부산광역시 일대의 토양 내 라돈 농도 변화 특성

김진섭 · 김선웅 · 이효민* · 최정윤 · 문기훈

부산대학교 지질환경과학과

Characteristics of Radon Variability in Soils at Busan Area

Jin-seop Kim, Sunwoong Kim, Hyomin Lee, Jeongyun Choi and Ki-Hoon Moon

Department of Geological Sciences, Pusan National University

The characteristics of temporal-spatial radon variation in soil according to parent rock type and affecting factors were studied in Busan, Korea. The concentration of ^{222}Rn in soils and their parent elements (^{226}Ra , ^{228}Ra , U and Th) in rocks and soils were measured at 24 sites in Busan area. The distribution and transportation behavior of these parent elements were analyzed and their correlations to radon concentration in soil were determined. Topographic effects were also evaluated. Two in-situ radon measurement (soil probe and buried tube) methods were applied to measure radon concentration in soil and their accuracies were evaluated. The spatial variation of radon in soil generally reflected U concentration in the parent rock. Average radon concentrations were higher in plutonic rocks than in volcanic rocks and were decreased in the order of felsic>intermediate>mafic rock. However, the radon concentrations were significantly varied in soils developed from same parent rocks due to the disequilibrium of U and ^{226}Ra between rock and soil. As results, the correlation of these element concentrations between rocks and soils was very low and radon concentrations in soils had highly co-related to the concentrations of these elements in soils. Th and ^{228}Ra show complex enrichment characteristics, differing significantly with U, in soils developed from same parent rock because the geochemical behavior of these elements during weathering and soil developing process was different with U. The radon concentrations in the same depth of soil in slope area were also different according to positions. The radon concentrations in soils developed from same parent rocks (19 sites at Pusan National University) varied 6.8~29.8Bq/L range because of small scale topographic variation. The opposite seasonal variation pattern of radon were observed according to soil properties. It was determined that buried tube method is more accurate method than soil probe method and was very advantageous application for the analysis for the characteristics of temporal-spatial radon variation in soil.

Key words : radon, radium, uranium, radioactivity, soil

부산의 지역의 암석 종류에 따른 토양 내 라돈 농도의 시·공간적 변화 특성과 변화 요인에 대하여 연구하였다. 토양 내 라돈(^{222}Rn)농도와 암석 및 토양의 모원소(^{226}Ra , ^{228}Ra , U, Th)의 농도를 부산지역 24개 지점에서 측정하였다. 모암과 토양 내 이들 모원소들의 분포와 거동 특징을 분석하고 라돈과의 상관성을 상세히 규명하였으며, 지형에 대한 영향도 평가하였다. 토양 내 라돈 농도 측정에는 두 가지 in-situ 방법(soil probe 방법과 지중매설튜브 방법)을 적용하여 측정의 정확성에 대하여 비교하였다. 토양 내 라돈의 공간적 분포는 모암의 암석 종류에 따른 U의 농도를 전반적으로 반영하여, 화산암에 비해 심성암에 높고, 산성암>중성암>염기성암 순으로 높은 변화양상을 보였다. 그러나 동일한 모암에서 유래된 토양내의 라돈 농도에서 큰 폭의 변화가 나타나며, 이는 라돈의 모원소인 U와 ^{226}Ra 의 암석과 토양에서의 현저한 방사능 비평형 결과이다. 따라서 토양 내 라돈 농도는 이들 모원소의 암석과 토양 내 농도와 상관성은 매우 낮게 나타나며, 암석 내 농도에 비해 토양 내 농도와 더 높은 상관성을 보였다. Th과 ^{228}Ra 은 풍화작용과 토양 발달 특성에 따라 U와 지구화학적 거동 및 부하 특징을 달리하기 때문에, 동일한 모암에서 유래된 토양에서도 토양 특성에 따라 U와 현저히 다른 복잡한 농도 변화 양상을 나타내었다. 지형구배를 이루는 경사지의 동일 심도의 토양 내 라돈농도는 위치에 따라 차이를 나타내며, 모암을 같이하는 잔류토양(부산대 내 19개 지점)내에서는 소규

*Corresponding author: hmlee61@pusan.ac.kr

모 지형 변화에 의해 토양 내 라돈 농도가 6.8~29.8Bq/L 범위로 변화하였다. 토양 내 라돈 농도는 토양 특성에 따라, 정반대의 계절적 변화 양상을 보인다. 지중매설튜브 방법이 soil probe 방법에 비해 더욱 정확히 토양 내 라돈농도를 측정할 수 있어, 토양 내 라돈의 시·공간적 변화 특성에 대한 분석에 매우 유용한 것으로 나타났다.

주요어 : 라돈, 라듐, 우라늄, 방사능, 토양

1. 서 언

원자나 원자핵은 불안정한 상태에 있거나 외부의 자극을 받아 들뜬 상태가 되면 에너지를 방출하고 더욱 안정된 상태로 되돌아가며, 이때 원자나 원자핵으로부터 에너지를 가지고 방출되는 입자나 전자기파를 방사선이라고 하며, 방사선을 방출하는 능력을 방사능이라고 한다. 우리 생활환경 중에 존재하는 방사능을 환경방사능이라 하며, 환경방사능은 자연적인 것과 인공적인 것으로 구분된다. 라돈(Rn)은 자연방사능 핵종으로 지각을 구성하는 암석이나 토양 중에 천연적으로 존재하는 ^{238}U , ^{232}Th 및 ^{235}U 의 방사성 붕괴로 생성된다. 라돈은 원자번호가 86인 무색, 무취의 불활성 기체로, 다른 물질과 화학적으로 결합하지 않고 전기적으로 전하를 띠지 않으며 밀도가 9.23 g/l로, 매우 무거워 토양가스 내 분포하거나 지하공간에 축적되는 경향을 보인다. 라돈은 ^{219}Rn , ^{220}Rn , ^{222}Rn 의 3개의 동위원소를 갖는데, ^{223}Ra , ^{224}Ra , ^{226}Ra 이 각각의 직상위 모원소이다. 이중 ^{235}U 의 붕괴과정에서 생성되는 ^{219}Rn 는 모원소의 ^{235}U 의 자연상태의 동위원소 비율이 0.711%로 아주 적고, 반감기도 4초로 매우 짧으며, ^{232}Th 로부터 생성되는 ^{220}Rn 는 지각암석 내 구성비는 높으나 반감기가 54.5초로 짧아, 지표의 공기 중으로 방출되는 양은 ^{222}Rn 에 비해 매우 적다. 따라서 일반적으로 라돈이라 하면 ^{238}U 붕괴과정에서 생성되는 ^{222}Rn 를 지칭한다. ^{238}U 가 네 번의 α 붕괴와 두 번의 β 붕괴를 거쳐 생성되며, 3.8일의 짧은 반감기를 가지며, 라돈의 붕괴에 의해 생성되는 딸핵종으로는 Po, At 등이 있는데, 이들은 수초의 반감기를 가지므로, 인체에 유입될 경우, 배출되기 전에 붕괴를 일으켜 방사능을 배출하므로 인체에 해롭다. ^{222}Rn 이 실내 또는 지하공간 유입되어 인체에 흡입될 경우 라돈 딸핵종인 폴로늄(Po)의 알파(α)붕괴에 의해 폐암을 일으킬 수 있는 유해성 물질로, 석면과 함께 1급 발암물질로 간주된다(US Environmental Protection Agency, 2007). 따라서 이미 미국·스웨덴 등 외국에서는 1990년대부터 전국적으로 라돈분포 실태조사와 거동에 관한 연구를 수행하여, 고농도 주택에 대해서는 건물보수 등 저감조치를 하는 등 라돈에

대한 노출을 줄이기 위한 대책을 적극 추진해왔다.

국내에서도 대전지역의 일부 토양 및 지하수에서 라돈이 기준치 이상 검출되고(Hong, 1997), 서울지하철의 일부 역사에서 실내공간 라돈 기준치(4pCi/L)를 초과하는 것(Hong *et al.*, 1998)으로 나타난 1998년 이후부터 환경방사능에 대한 관심이 높아지고, 환경부를 중심으로 한 실태조사와 연구가 이루어지고 있다. 부산지역에서는 Lee *et al.* (2008)이 부산시 금정구 일대의 화강암류 암석들과 안산암을 모암으로 하는 토양 내 라돈의 농도 변화와 암석 및 토양 내 모핵종들 농도와의 상관성을 분석하였고, Moon *et al.* (2009)은 화강암 잔류 토양 내 라돈의 여름이 높고 겨울이 낮은 계절적 변화 양상과 주된 변화 요인으로 토양 내 온도와 습도, 외부 기후조건(강수, 대기압, 기온)을 평가하였다. 이들 연구결과를 보면, 토양 내 라돈농도는 모핵종들의 암석 및 토양 내 농도와 낮은 상관성을 보이고 동일한 모암의 토양에서도 라돈농도가 시·공간적으로 큰 폭의 변화를 보이는데, 이는 라돈의 분포 및 거동이 여러 가지 요인에 의해 영향 받음을 시사한다. 따라서 지역의 라돈에 의한 위해성을 정확히 평가하고 예측하기 위해서는, 라돈농도의 시·공간적 변화 특징과 변화 요인에 대한 종합적이고 체계적인 연구가 필요하다.

