

다중 환경추적자를 이용한 제주도 지하수 유통 및 수질 특성 분석

고동찬, 김용제

한국지질자원연구원 (dckoh@kigam.re.kr)

<요약문>

The environmental tracers tritium/helium-3 ($^3\text{H}/^3\text{He}$) and chlorofluorocarbons (CFCs) were investigated in ground water from Jeju Island, Korea, a basaltic volcanic island. The apparent $^3\text{H}/^3\text{He}$ and CFC-12 ages were in relatively good agreement in samples with low concentrations of terrigenous He. Ground water mixing was evaluated by comparing ^3H and CFC-12 concentrations with mixing models, which distinguished old water with negligible ^3H and CFC-12, young water with piston flow, and binary mixtures of the two end members. The ground water CFC-12 age is much older in water from wells completed in confined zones of the hydro-volcanic Seogupo formation in coastal areas than in water from the basaltic aquifer. Comparison of major element concentrations in ground water with the CFC-12 age shows that nitrate contamination processes contribute more solutes in young water than are derived from water-rock interactions in non-contaminated old water. Chemical evolution of ground water resulting from silicate weathering in basaltic rocks reaches the zeolite-smectite phase boundary. The calcite saturation state of ground water increased with the CFC-12 apparent (piston flow) age. In agricultural areas, the temporal trend of nitrate concentration in ground water was consistent with the known history of chemical fertilizer use on Jeju Island, but the response of nitrate concentration in ground water to nitrogen inputs follows an approximate 10-year delay. Based on mass balance calculations, it was estimated that about 40% of the nitrogen applied by fertilizers reached the water table and contaminated ground water resources when the fertilizer use was at the highest level.

Keywords: Environmental tracers; Residence time; Ground water mixing; Nitrate contamination; Aquifer vulnerability; Volcanic island

1. 서론

삼중수소 (tritium)/helium-3 ($^3\text{H}/^3\text{He}$)과 염화불화탄소류 (chlorofluorocarbons)는 지하수 연령 측정에 널리 이용되고 있다. $^3\text{H}/^3\text{He}$ 방법은 많은 지하수 연령 측정 연구에서 다양하게 이용되어 왔다 (Maloszewski and Zuber, 1983; Schlosser et al., 1988, Schlosser et al., 1989; Ekwurzel et al., 1994; Szabo et al., 1996). 1990년대 초기부터 CFCs는 50년까지의 지하수 연령을 측정하는 조사에서 이용되

어 왔다 (Busenberg and Plummer, 1992, Dunkle et al., 1993 Plummer and Busenberg, 2000). 최근에는 다중 추적자 방법 (multi-tracer approach)이 지하수의 체류시간과 지하수 유동 특성을 밝히는데 이용되고 있다 (Ekwuzel et al., 1994 Bauer et al., 2001; Plummer et al., 2001). 지하수 연령은 질산성 질소 오염과 관련하여 여러 지역에서 연구가 이뤄진 바 있다 (Böhlke and Denver, 1995, Katz et al., 2001, Zoellmann et al., 2001). 이번 연구에서는 수리지구화학적 인자들과 CFCs와 $^3\text{H}/^3\text{He}$ 의 다중 환경 추적자를 이용하여 지하수 유동의 시간적 규모와 혼합 특성을 파악하였다. 질산성 질소 오염 또한 함양 시기와 NO_3 오염 부하량의 시간적 변화량 측면에서 해석하였다.

2. 본론

제주도 지역 농업용 관정의 지하수에 대해 주로 서부 지역에 중점을 두어 수리지구화학 조사 및 CFCs, $^3\text{H}/^3\text{He}$ 환경 추적자 조사를 실시하였다. CFCs는 flame-sealed ampule 방법을 사용하였고, $^3\text{H}/^3\text{He}$ 은 pinch-off clamp를 이용한 sealed copper tube 방법을 사용하였다. CFCs의 분석은 CFC-11과 CFC-12에 대해 CSIRO (호주)에서 실시하였고, $^3\text{H}/^3\text{He}$ 은 ^3H , ^3He , ^4He , ^{20}Ne 등에 대해 Univ. of Utah (미국)에서 실시하였다. 대기중의 CFCs 농도 이력 곡선 검증을 위해 1년동안 제주도 중심 부근에서 매달 대기 시료를 채취하여 분석하였다. ^3H 의 농도 이력 곡선은 IAEA 관측소 결과를 이용하여 작성하였다.

