 한국지질자원연구원 기본사업인 '청정 대용량 지하수자원 확보 기술개발(083211)' 과제와 '2008년 지하수 오염지역 현황조사(085316)' 과제의 일환으로 수행되었습니다.

참 고 문 헌

- 신승철, 이건수, 김선영, 1998, 충남 지역 불소농도와 반점치 및 우식발생과의 관계 연구, 대한구강보건, 22(3), 249255.
- 이종운, 전효택, 전용원, 1997, 국내 화강암질내 심부 지하수의 지구화학적 특성, 지하수환경, 4(4), 199211.
- 최승혁, 배광학, 김동현, 이선미, 김지영, 김진범, 2004, 김해시 진영읍 일부지역의 차아불소과다증 분포조사, 대한구강보건, 28(3), 347361.
- 한국지질자원연구원, 2007, 보은지역 지하수 기초조사 보고서.
- 환경부, 2008, 2006 상수도 통계(수정본), 환경부 상수도정책실 수도정책과, 대양인쇄, 1885 p.
- Chae, G. T., Yun, S. T., Kim, K., and Mayer, B., 2006a, Hydrogeochemistry of sodiumbicarbonate type bedrock groundwater in the Pocheon spa area, South Korea, waterrock interaction and hydrologic mixing, J. Hydrol., 321, 326343.
- Chae, G. T., Yun, S. T., Kwon, M. J., Kim, Y. S., and Mayer, B., 2006b, Batch dissolution of granite and biotite in water: implication for fluorine geochemistry in groundwater, Geochem. J., 40(1), 95102.
- Chae, G. T., Yun, S. T., Mayer, B., Kim, K. H., Kim, S. Y., Kwon, J. S., Kim, K., and Koh, Y.K., 2007, Fluorine geochemistry in bedrock groundwater of South Korea, Sci. Total Environ., 385, 272283.
- Cho, W. S., Jwa, Y. J., Lee, J. I., and Lee, M. S., 1994, Petrography and mineral chemistry of the granitic rocks in the PoenSogrisan area, Korea, J. Petrol. Soc. Korea, 3(3), 220233.
- Fawell, J., Bailey, K., Chilton, J., Dahi, E., Fewtrell, L., and Magara, Y., 2006, Fluoride in Drinkingwater, WHO Press, Geneva, 134 p.

- Kim, K., Koo, M. H., Moon, S. H., Yum, B. W., and Lee K. S., 2005, Hydrochemistry of groundwaters in a spa area of Korea, an implication for water quality degradation by intensive pumping, *Hydrol. Process.*, 19(2), 493505.
- Kim, K. and Jeong, G. Y., 2005, Factors influencing natural occurrence of fluoriderich groundwaters, a case study in the southeastern part of the Korea Peninsula, *Chemosphere*, 58, 13991408.
- Meenakshi and Maheshwari, R. C., 2006, Fluoride in drinking water and its removal, *J. Hazard. Mater.*, b137, 456463.
- Parkhurst, D. L., and Appelo, C. A. J., 2001, User's guide to PHREEQC (version 2) – A computer program for speciation, batchreaction, one dimensional transport, and inverse geochemical calculations. U.S. Geol. Surv. WaterResour. Invest. Rep. 994259.
- Reimann, C., and Caritat, P., 1998, Chemical elements in the environment: factsheets for the geochemist and environmental scientist, SpringerVerlag, Berlin Heidelberg, 397p.

고동찬

한국지질자원연구원 지구환경연구본부
305-350 대전광역시 유성구 과학로 92
Tel: 042-868-3079
E-mail: chankoh@kigam.re.kr

최병영

한국원자력연구원 고준위폐기물처분연구부
305-535 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
Tel: 042-868-8893
E-mail: choiby@korea.ac.kr

2008년 11월 2일 원고접수, 2008년 12월 16일 게재승인

채기탁

한국지질자원연구원 지구환경연구본부
305-350 대전광역시 유성구 과학로 92
Tel: 042-868-3044
E-mail: gtchae@kigam.re.kr