



저작자표시-비영리-변경금지 2.0 대한민국

이용자는 아래의 조건을 따르는 경우에 한하여 자유롭게

- 이 저작물을 복제, 배포, 전송, 전시, 공연 및 방송할 수 있습니다.

다음과 같은 조건을 따라야 합니다:



저작자표시. 귀하는 원저작자를 표시하여야 합니다.



비영리. 귀하는 이 저작물을 영리 목적으로 이용할 수 없습니다.



변경금지. 귀하는 이 저작물을 개작, 변형 또는 가공할 수 없습니다.

- 귀하는, 이 저작물의 재이용이나 배포의 경우, 이 저작물에 적용된 이용허락조건을 명확하게 나타내어야 합니다.
- 저작권자로부터 별도의 허가를 받으면 이러한 조건들은 적용되지 않습니다.

저작권법에 따른 이용자의 권리는 위의 내용에 의하여 영향을 받지 않습니다.

이것은 [이용허락규약\(Legal Code\)](#)을 이해하기 쉽게 요약한 것입니다.

[Disclaimer](#)

석사학위논문

제주 지하수의 자연방사성물질 분포와  
음용으로 인한 연간 유효선량 평가

임소현

제주대학교 대학원

화학과

2024년 2월



# 제주 지하수의 자연방사성물질 분포와 음용으로 인한 연간 유효선량 평가

이 논문을 이학석사 학위논문으로 제출함

임 소 현

제주대학교 대학원

화 학 과

지도교수 임 희 정

임소현의 이학석사 학위논문을 인준함

2023년 12월

심사위원장     변  종  철     인

위    원     강  창  희     인

위    원     임  희  정     인

# Estimation of naturally occurring radionuclides and the annual effective dose by drinking groundwater of Jeju Island, Korea

A Thesis submitted to the graduate school of Jeju National University in partial fulfillment of the requirements for the degree of Master of Science under the supervision of Hee-Jung Im

The thesis for the degree of Master of Science by Sohyeon Lim has been approved by the dissertation committee.

2023. 12.

Chair \_\_\_\_\_

Member \_\_\_\_\_

Member \_\_\_\_\_

# 목 차

|   |     |
|---|-----|
| List of Tables .....                            | iii |
| List of Figures .....                           | iv  |
| 초록 .....  | v   |
| <br>  |     |
| I. 서론 .....                                     | 1   |
| <br>  |     |
| II. 재료 및 방법 .....                               | 7   |
| 1. 제주도의 지질과 지하수 .....                           | 7   |
| 1) 제주도의 지질특성 .....                              | 7   |
| 2) 지층에 따른 자연감마선 결과 .....                        | 7   |
| 3) 지하수 부존형태 .....                               | 10  |
| 2. 시료채취지점 .....                                 | 13  |
| 3. 전기전도도, pH 시료 채취 및 분석 .....                   | 16  |
| 4. 이온, $^{40}\text{K}$ 시료 채취 및 분석 .....         | 16  |
| 5. 우라늄, 토륨 시료 채취 및 분석 .....                     | 17  |
| 6. 라돈 시료 채취 및 분석 .....                          | 18  |
| 1) 라돈 분석용 각테일 용액 .....                          | 18  |
| 2) 지하수 라돈 시료 채취 및 분석 .....                      | 18  |
| 7. 연간 유효선량 .....                                | 22  |
| <br>  |     |
| III. 결과 및 고찰 .....                              | 23  |
| 1. 지하수 시료의 이화학 분석 결과 .....                      | 23  |
| 2. $^{40}\text{K}$ 의 방사능 농도와 연간 섭취 유효선량 .....   | 26  |
| 3. $^{222}\text{Rn}$ 의 방사능 농도와 연간 섭취 유효선량 ..... | 26  |
| 4. $^{238}\text{U}$ 의 방사능 농도와 연간 섭취 유효선량 .....  | 30  |

|  |    |
|--|----|
| 5. $^{232}\text{Th}$ 의 방사능 농도와 연간 섭취 유효선량 .....  | 33 |
| 6. 지하수 섭취를 통한 $^{40}\text{K}$ , $^{222}\text{Rn}$ , $^{238}\text{U}$ 및 $^{232}\text{Th}$ 의 총 연간 유효선량 ..... | 35 |
| 7. 자연 방사능 물질 분포와 상관성 .....   | 38 |
| 8. 지하수의 자연 방사성 원소에 대한 다양한 국가의 선행 연구 .....  | 41 |
| IV. 결론 .....   | 43 |
| 참고문헌 .....   | 45 |
| Abstract .....   | 51 |
| 감사의 글 .....  | 53 |

## List of Tables

|   |    |
|---|----|
| <b>Table 1.</b> The depth and altitude of sampling wells, measured water temperature of samples when collecting groundwater samples for radon from February to April 2023 ..... | 15 |
| <b>Table 2.</b> The ingestion effective doses per unit intake of natural radionuclides .....  | 22 |
| <b>Table 3.</b> pH, Electric conductivity (EC, $\mu\text{S cm}^{-1}$ ), anion and cation values ( $\text{mg L}^{-1}$ ) in groundwater .....                                     | 25 |
| <b>Table 4.</b> The activity concentrations of $^{40}\text{K}$ and annual effective doses of groundwater in Jeju island .....   | 28 |
| <b>Table 5.</b> The activity concentrations of $^{222}\text{Rn}$ and annual effective doses of groundwater in Jeju island .....   | 29 |
| <b>Table 6.</b> The activity concentrations of $^{238}\text{U}$ and annual effective doses of groundwater in Jeju island .....  | 32 |
| <b>Table 7.</b> The activity concentrations of $^{232}\text{Th}$ and annual effective doses of groundwater in Jeju island .....   | 34 |
| <b>Table 8.</b> The total annual effective doses of groundwater in Jeju island ..   | 37 |
| <b>Table 9.</b> The Range of concentrations of natural radionuclides in groundwater of various countries .....  | 42 |

## List of Figures

|  |    |
|--|----|
| Figure 1. Scheme of $^{238}\text{U}$ decay chain .....   | 5  |
| Figure 2. Scheme of $^{232}\text{Th}$ decay chain .....  | 6  |
| Figure 3. Geologic structures with west-east cross line of Jeju island .....                                   | 9  |
| Figure 4. Geomorphological diagram of groundwater occurrence in Jeju Island .....                              | 11 |
| Figure 5. Groundwater occurrence of Jeju Island .....  | 12 |
| Figure 6. The locations of groundwater sampling sites .....  | 14 |
| Figure 7. LDPE water sample bottle .....   | 17 |
| Figure 8. Maxilight Cocktail (Hidex) .....   | 20 |
| Figure 9. 20mL teflon coated plastic vials .....   | 20 |
| Figure 10. The ingrowth of decay product activities of an initially pure sample of $^{222}\text{Rn}$ .....     | 21 |
| Figure 11. Uranium versus thorium (a) and potassium (b) concentrations of the 60 measurements of Vulcano ..... | 40 |



# 제주 지하수의 자연방사성물질 분포와 음용으로 인한 연간 유효선량 평가

임 소 현

제주대학교 대학원 화학과

본 연구는 제주도 지하수의 자연 발생 방사성 물질 분포를 파악하기 위해 실시하였다. 포타슘 ( $^{40}\text{K}$ ) 농도는 이온 크로마토그래프를 이용하여 측정하였으며 라돈( $^{222}\text{Rn}$ ) 농도는 액체 섬광 계수기로 분석하였다. 또한 우라늄과 토륨 핵종의 방사능 농도는 유도결합 플라즈마 질량 분석법으로 측정하였다. 본 연구에서는 제주도의 공공 수도 시스템의 주요 수원으로 이용되는 지하수를 대상으로 자연 방사성 물질의 분포를 파악하였다. 지하수 시료 채취는 2022년 9월부터 2023년 9월까지 제주도 내 상수도 공급을 위한 지하수 취수시설 9개소에서 진행하였다.

지하수의  $^{40}\text{K}$  농도는 52.7~243.9 mBq L<sup>-1</sup>로 조사되었다. 지하수 중 라돈의 함량은 7.98~32.43 Bq L<sup>-1</sup> 범위를 나타내었다. 지하수 중 우라늄과 토륨 핵종의 방사능 농도는 각각 0.057~5.887 mBq L<sup>-1</sup>, 1.50~9.54 μBq L<sup>-1</sup>로 확인되었다. 지하수의 라돈 및 우라늄 농도는 미국 환경보호청이 제시한 기준치 148 Bq L<sup>-1</sup>와 30 μg L<sup>-1</sup>을 초과하지 않았다.

$^{40}\text{K}$ ,  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{238}\text{U}$  및  $^{232}\text{Th}$ 의 방사능 농도를 분석하여 거주자의 연간 섭취 유효선량을 평가할 수 있다. 영유아 연령대는 다른 연령대보다 지하수의 자연 방사성 핵종 섭취에 취약한 것으로 나타났다. 대부분의 지하수 시료에서 음용으로 인한 내부 방사선의 영향은 미미하다. 모든 연령대에서 연간 유효선량이 100 mSv 미만이므로, 제주도의 지하수는 섭취로 인한 암 유발의 위험은 없을 것으로 판단된다.

## I. 서론

화산섬 제주는 한반도에서 남쪽으로 약 140 km 떨어진 곳에 위치한다. 이 섬은 화산 활동으로 형성되어 한국의 다른 지역과는 상이한 지질을 가진다. 제주도는 투수성이 높은 현무암으로 주로 이루어져 있어 대부분의 하천은 강수 이후에 일시적으로 흐르는 건천이다. 이러한 지질학적 특성으로 인하여 지표수의 이용 가능성이 낮기 때문에 60년대 초반부터 지하수 개발을 통해 지하수를 주요 수자원으로 이용하고 있다. 지하수는 농업용, 공업용, 음용 등 다양한 용도로 광범위하게 사용된다. 특히 제주도는 수돗물을 공급하기 위한 수원을 대부분 지하수에 의존하고 있어 지하수에 대한 지속적인 수질 모니터링이 필요하다.

원자의 양성자와 전자 수가 같아 동일한 화학적 성질을 가지지만 중성자 수가 달라 질량이 다른 원소를 동위원소라 한다. 동위원소에는 방사능을 띠는 방사성 동위원소와 방사능을 띠지 않는 안정 동위원소가 있다. 안정 동위원소에는 안정하여 방사성 붕괴를 하지 않는 핵종과 이론적으로는 방사성 붕괴가 가능하지만 붕괴가 실질적으로 관측되지 않은 관측상 안정 동위원소가 포함되어 있다. 안정 동위원소가 아닌 방사성 동위원소는 불안정하므로 방사선을 발생시키며 붕괴한다. 방사성 동위원소는 인공적으로 합성하여 생성되거나, 자연적으로 발생한다. 천연에 존재하는 방사성 동위원소 중 우라늄( $^{238}\text{U}$ , 반감기 44.98억년), 토륨( $^{232}\text{Th}$ , 반감기 140.5억년), 라돈( $^{222}\text{Rn}$ , 반감기 3.82일), 포타슘( $^{40}\text{K}$ , 반감기 12.5억년)은 암석과 토양으로부터 지하수로 유입될 수 있다.

우라늄은 악티늄족 원소의 일종으로, 자연에 가장 풍부하게 존재한다. 우라늄에는 몇 가지 동위원소가 있으나 지구상 우라늄의 99.284%는  $^{238}\text{U}$ 이다. 천연 암석과 토양 속의 우라늄은 지하수가 암석과 토양을 통과하는 과정에서 지하수에 용해된다. 우라늄은 화학적 독성과 더불어 방사성 독성을 가지고 있어 인체에 유해한 물질이다. 지속적인 섭취를 통해 우라늄에 노출될 경우, 체내에서 우라늄이 니켈이나 크로뮴과 유사하게 다른 중금속과 동일한 작용을 통해 신장 질환을 유발한다고 알려져 있다(Brugge *et al.*, 2011). 우라늄의 방사성 독성에 비해 화학

적 독성이 인체에 더 해로운 것으로 밝혀져 있지만(Singh *et al.*, 2014; Amakom *et al.*, 2010), 우라늄은 체내에서 방사선학적 위험성을 야기할 수 있다(Brugge *et al.*, 2005). 세계보건기구는 2004년 음용수의 우라늄 기준치를  $15 \mu\text{g L}^{-1}$ 로 제안했으며, 현재는 그 기준을  $30 \mu\text{g L}^{-1}$ 로 증가시켰다(WHO, 2004; WHO, 2017). 미국 환경보호청은 수돗물의 우라늄 농도 기준치를  $30 \mu\text{g L}^{-1}$ 로 설정했다(US EPA, 2003).

$^{222}\text{Rn}$ (라돈)은 무색 무취의 기체로서,  $^{238}\text{U}$ 의 붕괴 계열의 생성물 중 하나인  $^{226}\text{Ra}$ 의 분열로부터 발생한다. 라돈 기체는 물에 용해되지 않으므로 물 밖으로 쉽게 빠져나간다. 호흡을 통한 라돈의 흡입은 폐암을 유발할 수 있으며(Samet, 1989), 라돈의 흡입과 마찬가지로 물에 포함된 라돈의 섭취는 인체에 건강상의 위험을 초래할 수 있다. 라돈의 섭취는 특히 위장에 큰 영향을 미치면서 여러 장기에 주요 노출 경로를 남긴다(Crawford-Brown, 1989).

우라늄과 라돈을 포함하여, 지하수의 자연 방사성 핵종은 그 화학 독성과 방사능으로 인해 인체 건강에 유해한 영향을 미칠 수 있다. 방사능 붕괴로부터 나오는 방사선은 조직과 장기에 흡수된다. 예로,  $\alpha$ -선은 양성자 2개와 중성자 2개로 이루어져 있어 양의 전하를 가지며 헬륨의 원자핵과 구성이 동일한 입자선이다. 알파 입자는 우라늄, 라듐 등의 방사성 핵종이 알파 붕괴를 할 때 방출되는 입자로서 방사선 중에서도 질량이 무겁다. 전하량이 크므로 주변 물질과 쉽게 반응하며 무거운 질량으로 인한 느린 속도로 인해 물질을 관통하지 못하고 흡수된다. 이러한 이유로 체외에서  $\alpha$ -선은 아무런 위협이 되지 않지만 섭취한 알파 입자는 체내에서 DNA 손상을 일으키고 발암 가능성을 높일 수 있다.