본 연구에서는 부산의 지역의 암석 종류에 따른 토양 내 라돈 농도의 시·공간적 변화 특성과 변화 요인에 대하여 종합적으로 연구하였다. 토양 내 라돈의 공간적 분포 특징과 변화 요인에 대한 분석을 위해, 모암과 토양 내 라돈의 모원소들인 라듐, 우라늄 및 토륨의 분포와 거동 특징을 분석하고 라돈과의 상관성을 상세히 분석하였으며, 지형에 대한 영향도 평가하였다. 또한, 연구에 토양 내 매설한 튜브를 통해 토양 가스를 추출하여 토양 내 라돈 농도 측정을 하는 새로운 방식을 고안 적용하여 기존의 soil probe를 사용한 방법과 측정 효율성에 대한 비교하고, 기존의 금정구 지역의 연구 결과와 비교 검토하였다.

2. 연구지역의 지질

부산광역시 위치는 E129°04'05"~E129°26'27",

Fig. 1. Geological map of study area and sampling locations.

N34°45' 50"~N35°21' 21"이며, 지질학적으로 경상분지 내 유천소분지의 동남단에 위치한다(Fig. 1). 퇴적암류를 기반으로 하여, 이를 부정합으로 피복하는 유천층군의 하부층군에 해당하는 중성 화산암류들이 분포하고 있으며, 이들로 구성된 화산암체의 층서 단면이 비교적 잘 보존되어 나타난다. 지형은 대체로 노년기의 구릉성 산지와 이들 산지 사이에 발달한 소침식분지로 이루어진 낙동강 동부지역 및 대부분 저평한 충적평야로 이루어진 낙동강 서부지역으로 구분된다(Kim *et al.*, 1998).

지질은 하부에 중생대 백악기의 기저퇴적암층인 대포층이 있다. 동부는 백악기 신라통에 해당하는 이천리층, 유문반암, 유문암질암류, 래피리옹회암류가 넓게 분포하고 있으며, 서부에는 불국사화강암류와 안산암류가 있다. 중부에는 회동저수지를 중심으로 마산암류의 미문상화강암류가 분포하며, 금정산 일대에는 아다멜라이트가 넓게 분포한다. 장태우 외 (1983)의 1:50,000의 부산·가덕 도폭 설명서에 의하면, 연구지역의 화강암류는 분화상을 전혀 달리하는 불국사 화강암류와 마산암류 구분하고 있다. 불국사 화강암류는 분화상으로 보아 섬록암으로부터 시작되어, 화강섬록암, 각섬석화강암 및 흑운모화강암으로 분화되어 나타나고, 마산암류는 불국사 화강암류의 분화 이후에 그들을 관

입한 마그마에서 분화되어 생성된 것으로 토날라이트(tonalite), 아다멜라이트(adamelite) 및 미문상 화강암으로 구분하고 있다. 충적층은 양산단층과 동래단층을 따라 두껍게 발달하고 낙동강 하구와 해안가를 따라서도 발달한다. 단층은 양산단층이 북북동의 방향의 주향을 가지면서 서부에 크게 위치하고 삼각주 충적층에 피복되어 나타난다. 동래단층은 부산시 중부에 위치하고 양산단층과 평행하게 발달되어 있다. 울산단층과 일광단층 역시 북북동 방향의 주향을 가지고 있다. 본 연구에서는 1:250,000 부산지질도폭(Kim *et al.*, 1998)과 1:50,000의 부산·가덕 도폭(Chang *et al.*, 1983), 동래·월내 도폭(Son *et al.*, 1978)이 사용되었다.

3. 연구방법

3.1. 측정 및 시료채취 지점 선정

토양 내 라돈 농도측정 지점은 1:50,000 지질도를 기준으로 하여 대표적 암석이 포함되도록 하였으며, 토양단면이 잘 발달하여서 토양의 단면관찰, 암석 및 토양시료 채취와 토양내 라돈 측정이 모두 근거리에서 이루어 질 수 있는 지점을 선정하였다(Table 1). 모암별로 보면 안산암; 7개소, 미문상화강암; 4개소, 아다멜라이트; 2개소, 흑운모화강암; 3개소, 화강섬록암; 3개소, 유문암질암; 3개소, 반려암; 1개소, 퇴적암; 1개소의 총 24개소의 측정지점이 선정되었다. 토양 내 라돈 농도 측정 및 시료 채취는 암석시료를 채취한 지점 부근에서 토양단면이 잘 노출된 곳에서 토양 단면을 1차 조사하고, 모암으로부터 생성된 잔류토양으로서 경사가 작고 완만한 교란되지 않은 토양을 대상으로 하였다. 모든 측정지점에서 동일 심도(65 ± 5 cm)에서 토양시료 채취와 라돈농도 측정을 수행하였다.

3.2. 측정방법

토양 내 라돈 농도의 측정은 Pylon사의 휴대용 라돈 측정기(Pyron AB-5 portable radiation monitor)와 Lucas Type Scintillation Cell (Pylon model A300), 휴대용 진공펌프를 이용하여 실시하였다. 두 가지 in-situ 방법(soil probe방법과 지중튜브매설 방법: buried tube method)으로 토양가스를 추출하여 라돈농도를 측정하여, 측정의 정확도와 효율성을 비교하도록 하였다. Soil probe 방법은 측정심도까지 지름 1.5 cm의 구멍을 뚫 후 Soil Probe (vacuum soil probe assembly, Pyron model 154)를 삽입하고, 진공펌프를 이용해 라돈가스를 Lucas cell에 포집하는 방식이다.

Table 1. Radon measurement and sampling sites for the present study

Tube#	Site name	Rock type	GPS position	
Site 1	Yangduck	Andesite	E129°00'51.65"	N35°12'18.89"
Site 2	Yu-rim APT	Micrographic granite	E128°59'58.93"	N35°12'02.5"
Site 3	Unsusa	Micrographic granite	E129°00'16.71"	N35°11'12.47"
Site 4	Ga-ya park	Biotite granite	E129°01'45"79	N35°08'43.86"
Site 5	Ga-ya park	Andesite	E129°01'37.06"	N35°08'38.01"
Site 6	Min-ju park	Andesite	E129°01'44.12"	N35°01'44.12"
Site 7	Kyongsung UNIV	Sedimentary	E129°05'50.46"	N35°08'27.64"
Site 8	PUFS	Andesite	E129°05'05.77"	N35°07'30.25"
Site 9	Library of Ban-yeo	Rhyolite	E129° 8'11.27"	N35°12'10.98"
Site 10	Jangsan-maul	Rhyolite	E129°10'53.9"	N35°11'53.9"
Site 11	Jangsan-Heliport	Rhyolite	E129°09'36.09"	N35°12'24.57"
Site 12	Chul-ma	Andesite	E129°08'45.37"	N35°13'29.22"
Site 13	Yonggung-temple	Granodiorite	E129°12'51.36"	N35°11'33.17"
Site 14	Geukrak-am	Granodiorite	E129°13'09.36"	N35°11'25.15"
Site 15	Hwangryung MT.	Andesite	E129°04'58.16"	N35°09'57.46"
Site 16	Oryun reservoir	Micrographic Granite	E129°06'21"	N35°15'08"
Site 17	Green APT	Biotite granite	E129°05'39.30"	N35°15'13.14"
Site 18	Sanghyun-maul	Biotite granite	E129°06'51"	N35°15'55"
Site 19	Sinchun-maul	Micrographic Granite	E129°06'48.33"	N35°16'27.87"
Site 20	Sajik-middle school	Granodiorite	E129°03'01.66"	N35°11'36.43"
Site 21	Kum-yong temple	Adamelite	E129°04'56"	N35°14'37"
Site 22	Hyundai APT	Andesite	E129°06'37"	N35°12'52"
Site 23	Yerim nursery	Gabbro	E129°04'27.51"	N35°09'27.06"
Site 24	Pusan National Univ.	Adamelite	E129°04'44.09"	N35°13'54.69"

본 연구자들이 Washington (1990)에 의해 사용된 방법을 수정보완하여 고안된 방법(Moon *et al.*, 2009)인 지중튜브매설 방법(Buried tube method)은 직경 약 7.7 cm의 Soil auger로 목표 심도까지 구멍을 판 뒤 목표심도에 상하 10 cm정도 유리구슬(직경 0.2 mm)을 채워 넣어 토양가스가 포집될 수 있는 공간을 만들어주고, 이 공간에 튜브를 설치하여 이를 통해 지표에서 토양가스의 추출이 가능하도록 한 방법이다(Fig. 2). 튜브매설 후 매설시 교란된 토양이 안정화되어 원토양의 라돈농도를 측정하기 위하여 2개월의 안정화 기간을 두었다. 이 방법은 토양 내 가스 포집과 추출을 위한 주변토양의 교란을 최소화하여 원토양에 유사한 조건에서 토양 가스를 추출함으로써, 측정지점의 토양 내 라돈 농도를 더욱 정확하게 측정할 수 있는 장점이 있다.

휴대용 진공펌프를 이용하여 Lucas type scintillation cell을 0.74 atm로 진공하여 토양가스가 Lucas cell로 유입되도록 하고, 라돈 측정기가 유입된 토양가스의 라돈농도를 측정한다. 1분 간격으로 12분간 2회 측정하여 그 평균값을 사용하여 농도를 계산하였다. 측정된 값의 단위는 cpm(counter per minute)으로 Bq/m³ 단위로 환산하기 위해 다음의 식을 이용해 계산하였다.

