

강원도 지역 탄산수와 암석간의 반응에 의한 용존 원소들의 유동성에 관한 지구화학적 연구

최현수¹ · 고용권² · 윤성택¹ · 김천수²

¹고려대학교 지구환경과학과, ²한국원자력연구소

Geochemical Study on the Mobility of Dissolved Elements by Rocks-CO₂-rich waters Interaction in the Kangwon Province

Hyen-Su Choi¹, Yong-Kwon Koh², Seong-Taek Yun¹ and Chun-Soo Kim²

¹Dept. Earth & Env. Sci., Korea University, Seoul 136-701, Korea

²Korea Atomic Energy Research Institute, Daejon 305-606, Korea

In order to investigate the relative mobility (RM) of dissolved elements during processes controlling major and trace element content, the concentrations of major, minor and trace elements were reviewed from the previous data of CO₂-rich waters and granites from Kangwon Province. The relative mobility of elements dissolved in CO₂-rich waters is calculated from CO₂-rich water/granite ratio with normalizing by sodium. The results show that gaseous input of magmatic volatile metals into the aquifer is negligible in this study area, being limited by cooling of the rising fluids. Granite leaching by weakly acidic, CO₂-charged water is the overwhelming source of metals. Poorly mobile element (Al) is preferentially retained in the solid residue of weathering, while alkalis, alkaline earth and oxo-hydroxo anion forming elements (especially As and U) are mobile and released to the aqueous system. Transition metals display an intermediate behavior and are strongly dependent on either the redox conditions (Fe and Mn) or solid surface-related processes (adsorption or precipitation) (V, Zn and Cu).

Key words : mobility, geochemistry, CO₂-rich water, water-rock interaction

주요 및 미량원소들의 함량을 조절하는 반응들 동안 용존 원소들의 상대적인 유동성을 알아보기 기준에 발표된 강원도 지역 탄산수와 화강암에 대한 자료로부터 주·부·미량원소의 함량을 다시 살펴보았다. 탄산수내에 용존되어 있는 원소들의 상대적인 유동성은 Na으로 평균화한 탄산수-화강암간의 비로부터 계산하였다. 계산결과는 탄산수 대수충내로 마그마에서 기원한 휘발성을 지닌 금속원소들의 가스에 의한 유입은 강원도 지역에서 무시할 만 하며, 이런 유입은 상승하는 유체의 냉각에 의해 조절된다. 이산화탄소가 유입된 약산성의 물에 의한 화강암의 용해반응이 금속원소들의 주요 공급원이다. 유동성이 매우 낮은 원소 (Al)는 고체의 풍화산물 내에 우선적으로 잔류하는 반면, 알칼리 및 알칼리 토금속들과 OHA 원소들 중 As과 U은 유동성이 있으며, 따라서 수용액에 내로 방출된다. 전이금속원소들은 중간정도의 유동특성을 보이는데, Fe와 Mn은 산화환원조건 또는 V, Zn과 Cu는 고체표면과 연관된 반응(흡착이나 침전)의 의해 주로 영향을 받는다.

주요어 : 유동도, 지구화학, 탄산수, 물-암석반응

1. 서 론

암석의 화학적 풍화는 지표에서 원소들의 지구화학적 순환을 제어하는 주요 과정의 하나이다. 화학적 풍

화는 대기기원의 이산화탄소 또는 지구내부에서 기원한 이산화탄소를 소모하며 암석으로부터 여러 원소들을 추출하게 된다(Garrels and Mackenzie, 1971). 이를 원소들은 다시 하천과 천부 지하수내로 방출되게

*Corresponding author: choihs@kaeri.re.kr

되며, 최종적으로 해양에 도달하게 된다. 화성기원의 암석들 중 현무암은 화학적 풍화에 특히 민감하며, 따라서 현무암은 풍화작용 동안 원소들의 분배를 조사하는데 아주 유용하게 사용된다(Berner and Berner, 1996). 현무암의 풍화작용 동안 원소들의 지구화학적 유동성을 추정하기 위한 여러 연구들이 이루어졌으며, 그中最 첫 번째 접근은 풍화단면에서의 광물 및 화학조성을 연구한 것들(Carr *et al.*, 1980; Chesworth *et al.*, 1981; White, 1983; Nesbitt and Wilson, 1992)이며 풍화정도의 증가에 의한 원소들의 유동성을 유추하는 것이었다. 이 연구들에 따르면, 현무암의 용해는 비조화적(incongruent)이며, 광물들은 같은 속도로 용해되지 않으며, 결과적으로 각 원소들은 수용액의 화학조성에 반응하여 용액과 이차광물간에 분배가 일어나게 된다. 이런 면에서 유동성이 없는 원소들(Al, Fe, Ti)과 유동성이 있는 원소들(Na, K, SiO₂)은 쉽게 구분될 수 있다.

국내에서 산출되는 대부분의 탄산수들은 심부기원의 이산화탄소가 지하수에 다량으로 용해되어 지표로 자연 용출되는 것으로 보고된 바 있다(고용권 등, 1999a, 1999b, 1999c, 2000a, 2000b; 김건영 등, 2000; 최현수 등, 2000). 지하수내에 이산화탄소가 유입될 경우 이산화탄소가 수용액 내에서 해리되면서 일반적으로 수용액의 pH는 낮아지게 된다($H_2CO_3(aq) \leftrightarrow H^+ + HCO_3^-$). 이산화탄소 해리반응에 의해 국내에서 산출되는 대부분의 탄산수들의 pH는 5.5~6.5의 약산성을 나타낸다. 약산성을 띤 탄산수가 단열을 따라 지표근처로 용출하게 되면 탄산수 산출지 주변은 심한 풍화작용을 일으키는 조건이 되며, 따라서 수용액 내에서의 주·미량원소들의 지구화학적 유동성을 심하게 변하게 된다. 따라서 본 연구에서는 강원도 북동부 지역 화강암체와 화강편마암체 내에서 산출되는 탄산수의 주·부·미량원소들의 조성을 제어하는 지구화학적 반응들을 살펴보고자 하였다. 이를 위해 본 연구에서는 암석과 탄산수시료의 각 원소들의 농도비를 Na으로 표준화하여 계산한 상대적인 유동성(RM, relative mobility) 개념을 적용하여 화강암과 탄산수간의 반응동안 일어난 각 원소들의 유동성 차이를 추정하여 보았다. 이와 비슷한 연구들이 시도된 바 있으며(Gislason *et al.*, 1987, 1996), 특히 Aiuppa *et al.*(1998, 2000a)는 지표로 용출되는 탄산수 내의 미량원소들의 상대적인 유동성을 파악하고 화산분화구에서 주변 지하수로 방출되는 금속원소들의 양을 계산하여 이를 근거로 화산작용의 가능성을 파악하기도 하였다.

2. 자질 및 연구방법

연구지역은 강원도 북동부의 상당히 넓은 지역(상하 55 km, 좌우 42 km)을 점하고 있으며, 지질은 주로 선캄브리아기의 편마암류와 시대미상 혹은 쥬라기의 퇴적암류와 중생대 화강암류들로 구성되어 있다(Fig. 1). 편마암은 반상변정질 편마암과 호상편마암으로 구분되며, 연구지역에서 가장 넓게 분포하고 있다. 쥬라기의 세립질 화강암이 오대산 지역에 분포하며, 이를 다시 중립질의 흑운모화강암이 대저반 형태로 관입하고 있는데 연구지역에 분포하는 화강암류중 대부분을 차지하고 있다. 본 연구지역의 주요 지질구조는 화성암류의 관입이후 형성된 NS~N20°E 방향의 수직단층인 월정사단층과 후천단층 그리고 이를 단층보다 후기에 생성된 동서방향을 취하는 연곡단층이 지배를 이루고 있다. 탄산수가 산출되는 지점은 연구지역에 넓게 분포하고 있는 흑운모화강암체와 호상편마암이 접하고 있는 인접부나 화강암체 내이다(Fig. 1). 탄산수 시료들은 그 특성상 다량의 이산화탄소가 용해되어 있어 지표로 용출됨과 더불어 탄산가스의 용탈현상을 관찰할 수 있으며, 이와 수반되어 산출지 주변의 Fe, Mn 등의 금속원소를 다량 함유한 방해석과 소량의 Fe, Mn 산화광물의 집합체로 이루어진 황갈색의 침전물로 피복되어 있다(고용권 등, 2000b).