우라늄( $^{238}\text{U}$ ) 붕괴 계열과 토륨( $^{232}\text{Th}$ ) 붕괴 계열의 방사능으로 인한 섭취 선량은 음용수에 포함된 방사성 핵종의 양에 따라 달라진다(Figure 1-2). 방사성 핵종을 섭취했을 때 신체가 얻는 방사선량을 나타내기 위해 생물학적 효과를 고려하여 반영한 방사선의 흡수량 단위로는 Sv (시버트)가 있다. 세계보건기구는 장기간 노출되더라도 평생 동안 건강 위험을 유발하지 않을 것으로 예상되는 임계값  $0.1 \text{ mSv y}^{-1}$ 을 개인 선량 기준(IDC, Individual Dose Criterion)으로 권장하고 있다. 국제원자력기구에서는 국제기본안전기준을 통해 음용수로 인한 개인의 연간 선량은 약  $1 \text{ mSv}$ 의 값을 넘지 않을 것을 요구하고 있다(WHO, 2017).

흉부 X-ray 촬영으로 인한 방사선량은 0.05 mSv로 알려져 있다. 음용수의 연간 선량 기준을 흉부 X-ray 촬영의 방사선량과 비교한다면 세계보건기구의 선량 기준은 2번의 흉부 X-ray 촬영으로 인한 노출량과, 국제원자력기구의 선량 기준은 흉부 X-ray 촬영 20번의 선량과 비슷한 수준이다.

지하수는 해당 지역의 지질층에서 유래한 자연 발생 방사성 물질을 포함하고 있다. 제주도 주민들은 지하수를 식용수로 이용하며 이를 장기간 음용하기 때문에 자연 방사성 핵종으로부터의 내부 피폭에 취약하다. 따라서 자연적으로 발생하는 방사성 물질의 분포를 조사하는 것은 매우 중요하다.

제주도는 총 17개소의 정수장에서 식수로 이용할 수 있는 수돗물을 공급하고 있다. 이중 8개소의 정수장은 여과 시설을 통해 지하수를 여과한 뒤 소독하여 수돗물을 공급하고 있지만, 남은 정수장 9개소는 여과처리 없이 지하수를 소독하여 곧바로 공급한다. 이러한 정수장 9개소에서 공급하는 수돗물에는 원수인 지하수에 포함된 자연 방사성 핵종이 별다른 처리 없이 직접적으로 공급된다. 특히, 상기 언급한 라돈은 물에 잘 녹지 않으므로 여과지를 거치는 과정에서 물 밖으로 유출되며 소량이나마 제거될 수 있는 가능성이 있으나, 정수장 9개소에서 공급되는 수돗물에서는 라돈이 제거될 가능성이 낮을 것으로 예상된다. 실제로 지하수를 수처리하는 과정에서 방사성 물질의 농도가 전반적으로 낮아지는 것으로 보고되어 있다(Ho *et al.*, 2020).

본 연구에서는 여과 시설이 없는 정수장 9개소의 수원지 내에 있는 관정을 선정하여 지하수 내에 포함된 자연 방사성 물질의 분포를 파악하였다. 자연 방사성 물질 중에서도 지하수에서 주로 발견되는 핵종  $^{40}\text{K}$ ,  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{238}\text{U}$  및  $^{232}\text{Th}$ 의 함유량을 이온 크로마토그래피, 유도결합 플라즈마 질량분석기, 저준위액체섬광계수기를 이용하여 분석하였다.

자연 방사성 핵종들을 이용하여 대기 중 먼지, 흙, 먹는물, 지하수 등에 대해 건강 위험성을 평가해보기 위한 여러 연구가 이미 시도되었다. Ho 등은 베트남의 남동쪽과 메콩강 유역을 포함하는 남부 지역에서 식수로 사용되는 지하수의 전알파 및 전베타 농도를 확인하고 건강 위험도를 평가하였다(Ho *et al.*, 2020). Madzunya 등은 남아프리카공화국 North West 주의 Gauteng 지역에서 대기 중 먼지와 정수장에서 공급하는 수돗물에 포함된 자연 방사성 물질의 흡인과 섭취

로 인한 위험성을 살펴보았으며(Madzunya *et al.*, 2020), Shin 등은 한국의 지하수에 존재하는 우라늄의 분포와 건강 유해성을 확인하였다(Shin *et al.*, 2016). Avwiri 등은 나이지리아에서는 Enugu 주 광물 생산지 인근의 강과 하천, 수돗물에 대해 전알파 및 전베타 농도를 확인하고 음용시에 발생하는 선량을 확인하였다(Avwiri *et al.*, 2016). 이처럼 자연 방사성 물질을 이용하여 여러 연구가 진행되었지만, 지하수를 주요 수원으로 사용하는 지역에서 지하수를 음용했을 때 섭취되는 여러 자연 방사성 핵종들( $^{40}\text{K}$ ,  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{238}\text{U}$  및  $^{232}\text{Th}$ )로 인해 발생할 수 있는 평생 건강 위험성을 핵종별로, 연령대별로 평가한 연구는 부족한 실정이다.

본 연구의 목적은 제주도 지하수에 포함된 자연 발생 방사성 핵종의 섭취에 따른 건강 유해성을 평가하는 것이다. 제주도와 같이 수자원 공급을 지하수에 의존하는 지역에서는 자연 방사성 물질을 포함하는 지하수가 식수로서 널리 이용된다. 제주 지하수에 존재하는  $^{40}\text{K}$ ,  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{238}\text{U}$  및  $^{232}\text{Th}$ 의 분포를 확인하고 이러한 자연 방사성 동위원소들을 총괄적으로 고려하여 음용으로 인한 건강 위험성을 평가하였다. 또한 이러한 방법론을 상급 언급한 지하수 의존 지역에 확대하여 적용할 수 있는 가능성을 확인하였다.

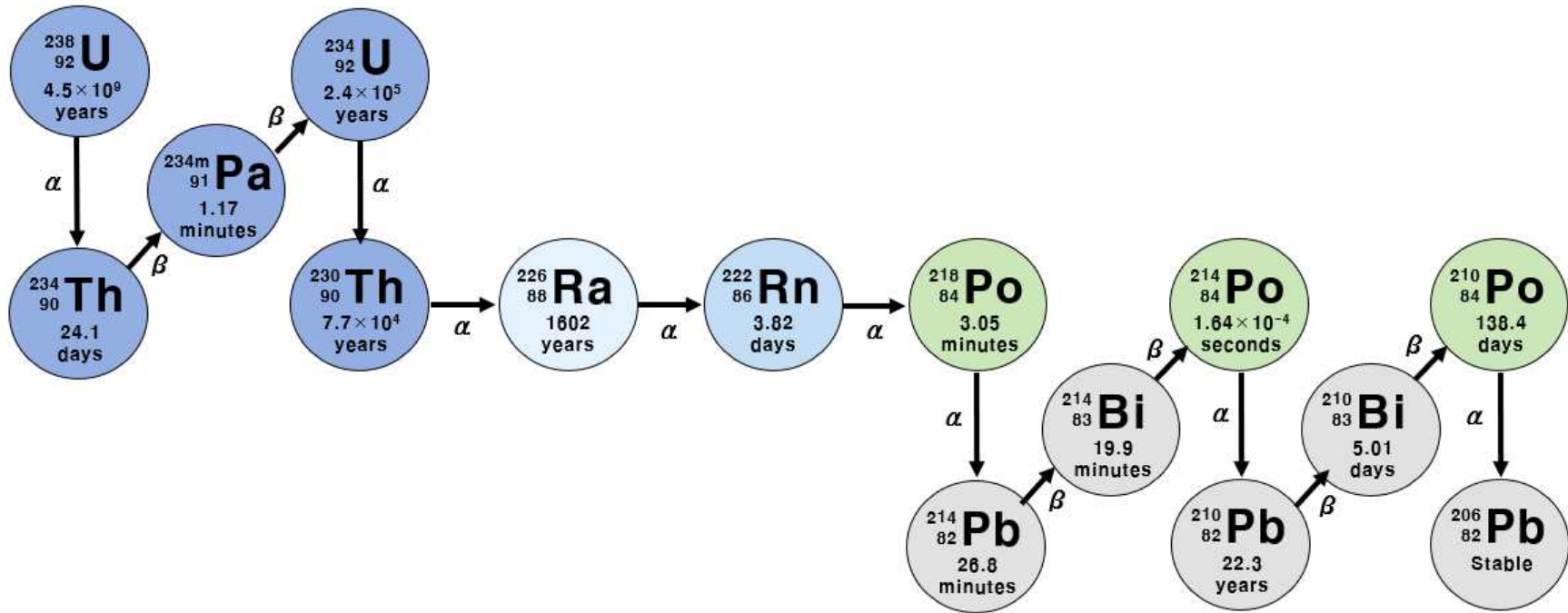


Figure 1. Scheme of  $^{238}\text{U}$  decay chain

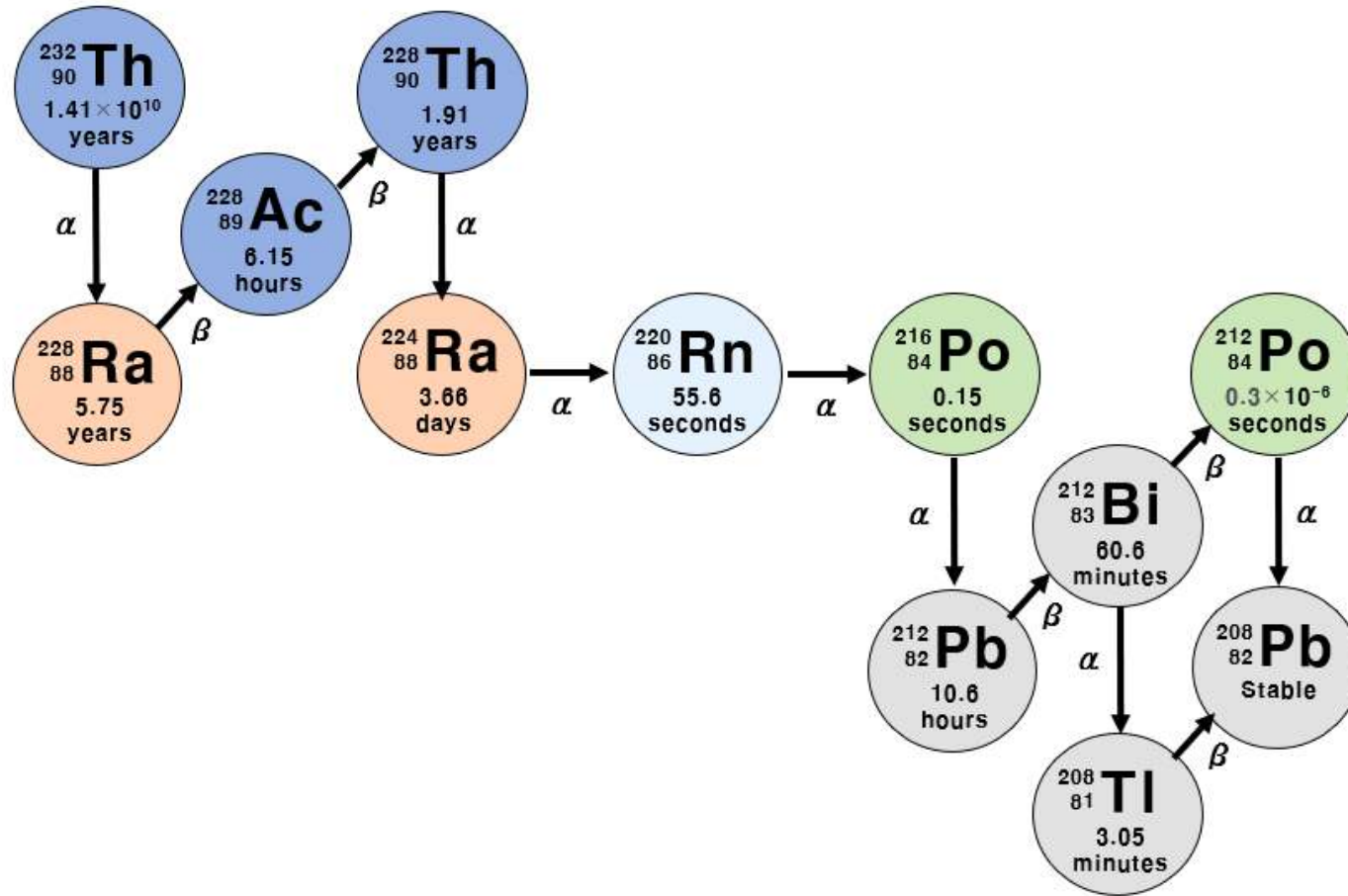


Figure 2. Scheme of  $^{232}\text{Th}$  decay chain

## II. 재료 및 방법

### 1. 제주도의 지질과 지하수

#### 1) 제주도의 지질특성

제주의 지층 구조를 Figure 3에 나타내었다. 한국에서 가장 면적이 넓은 섬인 제주도는 주로 현무암으로 이루어져 있다. 현무암은 다공성 화산암이기 때문에 제주도의 지질은 대부분 투과성이 매우 높은 것으로 알려져 있다. 이러한 화산암 아래에는 서귀포층이 위치하고 있다. 서귀포층은 모래(sand), 사암(sandstone), 이암(mudstone), 화산재가 굳어져 생긴 응회암 및 조개껍질 등으로 이루어진 수화산 퇴적층으로 투수성이 낮다. 서귀포층은 제주도 동쪽 지역의 지표 아래에서는 발견되지 않으며, 다른 지역에서는 평균 100 m의 두께로 분포하고 있다. 해수면 아래 15~205 m에서, 주로 모래 혹은 실트로 이루어진 70~250 m 두께의 U층이 서귀포층 아래에 분포한다. U층은 바다의 물결 혹은 조류로 인해 생성되며 해저에 퇴적되어 생긴 지층인 미고결 해성층이다. U층 아래에는 응회암과 화강암으로 이루어진 기반암이 위치하고 있다(Koh *et al.*, 2017; Koh *et al.*, 2006; Jeong *et al.*, 2016).

#### 2) 지층에 따른 자연감마선 결과

자연감마선 검층은 지질의 분포와 구조, 지층과 암종의 구분에 효과적으로 이용되는 방법이다. 우라늄, 토륨, 포타슘은 반감기가 충분히 길고 방사능 붕괴로 상당한 양의 감마선을 생성하는 방사성 동위원소이다. 자연감마선을 발생시키는 주요 방사성 원소인 우라늄, 토륨, 포타슘을 측정하여 지층과 지질



특성에 대해 조사한다. 즉, 자연 방사성 물질인 우라늄, 토륨, 포타슘을 많이 포함하는 지층에서는 높은 값의 자연감마선을 나타낸다.