Fig. 2. Schematic diagram for in-situ buried tube system.

$$^{222}\text{Rn}[(3.7 \times 10) \text{ Bq/m}^3] = ^{222}\text{Rn}(p \text{ Ci/L}) = \frac{\text{CPM} - \text{BG}}{G}$$

식에서 BG : 시료 없이 5분간 측정된 배경값, G : Count Efficiency × Conversion of dpm to pCi ×

Approximate Number of Alpha Emitter $\times$ Volume of Gas Sample in liters 이다(Pylon Electronics Inc, 2001).

3.3. 암석 및 토양의 환경방사능 측정

암석 및 토양 시료의 방사성핵종(^{226}Ra , ^{228}Ra)들에 대한 분석은 한국기초과학지원연구원에서 고순도 저마늄 검출기(HPGE, High purity germanium detector)를 통해 측정하였으며, 우라늄(total uranium)과 토륨(total Thorium)은 한국기초과학지원연구원에서 유도쌍극플라즈마 질량분석법(ICP-MS, Inductively coupled plasma-mass spectrometer)로 분석하였다.

4. 결 과

4.1. 암석 및 토양 내 라돈의 모원소들의 분포 특성
일반적으로 라돈이라 하면 ^{238}U 붕괴계열에서 ^{226}Ra 의 붕괴로 생성되는 ^{222}Rn 를 지칭한다. 따라서 토양 내

라돈의 농도와 분포 특징을 규명하기 위해서는, 모암과 토양내의 우라늄과 라듐의 함량과 분포 및 거동특징에 영향을 평가하는 것이 중요하다. 이번연구에서는 Th와 U의 붕괴과정에서 생성되는 ^{228}Ra 에 대한 분석도 포함하였다. ^{226}Ra 과 모원소인 U, ^{228}Ra 과 모원소인 Th의 모암과 잔류 토양 내 농도를 Table 2와 3, Fig. 3~6에 나타내었다.

동일한 모암에서도 차이를 나타내고 있으나, U의 모암 별 농도를 비교해보면 화강섬록암 > 아다멜라이트 > 미문상화강암 > 흑운모화강암 > 유문암 > 퇴적암 > 안산암 > 반려암의 순으로 화산암류 암석에 비해 심성암류 암석에서 전반적으로 높게 나타난다(Table 2와 Fig. 3). 우라늄은 토륨과 함께 부분용융과 마그마 분별결정 작용 시 액상의 잔류마그마에 선택적으로 농집되어 주로 마그마 분화 후기의 Si가 풍부한 산성암에 부하되고, 염기성암석에는 거의 결여되는 경향을 보인다(Faure and Mensing, 2004). 연구지역에서는 모암의 종류 별 U의 평균 농도를 보면, 화강섬록암을 포함

Table 2. ^{226}Ra radioactivities and U contents in rocks and soils

Rock type	site	^{226}Ra (Bq/m ³)				Total U (mg/kg)			
		Rock		Soil		Rock		Soil	
		Avg. $\pm$ Std.		Avg. $\pm$ Std.		Avg. $\pm$ Std.		Avg. $\pm$ Std.	
Biotite Granite	Site 4	35.5		38.9		3.09		2.45	
	Site 17	33.5	34.6 $\pm$ 0.8	33.9	39.5 $\pm$ 4.8	2.34	2.9 $\pm$ 0.4	3.06	3.1 $\pm$ 0.6
	Site 18	34.7		45.7		3.33		3.84	
Micrographic Granite	Site 2	47.1		53.5		3.55		4.98	
	Site 3	50.7	45.6 $\pm$ 3.7	44	50.0 $\pm$ 4.2	3.41	3.4 $\pm$ 0.1	3.41	4.0 $\pm$ 0.6
	Site 16	43.9		54.3		3.49		4.13	
	Site 19	40.8		48.3		3.27		3.62	
Adamellite	Site 21	45.1	46.0 $\pm$ 0.8	61.1	54.8 $\pm$ 6.3	3.84	4.0 $\pm$ 0.1	4.14	4.3 $\pm$ 0.2
	Site 24	46.8		48.5		4.1		4.45	
Grodiolite	Site 13	39		33.2		4.34		2.89	
	Site 14	45.2	46.9 $\pm$ 7.2	35.5	40.2 $\pm$ 8.3	3.9	4.2 $\pm$ 0.2	3.61	3.6 $\pm$ 0.6
	Site 20	56.5		51.9		4.26		4.25	
Gabbro	Site 23	10.0	10.0	17	17.0	0.17	0.17	0.65	0.65
Ryolite	Site 9	29.5		36.6		2.22		2.86	
	Site 10	27.3	27.5 $\pm$ 1.5	34.1	33.8 $\pm$ 2.5	2.7	2.4 $\pm$ 0.2	3.4	3.1 $\pm$ 0.2
	Site 11	25.8		30.6		2.35		3.06	
Andesite	Site 1	32.7		45.5		2.78		3.25	
	Site 5	37.3		37.1		3.24		2.97	
	Site 6	11.1		35		0.81		2.91	
	Site 8	21.5	22.8 $\pm$ 9.3	27.6	37.5 $\pm$ 11.9	1.8	1.8 $\pm$ 0.9	2.38	3.0 $\pm$ 0.7
	Site 12	10.1		26.2		0.79		2.14	
	Site 15	24.6		29		2.09		3.01	
	Site 22	22.1		62.3		1.14		4.36	
Sedimentary Rock	Site 7	24.8	24.8	45.6	45.6	1.98	1.98	4.18	4.18

Table 3. ²²⁸Ra radioactivities and Th contents in rocks and soils

Rock type	site	²²⁸ Ra (Bq/m3)				Total Th (mg/kg)			
		Rock		Soil		Rock		Soil	
		Avg.±Std.		Avg.±Std.		Avg.±Std.		Avg.±Std.	
Biotite Granite	Site 4	63.8		62.6		14.5		10.0	
	Site 17	70.1	64.9±3.9	66.3	64.0.8±1.6	13.4	15.7±2.4	14.3	12.5±1.8
	Site 18	60.7		63.2		14.7		13.3	
Micrographic Granite	Site 2	73.5		95		19		18.3	
	Site 3	94.1	77.9±11.7	64.7	86.2±12.8	17.2	17.1±0.3	11.7	16.6±2.9
	Site 16	82		96.7		17.5		19	
	Site 19	62		88.3		17.1		17.4	
Adamelite	Site 21	68.6		80		16.7		13.9	
	Site 24	63.3	66.0±2.7	49.9	75.3±4.8	16.7	15.6±1.1	7.78	10.8±3.1
Grodiolite	Site 13	55		65.3		15.7		11.9	
	Site 14	72.4	72.1±13.8	59.4	64.7±4.1	17.2	18.2±2.5	13	13.6±1.7
	Site 20	88.8		69.3		21.7		16	
Gabbro	Site 23	4.3	4.3	7.9	7.9	1	1.0	2.7	2.7
Ryolite	Site 9	38.8		58.4		10.1		11.1	
	Site 10	38.4	36.7±2.6	58.8	57.2±2.0	9.97	9.6±0.6	12.5	12.0±0.6
	Site 11	33		54.4		8.85		12.4	
Andesite	Site 1	51		62.9		11.4		12.5	
	Site 5	59.1		60.6		13.8		12.7	
	Site 6	14.2		54.1		3.5		10.5	
	Site 8	26	31.8±16.2	42.3	59.6±18.6	7.4	7.5±3.9	8.7	11.0±1.9
	Site 12	17.1		45.8		2.8		8.6	
	Site 15	35.8		49.5		8.8		10.5	
	Site 22	19.5		101.8		4.5		13.7	
Sedimentary Rock	Site 7	56.3	56.3	92.1	92.1	13.1	13.1	18	18.0

Fig. 3. Variation of U contents in rocks and soils.

Fig. 4. Variation of Th contents in rocks and soils.

Fig. 5. Variation of ^{226}Ra radioactivities in rocks and soils.

Fig. 6. Variation of ^{228}Ra radioactivities in rocks and soils.

한 화강암에서 높고 반려암에서 낮으며, 화산암에서는 안산암에 비해 유문암에서 더 높게 나타나, 전반적으로 산성암>중성암>염기성암 순으로 부하되는 특징을 반영한다고 볼 수 있다. 동일한 모암에서 U 농도의 차이는 가급적 신성한 노두에서 암석 시료를 채취하였으나, 암석 시료의 풍화정도에서 차이 기인된 것으로 생각된다. 암석과 토양 내 U 농도를 비교해 보면 화강섬록암 지역과 일부 측정 지점의 토양에서 예외가 있으나, 전반적으로 토양 내 U의 농도가 더욱 높게 나타나는 특징을 나타낸다. 암석과 토양 내 ^{226}Ra 방사능의 상관성을 분석한 결과(Fig. 7), $R^2=0.3535$ 의 암석 내 U의 농도가 높으면 토양 내 농도도 높은 정의 상관관계를 나타내며, 모암 별 평균치를 사용하면 $R^2=0.6310$ 로 상관성은 더욱 뚜렷해진다.