$^3\text{H}/^3\text{He}$ 을 이용한 지하수 연령은 맨틀 기원의 He에 의해 크게 영향을 받았다. He의 근원 분석을 통해 지하수내의 He이 대기 및 맨틀과 지각의 영향을 받은 지중의 두가지 근원에 좌우됨을 알 수 있다. 지중 근원의 He은 대기중의 He농도에 대해 5.9에서 6.6의 범위에 있다. 이 비율을 이용하여 지하수 연령을 결정하였다. 지하수 연령은 이 비율에 매우 민감하여 일부 시료에서는 0의 연령을 가지기도 하였다.

CFCs에 의한 지하수 연령은 북미 대기 평균을 이용하여 결정하였다. 조사된 지하수는 호기성 환경이므로 미생물에 의한 CFCs 분해는 크지 않을 것이라고 할 수 있다. CFC-11과 CFC-12에 의한 지하수 연령은 대체로 잘 일치하였다.

조사된 지하수 관정은 넓은 스크린 구간을 가지는 경우가 많으므로 채취된 지하수 시료는 일정 범위의 지하수 연령을 가지는 혼합체로 볼 수 있다. ^3H 과 CFC-12를 비교하여 이들의 혼합 특성을 평가한 결과 조사된 지하수는 크게 ^3H 과 CFC-12가 거의 없는 old 그룹, low dispersion (piston flow) 특성을 보이는 young 그룹과 이들의 혼합 그룹의 세 그룹으로 나뉘어졌다. $^3\text{H}/^3\text{He}$ 과 CFC-12 연령 비교와 ^3H 농도 이력과 비교한 $^3\text{H}/^3\text{He}$ 연령에서 piston flow에 해당되는 지하수 시료들은 대체로 잘 일치하지만 혼합 그룹의 시료들은 잘 일치하지 않았다.

공간적으로 서부 해안지역에서 old 그룹의 지하수가 나타나는데 이것은 이 지역에 분포하는 서귀포층 내의 피압대수층과 연관이 큰 것으로 보인다. 상부의 현무암 대수층에서는 young 그룹의 지하수가 우세하다. 따라서 서귀포층은 상부 현무암층과는 수리적인 연결성이 작다고 할 수 있다.

제주도 지역 지하수의 함양 시기와 질산성 질소 농도와의 관계는 혼합 그룹 지하수를 이성분 혼합체로 해석하였을 때, 제주도 지역에서 화학비료 공급량으로 나타낸 질산성 질소 오염 부하량의 시간적인 변화와 유사성을 보이고 있다. 이것은 질산성 질소 오염의 주요 근원이 화학비료임을 지시한다고 할 수 있다. 비료 사용량이 최고조에 달했던 1990년대를 기준으로 간단한 질량 균형 모델로부터 상당량의 NO_3 가 살포된 화학비료로부터 지하수로 유입되고 있음을 알 수 있어, 비료 사용량이 과다하고, 비효율적임을 지시하고 있다.

3. 결론

수리지구화학조사와 ^3H , He, Ne, CFCs 등의 환경추적자 조사를 제주도 지역의 농업용 관정에 대해 실시하였다. $^3\text{H}/^3\text{He}$ 지하수 연령은 지중 He에 의해 크게 영향을 받았으나 좁은 지중 He의 동위원소비를 이용하여 연령 범위를 결정할 수 있었다. CFCs 지하수 연령은 대기 조사 결과를 근거로 복미 대기 평균을 이용하여 결정하였으며, CFC-11과 CFC-12의 결과가 비교적 잘 일치하였다. ^3H 과 CFC-12의 비교로부터 조사된 지하수중 상당수가 old 지하수 요소과 young 지하수 요소의 이성분 혼합체로 구성되어 있음을 알 수 있었다. 서부 해안지역에서 서귀포층내의 피압대수층에 설치된 지하수관정에서 채취된 지하수는 ^3H 과 CFC-12가 거의 없어 50년 이상의 지하수 연령을 가지는 것으로 나타났다. 질산성 질소 오염과 지하수 함양 시기에 따른 NO_3 농도 변화는 제주도 지역 화학비료 공급량과 시간적인 유사성을 보여주고 있다. 이것은 상당량의 NO_3 가 과량의 화학비료로부터 유래하며, 지하수 수질 보호를 위해 화학비료의 적절한 사용 조절이 필요함을 시사한다.