자연감마선은 우라늄, 토륨, 포타슘의 총량을 측정하거나 혹은 각각의 원소를 구분하여 측정하며 API (American Petroleum Institute) 단위로 나타낸다. API는 자연감마선 검층에 사용되는 방사능 단위로서, 석유 산업으로부터 유래된 측정값 단위이다. 자연감마선 검층의 경우 자연감마선 측정값은 우라늄, 토륨, 포타슘의 농도로 다음의 식 (1)을 계산하여 그 값을 구한다.

$$GR\ API = 8 \times U(ppm) + 4 \times Th(ppm) + 16 \times K(w/w\%) \quad (1)$$

현무암류의 지질에서는 우라늄, 토륨, 포타슘의 함유량이 매우 적으므로 5~50 API 범위의 자연감마선 값을 가지는 것으로 보고되었다(Helm-Clark *et al.*, 2004). 서귀포층은 자연감마선 범위가 50~80 API로 나타나며, U층에서는 약 90 API의 높은 자연감마선 값을 보인다(Shim *et al.*, 2018). 따라서 서귀포층과 U층은 현무암으로 이루어진 화산암층보다 비교적 많은 자연 방사성 물질을 함유하고 있다.

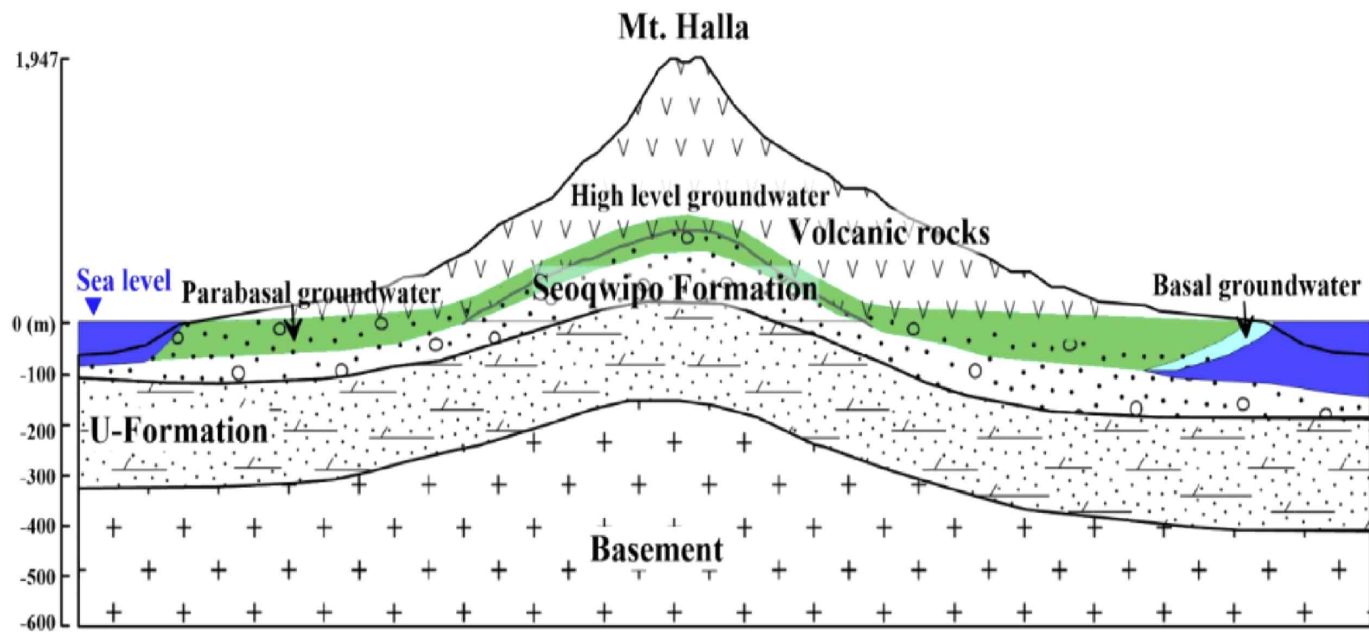


Figure 3. Geologic structures with west-east cross line of Jeju island (Koh *et al.*, 2017; Lee *et al.*, 2020)

### 3) 지하수 부존형태

제주도 수문지질 및 지하수자원 종합조사(III)에서 제주 지하수 부존형태에 대해 분류하고 정의하였다(Jeju Special Self-Governing Province, 2021). 제주도는 사면이 해안과 접한 섬 지역으로서, 이러한 특성으로 인해 담수와 해수, 지질의 분포 및 지하수의 수위에 따라 상위 지하수, 준기저 지하수, 기저 지하수로 분류하고 있다(Figure 4).

상위 지하수(High-level groundwater)는 강수로 인해 발생한 우수가 지층 하부로 침투하다가 서귀포층과 같은 투수성이 낮은 지층을 더 이상 침투하지 못하고 저투수층을 따라 흐르는 지하수이다.

준기저 지하수(Parabasal groundwater)는 담수 지하수체의 하단에서 투수성이 낮은 서귀포층에 의해 해수와 직접적인 접촉이 차단되어 해수의 혼입이 없는 지하수이다.

기저 지하수(Basal groundwater)는 해수와 만나는 지하수로서, 비중이 작은 담수가 비중이 큰 염수의 상부에 렌즈 형태로 부존한다. 서귀포층은 제주도 동쪽 지역의 지표 아래에서는 분포하고 있지 않으므로 동부 지역에는 기저 지하수가 넓게 분포하고 있다(Figure 5).

지하수가 해수와 직접적인 접촉을 하거나 지층의 영향을 받는 경우 지하수의 특성이 달라져 자연 방사성 핵종의 농도가 달라질 수 있다. 제주도의 기저 지하수 지역인 동부 일대의 라돈 농도가 낮은 값을 보이는 것이 보고된 바 있다(Han *et al.*, 2021). 따라서 시료 채취 지점의 위치 및 지하수 부존형태의 특성을 통해 자연 방사성 물질의 분포에 미치는 영향을 확인할 수 있다.

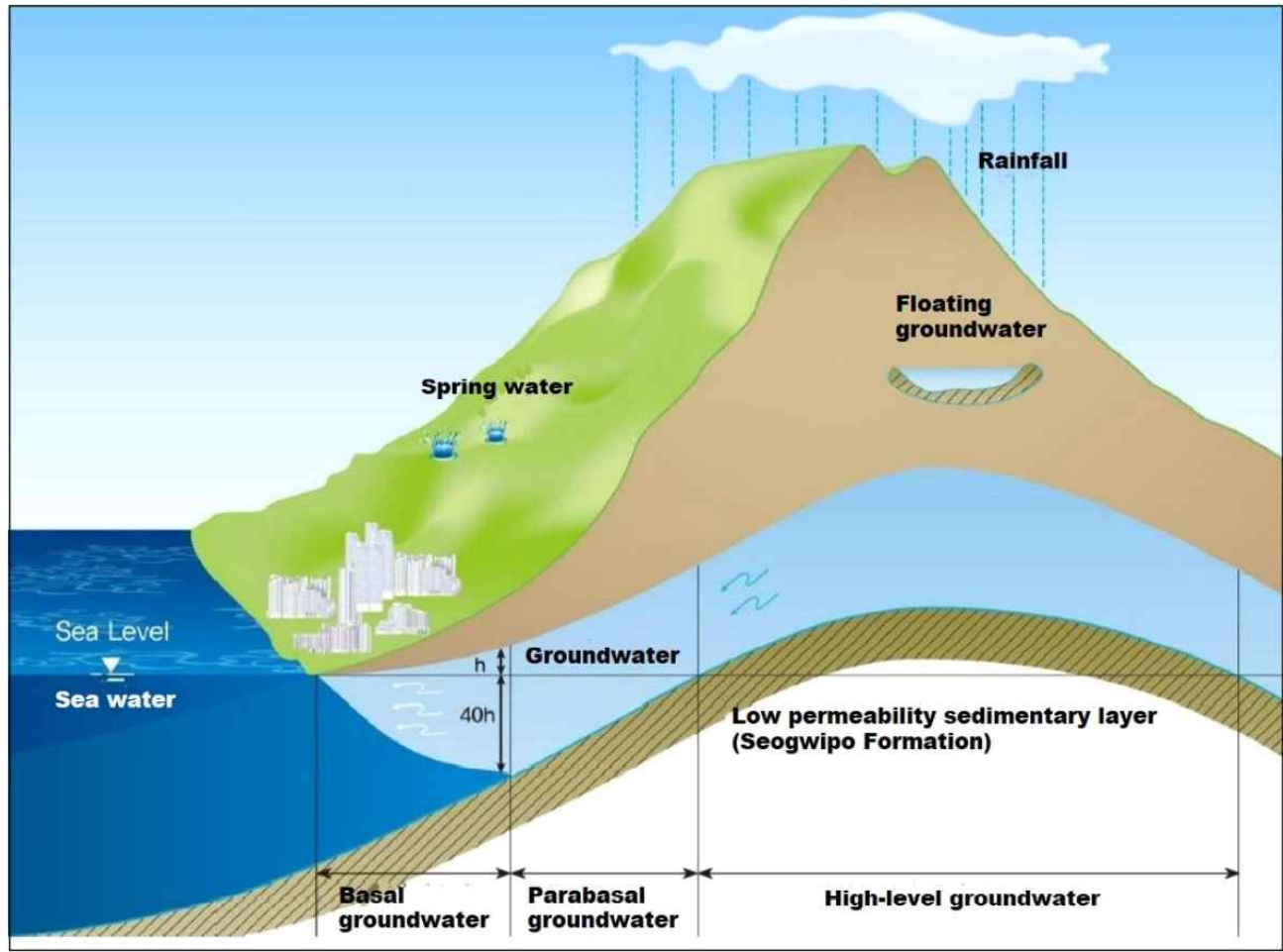


Figure 4. Geomorphological diagram of groundwater occurrence in Jeju Island

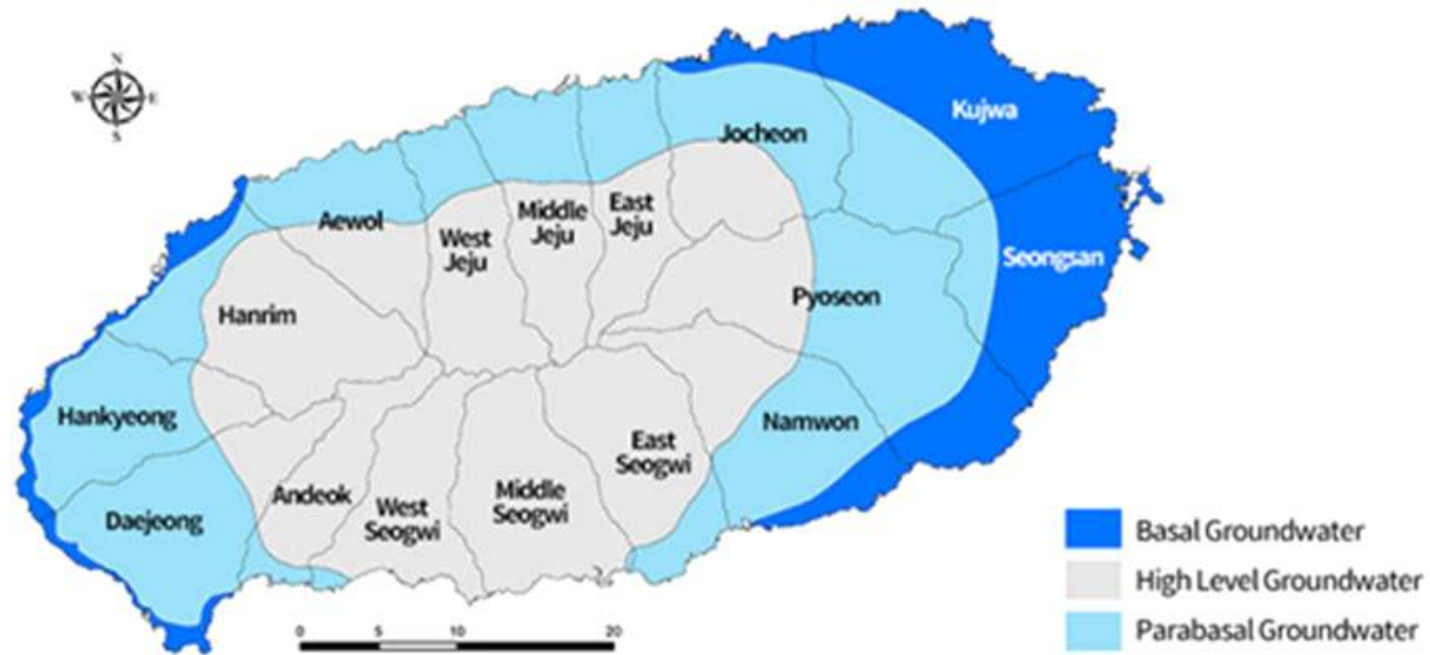


Figure 5. Groundwater occurrence of Jeju Island

## 2. 시료 채취 지점

2022년 9월부터 2023년 9월까지 제주도 내 상수도 공급을 위한 지하수 취수시설 9개소에서 시료 채취를 진행하였다(Figure 6). 이온, 우라늄과 토륨 분석을 위한 시료는 강수량과 지하수 함양에 따라 변동이 있으므로 강수량이 적고 우라늄의 농도가 가장 높은 9~10월에 채취하였다. 라돈은 수온에 대해 낮은 음의 상관성을 나타낸다는 연구 결과가 보고된 바 있다(Seo *et al.*, 2022). 이에 따라 라돈 분석을 위한 지하수 시료는 수온에 따른 변동을 고려하여 수온이 가장 낮아 라돈의 농도가 높게 나타나는 2~4월에 채취하였다.

시료 채취지점으로는 별도의 고도정수처리 혹은 여과처리 없이 지하수를 소독하여 공급하는 정수장 9개소의 수원 내 관정을 대상으로 선정하였다. 각 정수장에는 수원지가 1개부터 4개까지 있다. 각 수원지에는 관정이 평균적으로 6개가 있으며, 수원 내의 관정의 개수는 적게는 3개부터 많게는 10개까지 포함하고 있다. 수원지 내의 각 관정들은 굴착심도나 고도에 약간의 차이가 있으나 대부분 유사한 값을 가지고 있으며, 정수장에 속한 수원지의 위치 또한 근 거리에 위치하고 있다. 따라서 지질에 의해 달라지는 자연 방사성 핵종 함유량이 수원이나 관정에 따라 크게 달라지지 않을 것으로 가정하여 정수장 9개소마다 하나의 관정에 대해 시료 채취를 실시하였다(Table 1). 해당 관정에서 얻을 수 있는 지하수는 정수장에서 염소소독을 거치고 정수장 인근 지역으로 공급되어 제주도 주민들의 주요 식수원으로 이용된다.