강원도 지역에서 산출되는 탄산수들은 화학적 특징에 따라 Na-HCO₃ 유형, Ca-Na-HCO₃ 유형 및 Ca-HCO₃ 유형으로 3가지로 구분된다(고용권 등, 2000b). 각 유형의 탄산수간의 특성차이는 심부에서의 반응온도차이 때문에 형성되었는데 즉, 알바이트와 아노사이트간의 온도에 따른 용해도 차이가 특징적인 화학조성을 지닌 탄산수를 형성하였다(고용권 등, 2000b). 또한 최현수 등(2000)에 따르면, 강원도 지역의 모든 탄산수 시료들은 천수기원이며, Na-HCO₃ 유형의 탄산수가 다른 유형의 탄산수에 비해 심부에서 더 활발한 물-암석반응을 겪어 형성되었으며, 탄산수내 용존 이산화탄소의 기원은 심부 기원임을 제시하였다. 생성 심도와 온도 및 물-암석반응의 정도 차이에 의해 탄산수들이 형성되었으며, 따라서 탄산수 내에 용존되어 있는 각 원소들의 유동성 차이는 각 유형 탄산수의 생성환경의 차이를 반영하게 될 것이다. 탄산수 내 주·미량원소들의 상대적인 유동성차이를 알아보고자 본 연구에서는 기존에 발표된 자료들(고용권 등, 2000b; 최현수 등, 2000)을 취합하여 이를 중 대표적인 탄산수 시료들만을 택하여 고려하였으며, 대표적인 시료들의 수리화학

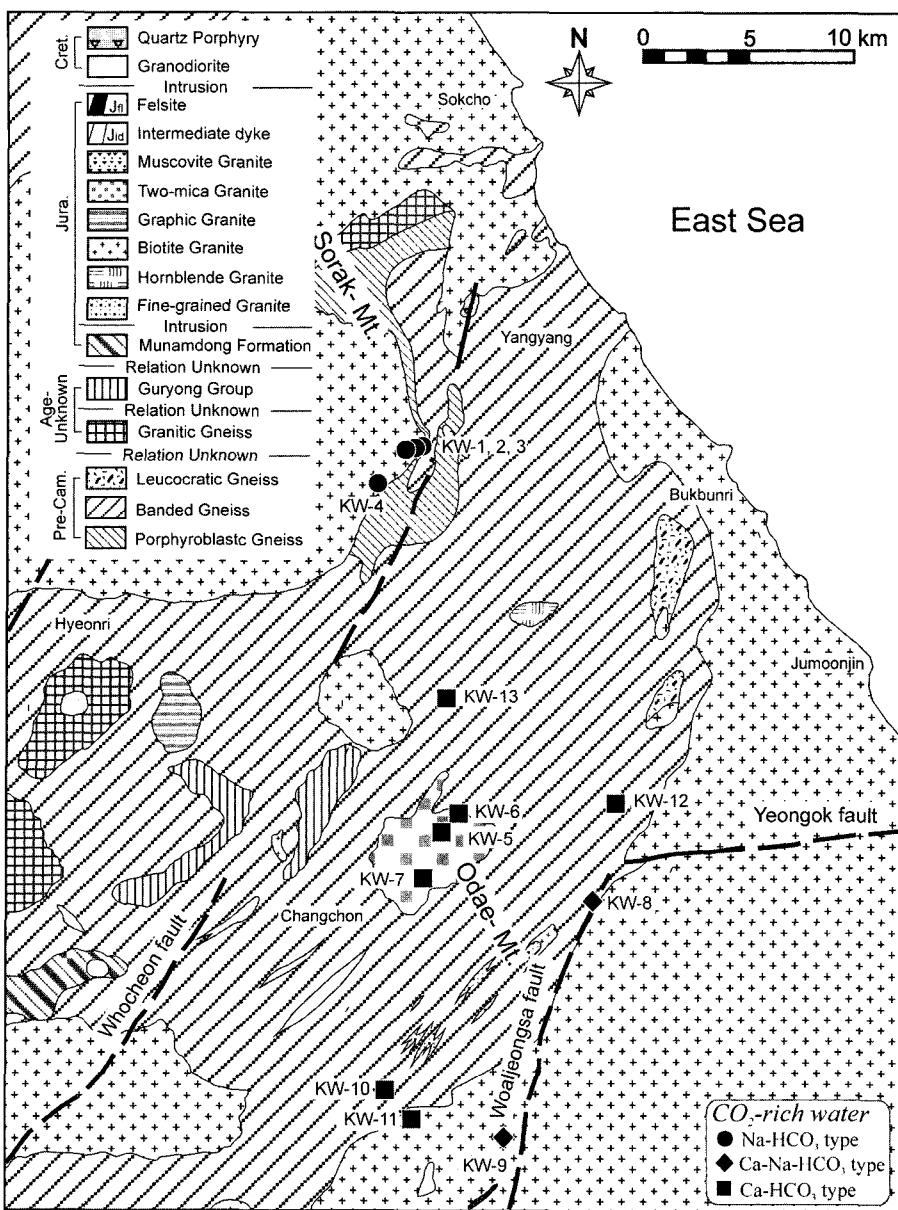


Fig. 1. Geologic map of the northeastern part of the Kangwon Province.

자료들만을 Table 1과 2에 제시하였다. 시료채취 및 분석방법은 상기 논문에 자세히 기록되어 있다.

3. 연구 결과 및 토의

강원도 지역 탄산수는 저온의 산출온도($2.7\sim19.8^{\circ}\text{C}$), 높은 전기전도도($387\sim2176 \mu\text{S}/\text{cm}$) 그리고 주요 음이온을 이루고 있는 높은 HCO_3^- 함량($195\sim2470 \text{ mg/L}$)의

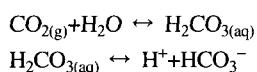
특징을 보인다(Table 1). 기존 연구들(고용권 등, 2000b; 최현수 등, 2000)에 따르면, 탄산수 형성과정에서 지하 심부에서 지하수에 공급되어 지하수의 pH를 낮추며 이로 인해 주변 모암의 용해를 야기하는 심부 기원 CO_2 의 역할을 강조하였다. 또한 대부분의 탄산수들이 천수기원임에도 불구하고, 강원도 지역 탄산수의 이산화탄소 분압은 $10^{-0.43}\sim10^{0.45} \text{ atm}$ 으로 일반적으로 $10^{-3.5} \text{ atm}$ 로 알려진 대기 이산화탄소 분압에 비해

Table 1. Concentrations of major element in studied CO₂-rich groundwaters from the Kangwon Province.

Sample no.	Sampling Date	Temp. (°C)	pH	Eh (mV)	EC (μS/cm)	Concentration (mg/L)									Alkalinity ^a
						Na	K	Mg	Ca	SiO ₂	Cl ⁻	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	F ⁻	
<i>Na-HCO₃ type</i>															
KW-1'	Jul-07-99	18.5	6.2	121	1,348	419.0	25.0	2.1	44.6	87.7	8.3	13.8	<0.1	7.7	1159
KW-1"	Nov-28-00	6.5	6.4	91	2,447	565.1	12.0	1.5	66.1	94.4	9.7	26.9	<0.1	6.5	1595
KW-2'	Jul-07-99	18.2	6.2	131	2,220	544.0	32.1	2.6	57.1	93.1	2.5	22.4	<0.1	7.1	1861
KW-2"	Feb-17-00	2.7	6.1	-10	2,055	513.0	27.5	2.6	56.0	92.0	19.4	24.5	<0.1	10.0	2287
KW-3	Sep-01-98	15.8	5.9	109	864	267.0	7.2	0.5	10.7	71.9	5.0	5.0	0.1	9.3	638
KW-4	Sep-01-98	13.4	5.9	125	1,956	455.0	13.0	5.2	54.0	61.0	8.3	8.0	0.1	4.9	1233
KW-4"	Feb-17-00	7.9	6.7	-15	1,864	460.0	10.0	4.9	51.7	58.6	13.0	12.3	<0.1	7.0	2470
<i>Ca-(Na)-HCO₃ type</i>															
KW-8	Jul-01-98	14.5	5.5	45	725	71.4	4.5	7.3	76.1	32.5	6.7	16.1	0.3	2.4	488
KW-8"	Jul-07-99	16.2	5.7	150	778	91.8	4.0	8.6	88.4	37.9	2.1	12.7	<0.1	2.6	519
KW-8'''	Feb-17-00	1.5	5.7	-27	577	64.6	2.8	5.9	58.3	28.7	10.8	14.1	<0.1	3.4	641
KW-8''''	Nov-28-00	7.9	6.1	124	776	86.9	3.3	5.4	84.4	24.8	5.6	10.9	<0.1	2.4	500
KW-9	Aug-01-98	17.6	5.9	154	1,205	113.0	3.8	21.3	152.0	38.1	20.9	13.2	65.1	1.6	670
KW-9"	Nov-28-00	11.9	6.4	115	1,075	93.2	2.2	11.4	145.2	37.5	8.4	5.1	2.2	2.9	1617
<i>Ca-HCO₃ type</i>															
KW-5	Oct-30-98	14.4	6.0	115	1,528	32.3	4.2	25.7	293.8	76.1	2.9	21.1	0.1	0.9	988
KW-5'	Nov-28-00	6.9	6.1	138	1,475	38.1	2.9	25.9	314.6	61.8	1.8	18.4	<0.1	0.4	1055
KW-6	Oct-30-98	13.3	5.5	165	454	6.6	0.5	9.7	72.5	54.0	3.3	13.6	0.1	1.7	249
KW-7'	Nov-28-00	6.1	5.9	107	878	20.3	2.6	14.0	150.7	66.9	1.8	11.5	<0.1	1.7	452
KW-11'	Nov-28-00	6.7	6.1	128	1,064	38.1	2.4	36.5	168.3	25.5	1.9	4.0	<0.1	0.3	744
KW-12	Aug-01-98	16.2	5.8	135	873	14.8	1.6	36.1	140.0	35.1	2.1	9.2	0.1	0.2	598
KW-12'	Jul-07-99	10.4	5.8	181	915	15.5	4.6	37.2	140.0	39.2	2.3	7.8	<0.1	0.3	702
KW-13'	Nov-28-00	7.6	5.9	107	846	11.4	3.1	50.4	99.1	55.6	1.6	6.9	<0.1	0.2	583