Th의 모암의 종류에 따른 평균농도(Table 3과 Fig. 4)를 비교해보면, 화강섬록암> 미문상화강암> 아다멜라이트> 흑운모화강암> 유문암> 퇴적암> 안산암> 반려암의 순으로 높게 나타난다. 화강암류의 순서에서 약간의 차이는 있으나, 화산암류 암석에 비해 심성암류 암석에서 높고, 산성암이 염기성암에 비교하여 더욱 높게 나타나는 특징을 나타낸다. 이러한 암종 별 농도 변화 특징은 모암의 종류에 따른 U의 농도 변화의 특징과 거의 유사하다. 모암의 종류에 따른 토양 내 Th의 평균농도는 모암의 변화 경향과 유사하다. 모암과 토양 내 Th 농도의 상관성을 분석한 결과(Fig. 7),

$R^2=0.4201$ 의 정의 상관관계를 나타내며, 모암 별 평균치를 사용하면 $R^2=0.6215$ 로 더욱 명확한 상관성을 보여준다. 그러나 토양 내 Th의 농도는 U의 농도와 비교해 볼 때 다른 변화 특징을 보인다. 화산암류와 퇴적암류 암석에서 유래된 토양들에서는 U와 같이 토양 내 농도가 전반적으로 높다. 그러나 화강암류 암석과 화강섬록암의 지역의 토양에서는, 전반적으로 토양 내 Th 농도는 암석에 비해 낮게 나타나는 특징을 보인다. 이러한 결과는 U와 Th이 풍화작용과 토양형성작용 시 지구화학적 거동특징을 달리하기 때문이며, 이에 대하여서는 “토론”에서 자세히 기술하겠다.

모암과 잔류 토양으로부터 분석된 라듐(^{226}Ra 과 ^{228}Ra)의 방사능을 Table 2와 3, Fig. 5와 6에 나타내었다. ^{226}Ra 은 ^{238}U 의 붕괴계열로, 암석 내 ^{226}Ra 의 모암의 종류 별 평균방사능을 비교해보면, 화강섬록암> 미문상화강암> 아다멜라이트> 흑운모화강암> 유문암> 퇴적암> 안산암> 반려암의 순으로 높게 나타난다. 이는 모원소의 U 평균 농도 변화와 거의 동일한 변화 양상이다(Fig. 5). 암석 내 U와 ^{226}Ra 의 상관성을 분석한 결과(Fig. 8), $R^2=0.8747$ (모암 별 평균: $R^2=0.9645$)로 암석 내 ^{226}Ra 의 방사능은 모암의 U 농도를 아주 잘 반영하고 있다. 모암의 종류에 따른 토양 내 ^{226}Ra 의 평균방사능을 비교해보면, 화강섬록암 지역을 제외하고 토양의 ^{226}Ra 방사능이 모암에서 더 높게 나타나고, 전반적으로 암석 내 ^{226}Ra 의 변화 경향을 잘 반영

Fig. 7. The correlation analyses between ^{226}Ra , ^{228}Ra , U and Th in rocks and those in soils.

하고 있다. 이러한 토양 내 ^{226}Ra 방사능 변화 특성은 토양 내 U의 변화 특성 잘 반영한다. 암석과 토양 내 ^{226}Ra 의 상관성을 분석한 결과 낮은 정의 상관관계 ($R^2=0.3663$)를 나타내나, 모암의 종류 별 평균치를 사용하면 $R^2=0.6424$ 로 상관성이 높아진다(Fig. 7). 또한, 토양 내 U 농도와 ^{226}Ra 방사능과의 상관성을 분석한 결

과(Fig. 8)도, $R^2=0.7465$ (모암 별 평균: $R^2=0.9172$)로 토양 내 ^{226}Ra 의 방사능은 토양 내 U 농도와 아주 밀접한 상관성을 나타낸다. 이 결과는 토양 내 ^{226}Ra 의 농도는 암석의 ^{226}Ra 농도 보다 토양 내 U 농도와 더욱 밀접한 관련성이 있음을 잘 보여준다.

^{232}Th 의 붕괴계열인 ^{228}Ra 의 모암 별 평균방사능을

Fig. 8. The correlation analyses for ^{226}Ra vs. U and ^{228}Ra vs. Th in rocks and soils.

비교해보면 화강섬록암 > 미문상화강암 > 아다멜라이트 > 흑운모화강암 > 유문암 > 퇴적암 > 안산암 > 반려암의 순으로 높게 나타나며, 전체적인 경향은 암석 내 Th의 농도 변화와 거의 일치한다(Fig. 5). 암석 내 Th와 ^{228}Ra 의 상관성을 분석한 결과(Fig. 8), $R^2=0.9135$ (모

암 별 평균: $R^2=0.9782$)로 ^{226}Ra 의 방사능은 암석 내 Th 농도를 아주 잘 반영하고 있다. 암석과 토양 내 ^{228}Ra 의 상관성을 분석한 결과 $R^2=0.2547$ 의 낮은 정의상관관계를 보이거나, 모암의 종류 별 평균치로 상관성을 분석하면, $R^2=0.6576$ 으로 전반적인 토양 내

^{228}Ra 의 농도는 모암의 종류에 따른 농도변화 경향을 따른다(Fig. 7). 그리고 토양 내 ^{228}Ra 의 농도는 미문 상화강암 지역에서 토양 내 평균 농도가 약간 높게 나오는 것을 제외하고는 거의 암석 내 Th의 농도 변화와 거의 유사한 양상을 보인다. 토양 내 Th 농도와 ^{228}Ra 방사능과의 상관성을 분석한 결과(Fig. 8), $R^2=0.8215$ (모암 별 평균: $R^2=0.9705$)로 토양 내 ^{228}Ra 의 방사능은 토양 내 Th 농도와 아주 밀접한 상관성을 보였다. 따라서 토양 내 ^{228}Ra 의 농도 역시 ^{226}Ra 과 같이 암석의 ^{228}Ra 의 함량에 비해 토양 내 Th함량에 더욱 밀접한 상관성을 가진다고 할 수 있다. 전술한 바와 같이 토양 내 라듐(^{226}Ra 와 ^{228}Ra) 농도는 모암의 라듐 농도에 비해 토양에 포함된 모원소인 우라늄과 토륨 농도와 더욱 밀접한 관련성을 가진다. 이는 이들 원소들이 암석의 풍화작용과 토양 형성 과정 동안의 지구화학적 거동특성이 다르고, 토양의 특성에 따라 부하특성이 다르기 때문이다. 이에 대해서

는 “토론”에서 자세히 기술하겠다.

4.2. 토양 내 라돈의 분포 특징

측정된 토양 내 라돈의 농도를 Table 4와 Fig. 9에 나타내었다. 하절기에는 soil probe 방법과 지중매설튜브 방법을 통해 측정된 농도가 비교 제시되어있다. 두 방법에 의해 측정된 하절기의 토양 내 라돈 농도를 비교해보면, soil probe 방법으로 측정된 값이 거의 대부분 아주 낮게 나타났다. 이는 현장에서 soil probe를 삽입하기 위해 토양을 auger로 굴착할 때, 토양이 교란되어 토양가스의 유실이 일어나기 때문으로 판단된다. 그러나 지중매설튜브 방법은 토양가스 채취 튜브를 영구 삽입하고 일정한 기간(2개월)이상의 안정화 기간을 두고 토양가스를 추출하여 측정함으로써, 토양가스의 유실 없이 원토양의 라돈농도가 더욱 정확하게 측정되었음을 보여준다.

동일시기에 측정된 토양 내 라돈 농도는 아주 다양

Table 4. ^{222}Rn concentrations in soils

Rock type	site	^{222}Rn (Bq/l)					
		Summer				Winter	
		Soil probe		Burried Tube		Burried Tube	
		Avg.±Std.		Avg.±Std.		Avg.±Std.	
Biotite Granite	Site 4	10.1		13.1		11.9	
	Site 17	9.7	12.2±2.9	21.6	20.2±5.3	17.1	16.4±3.4
	Site 18	16.8		25.9		20.1	
Micrographic Granite	Site 2	14		40.0		36.6	
	Site 3	7.9	11.7±2.7	15.7	26.2±8.8	14.3	24.7±8.1
	Site 16	14.4		25.7		20.6	
	Site 19	10.3		23.3		21.8	
Adamelite	Site 21	22.6	17.5±5.1	36.8	30.7±6.2	31.4	24.9±6.5
	Site 24	12.3		24.5		18.4	
Grodiolite	Site 13	16.1		22.9		22.1	
	Site 14	9.8	12.6±2.6	19.8	24.0±4.0	27.5	25.1±2.2
	Site 20	12		29.3		25.6	
Gabbro	Site 23	3.6	3.6	1.7	1.7	2.7	2.7
	Site 9						
Ryolite	Site 10	9	9.7±0.7	24.6	23.5±1.1	28.2	21.2±7.1
	Site 11	10.3		22.3		14.1	
Andesite	Site 1	8		13.1		19.9	
	Site 5	7.8		15.3		11.2	
	Site 6	7.4		9.2		8.1	
	Site 8	18.5	10.0±3.6	17.4	16.9±8.5	18.8	17.0±8.5
	Site 12	8.2		11.7		13.9	
	Site 15	10.4		14.9		11.4	
	Site 22	9.8		36.8		35.6	
Sedimentary Rock	Site 7	10.1	10.1	23.6	23.6	30.9	30.9

Fig. 9. Variation of ^{222}Rn concentrations in soils.