4. 참고문헌

- Bauer, S., Fulda, C., Schafer, W., 2001. A multi-tracer study in a shallow aquifer using age dating tracers ^3H , ^{85}Kr , CFC-113 and SF₆ - indication for retarded transport of CFC-113. *J. Hydrol.* 248, 14-34.
- Böhlke, J.K., Denver, J.M., 1995. Combined use of groundwater dating, chemical, and isotopic analyses to resolve the history and fate of nitrate contamination in two agricultural watersheds, Atlantic coastal plain, Maryland. *Water Resour. Res.* 31, 2319-2339.
- Busenberg, E., Plummer, L.N., 1992. Use of chlorofluorocarbons (CCl_3F and CCl_2F_2) as hydrologic tracers and age-dating tools: the alluvium and terrace system of central Oklahoma. *Water Resour. Res.* 28, 2257-2283.
- Dunkle, S.A., Plummer, L.N., Busenberg, E., Phillips, P.J., Denver, J.M., Hamilton, P.A., Michel, R.L., Coplen, T.B., 1993. Chlorofluorocarbons (CCl_3F and CCl_2F_2) as dating tools and hydrologic tracers in shallow groundwater of the Delmarva Peninsula, Atlantic Coastal Plain, United States. *Water Resour. Res.* 29, 3837-3860.
- Ekwurzel, B., Schlosser, P., Smethie Jr., W.M., Plummer, L.N., Busenberg, E., Michel, R.L., Weppernig, R., Stute, M., 1994. Dating of shallow groundwater: Comparison of the transient tracers $^3\text{H}/^3\text{He}$, chlorofluorocarbons, and ^{85}Kr . *Water Resour. Res.* 30, 1693-1708.
- Katz, B.G., Bohlke, J.K., Hornsby, H.D., 2001. Timescales for nitrate contamination of spring waters, northern Florida, USA. *Chem. Geol.* 179, 167-186.
- Maloszenwski, P., Zuber, A., 1983. Theoretical possibilities of the $^3\text{H}-^3\text{He}$ method in investigations of groundwater systems. *Catena* 10, 189-198.
- Plummer, L.N., Busenberg, E., Bohlke, J.K., Nelms, D.L., Michel, R.L., Schlosser, P., 2001. Groundwater residence times in Shenandoah National Park, Blue Ridge Mountains, Virginia, USA: a multi-tracer approach. *Chem. Geol.* 179, 93-111.
- Plummer, L.N., Busenberg, E., 2000. Chlorofluorocarbons. In: Cook, P. and Herczeg, A.L. (Eds.), *Environmental Tracers in Subsurface Hydrology*. Kluwer Academic Publishers, Boston, 441-478.
- Schlosser, P., Stute, M., Dorr, H., Sonntag, C., Munnich, K.O., 1988. Tritium/ ^3He dating of shallow groundwater. *Earth Planet. Sci. Lett.* 89, 353-362.
- Schlosser, P., Stute, M., Sonntag, C., Munnich, K.O., 1989. Tritogenic ^3He in shallow groundwater. *Earth*

Planet. Sci. Lett. 94, 245-256.

Szabo, Z., Rice, D.E., Plummer, L.N., Busenberg, E., Drenkard, S., Schlosser, P., 1996. Age-dating of shallow groundwater with chlorofluorocarbons, tritium/helium 3, and flow path analysis, southern New Jersey coastal plain. *Water Resour. Res.* 32(4) 1023-1038.

Zoellmann, K., Kinzelbach, W., Fulda, C., 2001. Environmental tracer transport (^3H and SF_6) in the saturated and unsaturated zones and its use in nitrate pollution management. *J. Hydrol.* 240, 187-205.