

자연적 지하수 비소오염의 국내외 산출특성

안주성^{1*} · 고경석² · 이진수² · 김주용³

¹한국지질자원연구원 지하수지열연구부, ²한국지질자원연구원 지질환경재해연구부, ³광주과학기술원 환경공학과

Characteristics of Natural Arsenic Contamination in Groundwater and Its Occurrences

Joo Sung Ahn^{1*}, Kyung-Seok Ko², Jin-Soo Lee² and Ju-Yong Kim³

¹Groundwater and Geothermal Resources Division, Korea Institute of Geoscience and Mineral Resources, Daejeon 305-350, Korea

²Geological and Environmental Hazards Division, Korea Institute of Geoscience and Mineral Resources, Daejeon 305-350, Korea

³Department of Environmental Science and Engineering, Gwangju Institute of Science and Engineering, Gwangju 500-712, Korea

General characteristics of groundwater contamination by As were reviewed with several recent researches, and its occurrence in groundwater of Korea was investigated based on a few previous studies and a groundwater quality survey in Nonsan and Geumsan areas. In Bangladesh, which has been known as the most serious arsenic calamity country, about 28% of the shallow groundwaters exceeded the Bangladesh drinking water standard, 50 µg/L, and it was estimated that about 28 million people were exposed to concentrations greater than the standard. Groundwater was characterized by circum-neutral pH with a moderate to strong reducing conditions. Low concentrations of SO₄²⁻ and NO₃⁻, and high contents of dissolved organic carbon (DOC) and NH₄⁺ were typical chemical characteristics. Total As concentrations were enriched in the Holocene alluvial aquifers with a dominance of As(III) species. It was generally agreed that reductive dissolution of Fe oxyhydroxides was the main mechanism for the release of As into groundwater coupling with the presence of organic matters and microbial activities as principal factors. A new model has also been suggested to explain how arsenic can naturally contaminate groundwaters far from the ultimate source with transport of As by active tectonic uplift and glaciation during Pleistocene, chemical weathering and deposition, and microbial reaction processes. In Korea, it has not been reported to be so serious As contamination, and from the national groundwater quality monitoring survey, only about 1% of groundwaters have concentrations higher than 10 µg/L. However, it was revealed that 19.3% of mineral waters, and 7% of tube-well waters from Nonsan and Geumsan areas contained As concentrations above 10 µg/L. Also, percentages exceeding this value during detailed groundwater quality surveys were 36% and 22% from Jeonnam and Ulsan areas, respectively, indicating As enrichment possibly by geological factors and local mineralization. Further systematic researches need to proceed in areas potential to As contamination such as mineralized, metasedimentary rock-based, alluvial, and acid sulfate soil areas. Prior to that, it is required to understand various geochemical and microbial processes, and groundwater flow characteristics affecting the behavior of As.

Key word : Arsenic, Groundwater, Geochemistry, Occurrence

이 논문에서는 지하수 비소오염의 일반적 지구화학적 특성을 이해하고 기존 연구사례와 논산/금산지역의 지하수 관정 수질분석 자료 등을 바탕으로 국내 지하수의 비소 산출양상을 평가하고자 한다. 가장 심각한 비소오염이 발생한 방글라데시에서는 약 28%의 관정에서 50 µg/L 이상의 비소함량이 확인되며 2천8백만의 인구가 이에 노출된 것으로 추정한다. 주요한 오염지하수의 특성으로 중성 pH와 중간 또는 강한 환원환경, 낮은 SO₄²⁻, 및 NO₃⁻ 함량, 높은 용존 유기탄소, NH₄⁺ 함량 등을 들 수 있으며 비소는 주로 3가 형태로 존재하고 홀로세 천부 대수층에서 함량이 높게 나