한 분포를 보이고, 동일한 모암의 토양에서도 변화가 큼으로 모암 종류에 따른 특징적 변화양상을 한 눈에 식별하기 어렵다(Fig. 9). 그러나 전반적으로 화산암 지역의 토양에 비해 심성암 지역의 토양에서 높고, 산성암에서 더 높게 나타나는 특징을 보인다. 이러한 경향을 모암의 암석 종류에 따른 하절기 평균농도로 비교해보면 더욱 뚜렷하게 나타난다. 평균농도에 의한 순서를 보면, 아다멜라이트 > 미문상화강암 > 화강섬록암 > 흑운모화강암 > 퇴적암 > 유문암 > 안산암 > 반려암의 순 퇴적암을 제외하고 하절기와 동절기 모두 유사한 양상을 보인다. 하절기와 동절기의 라돈 농도를 비교하면, 퇴적암지역과 몇 개 지역을 제외하고 거의 모든 지역에서 하절기의 농도가 높게 나타난다. 평균값으로 보면 화강섬록암지역에서 동절기가 약간 높게 나오는데, 이는 측정된 3지점 중 T14지역의 동절기 수치 상대적으로 매우 높게 나타나기 때문이다.

토양 내 라돈농도는 모암의 종류에 밀접한 연관이 있다. 따라서 토양 내 라돈 농도와 모암과 토양내의 ^{226}Ra 와 U 농도 상관관계를 분석해보았다(Fig. 10). 토양 내 라돈 농도와 암석 내 ^{226}Ra 와 상관성은, 여름이 $R^2=0.2883$ (모암 별 평균: $R^2=0.6983$)이며, 겨울은 $R^2=0.1910$ (모암 별 평균: $R^2=0.4262$)이다. 암석 내 U함량과 상관성은, $R^2=0.02511$ (모암 별 평균: $R^2=0.7731$)이며, 겨울은 $R^2=0.6422$ (모암 별 평균: $R^2=0.6092$)이다. 모암 별 평균값을 사용하면, 전반적

으로 토양 내 라돈 농도가 모암 내 모원소의 함량과 상관성이 있음을 잘 보여주나, 각 측정지점에서의 상관성은 아주 낮게 나타난다. 그러나 토양 내 라돈 농도와 토양 내 모원소의 농도와의 상관성을 분석해보면, 토양 내 ^{226}Ra 와 상관성은 여름이 $R^2=0.6262$ (모암 별 평균: $R^2=0.8298$)이고 겨울은 $R^2=0.5354$ (모암 별 평균: $R^2=0.6978$)이며, 토양 내 U 농도와의 상관성은 $R^2=0.7311$ (모암 별 평균: $R^2=0.9256$)이고 겨울은 $R^2=0.6422$ (모암 별 평균: $R^2=0.6092$)로 상관성이 높아짐을 알 수 있다. 이와 같은 결과는 암석의 풍화작용에 의한 용탈 특성과 토양의 특성(발달정도, 층의 종류, 구성광물성분)에 따라 모원소인 ^{226}Ra 과 U의 토양 내 부화특성이 다르기 때문에 토양 내 라돈의 농도는 토양 내 부화된 이들 모원소의 농도와 더욱 밀접한 상관성을 나타내는 것이다.

이상의 결과를 종합하면, 토양 내 라돈의 공간적 분포는 라돈의 모암에 포함된 ^{226}Ra 과 U의 분포에 영향을 받고 있다 할 수 있다. 그러나 동일한 모암에서 유래된 토양에서도 라돈의 농도가 큰 차이가 나며, 암석에 비해 토양 내 ^{226}Ra 과 U 농도와 더 높은 상관성을 나타낸다. 이러한 사실은 라돈의 모원소인 ^{226}Ra 과 U 농도가 암석과 토양에서의 현저한 차이를 나타내는 방사능 비평형이 일어났음을 시사한다.

4.3. 토양 내 라돈 농도에 대한 지형적 영향

토양 내 라돈 농도에 대한 지형적 영향을 평가하기 위하여 구배지에서 변화양상을 측정해 보았다. 아다멜라이트가 분포하는 금정산 일대의 총 4개소의 소규모 지형구배를 보이는 지점의 토양 심도 60 cm에서 측정하였다. 모든 측정지점의 토양 내 라돈의 농도는 구배의 상부와 비교하여 하부 쪽이 더 높게 측정되었다(Fig. 11). 하나의 구배에서 측정된 값은 상부의 값과 하부의 값에서 최대 1.7배까지 차이를 나타내었다.

또한, 동일한 모암으로부터 유래된 토양 내 라돈의 농도변화 양상을 보기 위해서 부산대내 총 19개 장소에서 2주에 걸쳐서 soil probe 방법으로 60 cm 깊이에서 측정을 하였다. 측정된 결과, 동일한 모암에서도 지형변화에 따라 값이 184~805 pCi/L (6.8~29.8 Bq/L)까지 큰 차이를 보여준다(Fig. 11). 이는 동일 모암에서도 라돈의 농도가 일정하지 않음을 잘 보여준다. 이러한 변화는 토양층의 다름, 지형적 차이와 일변화를 포함한 단기적 변화가 주요 원인으로 생각된다.

이상의 결과를 종합하면, 토양의 라돈 농도는 지형적 차이, 동일 심도에서의 토양층의 차이, 그리고 일변

Fig. 10. The correlation analyses for ^{222}Rn (summer) vs. ^{226}Ra and U in rocks and soils.

화를 포함한 단기적 변화에 의해 동일한 모암에서 유래된 잔류 토양에서도 큰 폭으로 변화됨을 알 수 있다. 따라서 토양 내 라돈 농도의 공간적 변화 특성에 대하여 분석하고 위해성을 판단할 경우, 이들에 의한 영향을 반드시 분석하여야 한다.

4.4. 토양 내 라돈의 계절적 변화 양상

Table 4와 Fig. 9에서 나타나듯이 여름과 겨울에 측정된 라돈의 농도는 퇴적암지역과 일부 지역을 제외하고 대부분 하절기가 동절기와 비교하여 더욱 높은 토양 내 라돈 농도를 보여 준다. 이러한 토양 내 라돈

농도가 여름에 높고 겨울에 낮은 특성은 Washington (1990)과 Moon *et al.* (2009)의 연구들에서 나타난 결과와 유사하다. Moon *et al.* (2009)에 의하면, 배수가 잘되는 화강암 잔류토양에서의 라돈농도의 장기적 변화 특성은 여름이 높고 겨울이 낮은 특성을 보인다고 하였다. 이는 토양 내 온도와 습도에 의한 토양으로부터 라돈의 발산력, 대기온도와 토양온도의 차이에서 기인되는 공기순환이 원인이 된다고 하였다. 이번에 연구된 화강암 및 화강섬록암 잔류토양 지역들에서는 2개 지역(T16과 T14)을 제외하고, 여름에 높고 겨울에 낮은 시간적 변화 특성을 잘 보여주고 있다. 그러나 반려암 및 퇴적암 지역과 일부 화산암지역의 토양에서는 겨울에 라돈농도가 높은 지역들이 나타나고 있다. Je and chon (2002)의 수도권 지역에 대한 선행연구에서는 여름철에 비해 겨울철의 라돈 농도가 더욱 높은 결과를 보고하였다. 수도권 지역에서 겨울철 라돈의 농도가 여름철에 비해 높게 나타나는 이유로 지표부근 결빙에 의해 덮개효과지역(trapping effect)에 의해 라돈농도가 높아지는 현상과 강우에 의해 토양 자체의 라돈 발산율이 증가하는 경우를 제시했다. 서울지역은 겨울철 영하이하의 온도에서 토양이 결빙되는 경우가 많지만, 부산 지역은 토양이 잘 결빙 되지 않는다. 그리고 이번 연구에서는 3일 이내의 짧은 시간동안 측정을 실시하였으므로, 결빙에 의한 덮개효과로 설명하기 어렵다. 이러한 정반대의 계절적 변화 양상은 강수에 대한 토양의 특성의 차이가 원인이 될 수 있는데 토론에서 자세히 기술하겠다.

5. 토 론

5.1. 토양 내 라돈 농도의 공간적 변화 특성 및 요인 분석

토양 내 라돈 농도의 공간적 변화 특성을 규명하기 위해서는 모암과 토양 내 라돈의 모원소들의 분포 및 거동 특성을 자세히 규명하는 것이 중요하다. 토양 내 라돈 농도와 모암과 토양에 포함된 라듐의 농도와 상관관계 분석 결과를 보면, 토양 내 라돈농도는 모암과 토양의 ^{226}Ra 방사능과 U 농도는 모두 정의 상관관계를 보이거나, 모암에 비해 토양 내 이들 농도와 더 높은 상관성을 보이며, 모암의 종류에 따른 평균값을 비교하면 더욱 높은 정의 상관성을 보인다. 모암과 토양 내 ^{226}Ra 방사능과 U 농도와의 상관성을 분석한 결과(Fig. 8)를 보면, ^{226}Ra 과 U의 상관성은 암석에서는 $R^2=0.8747$ (모암 별 평균: $R^2=0.9645$)이고, 토양에서는