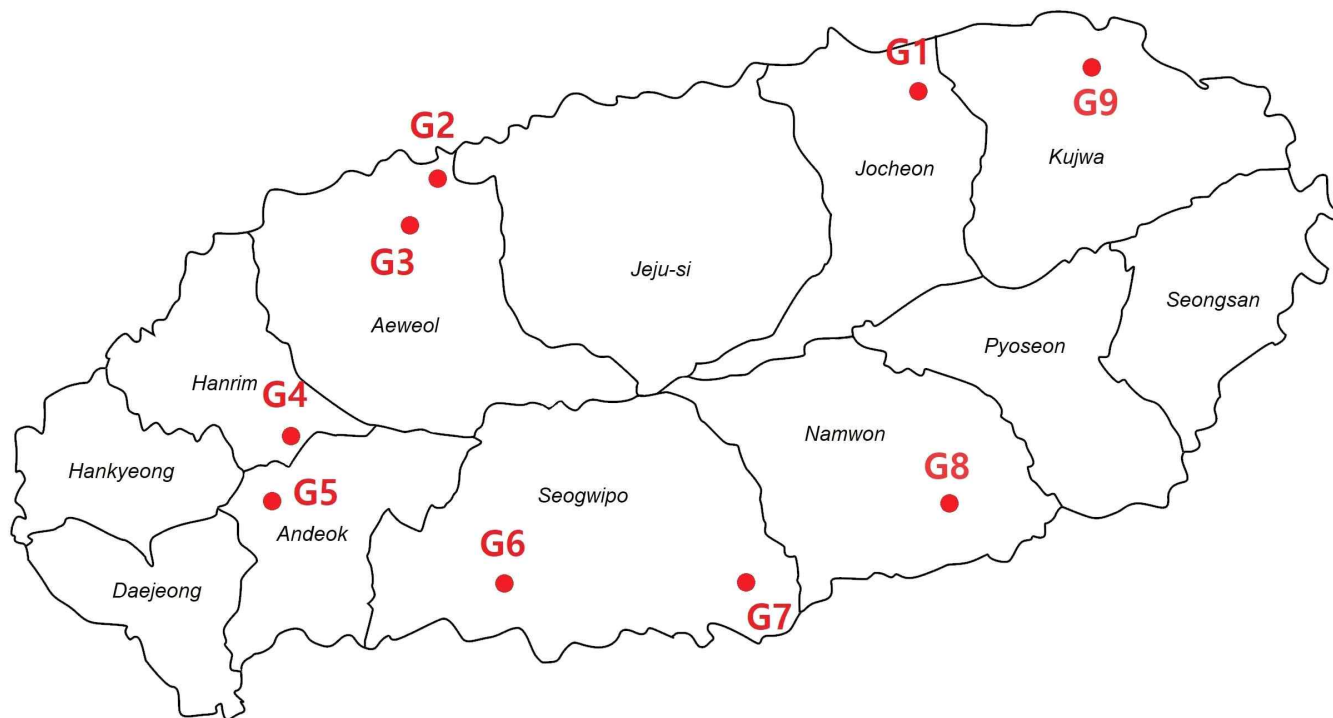


Figure 6. The locations of groundwater sampling sites

Table 1. The depth and altitude of sampling wells, measured water temperature of samples when collecting groundwater samples for radon from February to April 2023

| Sample | Depth of well (m) | Altitude (m) | Water temperature (°C) |
|--------|-------------------|--------------|------------------------|
| G1     | 110               | 83           | 15.6                   |
| G2     | 90                | 54           | 16.1                   |
| G3     | 210               | 184          | 15.6                   |
| G4     | 348               | 279          | 16.5                   |
| G5     | 200               | 183          | 15.3                   |
| G6     | 250               | 224          | 17.5                   |
| G7     | 150               | 141          | 16.1                   |
| G8     | 82                | 58           | 17.0                   |
| G9     | 110               | 89           | 16.1                   |



### 3. 전기전도도, pH 시료 채취 및 분석

오랜 기간 미가동 상태인 관정은 내부에 다량의 지하수가 침체되어 있다. 시료 채취 시에 침체된 지하수를 제거하기 위하여 지하수 시료를 채취하기 전에 관정의 펌프를 10분 이상 가동하였다. 관정이 가동되는 도중 지하수의 pH를 확인하여 pH 값이 안정되는 것을 확인한 후 시료 채취를 진행하였다.

관정을 10분 이상 가동한 뒤 안정화된 지하수를 500 mL 비커에 받아 pH와 전기전도도의 현장 측정을 진행하였다. 전기전도도와 pH 값을 측정하기 위해 Orion Star A329(Thermo-scientific, USA)을 사용하였다.

### 4. 이온, $^{40}\text{K}$ 시료 채취 및 분석

관정의 펌프를 10분 이상 가동하여 안정화된 이후 이온 및 포타슘의 농도를 분석하기 위해 지하수 2L를 LDPE 병에 채취하였다(Figure 7).

지하수 시료 중에 존재할 수 있는 입자상물질을 제거하기 위해 0.45  $\mu\text{m}$ 의 막 여과지를 이용하여 여과하였다. 여과한 시료에 대해 이온 크로마토그래프(940 Professional IC Vario, Metrohm, Switzerland)로 양이온( $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ )과 음이온( $\text{F}^-$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ) 분석을 진행하였다.

포타슘은 수중에서 대부분 양이온으로 존재하기 때문에 이온 크로마토그래프를 이용하여 측정한  $\text{K}^+$ 의 농도에  $^{40}\text{K}$ 의 자연존재비 0.0117%를 고려하여  $^{40}\text{K}$ 의 농도를 결정하였다. 지하수 시료의  $^{40}\text{K}$ 의 방사능 농도는  $^{40}\text{K}$ 의 비 방사능(Specific activity) 258  $\text{Bq mg}^{-1}$ 을 통해 식 (2)와 같이 구하였다.

$$A_i = C_i \times S \quad (2)$$

여기서  $A_i$ 는 방사성 핵종의 방사능 농도( $Bq L^{-1}$ ),  $C_i$ 는 정량 분석하여 얻은 방사성 핵종의 농도( $ng L^{-1}$ )이다.  $S$ 는 방사성 핵종의 비 방사능( $Bq ng^{-1}$ )이다.



Figure 7. LDPE water sample bottle

## 5. 우라늄, 토륨 시료 채취 및 분석

관정 펌프를 10분 이상 가동하여 안정화된 지하수 2L를 LDPE 병에 채취하였다. 우라늄과 토륨의 분석을 위한 전처리에는 고순도 질산(High pure nitric acid, ODLAB)을 사용하였다. 우라늄, 토륨 분석 전처리를 위해 지하수 시료를  $0.45 \mu m$  막에 통과시켜 여과한 용액 1 L에 질산 65% 용액 1.5 mL를 가하여 pH 2 이하로 조절하였다. 전처리를 완료한 시료에 대해 우라늄과 토륨의 농도를 확인하였다.

제주 지하수에 포함된  $^{238}U$ 와  $^{232}Th$ 의 농도는 유도결합 플라즈마 질량 분석기(iCAP RQ, Thermoscientific, USA)으로 정량 분석하였다.  $^{238}U$ 와  $^{232}Th$ 의 방사능 농도는  $^{238}U$ 의 비 방사능  $12.4 Bq mg^{-1}$ 와  $^{232}Th$ 의 비 방사능  $4.07 Bq mg^{-1}$ 을 이용하여 식 (2)를 통해 계산하였다.

## 6. 라돈 시료 채취 및 분석

### 1) 라돈 분석용 각테일 용액

Maxilight 각테일 용액은 물과 섞이지 않으므로, 시료와 각테일 용액을 혼합하면 라돈 기체와 그 딸핵종( $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$  및  $^{214}\text{Po}$ )만이 각테일 용액에 포함된다. 즉, Maxilight 각테일 용액은 시료 내의 라돈을 추출하는 동시에 섬광 현상을 통해 그 농도를 분석하는 용도로 사용된다.

각테일 용액은 섬광 용액이라고도 불리며, 용매와 유화제, 섬광체가 혼합되어있다. 각테일 용액은 방사성 동위원소의 방사성 붕괴 시 에너지를 흡수하면서 섬광 현상에 의해 빛을 낸다. 각테일 용액의 용매는 방사성 동위원소에서 방출되는 에너지 흡수에 관여하며, 인광 분자(섬광체)는 흡수한 에너지를 빛으로 변환하여 섬광으로 다시 방출한다.

라돈 분석을 위한 각테일 용액으로는 기존에 톨루엔을 많이 사용하였으나, 독성에 의해 현재는 많이 사용되지 않는다. Maxilight 각테일 용액은 다이아이소프로필 나프탈렌(Di-isopropyl naphthalene, DIN) 기반의 섬광 각테일 용액으로서, 지하수 시료에서 라돈 기체를 추출하는데 이용된다(Figure 8).

### 2) 지하수 라돈 시료 채취 및 분석

라돈 분석을 위해 테플론 코팅된 20 mL 플라스틱 바이알에 Maxilight 각테일 용액(Hidex, Finland) 12 mL를 미리 담았다.

각테일 용액으로 톨루엔을 사용하여 플라스틱 바이알에 라돈 분석 시료를 채취할 경우, 시료 속의 라돈이 바이알 밖으로 점차 용출되는 것이 보고된 바 있다(Kim *et al.*, 1995). 따라서 톨루엔 기반의 각테일 용액을 이용한 라돈의 분석에는 테플론 코팅된 플라스틱 바이알의 사용이 권장된다. Maxilight 각테일 용액은 플라스틱 바이알을 통한 침투성이 낮기 때문에

Maxilight를 사용하여 시료 채취와 분석을 수행할 때 바이알의 재질에 상관 없이 라돈의 유출은 없으나(Kim *et al.*, 2016), 본 연구에서는 테플론 코팅된 플라스틱 바이알로 시료 채취를 진행하였다(Figure 9).

시료 채취 과정에서 지하수 약 500 mL를 가능한 한 포기되지 않게 비커에 붓고, 비커의 가장 깊은 부분에서 8 mL를 피펫으로 채취하였다. 8 mL의 시료는 사전에 준비한 테플론 코팅 20 mL 플라스틱 바이알에 넣어 라돈의 추출을 위해 12 mL의 각테일 용액과 세계 혼합하였다.

방사성 원소가 연속적으로 붕괴할 때, 어떤 핵종의 반감기가 딸핵종의 반감기보다 길면 일정시간이 경과한 후에 방사능과 원자수의 비가 일정해지는 방사평형에 도달한다.  $^{222}\text{Rn}$ 의 반감기는 3.82일이고,  $^{222}\text{Rn}$ 의 딸핵종인  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$  및  $^{214}\text{Po}$ 는 각각 3.05분, 26.8분, 19.9분,  $1.64 \times 10^{-4}$ 초의 짧은 반감기를 가진다. 따라서 라돈과 그 딸핵종은 방사 평형 도달시간인 약 3시간 이후에는 방사 평형에 이르게 된다(Figure 10). 라돈의 방사능 농도를 측정하기 위하여 바이알에 채취한 시료를 방사 평형에 도달할 수 있도록 3시간 이상 암소에서 보관하였다. 각테일 용액과 시료 혼합액이 담긴 바이알을 이용하여 저준위액체섬광계수기(300SL, Hidex, Finland)로 지하수 시료에 포함된 라돈을 분석하였다. 측정시간을 단시간으로 설정하여 분석하면 불확실성 값이 높아질 수 있으므로 시료 당 60분간 분석하였다.



Figure 8. Maxilight Cocktail (Hidex)



Figure 9. 20mL teflon coated plastic vials

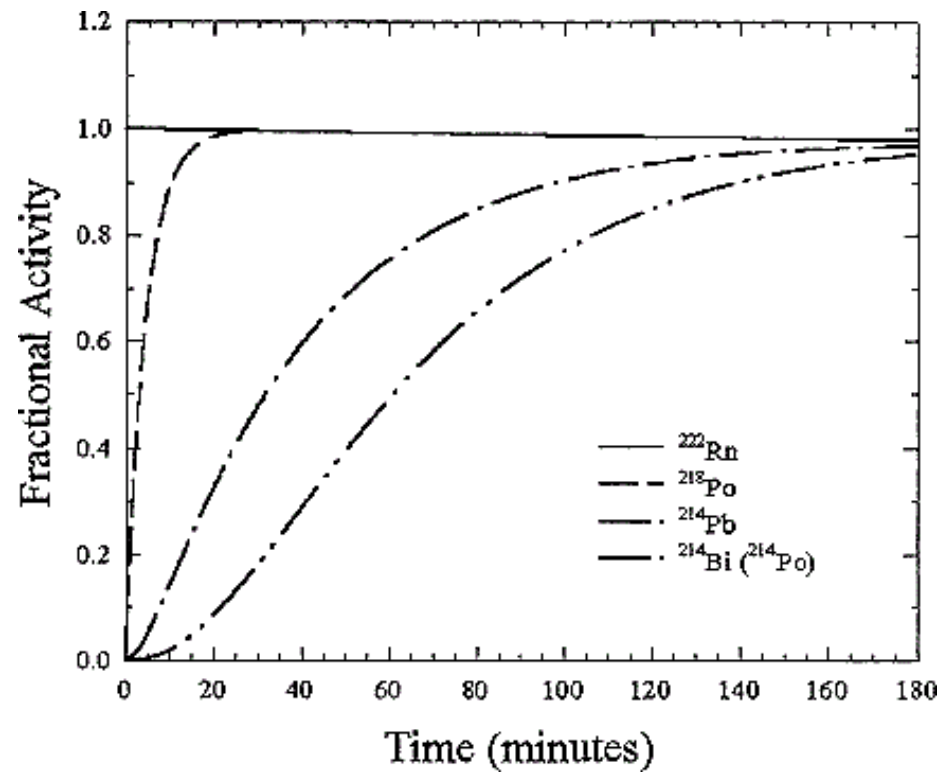


Figure 10. The ingrowth of decay product activities of an initially pure sample of  $^{222}\text{Rn}$  (NRC, 1999)

## 7. 연간 유효선량

연간 섭취 유효선량은 다음 식 (3)과 같이 계산하였다(ICRP, 1996).

$$E = \sum_{i=1}^n A_i \times F_i \times W \times t \quad (3)$$

여기서 E는 물 섭취에 의한 유효선량(Sv)이고,  $A_i$ 는 방사성 핵종의 방사능 농도( $\text{Bq L}^{-1}$ ),  $F_i$ 는 방사성 핵종의 선량 변환 계수( $\text{Sv Bq}^{-1}$ )이다. W는 물의 소비량, t는 물 섭취 기간이다.

방사성 핵종의 선량 변환 계수( $F_i$ )는 단위 섭취량 당 발생하는 유효선량이며, Table 2에 정리하였다. 섭취한 물의 양(W)은 세계보건기구의 가정을 따른다(WHO, 2017). 영유아의 경우, 물 소비량은  $0.75 \text{ L day}^{-1}$ 이다. 어린이와 성인의 물 섭취량은 각각  $1 \text{ L day}^{-1}$ 과  $2 \text{ L day}^{-1}$ 으로 가정한다.