^aAlkalinity=HCO₃⁻

매우 높아 탄산수내 CO₂의 기원이 심부 기원임을 뒷받침해준다. 탄산수내에 용해되어 HCO₃⁻로 대부분의 음이온을 형성하는 CO₂는 모암인 화강암의 풍화동안 CO₂는 다음 식처럼 점진적으로 HCO₃⁻로 해리된다. 따라서 해리된 HCO₃⁻는 다른 양이온들의 함량과 양의 관계를 그리고 pH와는 음의 관계를 보이게 된다 (Fig. 2):



대표적인 탄산수 시료들에 대한 부원소 및 미량원소에 대한 자료가 Table 2에 정리되어 있다. Fe, Sr, Mn같은 부원소들의 함량은 26 μg/L~58 mg/L로 상당히 넓은 범위를 보이는 반면, 다른 미량원소들의 함량은 상대적으로 좁은 범위를 나타낸다. Aiuppa *et al.* (1998)과 Brusca *et al.* (2001)은 이들 부원소들이 넓은 함량범위를 보이는 것을 물-암석반응의 정도차이로 설명한 바 있다. 또한 Bruca *et al.* (2001)은 Li, Rb,

Cs, Sr같은 원소들이 가장 높은 함량을 보이는 시료들이 Na, Mg, Ca, HCO₃⁻에서 가장 높은 함량을 보이며, 이는 가장 많은 CO₂의 용해에 상응하여 증가된 암석의 용해를 뒷받침하는 것으로 설명하였다.

총 43의 탄산수시료부터 계산한 탄산수 내 각 원소들의 평균함량과 함께 총 12개의 암석시료로부터 계산한 암석 내 각 원소들의 평균함량이 Table 4에 제시되어 있다. 또한 이 자료를 근거로 탄산수 내 각 원소들의 평균함량(C_w)과 암석 내의 평균함량(C_s)간의 상관관계를 도시하여 보았다(Fig. 3). Fig. 3은 두 변수들(C_w, C_s)간의 좋은 상관관계를 보여주는데, 이런 상관관계는 암석의 조성이 탄산수의 화학조성을 지배하는 주요 역할을 한다는 것을 나타내며, 또한 암석과 용액 간의 원소들의 분배는 각 원소들의 화학적 거동특성에 의존한다는 것을 보여준다(Aiuppa *et al.*, 2000a, 2000b).

Al의 경우, 탄산수에 비해 암석 내에서 가장 높은 함량을 보이지만, 용액 즉, 탄산수 내에서는 상대적으

Table 2. Concentrations of minor and trace metals in analysed CO₂-rich groundwaters from the Kangwon Province.

Sample no.	Sampling Date	Concentration (mg/L)																
		Fe	Sr	Mn	Al	Li	B	Cr	Cu	Zn	Ge	As	Rb	Mo	Cs	Ba	W	U
<i>Na-HCO₃ type</i>																		
KW-1'	Jul-07-99	5,220	412	103	270	50.9	16.4	5.7	<0.1	8.4	1.8	0.7	121.0	5.7	22.4	214.0	2.2	3.9
KW-1"	Nov-28-00	4,862	524	537	627	472.2	58.3	117.4	0.8	27.3	3.0	8.4	267.2	9.4	22.2	111.8	2.7	22.3
KW-2'	Jul-07-99	2,123	524	113	117	61.9	22.9	10.7	<0.1	8.3	2.1	1.4	150.0	7.8	24.9	170.0	2.2	25.0
KW-2"	Feb-17-00	8,832	532	891	843	372.3	92.9	1.3	0.7	148.1	3.9	1.2	206.0	13.5	16.5	552.0	0.9	74.3
KW-3	Sep-01-98	3,752	62	469	308	340.0	62.0	16.0	0.4	51.1	3.8	1.7	334.0	12.1	21.5	105.0	4.4	10.0
KW-4	Sep-01-98	1,342	480	221	14	475.0	133.0	23.8	8.1	15.6	3.2	2.7	439.0	19.0	30.9	137.0	7.0	81.0
KW-4"	Feb-17-00	1,875	478	243	53	391.5	97.8	74.0	0.3	24.5	2.3	1.6	109.0	16.1	22.9	128.0	3.3	52.5
<i>Ca-(Na)-HCO₃ type</i>																		
KW-8	Jul-01-98	6,267	1,032	635	167	105.0	167.0	18.0	1.2	16.5	1.8	8.2	19.0	1.8	2.1	106.7	0.5	0.7
KW-8'	Jul-07-99	6,702	1,263	329	95	41.7	35.5	8.4	0.3	8.1	0.8	7.7	12.8	1.7	2.6	106.0	0.6	0.8
KW-8"	Feb-17-00	5,423	803	601	368	128.5	56.0	0.6	0.8	23.6	0.8	5.6	10.1	1.3	1.2	334.0	0.4	0.4
KW-8'''	Nov-28-00	5,114	988	702	392	214.9	58.3	58.3	0.3	12.4	2.3	16.1	14.6	1.7	1.9	86.9	0.6	0.7
KW-9	Aug-01-98	1,574	2,270	436	54	303.0	732.0	34.7	4.3	30.3	1.2	1.7	11.1	0.8	0.8	549.0	<0.1	17.2
KW-9'	Nov-28-00	2,776	1,932	769	48	290.4	92.1	47.0	0.4	16.6	22.7	3.1	6.9	5.9	0.4	899.9	<0.1	4.1
<i>Ca-HCO₃ type</i>																		
KW-5	Oct-30-98	16,309	1,733	857	25	60.8	4.7	56.7	1.0	5.9	1.5	17.5	8.1	0.2	0.8	112.5	0.1	<0.1
KW-5'	Nov-28-00	14,653	1,531	1,213	42	80.7	47.1	105.9	0.4	9.0	1.8	26.2	10.5	0.1	1.3	64.6	<0.1	0.2
KW-6	Oct-30-98	6,641	364	656	525	58.3	2.8	42.5	5.1	59.6	0.7	1.2	2.1	0.3	0.6	75.8	0.1	0.7
KW-7'	Nov-28-00	29,047	724	1,101	664	142.7	89.3	90.4	0.3	13.2	1.1	8.1	16.7	<0.1	4.5	40.4	<0.1	0.0
KW-11'	Nov-28-00	7,465	1,670	850	19	163.7	18.2	75.8	2.3	23.4	6.4	3.4	4.3	0.6	0.4	243.7	<0.1	1.1
KW-12	Aug-01-98	15,231	1,580	391	28	41.7	613.0	37.6	3.1	20.6	8.0	0.6	4.4	<0.1	0.3	217.0	<0.1	0.3
KW-12'	Nov-28-00	11,356	1,415	601	6	48.1	36.2	78.9	0.9	26.9	6.2	3.3	3.1	<0.1	0.2	229.3	<0.1	0.2
KW-13'	Nov-28-00	28,275	650	623	28	80.8	82.6	85.6	0.4	117.3	2.3	2.6	14.4	<0.1	0.7	83.7	<0.1	<0.1

로 낮은 함량을 보이고 있다(Fig. 3). 이런 특징은 풍화작용동안 Al이 풍화광물들(oxides, clays) 내로 우선적으로 놓집되는 Al 자체가 지니고 있는 특성을 반영하는 것이며, 따라서 용액 내에서는 유동성이 떨어져 낮은 함량을 보이게 된다. 유동성이 아주 낮은 Al과는 반대로, 알칼리 및 알칼리 토금속원소들(특히 Na, Ca, Mg)은 축의 오른쪽으로 편이된 현상(즉, 암석에 비해 탄산수에 부화된 현상)을 보이는(Fig. 3). 이는 풍화 과정동안 이들 원소들이 용액 내로 우선적으로 분배됨을 지시한다. 또한 절대함량은 낮지만 알칼리 및 알칼리 토금속원소들과 유사한 분포특징이 OHA 원소(oxo-hydroxo anion forming elements)라고 명명된 원소들(As, U)에서도 나타났는데, 이런 특징은 OHA 원소들이 용액 내에서 용해성있는 음이온복합체를 형성하는 경향성 때문이다(Aiuppa *et al.*, 2000a). 전이금속들은 대체로 중간위치에 분포된 특징을 보여준다 (Fig. 3).