$R^2=0.7465$ (모암 별 평균: $R^2=0.9172$)로 아주 높은 상관성을 나타내어 암석과 토양 내 ^{226}Ra 의 방사능은 각각의 U 농도 매우 잘 반영하고 있다. U의 모암 별 평균농도 비교해보면 화강섬록암> 아다멜라이트> 미문상화강암> 흑운모화강암> 유문암> 퇴적암> 안산암> 반려암의 순으로 화산암류 암석과 비교하여 심성암류 암석에서 전반적으로 높게 나타난다. 이는 국내의 다른 연구결과와 일치한다. Hong and Hong (2002)은 백악기 화산암류와 화강암을 비교하면 우리나라 평균 함량이 각기 3.21 ± 1.43 ppm과 4.18 ± 2.31 ppm으로 화강암에서 약간 높게 나타나는 것으로 보고하였다. 우리나라는 토륨과 함께 부분용융과 마그마 분별결정 작용 시 액상의 잔류마그마에 선택적으로 농집되어, 마그마 분화 후기의 Si가 풍부한 산성암에 부하되고, 염기성암석에는 거의 결여되는 경향은 잘 알려진 사실이다(Faure and Mensing, 2004). 연구지역에서는 모암별 평균 농도를 보면, 화강암에서 높고 반려암에서 낮으며, 화산암에서는 안산암에 비해 유문암에서 더 높게 나타나 전반적으로 이러한 경향을 잘 반영한다고 볼 수 있다. Chang *et al.* (1983)의 1:50,000의 부산 가덕도폭 설명서에 의하면, 연구지역의 화강암류는 분화상을 전혀 달리하는 불국사 화강암류와 마산암류 구분하고 있다. 불국사 화강암류는 분화상으로 보아 섬록암으로부터 시작되어, 화강섬록암, 각섬석화강암 및 흑운모화강암으로 분화되어 나타나고, 마산암류는 불국사 화강암류의 분화 이후에 그들을 관입한 마그마에서 분화되어 생성된 것으로, 토날라이트(tonalite), 아다멜라이트(adamelite) 및 미문상 화강암 등이 이에 속한다. 즉, 연구지역의 화강암류는 화강섬록암-흑운모화강암-아다멜라이트-미문상화강암의 분화단계를 가진다. 그러나 분석된 화강섬록암 및 화강암류의 U 농도는 이러한 분화단계의 차이를 반영하지 못하고 있다. 이는 이전의 Lee *et al.* (2008)의 부산시 금정구 일대의 화강암류 분석에서도 나타났다. Th의 모암별 평균농도를 비교해보면, U와 같이 화강암류의 분화단계를 반영하지 못하고 있으나, 전체적인 경향은 화강암류가 화산암류에 비해 더 높고, 산성암>중성암>염기성암 순으로 부화되는 U의 변화와 거의 유사한 경향을 보인다. ^{228}Ra 의 모암 별 평균방사능도 전반적으로 Th의 농도 변화와 거의 일치하며, ^{228}Ra 과 Th농도와의 상관성은 암석에서는 $R^2=0.9135$ (모암 별 평균: $R^2=0.9782$)이고, 토양에서는 $R^2=0.8215$ (모암 별 평균: $R^2=0.9705$)로 아주 높은 상관성을 나타내어 암석과 토양 내 ^{226}Ra 의 방사능은 각각의 Th함량을 아주 잘 반영하고 있다. 이

상과 같이 화강암류 암석 내 U와 Th의 농도가 화강암류의 분화단계를 반영하지 못하는 이유는 분석된 암석의 풍화정도의 차이가 하나의 원인으로 생각되나, 연구지역의 화강암의 분화관계에 대한 재검토도 필요할 것으로 생각된다.

모암과 토양 내 U의 상관성을 분석해보면, $R^2=0.3535$ (모암 별 평균: $R^2=0.6310$)의 모암 내 U 농도가 높으면 토양 내 농도 높은 정도의 상관관계를 나타내고, 자원소인 ^{226}Ra 농도도 $R^2=0.3663$ (모암 별 평균: $R^2=0.6424$)로 U 농도와 유사한 정도의 상관성을 보인다. 암석과 토양 내 Th와 ^{228}Ra 의 상관성을 분석해보면, Th는 $R^2=0.4201$ (모암 별 평균: $R^2=0.6215$)이며, ^{226}Ra 는 $R^2=0.2547$ (모암 별 평균: $R^2=0.6576$)의 상관성을 보인다. 이와 같이, 이들 원소의 모암과 토양 내 농도에 대한 상관성들은 암석과 토양 각각에서의 U와 ^{226}Ra 및 Th와 ^{228}Ra 의 상관성들에 비해 현저히 낮게 나타남을 알 수 있다. 이는 암석의 풍화작용과 토양형성작용 시 U와 Th의 용탈작용이 현저히 일어나고, 토양특성에 따라 이들의 부화 특성이 다름에 따라 토양 내 농도가 암석의 농도와 현저한 차이를 보이는 방사능 비평형이 일어났음을 시사한다. 반면에 토양 각각에서 U와 ^{226}Ra 및 Th와 ^{228}Ra 의 상관성들이 높은 것은, 토양에 부하된 후 이들 원소의 지구화학적 거동은 제한되어, 방사능 비평형이 상대적으로 크게 일어나지 않았음을 시사한다.

또한, 모암과 토양 내 U와 Th 농도를 각각 비교해보면, U의 경우 화강섬록암 지역과 일부 측정 지점의 토양에서 예외가 있으나, 전반적으로 토양 내 U의 농도는 모암에 비해 더욱 높게 나타나는 특징을 보인다. Greenman (1991)은 토양에는 U가 모암에 비해 2~3배까지 부하된다고 하였다. 그러나 Th는 U의 농도 변화와 뚜렷이 구분되는 다른 농도 변화 특징을 나타낸다. Th는 화산암류와 퇴적암류 암석에서 유래된 토양들에서는 U와 같이 토양 내 농도가 암석 내의 농도에 비해 전반적으로 더 높은 양상을 보이나, 화강암류 암석과 화강섬록암의 지역의 토양에서는 전반적으로 토양 내 Th농도는 암석에 비해 낮게 나타나는 특징을 보인다. 이러한 결과는 U와 Th의 풍화작용과 토양형성작용 시 용탈과 토양특성에 따라 부하되는 지구화학적 거동특징을 달리하기 때문이다. 암석과 토양 내 U와 Th 농도의 상관성을 분석해보면, 암석에서는 $R^2=0.8858$ (모암 별 평균: $R^2=0.8999$)이고 토양에서는 $R^2=0.6141$ (모암 별 평균: $R^2=0.7999$)로 다소 낮아짐은 토양에서 U와 Th의 용탈 및 부화 특징이 다름을

잘 보여준다. Piller and Adams (1962)와 Michel (1984)은 30-60%의 total U와 25-70%의 Th가 풍화작용동안 용탈될 수 있다 하였고, 천체환경에서 용탈된 U와 Th는 토양에 축적된다 하였다. U와 Th의 거동특징에 대한 연구 결과(Greenman, 1991; Durrance, 1986)에 의하면, 토양에서 U는 주로 유기물이 집적되고 점토광물과 Fe-oxide의 용탈되는 A층(elluviation zone)에 부하되나, Th는 점토광물과 Fe-oxide의 집적이 일어나는 B층(illuviation zone)에 부하되고, C층에서는 모암의 농도와 유사한 경향을 가진다고 하였다. 이러한 U와 Th의 토양 내 부하 특성의 차이는 U는 Fe-산화물과 점토광물에도 흡착되어 존재하나 유기물에 흡착 부하되는 특성이 강하고, Th는 Fe-산화물과 점토광물에 흡착 부하하는 특성이 강하기 때문에 결과된다. 연구에서는 깊이 60 ± 10 cm에서 채취된 토양을 대상으로 분석을 실시하였다. 연구지역의 토양은 엔티솔(entisol)과 인셉티솔(inceptisol)에 속하며, 대부분 지역에서 이 깊이의 토양은 A층의 토양으로 생각되나, 일부에서는 토양 단면의 발달 정도에 따라 미성숙된 E층 혹은 B층의 토양이 포함되었을 수 있다. 이러한 차이가 각 측정지점에서 U와 Th의 농도 변화 특성을 달리 한 것으로 생각된다. 연구지역에서 토양 내 U 농도가 암석 내 농도와 비교하여 전반적으로 높게 나타나는 특징을 보이는 것은 유기물이 많은 토양에 U가 선택적 부하가 일어났음을 시사한다. Th의 경우 더욱 복잡한 양상을 보여준다. 화강암류 지역과 화산암류 지역에서 차이를 보이는데, 이는 두지역의 토양의 특성 및 구성성분이 현저히 다름을 시사한다. 화산암류 지역의 토양에는 Th의 부하가 용이한 점토광물과 Fe-oxide 함량이 상대적으로 높은 것이 원인으로 생각된다. 토양 내 U와 Th의 농도가 암석과 비교하여 모두 높게 나오는 지역은 토양의 단면의 발달이 덜된 미성숙 토양으로 A층과 B층의 구분되지 않아, 유기물, 점토광물, Fe-oxide가 모두 존재하는 토양으로 간주할 수 있다. 퇴적암 지역을 보면, 토양 내 토양 내 U와 Th의 농도가 암석과 비교하여 모두 상당히 높은 값을 보이는데, 이는 퇴적암 지역의 토양에 점토광물과 유기물의 함량이 높은 것이 원인으로 생각된다. Greenman(1991)에 의하면, 쇄설성퇴적물의 점토광물함량에 따라 U와 Th의 함량이 증가하고, 흑색세일의 경우 1200 ppm까지 U가 부하될 수 있다 하였다. 토양 내 ^{226}Ra 의 모암별 평균방사능을 비교해보면 화강섬록암 > 미문상화강암 > 아다멜라이트 > 흑운모화강암 > 유문암 > 퇴적암 > 안산암 > 반려암의 순으로 모원소의 모암 별 U 평균 농

Fig. 11. ^{222}Rn variation in soil according to slope positions.