Table 2. The ingestion effective doses per unit intake of natural radionuclides (UNSCEAR, 2000)

| Radionuclide      | Effective dose per unit intake ( $\text{nSv Bq}^{-1}$ ) |          |        |
|-------------------|---|----------|--------|
|                   | Infants   | Children | Adults |
| $^{40}\text{K}$   | 42  | 13       | 6.2    |
| $^{238}\text{U}$  | 120   | 68       | 45     |
| $^{222}\text{Rn}$ | 23  | 5.9      | 3.5    |
| $^{232}\text{Th}$ | 450   | 290      | 230    |

### III. 결과 및 고찰

#### 1. 지하수 시료의 이화학 분석 결과

본 연구는 제주도 전역의 지하수를 원수로 사용하는 정수장의 지하수를 대상으로 9개 지점을 선정하여 분석을 실시하였으며, 이온의 분석결과는 Table 3에 나타내었다.

전기전도도(EC, electric conductivity)는 시료 내에 이온이 많이 포함되어 있을수록 증가하므로 이온 농도를 간접적으로 확인할 수 있는 지표가 된다. 전기전도도는 주변 환경, 강수, 오염원, 지질 등에서 영향을 받아 그 값에 변동이 있다. 전기전도도는 지하수의 심도가 깊을수록 지하수와 암석 사이의 반응에 따라 증가하는 것으로 보고된 바 있다(Kim *et al.*, 2006). 또한 오염이나 해수와 접촉으로 인해 그 값이 증가한다.

비료나 분뇨로 인한 인위적인 오염은  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Cl}^-$  및  $\text{NO}_3^-$ 를 증가시키는 것으로 보고되었다(Pionke *et al.*, 1985). 해수는 Na, Cl 및 Mg를 많이 함유하고 있으므로 해수의 혼입에 따라 지하수에 포함된  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  이온이 증가한다.

$\text{Cl}^-$ 는 그 반응성이 낮기 때문에 해수의 영향을 살펴볼 수 있는 인자이다.  $\text{Na}^+$ 는 해수에 다량 존재하는 양이온으로서  $\text{Cl}^-$ 와 유사한 경향을 가진다. 해수의  $\text{Ca}^{2+}$  농도는 비교적 높지 않으므로 높은 농도의 칼슘 이온은 해수의 침투와 동반되는 양이온 교환 반응에 의한 것일 수 있다.  $\text{Mg}^{2+}$  이온의 농도는 칼슘 이온과 유사한 경향을 지닌다. 마그네슘 이온은 해수에 두 번째로 많이 존재하는 양이온이기 때문에 마그네슘 이온의 주요 근원은 해수일 것으로 추정할 수 있다(Kim *et al.*, 2006).

$\text{Na}^+$ 는 상기 언급한 대로 해수의 혼입으로 인한 유입 이외에도, 사장석이 용해되면서 지하수에 녹아드는 것으로 알려져 있다.  $\text{Na}^+$ 의 용해도가 크기 때문



에, 지하수에 포함된  $\text{Na}^+$ 의 농도는 지질학적 조건에 따라 달라질 수 있다(Lee *et al.*, 2016).  $\text{Na}^+$ 의 기원이라 할 수 있는 사장석은 현무암에 포함된 주요 광물 중 하나이다. 특히 제주도의 화산암은 알칼리 현무암과 소량의 솔레아이트 질 현무암으로 구성되어 있는데(Yang, 2016), 이중 알칼리 현무암은 Na이 풍부하다.

$\text{K}^+$ 은 비료로부터 기원하거나 혹은 지하수가 암석이나 지질과 반응을 하면서 주로 생성되는 이온이다(Lee *et al.*, 2016). 따라서  $\text{K}^+$ 를 포함한 지하수 시료의 이온 농도를 살펴봄으로써 지하수가 해수나 외부 오염의 영향이 큰지 혹은 물-암석 반응으로 인한 지질의 영향이 큰지 확인할 수 있다.

G2의 이온 분석 결과를 보면  $\text{Cl}^-$ 의 농도가 높은 것으로 인해 해수의 혼입을 의심할 수 있다. 그러나 높은 농도의  $\text{NO}_3\text{-N}$ 과  $\text{Ca}^{2+}$ 를 통하여 해수로 인한 영향보다는 비료나 분뇨로 인한 인위적인 오염의 영향을 받았을 것으로 판단된다.

G6과 G9는 높은 농도의  $\text{Na}^+$ 을 포함하고 있으며,  $\text{Ca}^{2+}$ 와  $\text{Mg}^{2+}$ 의 농도가 타 지역에 비해 다소 높기 때문에 해수의 혼입으로부터 영향을 받았을 것으로 볼 수도 있지만, 해수에 다량 포함되어 있는  $\text{Cl}^-$ 의 농도가 높지 않은 것으로 보아 해수의 침투가 있을 것으로 보기는 어렵다. 따라서 G6과 G9의 높은  $\text{Na}^+$  농도는 제주도 지질 중 알칼리 현무암에 포함된 Na의 용해로부터 기인한 것으로 추정된다.

또한 G6과 G9는 높은  $\text{K}^+$  이온 농도를 보이고 있어, 비료로 인한 유입 또는 물-암석 반응을 통한 지질로부터의 유래로 추정할 수 있다. G6과 G9의 질산성질소( $\text{NO}_3\text{-N}$ )의 농도가 높지 않은 것으로 보아  $\text{K}^+$ 는 비료나 분뇨로 인한 인위적인 오염보다는 암석으로부터 기원하였을 것으로 판단된다.

Table 3. pH, Electric conductivity (EC,  $\mu\text{S cm}^{-1}$ ), anion and cation values ( $\text{mg L}^{-1}$ ) in groundwater

| Sample | pH  | EC  | F <sup>-</sup> | NO <sub>3</sub> -N | Cl <sup>-</sup> | SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> | Na <sup>+</sup> | K <sup>+</sup> | Ca <sup>2+</sup> | Mg <sup>2+</sup> |
|--------|-----|-----|----------------|--------------------|-----------------|-------------------------------|-----------------|----------------|------------------|------------------|
| G1     | 7.9 | 110 | 0.06           | 2.4                | 9.7             | 3.7                           | 8.0             | 2.5            | 5.0              | 4.0              |
| G2     | 7.8 | 160 | 0.05           | 4.7                | 13.8            | 4.9                           | 9.1             | 2.8            | 8.8              | 6.6              |
| G3     | 7.9 | 105 | 0.07           | 1.6                | 7.9             | 2.4                           | 6.5             | 2.7            | 5.3              | 4.7              |
| G4     | 8.4 | 102 | 0.08           | 0.8                | 7.0             | 2.3                           | 8.6             | 4.0            | 4.1              | 3.6              |
| G5     | 8.0 | 112 | 0.07           | 2.1                | 8.9             | 3.7                           | 8.3             | 3.6            | 5.0              | 4.0              |
| G6     | 8.4 | 207 | 0.11           | 0.3                | 6.9             | 1.9                           | 22.7            | 6.8            | 7.9              | 6.9              |
| G7     | 7.2 | 80  | 0.08           | 1.9                | 6.4             | 3.1                           | 5.4             | 1.7            | 4.4              | 2.8              |
| G8     | 7.9 | 119 | 0.05           | 2.1                | 8.3             | 2.4                           | 7.7             | 2.2            | 6.2              | 4.9              |
| G9     | 8.1 | 181 | 0.11           | 0.3                | 7.6             | 3.6                           | 19.9            | 8.1            | 8.7              | 7.9              |

## 2. $^{40}\text{K}$ 의 방사능 농도와 연간 섭취 유효선량

$^{40}\text{K}$ 의 방사능 농도의 값은  $52.7\sim 243.9 \text{ mBq L}^{-1}$  ( $204.3\sim 945.4 \text{ ng L}^{-1}$ )이었고, 평균은  $115.7\pm 49.4 \text{ mBq L}^{-1}$ 을 나타내었다(Table 4).  $^{40}\text{K}$ 은  $\text{K}^+$ 의 농도와  $^{40}\text{K}$ 의 자연존재비를 통해 구했기 때문에,  $\text{K}^+$ 의 농도가 높았던 G6과 G9 지하수의  $^{40}\text{K}$  농도는 다른 지하수에 비해 높았다. 제주도의 모든 지하수 시료에서  $^{40}\text{K}$ 의 방사능 농도가 전반적으로 매우 낮은 값으로 확인되었다.

$^{40}\text{K}$ 의 연간 유효선량은 영유아 연령대를 포함한 전연령대에서  $3 \mu\text{Sv y}^{-1}$  미만인 것으로 조사되었다. 이중  $^{40}\text{K}$  섭취로 인한 영유아 연령대의 유효선량이 성인 유효선량의 2배 이상인 것으로 확인되었다. 이는 성인의  $^{40}\text{K}$  선량 변환 계수에 비해 영유아의  $^{40}\text{K}$  선량 변환 계수가 약 6.7배로 그 비율이 가장 큰 값을 가지기 때문이다. 따라서  $^{40}\text{K}$  섭취에 따른 영향에는 영유아 연령대가 가장 취약한 것으로 판단된다.

## 3. $^{222}\text{Rn}$ 의 방사능 농도와 연간 섭취 유효선량

$^{222}\text{Rn}$ 의 방사능 농도는  $7.98\sim 32.43 \text{ Bq L}^{-1}$ 로 나타났으며, 평균은  $19.18\pm 8.63 \text{ Bq L}^{-1}$ 이다(Table 5). 지하수 시료 중 미국 환경보호청에서 지정한  $148 \text{ Bq L}^{-1}$ 의 기준치를 초과한 것은 없었다. 라돈의 함량은 퇴적암과 화산암 지역의 지하수에서 낮은 것으로 밝혀져 있다(Cho, 2018). 제주도의 지질은 퇴적층과 현무암으로 이루어져 있기 때문에 음용수 기준치를 넘는 높은 값의 라돈 농도는 나타나지 않았다.

이온 분석 결과를 통해 제주 지하수 중에서 알칼리 현무암의 영향을 받았을 것으로 추정하였던 G6과 G9의 라돈 방사능 농도가 가장 낮은 값으로 확인되

었다. 지질에 따라 전국 지하수의 라돈 함량을 조사한 결과, 제주도의 다공질 화산암에는 다른 지질에 비해 매우 낮은 농도의 라돈이 분포하고 있음이 밝혀진 바 있다(Cho, 2018). 따라서 G6과 G9에서 라돈 방사능 농도가 낮은 값으로 나타난 것은 알칼리 현무암의 영향으로 판단된다. 또한 모든 시료 중에서 지하수 부존 형태가 기저 지하수인 G9의 라돈 농도가 모든 시료 중에서 가장 낮은 것은 제주 동부 일대 기저 지하수 지역의 라돈 농도가 낮다는 기존의 연구 결과와 일치한다(Han *et al.*, 2021).

라돈의 분포에는 고도가 높을수록 낮은 함량을 보이는, 라돈과 고도 사이의 음의 상관성이 있다(Han *et al.*, 2021). 관정의 고도와 라돈의 연관성을 살펴보면 (Table 1), 고도가 낮은 G2와 G8의 지하수에서 라돈의 농도가 높은 값을 나타내므로 이는 이전의 연구 결과와 일치한다. 따라서 지하수에서의 라돈 농도와 고도에 따른 음의 상관성을 확인하였다.

$^{222}\text{Rn}$ 의 연간 섭취 유효선량은 전연령대에서  $17.2\sim 204.2 \mu\text{Sv y}^{-1}$  범위를 나타내었다. 이중 영유아 연령대는 어린이와 성인의 유효선량의 2배 이상의 값을 가지는 것으로 조사되었다. 이는 영유아 연령대의 섭취 선량 계수가 성인 연령대보다 약 6.6배 큰 값을 가지고 있기 때문이다. 따라서 영유아 연령대는 특히  $^{222}\text{Rn}$  섭취에 취약한 것으로 나타났다.

Table 4. The activity concentrations of  $^{40}\text{K}$  and annual effective doses of groundwater in Jeju island

| Sample  | $^{40}\text{K}$ (ng L $^{-1}$ ) | $^{40}\text{K}$ (mBq L $^{-1}$ ) | Annual effective doses ( $\mu\text{Sv y}^{-1}$ ) |                 |                 |
|---------|---------------------------------|----------------------------------|--|-----------------|-----------------|
|         |                                 |                                  | infants  | Children        | Adults          |
| G1      | 293.0                           | 75.6                             | 0.87   | 0.36            | 0.34            |
| G2      | 329.8                           | 85.1                             | 0.98   | 0.40            | 0.39            |
| G3      | 318.0                           | 82.0                             | 0.94   | 0.39            | 0.37            |
| G4      | 466.2                           | 120.3                            | 1.38   | 0.57            | 0.54            |
| G5      | 426.2                           | 110.3                            | 1.26   | 0.52            | 0.50            |
| G6      | 791.7                           | 204.3                            | 2.35   | 0.97            | 0.92            |
| G7      | 204.3                           | 52.7                             | 0.61   | 0.25            | 0.24            |
| G8      | 260.2                           | 67.1                             | 0.77   | 0.32            | 0.30            |
| G9      | 945.4                           | 243.9                            | 2.80   | 1.16            | 1.10            |
| Average | 448.3 $\pm$ 191.4               | 115.7 $\pm$ 49.4                 | 1.33 $\pm$ 0.75                                  | 0.55 $\pm$ 0.31 | 0.52 $\pm$ 0.30 |

Table 5. The activity concentrations of  $^{222}\text{Rn}$  and annual effective doses of groundwater in Jeju island

| Sample  | $^{222}\text{Rn}$ ( $\text{Bq L}^{-1}$ ) | Annual effective doses ( $\mu\text{Sv y}^{-1}$ ) |                 |                 |
|---------|--|--|-----------------|-----------------|
|         |  | infants  | Children        | Adults          |
| G1      | 19.83                                    | 124.9  | 42.7            | 50.7            |
| G2      | 31.70                                    | 199.6  | 68.3            | 81.0            |
| G3      | 21.40                                    | 134.8  | 46.1            | 54.7            |
| G4      | 13.34                                    | 84.0   | 28.7            | 34.1            |
| G5      | 18.11                                    | 114.0  | 39.0            | 46.3            |
| G6      | 9.34                                     | 58.8   | 20.1            | 23.9            |
| G7      | 18.51                                    | 116.6  | 39.9            | 47.3            |
| G8      | 32.43                                    | 204.2  | 69.8            | 82.9            |
| G9      | 7.98                                     | 50.2   | 17.2            | 20.4            |
| Average | $19.18 \pm 8.63$                         | $120.8 \pm 54.3$                                 | $41.3 \pm 18.6$ | $49.0 \pm 22.0$ |

#### 4. $^{238}\text{U}$ 의 방사능 농도와 연간 섭취 유효선량

$^{238}\text{U}$ 의 방사능 농도는 평균  $1.619 \pm 2.043 \text{ mBq L}^{-1}$ 이고  $0.057 \sim 5.887 \text{ mBq L}^{-1}$  ( $4.56 \sim 474.73 \text{ ng L}^{-1}$ )까지의 범위를 나타내었다(Table 6). 모든 지하수 시료에서  $^{238}\text{U}$ 의 농도는  $0.5 \text{ } \mu\text{g L}^{-1}$  미만의 낮은 값으로 조사되었다. 미국 환경보호청에 따르면 우라늄의 음용수 기준치는  $30 \text{ } \mu\text{g L}^{-1}$ 이다. 제주도의 지하수 중에 우라늄의 방사능 농도가 기준치  $30 \text{ } \mu\text{g L}^{-1}$ 를 넘는 지하수 시료는 없었다.