As, Zn, Cu 같은 원소들은 고온의 마그마 가스가 용탈되는 과정에서 매우 휘발성있는 복합체를 형성하

는데(Buat-Menard and Arnold, 1978; Andres *et al.*, 1993; Symonds *et al.*, 1992; Gauthier and Le Cloarec, 1998), 이들 원소들은 전형적인 친석원소들(lithophile elements: Na, Mg, Ca, Sr)에 비해 탄산수 내에 부화되어 있지 않다(Table 2). 따라서 직접적인 마그마 가스로부터 이들 휘발성 원소들이 탄산수 내로 유입되는 것을 무시할 수 있으며, 주변 모암의 용해가 이들 원소들의 주요 공급원임을 유추할 수 있다. 마그마 가스에 의한 휘발성 원소들의 공급이 거의 일어나지 않았다는 것은 마그마 가스가 심부에서 지표근처로 상승하는 동안 이미 일어난 냉각 및 혼합반응과 일치하는 바인데, 이러한 사항은 탄산수의 낮은 산출온도, 낮은 Cl과 F 함량 그리고 천수조성에 해당하는 ¹⁸O 성분(최현수 등, 2000)이 이들 뒷받침한다.

3.1. 탄산수 내 금속원소들의 상대적인 유동성

본 연구에서는 물-암석반응동안 탄산수내 각 원소들의 상대적인 유동성차이를 추정하기 위해 상대적인 유동성(relative mobility; RM)을 살펴보았다. RM은 탄

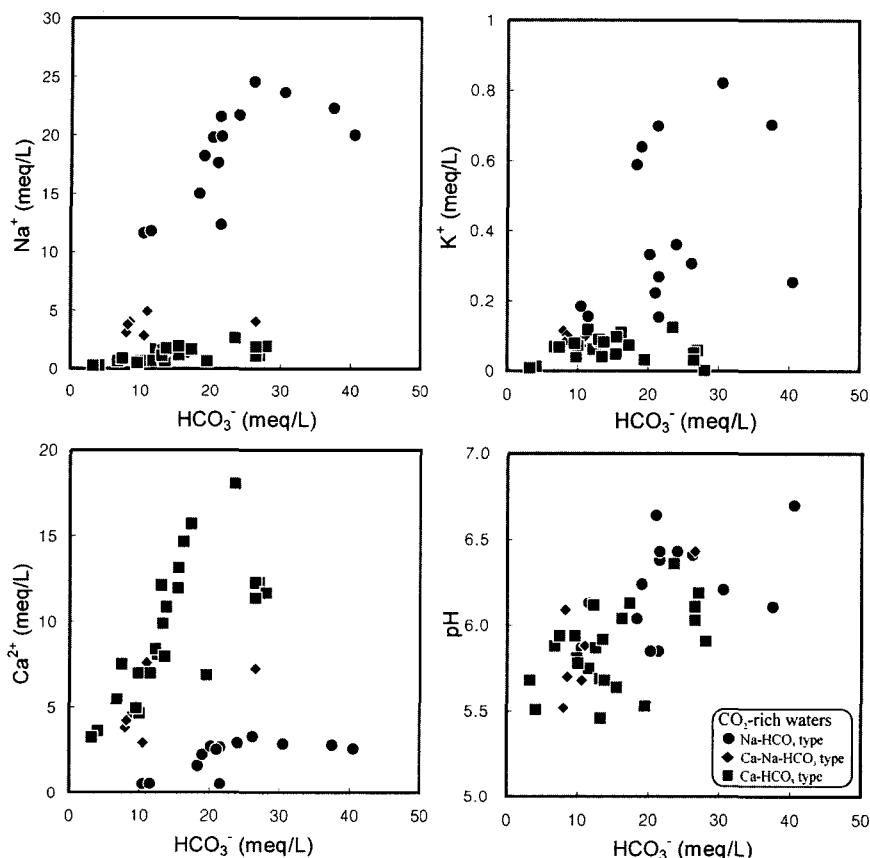


Fig. 2. HCO_3^- vs Na, Ca, K and pH binary diagram for the CO_2 -rich waters from the Kangwon Province. The fairly good correlations observed in the plots indicate that water acidity, resulting from CO_2 dissolution in the aquifer, is neutralized through rock leaching and consequent element release to the solution.

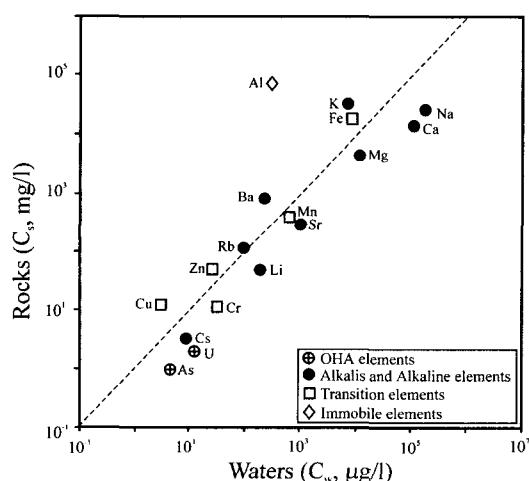


Fig. 3. Average metal concentrations in the CO_2 -rich waters (C_w , $\mu\text{g/l}$) versus average concentrations in local granites (C_s , mg/kg). The term OHAs stands for oxo-hydroxo anion forming elements. Data from Table 4.

산수와 암석간의 각 원소들의 평균 농도(Table 4)를 이용하여 다음 식처럼 Na으로 평균화시킨 후 탄산수와 암석간의 비로 계산하였다:

$$\text{RM} = (\text{X}/\text{Na})_w / (\text{X}/\text{Na})_r \quad (1)$$

식 (1)에서 아래첨자 w와 r은 각각 용액(즉, 탄산수)과 암석을 나타낸다. 풍화작용동안 Na이 강한 화학적 유동성을 지니고 있기 때문에(Aiuppa *et al.*, 2000a) 본 연구에서도 Na을 참고원소로 삼았다. 또한 일반적으로 빗물내의 Na 함량이 낮은 관계로 빗물성분에 대한 보정을 하지 않았다.

계산 결과가 Table 5에 제시되어 있으며, 대표적인 탄산수만을 택해서 Fig. 4와 5에 그림 좌측에서 우측으로 갈수록 RM값이 증가하는 순으로 도시하였다. Fig. 5은 각 유형 탄산수의 평균값과 전체 탄산수의 평균값을 도시한 것이다. Ca을 제외한 대부분의 원소들은 RM 값이 1이하를 보여주는데(Table 5), 이는 이들

Table 3. Concentrations of major, minor and trace elements in analyzed rock samples. All units are mg/kg.