도 변화와 거의 같은 변화 양상을 보인다. 토양 내 ^{226}Ra 의 거동 특성은 토양 내 U의 변화 특성과 비슷하다. 따라서 모암 내 U와 ^{226}Ra 의 상관성을 분석한 결과(Fig. 8), $R^2=0.8747$ (모암 별 평균: $R^2=0.9645$)로 모암 내 ^{226}Ra 의 방사능은 모암 내 U농도를 아주 잘 반영하고 있다.

모암의 종류에 따른 토양 내 라돈의 평균농도 변화 양상을 보면, 대체적으로 모암의 종류와 관련된 모원소들의 농도를 반영하여 화산암에 비해 심성암에서 더욱 높고, 산성암>중성암>염기성암 순으로 높은 변화 양상을 보인다. 그러나 전술한 바와 같이, 동일한 모암으로부터 유래된 잔류 토양에서 Ra와 U의 농도는 암석의 풍화작용과 토양특성에 따라 현저히 달라짐으로, 일차적으로는 토양 내 Ra와 U의 함량에 영향을 받을 것을 잘 알 수 있다.

전술한 4.3에서와 같이, 모암을 같이하는 잔류토양에서 소규모 지형적 구배와 경사면의 존재가 토양 내 라돈 농도에 영향을 미친다. 소규모 지형적 구배를 이루는 경사지에서의 동일 심도의 토양 내 라돈농도는 구배의 상부에 비해 하부 쪽이 1.7배 높게 측정되었다. 이러한 차이의 원인은 토양 내 공기 순환 혹은 구배의 차이에 따라 같은 심도의 토양이라도 토양층이 달라짐이 원인인 것으로 생각된다. 즉, 토양 단면이 노출된 경사지에서는 토양 공기의 순환이 더욱 원활하게 이루어져, 순환하는 공기에 의한 희석효과로 토양 농도가 낮게 나타나는 경향을 보이는 것으로 사료된다. 그리고 경사지 토양에서의 토양 침식은 하부 평지와 토양층을 달리함에 따라 이러한 변화가 나타날 수 있을 것으로 생각된다. 이와 같은 측정결과, 모암을 같이하는 잔류토양에서 소규모 지형적 구배와 경사면의 존재가 토양 내 라돈 농도에 영향을 미침을 잘 보여준다. 그리고 모암을 같이하는 잔류토양(부산대 내 19개 지

Fig. 12. Radon variation in soils of Pusan National university area (unit: pCi/L).

점)내에서 토양 내 라돈 농도가 6.8~29.8 Bq/L 범위의 큰 폭으로 변화하였다(Fig. 11과 12). 이러한 변화는 지형적 차이, 토양층의 다름, 일변화를 포함한 단기적 변화가 주요 원인으로 생각된다. 이상의 결과를 종합하면, 동일한 모암에서 유래된 잔류토양이나 혹은 유사한 수준의 ^{226}Ra , ^{238}U 함량을 나타내는 토양에서도 지형적 차이, 동일 심도에서의 토양층 및 토양 특성의 차이, 그리고 일변화에 의해 토양 내 라돈 농도에 큰 폭의 변화가 일어남을 잘 알 수 있다. 따라서 토양 내 라돈 농도의 공간적 변화 특성에 대하여 분석할 경우에 대한 영향도 반드시 고려하여야 한다.

5.2. 토양 내 라돈 농도의 시간적 변화 특성 및 요인 분석

토양 내 라돈 농도는 하절기와 동절기에 뚜렷이 구분되는 농도 변화 특성을 보인다. 각 측정지점에서 계절적 변화 특성은 대체로 하절기에 높고 동절기에 낮

은 변화 특징을 보이나, 퇴적암 및 반려암 지역과 화산암 지역의 일부 토양에서는 반대 현상도 나타난다. 이러한 계절적 변화가 다르게 나타나는 원인으로 강수에 대한 토양의 배수 특성의 차이를 생각할 수 있다. 강수현상은 토양의 조건에 따라 토양 내 라돈에 양을 부화 시키거나 걸썩시키는 두 가지 역할을 모두 할 수 있다. 강수로 인해 토양공극이 물로 포화될 경우와 강수가 하부로 침투(infiltration)될 때, 토양가스도 물과 함께 이동하게 되고 그 후에 재충전된 토양가스에는 라돈의 농도의 일시적 감소가 발생할 수 있다 (Tompkins, 1982; Gundersen and Wanty, 1991; Je *et al.*, 1998). 배수가 원활하지 않는 토양에서는 빗물이 토양에 머무는 기간이 길어짐에 따라 토양 내 라돈의 농도는 낮아지는 효과는 더욱 커질 수 있다. 강수에 의한 반대의 효과는, 토양 내 광물에서 라돈이 붕괴되어 라돈이 만들어져 토양 공극 속으로 나올 때 함수율이 높을수록 공극으로 발산률이 높아짐에 따라 토양 내 라돈의 농도가 높아진다(Iskandar *et al.*, 2004; Barillon *et al.*, 2005). 그리고 토양의 배수 특성에 따라 토양 내 높은 수분량은 공기의 순환을 저해하게 되며, 이 경우 토양 내 라돈이 지속적으로 증가하게 된다. 연구 지역의 화강암류 암석의 잔류토양은 토양 구성성분 중 점토량이 적고, 흔히 마사토로 불리는 화강암질 암석의 풍화잔적토로 조립질 입자가 많이 포함되어 있어 배수와 통기가 매우 용이하다. 따라서 강수에 의한 영향이 매우 적고, 여름철에 높은 토양온도와 많은 강수량에 의한 수분함량의 증가는 라돈발산력을 증가시키고(Moon *et al.*, 2009), 또한 대기온도가 토양온도에 비해 더욱 높은 상태로 토양내로 외부공기순환이 없어 토양 내 라돈 농도가 증가한다. 반면에 겨울철에는, 토양 내 라돈 발산력도 낮고 차가운 외부 공기가 토양 내 유입됨에 따라 토양 내 라돈농도가 낮게 나타난다. 그러나 겨울철의 라돈 농도가 현저히 높은 지역인 퇴적암 지역 잔류토양의 경우, 점토광물들이 많이 포함되어 더 높은 수분함량은 라돈발산력의 증가 및 외부공기순환을 억제하여 라돈농도가 증가하는 반대의 효과가 나타난 것으로 생각된다. 그 외 화산암 지역과 반려암지역의 겨울철이 높은 양상도 토양 특성에 따른 배수 및 수분함량 영향과 외부공기순환의 억제 등이 원인으로 생각되나, 이에 대한 더욱 상세한 분석을 위해서는 토양의 입도분포, 공극률, 함수율(강우빈도 포함), 중발산량, SOM(토양 유기물)함량, 광물 조성 등의 영향요인들에 대한 정량적인 분석에 의한 토양 내 라돈 농도와의 상관성 연구도 필요하다.

토양 내 라돈농도와 ^{226}Ra 상관성 분석 결과, 하절기(전체: $R^2=0.6262$, 모암 별 평균: $R^2=0.8298$)에 비해 동절기(전체: $R^2=0.5354$, 모암 별 평균: $R^2=0.6978$)에 상관성이 다소 낮게 나타나는데, 이는 겨울철의 라돈농도 변화는 토양의 배수특성에 따라 반대의 결과가 유래되기 때문이다. 연구 결과는 동일한 모암에서 유래된 잔류토양이나 혹은 유사한 수준의 ^{226}Ra 및 ^{238}U 함량을 나타내는 토양일지라도 계절적으로 토양 내 라돈의 농도가 달라질 수 있으며, 지역에 따른 기후변화와 토양 특성에 따라 전혀 다른 변화 양상을 보일 수 있음을 잘 보여준다. 따라서 토양 내 라돈의 측정 및 그 위해성의 정밀한 평가를 위하여 지역적인 기후변화와 토양특성이 충분히 반영되어야 할 것이다.

6. 결 론

1. U와 Th의 모암의 암석 종류에 따른 농도를 비교해보면, 화산암 지역의 토양에 비해 심성암 지역의 토양에서 높고, 전반적으로 산성암>중성암>염기성암 순으로 부하되는 특징을 반영하고 있다. 그러나 분석된 화강섬록암 및 화강암류의 U와 Th의 농도는 화강섬록암-흑운모화강암-아다멜라이트-미문상화강암의 분화단계의 차이를 충분히 반영하지 못하고 있다.

2. 모암의 종류에 따른 토양 내 U와 Th의 평균농도는 모두 모암의 농도 변화 경향과 유사하다. 암석과 토양 내 Th 농도의 상관성을 분석한 결과, 암석 내 이들의 농도가 높으면 토양 내 농도도 높은 정의 상관관계를 나타내며, 모암 별 평균치를 사용하면 더욱 명확한 상관성을 보여준다. U의 경우 일부 측정 지점의 토양에서 예외가 있으나, 전반적으로 토양 내 U의 농도가 암석 내의 농도와 비교하여 더 높게 나타나는 특징을 보이나, Th는 더욱 복잡한 변화 양상을 보인다. 이러한 차이는 U와 Th이 풍화작용과 토양의 구성성분 및 특성에 따라 지구화학적 거동 및 부하 특성을 달리 하기 때문이다.