우라늄은 화강암 지역과 화강암에서 기원한 변성암 지역 및 탄산염 지역에서 그 함량이 높은 것으로 보고되고 있다(Birke *et al.*, 2010). 한국에서 화강암 기반의 화성암은 경기, 강원, 충청, 전라까지 넓게 분포하며 일부 관정에서는 지하수 우라늄 농도가 수질 기준인  $30 \text{ } \mu\text{g L}^{-1}$ 를 넘는다(Shin *et al.*, 2016).

제주도는 주로 현무암류의 화산암으로 이루어져 있으며, 그 아래 존재하는 서귀포층과 U층은 퇴적암층이다. 우라늄의 함량은 현무암과 같은 염기성 암석이나 퇴적암에서 낮다. 현무암을 포함하는 다공성 화산암에서는  $0.03 \sim 1.37 \text{ } \mu\text{g L}^{-1}$  범위의 우라늄 농도가 확인된 바 있다(Cho *et al.*, 2018). 따라서 제주도의 지하수의 낮은  $^{238}\text{U}$  농도는 제주도의 지질과 관련된 것으로 판단된다.

$^{238}\text{U}$  농도 최고치는 G6 지하수에서 검출되었으며,  $^{238}\text{U}$  농도는 G6, G8 및 G9에서 다른 지역의 지하수에 비해 높은 값을 보였다. G6의 관정은 250 m의 굴착심도와 224 m의 고도를 가지고 있다. G8 관정은 82 m의 굴착심도와 58 m의 고도를 가지며, G9 관정은 110 m의 굴착심도와 89 m의 고도를 가진다(Table 1). 굴착심도와 고도 및 Figure 3, 4의 위치를 통해 각 지하수에 영향을 끼친 지층을 확인한 결과, G6과 G8은 서귀포층의 영향을 받은 것으로 추정된다. 서귀포층이 존재하지 않는 제주도 동부 지역에 위치한 G9는 U층의 영향을 받은 것으로 사료된다.

제주도 지층의 자연감마선 결과에 따라 서귀포층과 U층은 화산암층에 비해 자연 방사성 핵종을 다량 함유한다. 즉, 다른 지역의 지하수에 비해 G6, G8

및 G9 지역이 높은  $^{238}\text{U}$  방사능 농도를 보이는 것은 서귀포층과 U층의 영향으로 추정된다.

우라늄 농도의 음용수 기준치인  $30 \mu\text{g L}^{-1}$ 에 해당하는 우라늄의 방사능 농도는  $0.372 \text{ Bq L}^{-1}$ 이다. 우라늄  $30 \mu\text{g L}^{-1}$ 이 함유된 물을 일년동안 섭취했을 때 성인 기준 유효선량은 약  $12.2 \mu\text{Sv y}^{-1}$ 로서, 세계보건기구의 개인 선량 기준인  $0.1 \text{ mSv}$ 보다 훨씬 낮은 수치이다. 이처럼 우라늄 음용수 기준치의 유효선량이 낮은 이유는 다른 핵종과 달리 섭취 유효선량을 기준으로 음용수 기준치를 환산하지 않았기 때문이다. 우라늄은 방사성 독성보다 화학적 독성이 더 크므로(Singh *et al.*, 2014; Amakom *et al.*, 2010), 화학적 독성을 기준으로 수질 기준치가 설정되었다.

$^{238}\text{U}$  섭취 시 발생하는 유효선량은 지하수 내 우라늄의 낮은 농도로 인해 전 연령대에서  $200 \text{ nSv y}^{-1}$  미만의 값을 보였다. 이중 영유아와 성인의 연간 유효선량은 같은 값을 보였다. 이는  $^{238}\text{U}$ 의 식 (3)에 따른 섭취 유효선량을 계산하는 과정에서 성인과 영유아의 섭취 선량 계수와 수분 섭취량을 곱한 값이 서로 같기 때문이다. 또한  $^{238}\text{U}$  섭취에 의해 발생하는 유효선량 값은 성인과 영유아 연령대에서 어린이 연령대보다 높은 값을 나타냈다. 따라서 어린이 연령대가  $^{238}\text{U}$  섭취에 가장 적은 영향을 받는 것으로 판단된다.



Table 6. The activity concentrations of  $^{238}\text{U}$  and annual effective doses of groundwater in Jeju island

| Sample  | $^{238}\text{U}$ (ng L <sup>-1</sup> ) | $^{238}\text{U}$ (mBq L <sup>-1</sup> ) | Annual effective doses (nSv y <sup>-1</sup> ) |           |           |
|---------|--|---|---|-----------|-----------|
|         |  |   | infants                                       | Children  | Adults    |
| G1      | 17.69                                  | 0.219                                   | 7.2   | 5.4       | 7.2       |
| G2      | 32.75                                  | 0.406                                   | 13.3  | 10.1      | 13.3      |
| G3      | 52.30                                  | 0.649                                   | 21.3  | 16.1      | 21.3      |
| G4      | 56.67                                  | 0.703                                   | 23.1  | 17.4      | 23.1      |
| G5      | 31.75                                  | 0.394                                   | 12.9  | 9.8       | 12.9      |
| G6      | 474.73                                 | 5.887                                   | 193.4   | 146.1     | 193.4     |
| G7      | 4.56                                   | 0.057                                   | 1.9   | 1.4       | 1.9       |
| G8      | 321.51                                 | 3.987                                   | 131.0   | 99.0      | 131.0     |
| G9      | 182.82                                 | 2.267                                   | 74.5  | 56.3      | 74.5      |
| Average | 130.53±164.76                          | 1.619±2.043                             | 53.2±67.1                                     | 40.2±50.7 | 53.2±67.1 |

## 5. $^{232}\text{Th}$ 의 방사능 농도와 연간 섭취 유효선량

$^{232}\text{Th}$ 은 평균이  $3.89 \pm 2.64 \mu\text{Bq L}^{-1}$ 인  $1.50 \sim 9.54 \mu\text{Bq L}^{-1}$  ( $0.369 \sim 2.345 \text{ ng L}^{-1}$ ) 범위를 나타내었다(Table 7).

Table 1에 나타낸 바와 같이  $^{232}\text{Th}$ 는 단위 섭취량 당 선량이 크기 때문에, 자연 방사성 동위원소 섭취에 따른 유효선량에 가장 큰 영향을 미치는 핵종이다. 그럼에도 불구하고 제주도 지하수 시료에는  $^{232}\text{Th}$ 의 방사능 농도가 매우 낮게 나타났기 때문에  $^{232}\text{Th}$ 의 연간 유효선량은 전연령대에서  $2 \text{ nSv y}^{-1}$  미만의 값을 보이고 있다.

$^{40}\text{K}$ ,  $^{222}\text{Rn}$ 은 영유아 연령대의 연간 유효선량이 전연령대에서 가장 큰 값을 가지는 것으로 조사되었으나, 반면에  $^{232}\text{Th}$ 의 경우 성인 연령대의 연간 유효선량이 가장 큰 값을 나타내고 있다.  $^{40}\text{K}$ 와  $^{222}\text{Rn}$ 의 영유아 연령대 선량 변환 계수가 성인의 6.6~6.7배인 데에 반해  $^{232}\text{Th}$ 의 경우 약 2.0배로 그 비율이 작다. 성인은 영유아의 약 2.7배의 물을 섭취하므로  $^{232}\text{Th}$  섭취 유효선량은 성인이 영유아보다 더 큰 값으로 평가되었다. 따라서  $^{232}\text{Th}$  핵종은 다른 자연 방사성 원소와 달리 다른 연령대에 비해 성인 연령대가 섭취에 더 취약하다.

Table 7. The activity concentrations of  $^{232}\text{Th}$  and annual effective doses of groundwater in Jeju island

| Sample  | $^{232}\text{Th}$ (ng L <sup>-1</sup> ) | $^{232}\text{Th}$ (μBq L <sup>-1</sup> ) | Annual effective doses (nSv y <sup>-1</sup> ) |           |           |
|---------|---|--|---|-----------|-----------|
|         |   |  | infants                                       | Children  | Adults    |
| G1      | 0.369                                   | 1.50                                     | 0.19  | 0.16      | 0.25      |
| G2      | 2.345                                   | 9.54                                     | 1.18  | 1.01      | 1.60      |
| G3      | 1.051                                   | 4.28                                     | 0.53  | 0.45      | 0.72      |
| G4      | 0.751                                   | 3.06                                     | 0.38  | 0.32      | 0.51      |
| G5      | 0.556                                   | 2.26                                     | 0.28  | 0.24      | 0.38      |
| G6      | 0.494                                   | 2.01                                     | 0.25  | 0.21      | 0.34      |
| G7      | 0.471                                   | 1.92                                     | 0.24  | 0.20      | 0.32      |
| G8      | 1.617                                   | 6.58                                     | 0.81  | 0.70      | 1.11      |
| G9      | 0.958                                   | 3.90                                     | 0.48  | 0.41      | 0.65      |
| Average | 0.957±0.649                             | 3.89±2.64                                | 0.48±0.33                                     | 0.41±0.28 | 0.65±0.44 |

## 6. 지하수 섭취를 통한 $^{40}\text{K}$ , $^{222}\text{Rn}$ , $^{238}\text{U}$ 및 $^{232}\text{Th}$ 의 총 연간 유효선량

제주도 지하수 섭취로 인한 자연 방사성 동위원소의 총 연간 유효선량은 Table 8에 정리하였다. 영유아 연령대의 경우 지하수 섭취를 통한 연간 유효선량은  $53.1\sim 205.1 \mu\text{Sv y}^{-1}$ 로 나타났으며, 평균값은  $122.2\pm 53.7 \mu\text{Sv y}^{-1}$ 이다. 어린이 연령대의 경우 연간 유효선량은  $18.4\sim 70.3 \mu\text{Sv y}^{-1}$ 의 범위로 나타났으며 평균은  $41.9\pm 18.3 \mu\text{Sv y}^{-1}$ 이다. 성인 연령대의 경우 연간 유효선량은  $21.6\sim 83.3 \mu\text{Sv y}^{-1}$  사이의 값을 보였으며 평균  $49.6\pm 21.8 \mu\text{Sv y}^{-1}$ 이다.

영유아는 모든 연령대 중에서 가장 큰 연간 유효선량을 보이는 것으로 나타났다. 이는 영유아가 단위 섭취량 당 선량이 다른 연령대에 비해 큰 값을 가지고 있기 때문이다(Table 2). 또한 영유아는 체중 대비 물 섭취량이 많다. 연령대 별로 물 소비량은 세계보건기구의 가정을 따랐으며 성인은 체중 60 kg이 하루 2 L의 물을 섭취하는 것으로 가정하였고, 어린이는 체중 10 kg이 하루에 1 L의 물을 소비하는 것으로 가정하였다. 영유아는 5 kg의 체중으로  $0.75 \text{ L day}^{-1}$ 의 물 섭취량을 가정하였다(WHO, 2017). 이러한 이유로 인하여 영유아 연령대가 지하수 음용에 의한 자연 방사성 물질 섭취에 취약한 것으로 판단된다.

상기 언급한 바와 같이, 0.1 mSv의 개인 연간 유효선량은 평생 건강 위험성이 낮다는 것을 의미하며, 이는 인간에게 감지 가능한 영향이 없음을 뜻한다. 즉, 모든 지역에서 어린이와 성인 연령대에 대해 지하수 섭취에 따른 자연 방사능 물질의 영향은 미미하다. 또한 100 mSv 이상의 선량에서는 인체의 암 위험도가 증가하며, 그 미만의 값에서는 암을 거의 유발하지 않는 것으로 알려져 있다(Brenner *et al.*, 2003). 따라서 전 연령층에서 제주도의 지하수 섭취에 의한 암 위험도는 없을 것으로 판단된다.

도출한 결과를 통해  $^{222}\text{Rn}$ 의 연간 유효선량이 총 선량에 눈에 띄게 영향을 미치는 것으로 나타났다. 이를 토대로 제주도 거주자들의 지하수 섭취로 인한 건강 위험성은 자연 방사성 물질 중  $^{222}\text{Rn}$ 의 방사능 농도 측정을 통해 신속한 모니터링이 가능할 것으로 판단된다.

지하수에 포함 될 수 있는 자연 방사성 물질 중에는  $^{40}\text{K}$ ,  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  이외에도  $^{226}\text{Ra}$ 이 있다. 미국 환경보호청의 라듐 음용수 기준은  $^{226}\text{Ra}$ 와  $^{228}\text{Ra}$ 를 포함하여  $5.0 \text{ pCi L}^{-1}$ 이며, 이는  $0.185 \text{ Bq L}^{-1}$ 와 같다. 지하수에서  $0.185 \text{ Bq L}^{-1}$  이상의 전알파 방사능이 확인될 경우  $^{226}\text{Ra}$ 이 검출된다(IAEA, 1984). 주요 자연 방사성 핵종 중 하나인  $^{226}\text{Ra}$ 는 높은 섭취 유효선량을 가지고 있으며 인체에 큰 영향을 미칠 수 있다(영유아; 960, 어린이; 800, 성인;  $280 \text{ nSv Bq}^{-1}$ ).

제주 성산 방두만의 해안가 근처 지하수에 대해  $^{226}\text{Ra}$ 의 분포를 확인한 결과, 그 방사능 농도는  $100 \text{ L}$  당  $13.6\sim 17.2 \text{ dpm}$  ( $0.227\sim 0.287 \text{ Bq}$ )으로 나타났다(Hwang *et al.*, 2005). 제주도 지하수에서  $^{226}\text{Ra}$ 는 매우 낮은 농도로 분포하고 있으므로 본 연구에서는 자연 방사성 핵종 중  $^{226}\text{Ra}$ 에 대해 영향을 고려하지 않았다. 그러나  $^{226}\text{Ra}$ 은 섭취 유효선량이 높은 핵종이기 때문에,  $^{226}\text{Ra}$ 이 다량 함유된 지하수에서는 섭취 유효선량의 평가할 때  $^{40}\text{K}$ ,  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{238}\text{U}$  및  $^{232}\text{Th}$ 과 마찬가지로  $^{226}\text{Ra}$ 가 반드시 고려되어야 한다.