Sample	Remarks	Na	Mg	Al	K	Ca	Fe	Ti	Mn	Sr	Ba	Li	V
R-1	Granite gneiss	30,000	685	75,300	39,900	4,200	9,000	256	886	131	532	18.2	1.8
R-2	Granite gneiss	25,400	1,700	75,300	33,000	11,300	11,100	1,400	305	311	987	30.9	8.8
R-3	Granite gneiss	27,800	812	68,900	34,800	8,800	10,700	425	428	237	1,110	30.8	2.4
R-4	Biotite granite gneiss	30,700	10,600	76,600	17,500	29,500	32,100	3,190	629	403	477	58.1	69.4
R-5	Biotite granite gneiss	28,000	631	72,900	42,300	7,100	10,800	1,350	153	298	1,120	45.3	5.2
R-6	Biotite granite gneiss	22,900	6,200	70,500	29,800	21,600	21,900	2,800	377	352	684	40.6	56.6
R-7	Gneiss	24,300	4,780	70,500	37,600	15,100	17,600	2,410	253	371	1,170	30.9	30.0
R-8	Biotite gneiss	27,700	7,330	80,400	33,800	22,700	26,700	3,350	458	356	573	103.0	39.2
R-9	Biotite gneiss	23,600	3,800	76,200	32,100	13,400	15,600	1,900	261	293	638	82.1	21.4
R-10	Gneiss	19,200	8,500	63,000	19,600	8,500	29,300	2,100	373	241	1,041	84.8	52.0
R-11	Biotite granite	22,900	6,800	71,900	29,600	21,000	22,500	2,800	396	335	653	47.7	55.5
R-12	Biotite gneiss	27,200	2,380	70,300	44,900	7,300	10,900	2,280	204	244	698	14.7	8.8
Sample	Remarks	Cr	Zn	Co	Ni	Cu	As	Rb	Cs	Pb	Th	U	
R-1	Granite gneiss	1.2	40.9	2.6	0.6	6.2	0.8	179.0	1.6	29.3	10.7	1.4	
R-2	Granite gneiss	5.2	63.1	3.5	1.2	10.5	<0.1	110.0	1.4	23.0	10.6	1.9	
R-3	Granite gneiss	0.5	33.5	2.5	0.6	7.4	0.9	103.0	2.1	30.2	16.4	1.6	
R-4	Biotite granite gneiss	9.1	63.5	10.0	5.6	15.3	1.7	46.3	3.0	17.1	6.0	0.9	
R-5	Biotite granite gneiss	3.6	18.8	2.9	6.7	9.9	1.1	140.0	3.0	27.3	15.7	1.7	
R-6	Biotite granite gneiss	8.8	57.3	6.8	3.5	16.3	<0.1	85.3	3.1	21.6	10.5	2.4	
R-7	Gneiss	4.9	44.3	6.7	2.8	12.3	0.7	77.5	2.9	24.6	12.1	1.5	
R-8	Biotite gneiss	7.1	54.5	7.9	3.5	14.5	4.6	133.0	7.9	25.1	15.3	2.5	
R-9	Biotite gneiss	2.7	55.1	4.2	1.6	11.1	<0.1	126.0	2.9	21.2	13.6	1.6	
R-10	Gneiss	69.4	61.0	8.9	29.7	16.4	<0.1	97.9	5.2	14.8	20.7	1.6	
R-11	Biotite granite	9.0	56.2	6.9	3.6	16.2	<0.1	111.0	2.6	21.4	15.9	3.7	
R-12	Biotite gneiss	13.0	35.9	3.8	4.6	10.5	2.1	147.0	2.0	35.6	13.7	2.6	

원소들이 풍화동안 Na보다 더 효과적으로 고체의 풍화산물에 의해 탄산수 내에서 제거되거나 일차광물 격자 내에 남아있다는 것을 지시한다. 분석된 모든 원소들의 전체적인 지구화학적 거동특성을 Aiuppa *et al.* (2000a)가 언급한 원소 그룹별로 살펴보았다.

산수산화 음이온을 형성하는 원소(Oxo-hydroxo anion forming elements; OHA elements): 일반적으로 이 그룹의 원소들에는 Se, Mo, As, Sb와 U이 포함되며 (Aiuppa *et al.*, 2000a), 본 연구에서는 Se, Mo과 Sb는 대부분의 시료에서 농도가 검출한계이하이나 극 미량이라 이를 원소들은 무시하고 As과 U에 대해서만 살펴보았다. 이들 원소들은 0.6~0.9의 RM 값을 보여주어 수용액계에서 상당히 큰 유동성을 지닌다는 것을 나타낸다(Table 5). 이런 특징은 높은 산화상태(5가, 6가)에서 용해성 있는 oxo-hydroxo complexes를 형성하는 이들 원소의 강한 경향성 때문이다. S, C, P처럼 이들 원소들의 높은 이온전위(ionic potential)와 극성(polarizing power)은 용해성 있는 음이온 형성을 야기하는 배타적인 리간드(exclusive ligand)로서 이를

원소가 O²⁻를 이용한다는 것을 의미한다(Aiuppa *et al.*, 2000a).

중성의 pH를 지닌 산화조건의 담수에서 As은 주로 5가(arsenate)의 이온종들(H₂AsO₄⁻, HAsO₄²⁻)로 존재하는 반면, 온천수나 지하수같은 환원조건의 물에서는 3가(arsenite)의 이온종(H₃AsO₃)으로 존재한다(Drever, 1997). As에 대한 Eh-pH 다이아그램이 Fig. 6a에 제시되어 있다. 실제로 자연상에서는 거의 도달하지 않지만 탄산수시료들이 산화환원 평형상태에 도달하였다고 가정한다면, arsenate가 대부분의 시료들에서 우세하며, arsenite는 일부 환원조건을 보이는 시료들에서만 안정하다는 것을 판단할 수 있다(Fig. 6a). 3가와 5가의 As은 모두 산화조건과 환원조건의 용액에서 용해성 있는 화합물을 형성하며(Aiuppa *et al.*, 2000a), 자연수내에서 점토광물이나 철산화물 내에 쉽게 흡착된다. 철산화물에 의한 As의 흡착은 산성의 pH 조건에서 더 쉽게 일어나며, 따라서 As은 철산화물의 자연적인 침전에 의해 수용액으로부터 제거가 될 수 있다. 따라서 약산성의 pH를 보이며 높은 철 함량을 지닌 탄산수

Table 4. Average metal concentrations in CO₂-rich waters (C_w , $\mu\text{g/l}$) and rocks (C_s , mg/kg).

Elements	Waters (C_w , $\mu\text{g/l}$)	Rocks (C_s , mg/kg)
Na	162,600 (6,000-565,100)	25,808 (19,200-30,700)
Mg	14,800 (300-50,400)	4,518 (631-10,600)
Ca	131,700 (10,700-361,800)	14,208 (7,300-29,500)
K	6,900 (100-32,100)	32,908 (17,500-44,900)
Sr	1,027 (26-2,270)	297.7 (131-403)
Fe	11,046 (1,114-57,973)	18,183 (9,000-32,100)
Mn	732.4 (95-2,525)	393.6 (153-886)
Rb	91.4 (<0.1-932.0)	113.0 (14.8-35.6)
Li	166.3 (7.2-543.9)	48.9 (18.2-103.0)
Zn	27.1 (1.4-148.1)	48.7 (18.8-63.5)
Ba	184.4 (<0.1-1,232.0)	806.9 (477-1,170)
As	3.7 (<0.1-26.2)	1.7 (<0.1-4.6)
U	11.6 (<0.1-81.0)	1.9 (0.9-3.7)
Cu	3.7 (<0.1-44.4)	12.2 (6.2-16.4)
Cr	33.1 (0.2-117.4)	11.2 (0.5-69.4)
Al	320.4 (3.0-1,270)	72,650 (63,000-80,400)
Cs	8.1 (<0.1-30.9)	3.1 (1.4-7.9)

Values in the parenthesis are ranges of metal contents.

(Table 1 and 2)는 지표로 용출됨과 더불어 탄산수산출지 주변에 황갈색의 침전물을 수반하며 As의 제거가 쉽게 일어날 수 있다. 탄산수가 심부에서 생성되었음을 고려할 때(고용권 등, 2000b; 최현수 등, 2000), 탄산

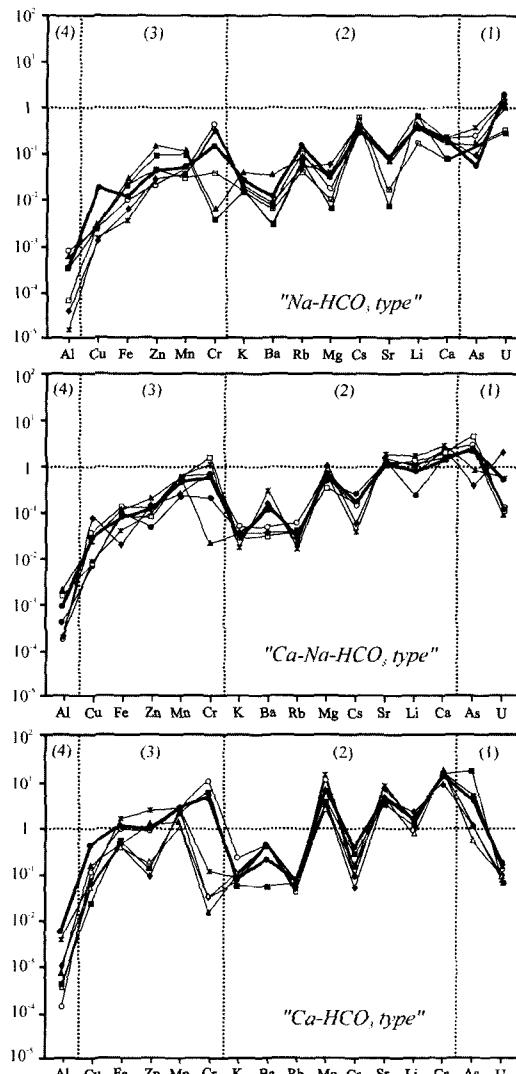


Fig. 4. Relative mobility of metals in each types of CO₂-rich waters. RM values were normalized to sodium and calculated from equation (1) (see text). Elements are arranged in four groups characterized by increasing average mobility (1. OHA elements; 2. alkalis and alkaline earths; 3. transition metals; 4. immobile metals). Relation metal mobilities in selected samples are compared to the average trend (bold line).