3. 암석과 토양 내 U와 Th 농도의 상관성을 분석해보면, 암석에서는 $R^2=0.8858$ (모암 별 평균: $R^2=0.8999$)이고 토양에서는 $R^2=0.6141$ (모암 별 평균: $R^2=0.7999$)로 다소 낮아짐은 토양에서 U와 Th의 용탈 및 부하 특징이 다름을 반영하고 있다.

4. ^{226}Ra 과 U의 상관성은 암석에서는 $R^2=0.8747$ (모암 별 평균: $R^2=0.9645$)이고 토양에서는 $R^2=0.7465$ (모암 별 평균: $R^2=0.9172$)이며, ^{226}Ra 과 Th농도와의 상관성은 암석에서는 $R^2=0.9135$ (모암 별 평균:

$R^2=0.9782$)이고 토양에서는 $R^2=0.8215$ (모암 별 평균 : $R^2=0.9705$)로 아주 높은 상관성을 보인다. 이는 암석과 토양 내 ^{226}Ra 과 ^{228}Ra 의 방사능은 각각의 U와 Th 농도 매우 잘 반영하고 있음을 잘 시사한다.

5. 토양 내 라듐(^{226}Ra 와 ^{228}Ra) 농도는 암석의 라듐 농도에 비해 토양에 포함된 모원소인 U와 Th 농도와 더욱 밀접한 관련성을 가진다. 이러한 결과는, 암석의 풍화작용과 토양형성작용 시 U와 Th의 용탈작용이 현저히 일어나고, 토양특성에 따라 이들의 부화 특성이 다름에 따라 토양 내 농도가 암석의 농도와 현저한 차이를 보이는 방사능 비평형이 일어났음을 시사한다. 반면에 토양 내 U와 ^{226}Ra 및 Th와 ^{228}Ra 의 상관성들이 높은 것은, 토양에 부화된 후 이들 원소의 지구화학적 거동은 제한되어 방사능 비평형이 상대적으로 크게 일어나지 않았음을 보여준다.

6. 토양 내 라돈의 공간적 분포는 모암의 암석 종류에 따른 ^{226}Ra 와 U의 농도를 전반적으로 반영하여, 화산암에 비해 심성암에 더 높고, 산성암>중성암>염기성암 순으로 높은 변화 양상을 보인다. 그러나 동일한 모암에서 유래된 토양내의 라돈 농도에서 큰 폭의 변화가 나타나는데, 이는 라돈의 모원소인 ^{226}Ra 과 U의 암석과 토양에서의 방사성 비평형에 의한 결과이다.

7. 토양 내 라돈 농도는 하절기와 동절기에 뚜렷이 구분되는 농도 변화 특성을 보인다. 배수와 통기가 잘 되는 화강암류 암석의 잔류토양에서는 하절기에 높고 동절기에 낮은 변화 특징을 보이나, 그 외 지역의 일부 토양에서는 정반대의 계절적 변화양상도 관찰된다. 이러한 결과는 동일한 모암에서 유래된 잔류토양이나 혹은 ^{226}Ra 및 ^{238}U 함량이 유사한 토양일지라도 계절적으로 토양 내 라돈의 농도가 현저히 달라질 수 있으며, 기후변화와 토양의 배수 및 통기 특성에 따라 전혀 다른 변화양상을 보일 수 있음 잘 보여준다.

8. 지형구배를 이루는 경사지의 동일 심도의 토양 내 라돈농도 구배의 상부에 비해 하부 쪽이 1.7배 높게 측정되었다. 그리고 모암을 같이하는 잔류토양(부산대 내 19개 지점)에서 토양 내 라돈 농도가 6.8~29.8 Bq/L 범위의 큰 폭으로 변화하였다. 이러한 변화는 지형적 차이, 동일한 심도에서 토양층의 다름, 일변화를 포함한 단기적 변화가 주요 원인으로 사료된다.

9. 지중매설튜브 방법(buried tube method)과 soil probe 방법을 비교한 결과, soil probe 방법으로 측정된 값이 거의 대부분 아주 낮게 나타났으며, 토양 내 모원소들과 상관성도 상대적으로 매우 낮게 나타났다. 이는 현장에서 soil probe를 삽입하기 위해 토양을

auger로 굴착할 때 토양이 교란되어 토양가스의 유실이 일어나기 때문이다. 반면에, 지중매설튜브 방법은 토양가스 채취 튜브를 영구 삽입하고, 일정한 기간정도 안정화 기간을 두고 토양가스를 추출하여 측정함으로써, 토양가스의 유실없이 원토양의 라돈농도가 더욱 정확하게 측정되었다. 따라서 토양 내 라돈의 시·공간적 변화 특성에 대한 분석에는 지중매설튜브 방법이 매우 유용한 것으로 나타났다.

10. 토양의 물리·화학적 특성에 따라 라돈과 모원소의 농도 변화가 매우 다양하게 나타난다. 따라서 토양 내 라돈 농도 변화에 대한 더욱 자세한 분석을 위해서는 토양의 입도분포, 공극률, 함수율(강우빈도 포함), 증발산량, SOM(토양 유기물)량, 광물조성 등 영향 요인들에 대한 정량적인 분석에 의한 상관성 연구도 필요하다.

사 사

이 논문은 2009년도 교육과학기술부의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 일반연구지원사업의 기본연구(2009-0074338)의 일환임을 밝히며, 논문을 세심하게 검토해주신 한국지질자원연구원의 고동찬 박사님과 익명의 심사위원님께 감사드립니다.

참고문헌

- Barillon, R., Özgümüş, A. and Chambaudet, A. (2005) Direct recoil radon emanation from crystalline phases. Influence of moisture content, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, v.69, p.2735-2744.
- Chang, T.W., Kang, P.C., park, S.H., Hwang, S.K. and Lee, D.W. (1983) The geological map of Busan-gadeog sheets, Korea Institute of Energy and resources, p.22.
- Durrance, E.M. (1986) Radioactivity in geology: principles and applications, ellis horwood Ltd., 436p.
- Faure, G. and Mensing, T.M. (2004) Isotopes: principles and applications, Wiley, 928p.
- Greeman, D.J. (1991) The geochemistry of uranium, thorium, and radium in soils of the eastern United States, Ph.D dissertation, Pennsylvania State University, 225p.
- Gundersen, L.C.S. and Wanty, R.B. (1991) Field studies of radon in Rocks, Soils and Water, U.S. Geological Survey Bulletin 1971, Washington D.C., USA, 334p.
- Hong, Y.-K. (1997) Environmental geochemistry of radon at the Taejon city area in Korea, *Econ. Environ. Geol.* v.30. p.51-60.
- Hong, Y. Kim, S. and Kim, T. (1998) Radon-222 concentrations of metropolitan subway stations and soils in the Seoul, *Econ. Environ. Geol.* v.31. p.215-222.
- Hong, Y. and Hong, S. (2002) Content of natural radio-

- active elements in bedrocks and radon risk in Korea, Abstract in Spring Conference of The Korean Earth Science Soc., p.64.
- Iskandar, D., Hiromi, Y. and Takao, I. (2004) Quantification of the dependency of radon emanation power on soil temperature, *Applied Radiation and Isotopes*, 60, p.971-973.
- Je, H., kang, C. and Chon, H. (1998) A preliminary study on soil gas ^{222}Rn concentrations depending on different bedrock geology, *Econ. Environ. Geol.* v.31, p.415-424.
- Je, H. and Chon, H. (2002) A study on characteristics of soil radon gas variation by time series analysis, Abstract in Joint conference of Econ. Environ. Geol. etc., p.28-30.
- Kim, D., Hwang, J., Park, K. and Song, K. (1998) 1:250,000 Explanatory note of the Pusan sheet, Korea institute of geology, mining & materials. 62p.
- Lee, H., Moon, K., Kim, J., Ahn, J.K. and Kim, H. (2008) Distribution of some environmental radionuclides in rocks and soils of Geumjeong-Gu area in Busan, Korea, *Jour. Petrol. Soc. Korea*, v.17, p.179-190.
- Michel, J. (1884) Redistribution of Uranium and thorium series isotopes during isovolumetric waethering of granite, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 48, p.1249-1255.
- Moon, K., Kim, J., Ahn, J.K., Kim, H. and Lee, H. (2009) Long-term Variation of Radon in Granitic Residual Soil at Mt. Guemjeong in Busan, Korea, *Jour. petrol. Soc. Korea*, v.18, p.279-291.
- Piller, R. and Adams, J.A.S. (1962) the distribution of thorium aand uranium in a Pennsylvania weathering profile, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 26, p.1137-1146.
- Pylon Electronics Inc. (2001) Instruction manual number: A900042, 15p.
- Son, C.M., Lee, S.M., Kim, Y.K., Kim, S.W. and Kim, H.S. (1978) The geological map of Dongrae and Weolnae sheets, Korea Research Institute of Geoacience and Mineral Resources, p.27.
- Thompkins, R.W. (1982) Radiation in uranium mines, *CIM Bulletin*, September, 1982, p.149-156.
- US Environmental Protection Agency (2007) A Citizen's Guide to Radon, U.S. EPA 402-K-07-009.
- Washington, J.W. (1990) Radon generation, transport and fate in soil, Ph.D dissertation, Pennsylvania State University, 193p.

2012년 4월 12일 원고접수, 2012년 6월 18일 게재승인