Table 8. The total annual effective doses of groundwater in Jeju island

| Sample  | Total annual effective doses ( $\mu\text{Sv y}^{-1}$ ) |                 |                 |
|---------|--|-----------------|-----------------|
|         | infants  | Children        | Adults          |
| G1      | 125.8  | 43.1            | 51.0            |
| G2      | 200.6  | 68.7            | 81.4            |
| G3      | 135.7  | 46.5            | 55.1            |
| G4      | 85.4   | 29.3            | 34.7            |
| G5      | 115.3  | 39.5            | 46.8            |
| G6      | 61.4   | 21.2            | 25.0            |
| G7      | 117.2  | 40.1            | 47.5            |
| G8      | 205.1  | 70.2            | 83.3            |
| G9      | 53.1   | 18.4            | 21.6            |
| Average | 122.2 $\pm$ 53.7                                       | 41.9 $\pm$ 18.3 | 49.6 $\pm$ 21.8 |

## 7. 자연 방사능 물질 분포와 상관성

이탈리아의 화산 활동으로 형성된 Vulcano 섬의 필드 감마선을 조사하여 우라늄의 농도가 증가할수록 토륨과 포타슘 농도가 증가하는 우라늄과 토륨, 포타슘 간의 양의 상관관계가 밝혀져 있다(Chiozzi *et al.*, 1999). Th와 U의 앞에 첨가된 약자 e는 equivalent (등가)를 의미한다(Figure 11). 이는 방사능 핵종과 그 딸핵종 간에 방사 평형이 있다고 가정하여, 우라늄과 토륨, 포타슘 성분을 직접 측정하지 않고  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{208}\text{Tl}$ ,  $^{40}\text{K}$ 를 이용하여 간접적으로 측정한 것이다.

우라늄 농도가 높은 G6과 G9에서  $\text{K}^+$  농도가 우라늄의 농도와 동일한 경향을 가지고 높은 값을 보이는 것으로 나타났다. 또한 가장 낮은 우라늄 함량을 보이는 G7에서  $\text{K}^+$  농도가 가장 낮게 나타나는 것을 확인하였다. G6, G7 G9의 결과를 통해 제주 지하수에서 Vulcano 섬의 연구 결과와 일치하는 우라늄 농도와  $\text{K}^+$  농도 간의 낮은 양의 상관성을 확인하였다.

Figure 12(a)에 따르면 화산섬 Vulcano에서 토륨과 우라늄은 선형에 가까운 상관관계를 보이고 있다. 화산암 이외에도 지질의 종류에 따라 Th/U의 값은 유사한 범위의 수치로 나타나는 것으로 알려져 있다(Adams *et al.*, 1959). 그러나 G2의 결과를 살펴보면 토륨의 농도는 높은 값을 보이지만 우라늄 농도는 낮은 농도로 나타났으며, 제주 지하수에서는 우라늄과 토륨 사이에 상관성이 없는 것을 확인하였다. 이는 제주의 지하수에 토륨의 농도가 극미량 포함되어 있어 우라늄과의 상관관계를 나타내기 어렵기 때문인 것으로 추정된다. 현무암류에서 우라늄, 토륨, 포타슘의 함유량은 매우 적은 것으로 알려져 있는데, 본 연구에서 제주도의 지하수에서 우라늄과 포타슘은 소량인 반면 토륨의 농도는 이보다 훨씬 낮았다. 또한 제주도의 지질은 주로 현무암으로 이루어져 있다. 현무암과 같이 용암이 빠른 속도로 식은 경우 토륨과 우라늄이 결정질 안에 갇혀있을 수 있으므로 우라늄과 토륨의 상관성이 나타나지 않는 것으로 사료된다(Adams *et al.*, 1959).

그리고 방사성 핵종은 물속에서 거동이 달라지기 때문에, Vulcano 섬의 연

구와 같이 광물에 포함된 방사성 동위원소의 분포와 상관관계는 지하수에서 조사된 결과와는 다를 수 있다. 토륨은 포타슘에 비해 현저히 낮은 용해도를 가지며, 이로 인해 지하수 시료에서는 우라늄과 토륨이 주변 광물이나 물 속에 포함된 산화물에 의해 침전이 일어날 수 있다. 지하수의 유동이 큰 제주도에서는 강우와 같은 계절적 변화로 인해 수시로 변동되는 pH 등의 수리지화학적 환경의 영향으로 그 존재비가 달라졌을 것으로 사료된다.

이러한 요인들로 인하여 제주도 지하수에서는 우라늄과 토륨의 상관관계에 대해 적용이 어려운 것으로 판단된다.



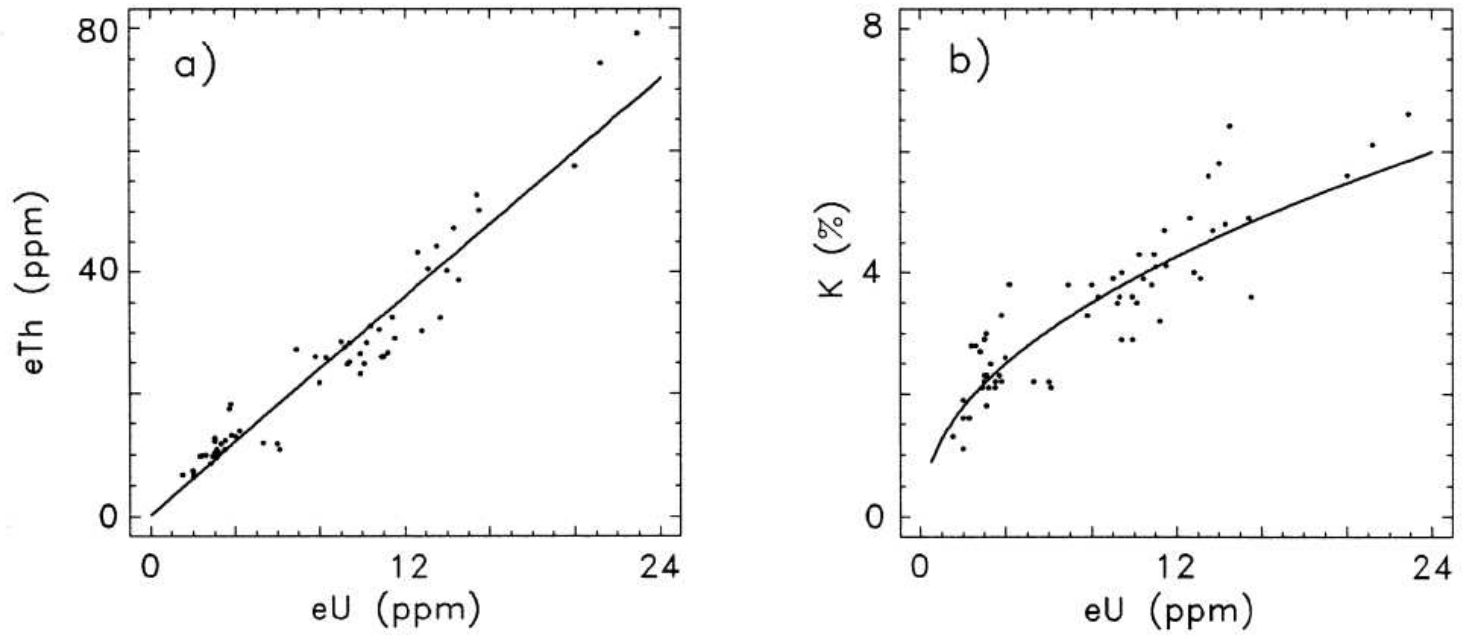


Figure 11. Uranium versus thorium (a) and potassium (b) concentrations of the 60 measurements of Vulcano

## 8. 지하수의 자연 방사성 원소에 대한 다양한 국가의 선행 연구

세계 지하수의 자연 방사성 핵종 농도에 대한 기존 연구 결과들은 Table 9에 정리하여 나타내었다. 이러한 연구들은 각기 다른 국가의 제한된 지역에서 수행되었기 때문에 절대적인 값으로 볼 수 없지만, 그 결과를 통해 다양한 국가의 지하수에 포함된 자연 방사능 수준을 해석하는 데 도움이 된다.

G6과 G9의 경우  $^{222}\text{Rn}$ 이  $^{238}\text{U}$  방사능 붕괴 사슬의 생성물임에도 불구하고 비교적 높은 우라늄 농도에 비해 낮은 라돈 농도로 나타났다. 본 연구결과에서 지하수의 라돈 농도와 우라늄 농도의 유사한 경향성은 보이지 않았다.

이상적인 고립계에서, 자연 방사능 붕괴 사슬의 원소들은 긴 시간을 통해 방사 평형에 도달하게 된다. 그러나  $^{222}\text{Rn}$ 은 토양과 암석의 빈공간이나 틈새를 통해 대기로 확산되어  $^{214}\text{Bi}$ 와  $^{238}\text{U}$  사이의 방사 평형을 깨뜨릴 수 있다. 방사성 동위원소의 손실로 이어지는 방사성 사슬 구성 요소들의 화학적, 물리적 거동의 차이로 인하여 방사 평형이 깨질 수도 있다. 이로 인해  $^{238}\text{U}$ 가 높게 나타나는 지하수라 하더라도  $^{222}\text{Rn}$ 의 농도가 낮을 수 있다. 또한 제주도의 경우 해수의 영향을 받는 기저 지하수는 라돈 농도가 낮게 나타나므로 우라늄의 농도가 높게 나타나는 지하수라 하더라도 해수의 영향으로 인해 라돈의 농도가 낮을 수 있다. 선행 연구된 세계 지하수의 자연 방사성 물질의 분포에서도 우라늄과 라돈의 농도 사이에는 직접적인 상관관계는 없는 것으로 판단된다(Cho *et al.*, 2019; Richard *et al.*, 1991; Guo *et al.*, 2018; Godoy *et al.*, 2006; Thivya *et al.*, 2014; Osman *et al.*, 2008).

Table 2과 9에서 도시한 바와 같이, 지역별로  $^{40}\text{K}$ ,  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{238}\text{U}$  및  $^{232}\text{Th}$ 은 다양한 국가의 지하수에서 유의미한 섭취 유효선량 계수와 방사능 농도를 보인다. 이는  $^{40}\text{K}$ ,  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{238}\text{U}$  및  $^{232}\text{Th}$ 를 반드시 고려하여 연간 섭취 유효선량을 평가해야 한다는 것을 나타낸다. 또한  $^{226}\text{Ra}$ 을 고려하여 음용 지하수에 포함된 자연 방사성 동위원소 섭취로 인한 건강 유해성을 평가한다면, 많은 양의 라듐이 측정되는 지하수에 대해서도 광범위하게 적용이 가능할 것으로 예상된다.

Table 9. The Range of concentrations of natural radionuclides in groundwater of various countries

| Country | $^{40}\text{K}$              | $^{222}\text{Rn}$              | $^{238}\text{U}$                | $^{232}\text{Th}$             | Reference                    |
|---------|------------------------------|--------------------------------|---------------------------------|-------------------------------|------------------------------|
| Korea   |                              | 1.48-865.8 Bq L <sup>-1</sup>  | 0.02-1640.0 µg L <sup>-1</sup>  |                               | Cho <i>et al.</i> , 2019     |
| USA     |                              | <3.7-462.5 Bq L <sup>-1</sup>  | ND-4.9 µg L <sup>-1</sup>       |                               | Richard <i>et al.</i> , 1991 |
| China   |                              | 1.53-40.0 Bq L <sup>-1</sup>   | 0.23-246 µg L <sup>-1</sup>     | 0.01-0.39 µg L <sup>-1</sup>  | Guo <i>et al.</i> , 2018     |
| Brazil  |                              | <1.2-3542 Bq L <sup>-1</sup>   | <0.01-152 µg L <sup>-1</sup>    |                               | Godoy <i>et al.</i> , 2006   |
| India   |                              | 0.10-211.60 Bq L <sup>-1</sup> | 1.75-46.70 µg L <sup>-1</sup>   |                               | Thivya <i>et al.</i> , 2014  |
| Egypt   | 5.27-22.1 Bq L <sup>-1</sup> |                                | 0.0-92.0 Bq L <sup>-1</sup>     | 1.1-5.74 Bq L <sup>-1</sup>   | Yehia <i>et al.</i> , 2017   |
| Sudan   |                              | 0.003-0.139 Bq L <sup>-1</sup> | 0.0161-1.721 Bq L <sup>-1</sup> | <0.1-39.0 mBq L <sup>-1</sup> | Osman <i>et al.</i> , 2008   |

## IV. 결론

본 연구에서는 제주도 지역에서 자연 발생하는 방사성 핵종의 분포를 파악하였다. 자연 방사성 물질 분석 결과, 제주도의 지하수 시료 중 미국 환경보호청이 제시한 먹는물의 우라늄 기준  $30 \mu\text{g L}^{-1}$  및 라돈의 기준  $148 \text{Bq L}^{-1}$ 를 초과하는 것은 없었다.

G6과 G9는  $\text{Na}^+$  분석 결과를 토대로 알칼리 현무암이 지하수 내 낮은 라돈 함유량에 기여하였음을 확인하였다. 이중 G9의 라돈 농도가 제일 낮은 값을 보이는 것을 통해 기저 지하수 지역인 제주 동부 지역의 지하수에 라돈의 분포가 낮은 농도로 나타난다는 이전의 연구 결과를 검증하였다. 덧붙여 고도가 낮은 관정인 G2와 G8에서 라돈의 농도가 높게 나타나는 것을 통해 고도가 높아질수록 라돈의 농도가 낮게 나타나는 음의 상관성을 확인하였다.

G6, G8과 G9 지하수는 퇴적층인 서귀포층과 U층의 영향으로 높은 우라늄 농도가 나타났다. 우라늄-토륨 사이의 상관관계를 이용하여 G6, G8, G9 지하수에 높은 농도의 토륨을 예상했으나, 토륨 농도의 경향성은 우라늄과는 다르게 나타났다. 이는 제주의 지하수에는 우라늄-토륨 상관관계에 적용하기에 충분한 농도의 토륨이 함유되어 있지 않고, 제주의 화산암 지질과 지층 생성 과정으로 인해 우라늄과 토륨의 상관성이 보이지 않는 것으로 판단하였다.

제주도 지하수에 포함된 자연 방사성 동위원소 분석 결과를 통해 섭취로 인한 연간 유효선량을 평가하였다. 모든 연령대에서 지하수 음용을 통한 방사성 물질의 노출로부터 얻는 연간 유효선량은  $210 \mu\text{Sv y}^{-1}$  미만으로 나타났다. 특히 성인과 어린이 연령대에서는 세계보건기구에서 권장하는 먹는물 연간 유효선량  $0.1 \text{mSv y}^{-1}$ 를 넘지 않았다. 따라서 성인과 어린이는 지하수 음용으로 인한 건강 영향이 거의 없을 것으로 판단된다. 영유아 연령대에서는 G4, G6 및 G9를 제외한 지하수 시료에서 연간 섭취 유효선량이 세계보건기구의 권장치  $0.1 \text{mSv y}^{-1}$ 를 넘는 것으로 확인되었다. 이는 영유아의 섭취 유효선량 계수가 다른 연령대에 비해 특히 높은 값을 가지고 있으며, 체중 대비 물 섭취량의 비율 또한 영

유아 연령대에서 높기 때문이다. 따라서 영유아는 제주도뿐만 아니라 다른 국가에서도 지하수 음용을 통한 자연 방사성 물질 섭취에 대체로 취약하다.