Table 5. The relative mobility (RM) of elements calculated from water-rock concentration ratio (normalized to sodium).

	K	Mg	Ca	Fe	Sr	Mn	Al	Li	Cr	Cu	Zn	As	Rb	Cs	Ba	U
Na type	0.029	0.032	0.185	0.011	0.075	0.049	0.0004	0.391	0.180	0.021	0.042	0.159	0.145	0.431	0.012	1.062
Ca-Na type	0.031	0.656	2.108	0.076	1.380	0.437	0.0008	1.097	0.739	0.029	0.109	2.122	0.033	0.141	0.128	0.609
Ca type	0.071	4.897	12,741	0.894	4.209	2,435	0.0038	1.453	2.895	0.280	0.495	3.306	0.057	0.320	0.183	0.109
Average	0.032	0.377	1.125	0.066	0.493	0.231	0.0090	0.558	0.406	0.036	0.076	0.632	0.122	0.379	0.039	0.941

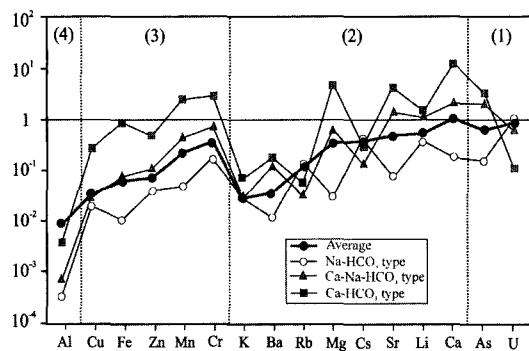


Fig. 5. Average relative mobility of metals in each types of CO_2 -rich waters and also compared to the average trend (bold line). Arranged mobility orders are also the same in Fig. 4.

수는 환원환경의 상태를 보여주어야 하지만 실제 현장에서 측정한 산화환원전위는 대부분 낮은 값을 보여주지는 않는다. 철수산물의 경우 환원환경의 물에서는 안정된 상이 아님에도 불구하고 탄산수에서 철수산물을의 침전이 일어난다. 따라서 탄산수로부터 철수산화물이 형성되는 것은 심부의 환원환경에서 생성되었던 탄산수가 천부나 지표근처의 산화조건으로 유동함으로서 탄산수가 지녔던 원래의 산화환원조건이 바뀌었기 때문이다(Aiuppa *et al.*, 2000a). As 이온종들 중에서 산화된 형태인 arsenate(As^{5+})는 arsenite(As^{3+})보다 비정질의 철수산화물에 흡착이 훨씬 더 잘 일어난다(Pierce and Moore, 1982). 따라서 다량의 Fe 함량을 지닌 탄산수가 지표근처로 유동하여 산화환원환경이 변화함으로서 arsenite에서 arsenate로의 산화는 탄산수로부터 침전되는 철수산화물로의 As 흡착을 증가시키게 된다.

As과 유사하게 철수산물에 의한 U의 제거가 Langmuir(1978)와 Hsi and Langmuir(1985)에 의해 언급된 바 있다. U에 대한 Eh-pH 다이아그램(Fig. 6b)은 환원조건을 나타내는 시료들이 환원종(4+, 5+)과 산화종(6+)간의 경계부에 도시됨을 보여준다. 환원조건의 탄산수들이 지표근처로 유동함으로서 이를 탄산수들은 천부의 지하 대수층으로부터 산소를 공급받게 되어 산화조건으로 바뀌게 된다. 5~8의 pH 범위에서 가장 혼한 +6가의 U 종인 uranyl 이온(UO_2^{2+})은 hematite, goethite와 비정질의 철수산화물같은 핵철광물들에 의해 매우 흡착이 잘 일어난다. +4와 +5가의 U 종에서 +6가로의 산화율은 철수산화물 표면상에서 흡착에 의해 우선되며, 이는 지하수로부터 U를 제거하게 된다. Fig. 6b는 천부의 산화된 물에서 우라늄이 높은

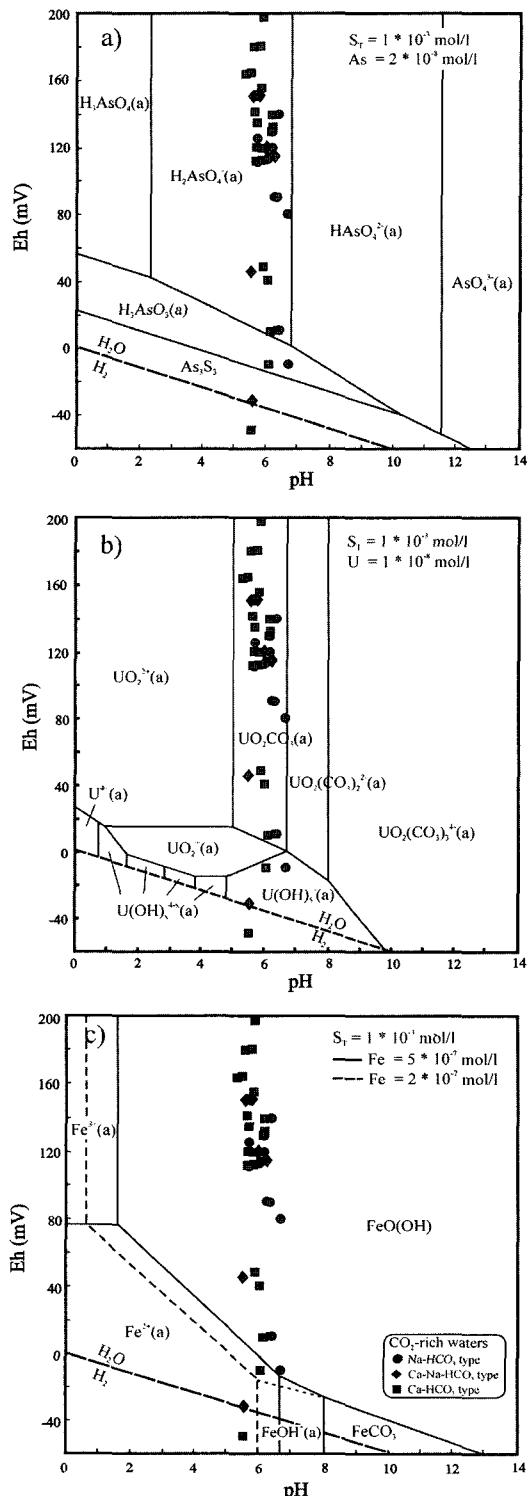


Fig. 6. Eh-pH diagrams for selected elements (data from Brookins, 1988): (a) Arsenic; (b) Uranium, (c) Iron.

유동도를 지니는 것은 $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$ 과 $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ 같은 용해성 있는 uranyl-carbonate complex의 형성 때문이라는 것을 지시해준다. 앞서 살펴보았듯이 탄산수는 심부의 환원조건에서 천부로 유동하여 원래의 산화환원 조건이 상대적으로 산화조건으로 바뀐 점과 심부기원의 CO_2 가스의 해리와 물-암석반응에 의해 증가된 알칼리도는 탄산수 내에서 uranyl-carbonate complex 형태로 U의 유동성을 높일 수 있다. 또한 $\text{Ca}-\text{HCO}_3$ 유형 탄산수에 비해 $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 유형 탄산수가 상대적으로 높은 U 함량을 보여주는데(Table 2), 이는 탄산수가 천부로 유동하여 원래의 산화환원조건을 나타내지 않지만 $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 유형 탄산수가 상대적으로 더 심한 환원 환경이었을 것으로 사료된다. 그리고 이런 조건은 탄산수의 생성조건이 $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 유형이 $\text{Ca}-\text{HCO}_3$ 유형보다 더 심부조건이며, 고온에서 형성되었다는 고용권 등(2000b)의 설명을 간접적으로 뒷받침 해줄 수 있다고 판단된다.

OHA 원소로 정의된 원소들 중에서 As, Se과 Mo는 강한 친동성(chalcophile affinity)을 지니고 있으며 (Aiuppa *et al.*, 2000), 심한 환원조건에서 이를 원소들의 지구화학적 유동성은 불용성 황화물(insoluble sulfides)의 형성에 의해 감소되게 된다(Vink, 1996). 강원도 지역 탄산수는 대부분 적은 SO_4^{2-} 함량을 보이고 있으며(Table 1), 최현수 등(2000)은 용존 황산염에 대한 황동위원소 분석결과가 30%까지의 높은 값을 보여주어 심부의 환원조건에서 황산염 환원작용이 일어나 용존 SO_4^{2-} 가 탄산수로부터 제거된 것으로 설명하였으며, 따라서 상기 반응은 무시할 수 있을 것으로 판단된다. 하지만 탄산수로부터 형성된 침전물에서 황화광물이 고체상으로 존재하는지에 대한 광물학적인 분석이 이루어지지 않았으며, 따라서 심부에서 풍화작용동안 친동원소(chalcophile element)에 의한 이를 원소들의 제거(Jean and Bancroft, 1986; Renders and Seward, 1989)가 일어나지 않았다고 판단할 수는 없다.

알칼리 및 알칼리 토금속(Alkali and alkaline earth elements): 알칼리 및 알칼리 토금속 원소들은 A-type의 금속들로 분류되며(Stumm and Morgan, 1996), 용액 내에서 불활성가스 형태의 전기적 배열 (inert gas-type electronic configuration) 때문에 양이온을 형성하며, 음이온들(OH^-)과 안정된 복합체를 형성한다(Aiuppa *et al.*, 2000a). 또한 이를 원소들은 낮은 극성 때문에 수용액 내에서 자유이온으로서 존재하며, 따라서 다른 무기 리간드(inorganic ligand)들보다 쉽게 물에 용해가 되어 높은 유동성을 지닌다.

저온에서 현무암의 풍화작용동안 알칼리 및 알칼리 토금속의 유동성에 관한 연구들이 이루진 바 있다. Gislason *et al.*(1996)은 아이슬란드 지역 하천에서 측정한 원소들의 유동성은 하천이 짧은 시기와 오랜 시기의 현무암을 유동할 때 서로 다르다는 것을 보여주었다. 즉 오래된 암석의 경우 사장석의 풍화가 심해 Ca과 Sr은 암석의 연령이 증가할수록 유동성이 증가하기 때문이다. 또한 Gislason and Eugster(1987)은 현무암 용해실험에서 알칼리 및 알칼리 토금속의 유동성은 유리질 성분($\text{Na} > \text{K} > \text{Ca}, \text{Mg}$)에서와 결정질 성분($\text{Na} \gg \text{K} > \text{Ca} > \text{Mg}$)에서 차이가 남을 보여주었다.

Table 5와 Fig. 4 and 5에 각 유형별 탄산수의 알칼리 및 알칼리 토금속원소들에 대한 평균 유동성이 각각 제시 및 도시되어 있다($\text{Ca} > \text{Na} \geq \text{Li} > \text{Sr} > \text{Cs} \geq \text{Mg} > \text{Rb} \geq \text{Ba} \geq \text{K}$). 각 유형의 탄산수간에 상대적으로 RM 값에서는 차이를 보이지만, 각 유형별로 유동성 순서는 큰 차이를 보여주지 않는데(Fig. 4 and 5), 이는 강원도 지역 암석에 대한 화학분석자료 (Table 3)가 거의 차이를 보이지 않는 것과 일치한다. Ca은 1.125의 RM 값을 보여주어 탄산수 내에서 Na보다 높은 유동성을 지니고 있음을 나타낸다. 각 유형별로 보았을 때 $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 유형이 다른 유형에 비해 전체적으로 모든 원소에 대한 RM 값이 낮게 나타났는데(Fig. 4 and 5), 이런 특징은 $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 유형에서 Na이 금속이온들 중 대부분을 차지하고 있으며, 기준원소를 Na으로 삼았기 때문이다. $\text{Ca}-\text{HCO}_3$ 유형이 거의 대부분 원소들에서 높은 RM 값을 보여주는데, 이는 $\text{Ca}-\text{HCO}_3$ 유형의 탄산수 내에는 기준 원소로 삼은 Na 함량이 매우 낮아 다른 원소들의 유동성이 상대적으로 높은 것같이 보여지고 있다.

Na에 비해 상대적으로 Sr, Li 및 Cs 원소들의 선택적인 제거를 일으키는 이차광물들은 각각 calcite와 zeolites, magnesian minerals 과 amorphous silica이다. Gislason and Eugster(1987)의 실험결과에 따르면, 이를 광물들은 현무암의 저온변질광물조합들에서 발견되었다. 강원도 지역 탄산수에서 Ba은 알칼리 및 알칼리 토금속원소들 중 아주 낮은 유동성을 나타내는데, 이런 특징은 Ba의 큰 이온반경과 Cs처럼 점토광물에 놓임되는 경향성으로 설명될 수 있다. 또한 Ba의 1차광물들(witherite, BaCO_3 ; barite, BaSO_4)이 탄산수에서 거의 불포화상태를 보여주고 있어 용액 내에서 사장석의 낮은 용해도에 의해 Ba이 풍화된 암석 내에 보유된다고 가정할 수 있다. 더구나 Ca과 비교하였을 때 Ba의 큰 이온반경은 고체상에 대한 더 큰 친화성과 더 높은

잔류특징을 설명해준다. Ca과 Ba의 중간 정도의 이온 반경을 지닌 Sr은 실제 중간정도의 유동성을 나타내고 있다(Ca \gg Sr \gg Ba). 고체의 철-망간수산화물에 의한 Ba의 흡착은 풍화작용동안 Ba의 제한된 유동성을 설명해줄 수 있다(Murray, 1975).

전이금속(Transition metals): 전이금속들 중 Mn, Cu, Zn은 알칼리-알칼리 토금속들과 불용성 원소 ($RM < 0.01$)의 중간 위치($0.03 < RM < 0.2$)에 해당한다. 전이금속들 중 Fe는 불용성 원소(Al)와 유사한 유동성을 지니는데 이는 Fe가 고체의 풍화산물 내에 보유된다는 것을 나타낸다.

풍화작용동안 전이금속들의 지구화학적 거동은 ferromagnesian minerals의 용해에 주로 의존하게 된다(Aiuppa *et al.*, 2000). 감람석과 휘석은 강원도 지역 탄산수에서 거의 불포화상태를 보여주고 있어 용액 내로 미량원소들을 방출하는 반면에, 산화광물들(magnetite, ilmenite-hematite solid-solution)은 풍화에 대한 저항성이 강해 암석 내에 Fe, Cr 등이 잔류하게 되며, 따라서 이들 원소의 유동성이 제한되게 된다(Aiuppa *et al.*, 2000a). 가수분해반응 동안 수산화물 복합체가 형성되는 반응은 수용액에서 전이금속들이 관련된 가장 흔한 반응이다(Baes and Mesmer, 1976; Stumm and Morgan, 1996). 양이온의 가수분해는 이온반경의 감소와 전하의 증가에 의해 증가된다. 금속원소들의 가수분해산물과 그들의 산화물 및 수산화물의 용해도간에 좋은 상관관계가 존재하기 때문에 전이금속들의 유동성은 불용성 복합체의 형성에 의해 제한되게 된다.

전이금속들은 다른 산화상태를 지닐 수 있으며, 이는 산화환원전위의 변화는 용액에서 전이금속들의 지구화학적 유동성을 결정짓는데 아주 중요한 역할을 한다는 것을 의미하는데, 환원종 또는 산화종이 용해성이 없는지, 반면에 다른 형태가 용해성이 있는지를 판단할 때 특히 중요하다. 대부분의 전이금속들은(특히 Fe와 Mn의 경우) 용액의 Eh 값에 대해 중요한 의존성을 지닌다. Fig. 6c은 환원조건을 나타내는 일부 탄산수 시료들만이 용해성있는 Fe^{2+} 종의 영역에 도시되는 반면, 대부분 탄산수시료들은 고체상(goethite)의 안정영역에 도시됨을 보여주고 있다.

Vanadium(V)의 경우, vanadyl ion(VO^{2+})의 산화율이 철수산화물상에 흡착에 의해 크게 증가된다고 설명된 바 있다(Wehrli and Stumm, 1989). 철수산화물의 침전에 의한 V의 제거가 Fe 함량이 높은 탄산수의 경우

매우 낮은 V 함량을 보일수 있다는 것을 설명할 수 있다. 강원도 지역 탄산수의 경우 대부분의 시료들에서 V이 분석한계치 이하로 검출되었으며, 따라서 이런 낮은 V 함량은 상기 반응때문인 것으로 사료된다. 또한 Cu와 Zn도 이와 비슷한 반응에 의해 탄산수로부터 제거가 일어날 수 있으며, 역시 탄산수 내에서 함량도 대체로 낮다(Table 2).

4. 결 론

강원도 지역 탄산수 및 암석에 대한 금속원소들의 상대적인 유동성을 고찰해 본 결과는 천부의 환경에서 금속원소들의 순환에서 심부유체의 중요성을 제시하였다. 본 연구지역에서 금속원소들이 심부유체로부터의 직접적인 공급을 배제하더라도 상승하는 심부유체의 가스성분 특히 CO_2 가스는 주변 암석의 심한 용해를 유발할 수 있으며, 이런 작용은 수용액(탄산수)내로 금속원소들을 방출하게 한다.