또한  $100 \text{ mSv y}^{-1}$  미만의 연간 유효선량에서는 섭취한 방사성 물질로 인한 발암 영향이 없는 것으로 밝혀져 있다. 이를 통해 전연령대에서 제주도 지하수 섭취로 의한 암 발생 위험성은 없을 것으로 판단된다.

제주도에서 수행된 본 연구는 지하수에 의존하는 지역에서 실시한 연간 유효선량 평가의 좋은 예이다.  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  및  $^{40}\text{K}$ 의 방사능 농도를 이용하여 지하수 섭취로 인한 거주자들의 건강 위험성 평가가 가능하다는 것을 보여준다. 본 방법론을 지표수가 부족한 다른 지역에서 음용 지하수를 통한 방사능 위험도를 모니터링하는 방법으로 고려할 수 있다. 또한 이러한 방법의 활용을 확장하기 위해 지하수에 포함된  $^{226}\text{Ra}$ 의 조사를 통하여 한계점을 보완할 필요성이 있다.

## 참고문헌

1. Adams JAS, Osmond JK, Rogers JW. The geochemistry of thorium and uranium. *Physics and Chemistry of the Earth*. 1959;3:298-348
2. Amakom CM, Jibiri NN. Chemical and radiological risk assessment of uranium in borehole and well waters in the Odeda Area, Ogun State, Nigeria. *International Journal of the Physical Sciences*. 2010;5(7):1009-1014
3. Avwiri GO, Osimobi JC, Ononugbo CP. Gross Alpha and Gross Beta Activity Concentrations and Committed Effective Dose due to Intake of water in Solid Mineral Producing Areas of Enugu State, Nigeria. *International Journal of Physics and Applications*. 2016;8(1):33-43
4. Birke M, Rauch U, Lorenz H, Kringel R. Distribution of uranium in German bottled and tap water. *Journal of Geochemical Exploration*. 2010;107(3):272-282
5. Brenner DJ, Doll R, Goodhead DT, Hall EJ, Land CE, Little JB, et al. Cancer risks attributable to low doses of ionizing radiation: Assessing what we really know. *Proceedings of the National Academy of Sciences*. 2003;100(24):13761-13766
6. Brugge D, de Lemos JL, Oldmixon B. Exposure Pathways and Health Effects Associated with Chemical and Radiological Toxicity of Natural Uranium: A Review. *Reviews on Environmental Health*. 2005;20(3):177-193
7. Brugge D, Buchner V. Health effects of uranium: new research findings. *Rev Environ Health*. 2011;26(4):231-249
8. Chiozzi P, De Felice P, Pasquale V, Russo D, Verdoya M. Field  $\gamma$ -ray spectrometry on the Vulcano island (Aeolian Arc, Italy). *Applied*

- Radiation and Isotopes. 1999;51(2):247-253
9. Cho BW. Radon Concentration in Groundwater of Korea. The Journal of Engineering Geology. 2018;28(4):661-672
  10. Cho BW, Kim MS, Kim DS, Hwang JH. Uranium Levels in Groundwater of CGS (Community Groundwater System) of Korea. Economic and Environmental Geology. 2018;51(6):543-551
  11. Cho BW, Choo CO. Geochemical Behavior of Uranium and Radon in Groundwater of Jurassic Granite Area, Icheon, Middle Korea. Water. 2019;11(6):1278
  12. Crawford-Brown DJ. The biokinetics and dosimetry of radon-222 in the human body following ingestion of groundwater. Environ Geochem Health, 1989;11:10-17
  13. Godoy JM, Godoy ML. Natural radioactivity in Brazilian groundwater. Journal of Environmental Radioactivity. 2006;85(1):71-83
  14. Guo H, Zhao W, Li H, Xiu W, Shen J. High Radionuclides in Groundwater of an Inland Basin from Northwest China: Origin and Fate. ACS Earth Space Chem. 2018;2(11):1137-1144
  15. Han CH, Hong JW, Im HJ. A study of  $^{222}\text{Rn}$  concentration of salty underground water and spring water in Jeju, Korea. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. 2021;330:563-569
  16. Helm-Clark CM, Rodgers DW, Smith RP. Borehole geophysical techniques to define stratigraphy, alteration and aquifers in basalt. Journal of Applied Geophysics. 2004;55(1-2):3-38
  17. Ho PL, Hung LD, Minh VT, Chinh DV, Thanh TT, Tao CV. Simultaneous Determination of Gross Alpha/Beta Activities in Groundwater for Ingestion Effective Dose and its Associated Public Health Risk Prevention. Scientific Reports. 2020;10(1):4299
  18. Hwang DW, Lee YW, Kim G. Large submarine groundwater discharge and benthic eutrophication in Bangdu Bay on volcanic Jeju Island,

- Korea. *Limnology and Oceanography*. 2005;50(5):1393-1403
19. International Atomic Energy Agency. The Behaviour of Radium in Waterways and Aquifers. Technical Document No. 301. 1984;59-71
  20. International Commission on Radiological Protection. Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides: Part 5 Compilation of ingestion and inhalation dose coefficients. ICRP Publication 72. 1996;26(1)
  21. Jeju Special Self-Governing Province. Groundwater current status data. 2021
  22. Jeong JO, Yoon SH, Koh GW, Joe YJ, Hong JG, Kim JJ. Mineralogical and sedimentological characteristics of the U Formation underlying the volcanic strata in Jeju Island, Korea. *Journal of the Geological Society of Korea*. 2016;52(4):389-403
  23. Kim CK, Kim CS. A Rapid method for the measurement of  $^{222}\text{Rn}$  in groundwater and hot spring water using ultra low-level liquid scintillation counter and pulse shape analysis. *Journal of Radiation Protection and Research*. 1995;20(20):103-115
  24. Kim RH, Kim JH, Ryu JS, Chang HW. Salinization properties of a shallow groundwater in a coastal reclaimed area, Yeonggwang, Korea. *Environmental Geology*. 2006;49:1180-1194
  25. Kim H, Jung Y, Lee W, Choi GS, Chung KH, Kang MJ. Comparison of the Quantulus 1220 and 300SL Liquid Scintillation Counters for the Analysis of  $^{222}\text{Rn}$  in Groundwater. *Journal of Radiation Protection and Research*. 2016;41(4):395-401
  26. Koh DC, Plummer LN, Solomon DL, Busenberg E, Kim YJ, Chang HW. Application of environmental tracers to mixing evolution, and nitrate contamination of groundwater in Jeju Island, Korea. *Journal of Hydrology*. 2006;327(1-2):258-275
  27. Koh EH, Lee SH, Kaown D, Moon HS, Lee EH, Lee KK, et al.



- Impacts of land use change and groundwater management on long-term nitrate-nitrogen and chloride trends in groundwater of Jeju Island, Korea. *Environ Earth Sci.* 2017;76:176
28. Lee L, Ahn K, Min B, Yang M, Choi I, Chung H, et al. The Study on the Ion Water Characteristics of Raw Water in the Domestic Natural Mineral Water. *Journal of Korean Society on Water Environment.* 2016;32(5):442-449
29. Lee BD, Jeong CH, Lee YC, Lee YJ, Yang JH, Choo CO, et al. Statistical Analysis and Thermodynamic Equilibrium Modelling for Chemical Composition of Groundwater and Spring Water at Jeju Island, South Korea. *Water.* 2020;12(3):777
30. Madzunya D, Dudu VP, Mathuthu M, Manjoro M. Radiological health risk assessment of drinking water and soil dust from Gauteng and North West Provinces, in South Africa. *Heliyon.* 2020;6(2):e03392
31. National Research Council. Health Effects of Exposure to Radon: BEIR VI. Appendix B Comparative Dosimetry. The National Academies Press. 1999:176-223
32. Osman AAA, Salih I, Shaddad IA, Din SE, Siddeeg MB, Eltayeb H, et al. Investigation of natural radioactivity levels in water around Kadugli, Sudan. *Applied Radiation and Isotopes.* 2008;66(11):1650-1653
33. Pionke HB, Urban JB. Effect of agricultural land use on ground-water quality in a small Pennsylvania watershed. *Ground Water.* 1985;23(1):68-80
34. Richard BW, Johnson SL, Briggs PH. Radon-222 and its parent radionuclides in groundwater from two study areas in New Jersey and Maryland, U.S.A.. *Applied Geochemistry.* 1991;6(3):305-318
35. Samet JM. Radon and Lung Cancer. *Journal of the National Cancer Institute.* 1989;81(10):745-758

36. Seo H, Min K, Park J, Park J, Hwang H, Park S, et al. Distribution Characteristics of Uranium and Radon Concentrations of Groundwater in Gwangju Area. *Journal of Environmental Health Science*. 2022;48(2):86-95
37. Shim G, Kim Y, Hwang S, Park JB. Applicability of natural gamma data to analyze the distribution and stratigraphy of volcanic units in Jeju Island. *Journal of the Geological Society of Korea*. 2018;54(2):153-168
38. Shin WS, Oh JS, Choung SW, Cho BW, Lee KS, Yun U, et al. Distribution and potential health risk of groundwater uranium in Korea. *Chemosphere*. 2016;163:108-115
39. Singh B., Garg VL, Yadav P., Kishore N., Pulhani V., Uranium in groundwater from Western Haryana, India. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 2014;301(2):427-433
40. Thivya C, Chidambaram S, Tirumalesh K, Prasanna MV, Thilagavathi R, Neopolitan M. Occurrence of the radionuclides in groundwater of crystalline hard rock regions of central Tamil Nadu, India. *J Radioanal Nucl Chem*. 2014;302:1349-1355
41. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Sources and effects of ionizing radiation. Report to the General Assembly, with Scientific Annexes. 2000;21-66
42. US EPA. Review of RSC analysis. Report prepared by Wade Miller Associates, Inc. for the US Environmental Protection Agency. *Health Phys*. 2003;45:361
43. World Health Organization. Guidelines for Drinking-water Quality, vol. 1, recommendations, 3th ed. 2004;184-456
44. World Health Organization. Guidelines for Drinking-water Quality. Incorporating the first Addendum: Radiological aspects, 4th ed. 2017;203-218

45. Yang K. Composition and Evolution of Lithosphere Beneath the Jeju Island Region (I): A Review. The Journal of the Petrological Society of Korea. 2016;25(3):261-281
46. Yehia M, Baghdady A, Howari FM, Awad S, Gad A. Natural radioactivity and groundwater quality assessment in the northern area of the Western Desert of Egypt. Journal of Hydrology: Regional Studies. 2017;12:331-344

Estimation of naturally occurring radionuclides and  
the annual effective dose by drinking groundwater  
of Jeju Island, Korea

Sohyeon Lim

Department of Chemistry  
The Graduate School  
Jeju National University

This study presents distribution of naturally occurring radioactive materials in groundwater of Jeju island. Potassium ( $^{40}\text{K}$ ) concentrations were performed by Ion Chromatograph and radon ( $^{222}\text{Rn}$ ) concentrations were determined by using Liquid Scintillation Counter. In addition, the activity concentrations of uranium and thorium nuclides were measured by Inductively Coupled Plasma Mass Spectroscopy. Groundwater samples were collected from 9 sites of groundwater intake facilities for wide area supply in Jeju island from September 2022 to September 2023. All samples of groundwater are the main source of tap water for public water systems of Jeju island.

The  $^{40}\text{K}$  concentrations of groundwater ranged between 52.7 and 243.9  $\text{mBq L}^{-1}$ . The content of radon in groundwater varied from 7.98 to 32.43  $\text{Bq L}^{-1}$ . The activity concentrations of uranium and

thorium in groundwater were in the range of 0.057 to 5.887 mBq L<sup>-1</sup> and 1.50 to 9.54 μBq L<sup>-1</sup>, respectively. The radon and uranium of groundwater did not exceed 148 Bq L<sup>-1</sup> and 30 μg L<sup>-1</sup> of thresholds proposed by the US EPA.

By analyzing the activity concentrations of <sup>40</sup>K, <sup>222</sup>Rn, <sup>238</sup>U and <sup>232</sup>Th, the annual ingestion effective dose of residents can be assessed. The age group of infants are vulnerable to ingestion of natural radionuclides in groundwater. The result shows the internal radiation from most of groundwater samples is insignificant. For all age groups, the yearly effective doses were below 100 mSv, so that none of groundwater samples in Jeju island induces cancer due to ingestion.

## 감사의 글

용기를 내어 시작한 대학원 생활이 2년의 석사과정 끝에 작은 결실을 맺었습니다. 이러한 결실을 맺을 수 있도록 그 동안 도와주신 모든 분들께 이 자리를 빌어 기쁜 마음으로 감사의 뜻을 전하고자 합니다.

먼저 항상 신경 써 주시고 올바른 길로 인도하여 부족한 저를 이끌어주신 임희정 교수님께 존경의 마음으로 깊은 감사를 드립니다. 항상 열정적인 가르침으로 깊은 깨달음을 주신 변종철 교수님, 많은 가르침과 관심을 가져주신 강창희 교수님께 진심으로 감사의 마음을 전해 드리고 싶습니다.

항상 바쁘신 와중에도 여러 방면으로 유익한 지도와 조언을 해주신 한충훈 박사님께도 진심으로 감사드립니다. 그 동안 무슨 일이 있을 때마다 응원을 아끼지 않은 정우씨, 창혁이, 채영이, 하운이, 승환이, 지나 우리 무기화학 실험실 구성원 모두에게도 제 고마운 마음을 전하고 싶습니다.

석사과정을 항상 격려해주신 김수미 팀장님, 논문과 연구에 큰 도움 주신 경미쌤, 2년 동안 연구 과정에서 시료 채취부터 많은 도움을 준 채수팀 광일쌤, 정민쌤, 재연쌤 모두 감사드립니다. 직장과 병행하는 대학원 생활을 배려해주신 제주 상하수도본부 수질검사팀 모든 직원 분들에게도 감사의 마음을 전합니다.

마지막으로 오랜 타지생활에 이어 대학원 생활까지 하면서 건강 문제로 걱정 많이 하셨을 부모님과 가족들, 할 수 있다는 믿음을 준 친구들에게도 고마움을 표합니다.

여러 방면으로 도움 주신 모든 분들께 항상 감사하는 마음으로 새로운 시작을 향한 발걸음을 내딛겠습니다. 감사합니다.

임소현 올림