심부기원 CO_2 가스 (즉, 탄산수)와 모암간의 반응에 의한 탄산수내로 주·부·미량원소들의 방출은 다음과 같은 요인에 의해 영향을 받는다: 1) 모암의 화학조성, 2) 탄산수의 물리-화학적 조건들 (온도, 산도, 산화환원전위), 3) 심부기원의 CO_2 가스의 유입(유체내로 원소들의 방출을 야기하거나 천부 대수층내로 휘발성 원소들을 직접적으로 공급시킴), 4) 산화물상에 금속원소들의 흡착, 용해성있는 복합체의 형성 또는 고체상으로의 침전. 수용액의 pH와 Eh는 상기 모든 요인에 주요한 영향을 미친다. 대부분의 원소들은 pH 및 알칼리도와 좋은 상관관계를 보여주며, 이는 탄산수내로 금속원소들의 분배는 산성의 풍화조건에서 증가되었다는 것을 지시해준다. 산화환원상태는 일부 산화환원환경에 민감한 원소들(Fe, Mn, V, As)의 지구화학적 거동에 큰 영향을 준다. Na으로 평균화한 각 원소들의 상대적인 유동성(RM)은 $10^{-3} < RM < 100$ 으로 넓은 범위를 보여주어 화강암의 풍화작용은 조화적인 반응이 아니라 비조화적인 반응임을 지시해준다.

사 사

본 연구는 한국과학재단 특정기초연구(과제번호: 1999-2-131-002-3)의 일환으로 수행되었으며, 부분적으로 과학기술부의 원자력 중장기 연구개발과제의 지원을 받은 바를 밝히며, 이에 감사한다.

참고문헌

- 고용권, 김천수, 배대석, 김건영, 정형재 (1999a) 초정지역 탄산수의 지구화학적 연구 I. 수리화학. 지하수환경, 6권, p. 159-170.
- 고용권, 김천수, 배대석, 최현수 (1999b) 초정지역 탄산수의 지구화학적 연구 II. 동위원소. 지하수환경, 6권, p. 171-179.
- 고용권, 김천수, 배대석, 이동의 (2000a) 문경지역 심부지 하수의 수리화학 및 환경동위원소 연구. 자원환경지질, 33권, p. 469-489.
- 고용권, 김천수, 최현수, 박맹언, 배대석 (2000b) 강원도 지역 탄산약수의 지화학적 연구. 지하수환경, 7권, p. 73-88.
- 고용권, 윤성택, 김천수, 최현수, 김건영 (1999c) 중원지역 탄산수의 지구화학적 진화. 자원환경지질, 32권, p. 469-483.
- 김건영, 고용권, 배대석, 김천수, 박맹언 (2001) 경상지역 신촌 탄산약수의 지화학적 및 동위원소 특성. 자원환경지질, 34권, p. 71-88.
- 최현수, 고용권, 김천수, 배대석, 윤성택 (2000) 강원도 지역 탄산수의 환경동위원소적 특성. 자원환경지질, 33권, p. 491-504.
- Aiuppa, A., Allard, P., D'Alessandro, W., Michel, A., Parello, F. and Treuil, M. (1998) Trace element hydrogeochemistry of Mt. Etna, Sicily: insight on water-rock interaction. Proc. of the 9th Internat. Symp. on Water Rock Interaction, Taupo, New Zealand, 30 March-3 April 1998. (eds. Arehart and Hulston), pp. 195-198. Balkema, Rotterdam.
- Aiuppa, A., Allard, P., D'Alessandro, W., Michel, A., Parello, F., Treuil, M. and Valenza, M. (2000a) Mobility and fluxes of major, minor and trace metals during basalt weathering and groundwater transport at Mt. Etna volcano (Sicily). *Geochim. Cosmochim. Acta*, v. 64, p. 1827-1841.
- Aiuppa, A., Dongarr, G., Capasso, G. and Allard, P. (2000b) Trace elements in the thermal groundwaters of Vulcano Island (Sicily). *J. Volcanol. Geotherm. Res.*, v. 98, p. 198-207.
- Andres, R., Kyle, P.R. and Chuan, R.L. (1993) Sulphur dioxide, particle and elemental emissions from Mount Etna, Italy during July 1987. *Geol. Rundsch.*, v. 82, p. 687-695.
- Baes, C.F. and Mesmer, R.E. (1976) Hydrolysis of cations. Wiley-Interscience, New York.
- Berner, E.K. and Berner, R.A. (1996) Global environment: Water, air and geochemical cycle. Prentice-Hall, 396p.
- Busca, L., Aiuppa, A., D'Alessandro, W., Parello, F., Allard, P. and Michel, A. (2001) Geochemical mapping of magmatic gas-water-rock interactions in the aquifer of Mount Etna volcano. *J. Volcanol. Geotherm. Res.*, v. 108, p. 199-218.
- Buat-Mard, P. and Arnold, M. (1978) The heavy metal chemistry of atmospheric particulate matter emitted by Mount Etna volcano. *Geophys. Res. Lett.*, v. 5, p. 245-248.
- Carr, R.G., Rodgers, K.A. and Black, P.M. (1980) The chemical and mineralogical changes accompanying the laterization of basalt at Kerikeri, North Auckland. *J. Royal Society of New Zealand*, v. 10, p. 247-258.
- Chesworth, W., Dejou, J. and Larroque, P. (1981) The weathering of basalt and relative mobilities of the major elements at Belbex, France. *Geochim. Cosmochim. Acta*, v. 61, p. 1235-1243.
- Drever, J.I. (1997) The geochemistry of natural waters: surface and groundwater environments. 3rd(ed.), Prentice Hall, New Jersey, 436pp.
- Garrels, R.M. and Mackenzie, F.T. (1971) Evolution of sedimentary rocks. Norton, New York.
- Gauthier, P.L. and Le Cloarec, M.F. (1998) Variability of alkali and heavy metal fluxes released by Mt. Etna volcano, Sicily, between 1991 and 1995. *J. Volcanol. Geotherm. Res.*, v. 81, p. 311-326.
- Gislason, S.R. and Eugster, H.P. (1987) Meteoric water-basalt interactions. II: A field study in NE Iceland. *Geochim. Cosmochim. Acta*, v. 51, p. 2841-2855.
- Gislason, S.R., Arnorsson, S. and Armannsson, H. (1996) Chemical weathering of basalt as deduced from the composition of precipitation, rivers and rocks in SW Iceland. *Am. J. Sci.*, v. 296, p. 837-907.
- Hsi, C.D. and Langmuir, D. (1985) Adsorption of uranyl onto ferric oxyhydroxides: application of the surface complexation site-binding model. *Geochim. Cosmochim. Acta*, v. 49, p. 1931-1941.
- Jean, G.E. and Bancroft, M. (1986) Heavy metals adsorption by sulphide minerals surfaces. *Geochim. Cosmochim. Acta*, v. 50, p. 1455-1463.
- Langmuir, D. (1978) Uranium solution-mineral equilibria at low temperatures with application to sedimentary ore deposits. *Geochim. Cosmochim. Acta*, v. 42, p. 547-569.
- Murray, J.W. (1975) The interaction of metal ions at manganese dioxides-solution interface. *Geochim. Cosmochim. Acta*, v. 39, p. 505-519.
- Nesbitt, H.W. and Wilson, R.E. (1992) Recent chemical weathering of basalt. *Am. J. Sci.*, v. 292, p. 740-777.
- Pierce, M.L. and Moore, C.B. (1982) Adsorption of arsenite and arsenate on amorphous iron hydroxide. *Water Res.*, v. 16, p. 1247-1253.
- Renders, P.J. and Seward, T.M. (1989) The adsorption of thio gold(I) complexes by amorphous As₂S₃ and Sb₂S₃ at 25 and 90. *Geochim. Cosmochim. Acta*, v. 53, p. 255-267.
- Symonds, R.B., Reed, M.K. and Rose, W.I. (1992) Origin, speciation and fluxes of trace-element gases at Augustine Volcano, Alaska: Insights into magma degassing and fumarolic processes. *Geochim. Cosmochim. Acta*, v. 56, p. 633-657.
- Stumm, W. and Morgan, J.J. (1996) Aquatic chemistry: Chemical equilibria and rates in natural waters. 3rd ed. Wiley-interscience publication. 1022p.
- Wehrli, B. and Stumm, W. (1989) Vanadyl in natural waters: Adsorption and hydrolysis promote oxygenation. *Geochim. Cosmochim. Acta*, v. 53, p. 69-77.
- White, A.F. (1983) Surface chemistry and dissolution kinetic of glassy rocks. *Geochim. Cosmochim. Acta*, v. 47, p. 805-816.
- Vink, B.W. (1996) Stability relations of antimony and arsenic compounds in the light of revised and extended Eh-pH diagrams. *Geochim. Cosmochim. Acta*, v. 130, p. 21-30.