*Corresponding author: jsahn@kigam.re.kr

타난다. 일반적으로 대수층내 철수산화물의 환원성 용해 현상으로 비소가 유출되는 것으로 받아들여지며 유기물질의 존재, 미생물의 활동 등이 주요한 요소로 평가된다. 플라이아스토세 빙하활동에 의해 원거리 비소기원물질의 풍화 및 이동, 화학적 집적, 미생물 활동 등의 요인으로 광역적인 세계 주요 오염발생지역의 특성을 해석하기도 한다. 국내에서는 심각한 비소오염 발생사례는 보고되지 않고 있으며 지하수 수질측정망 운영결과 10 µg/L 이상의 비소함량은 전체 1% 내외에서 나타나지만, 먹는샘물 수질평가에서 이를 초과하는 업체수가 19.3%에 달하고 논산 및 금산 지역의 간이급수용 관정 수질조사에서 약 7%가 초과하는 결과를 보였다. 전남 일부와 울산 지역의 지하수 수질조사 결과에서도 10 µg/L 이상의 함량이 각각 36%, 22%에 달하여 변성퇴적암 등의 지질영향과 광화작용에 따른 비소오염이 발생할 수 있음을 보여준다. 향후 국내 지하수 비소오염 평가연구를 위하여 비소거동에 영향을 주는 다양한 지구화학적 및 미생물학적 반응과 지하수 유동특성에 대한 이해가 선행되어야 하며 광화대 지역, 옥천대 변성퇴적암 지역, 부산 경남 일대의 미고결 퇴적층 및 산성황산염 토양 분포지역 등에 대한 보다 체계적인 조사와 연구가 요구된다.

주요어 : 비소, 지하수, 지구화학, 산출양상

1. 서 론

오염되지 않은 일반적인 지하수에서 비소는 <0.5~10 µg/L 범위로 나타나지만 10~5,000 µg/L의 수준으로 비소가 자연적으로 부화된 지역이 나타나기도 하며 광산활동 등에 의해 영향을 받은 지역에서는 10,000 µg/L까지 농도가 검출되기도 한다(Smedley and Kinniburgh, 2002). 지하수내 자연적 비소오염의 심각성은 대만 남서부 지역에서 10~1,800 µg/L의 높은 농도와 대표적인 비소질환인 피부흑변(black foot disease) 및 기타 인체 암 발병으로 세계적으로 널리 알려졌다(Tseng *et al.*, 1968; Kuo, 1968; Chen *et al.*, 1994). 이 지역 지하수의 비소오염에 대한 지구화학적 연구는 다소 부족하여 그 기원이 황철석 또는 흑색셰일 지질모재와 관련이 있는 것으로 추정만 하고 있으나(Mandal and Suzuki, 2002), 인체 암 발생 사례는 음용수내 비소함량과 인체 위해성 평가를 위한 가장 타당한 현장실증 자료로서 비소섭취를 통한 발암률 계산 및 WHO, USEPA 등의 음용수내 비소의 최대허용함량을 설정하기 위한 기본 자료로서 많이 활용되어 왔다(Smith *et al.*, 1992; Guo, 1997; NRC, 2001; Smith *et al.*, 2002). 이후 미국(Welch *et al.*, 2000), 멕시코(Del Razo *et al.*, 1990), 칠레(Smith *et al.*, 1998), 아르헨티나(Bundschuh *et al.*, 2004), 헝가리(Varsanyi *et al.*, 1991), 중국(Wang, 1984), 내몽고(Smedley *et al.*, 2003), 베트남(Berg *et al.*, 2001), 네팔(<http://nepal.ms.dk/articles/arsenic/default.htm>), 캄보디아(JICA & MRD, 2002) 등지에서 지하수의 자연적 비소오염이 보고되고 특히 인도 서벵갈지역과 방글라데시(Ahmed *et al.*, 2004)의 오염양상이 가장 심각한 것으로 나타나고 있다. 또한 이전에는 보고된 바 없던 스위스(Pfeifer *et al.*, 2004), 파키스탄(Nickson *et al.*, 2005) 등지에서

도 자연적인 비소오염 사례가 최근에 보고되며 인위적인 산업활동과 광산활동에 의한 영향(e.g. Juillot *et al.*, 1999; Charlet *et al.*, 2001; Cappuyens *et al.*, 2002)까지 고려하면 거의 세계 전지역에서 비소오염 양상이 이미 나타나거나 계속 발견되고 있는 실정이다.

이러한 비소의 환경적 영향으로 인해 개별 지역의 비소오염에 대한 환경수리지구화학적 연구뿐만 아니라 비소에 대한 개괄적인 지구화학적 연구도 다수 이루어져 왔다. 특히 지하수를 포함한 자연수내 비소의 기원, 거동 및 분산에 관한 일반적 특성과 세계 각지의 비소오염 양상(Smedley and Kinniburgh, 2002)이 정리된 바 있으며, 전지구적인 비소의 분산과 순환, 인체영향 등에 대해(Matschullat, 2000; Mandal and Suzuki, 2002) 논의된 바 있다. 이외에도 지구화학탐사 분야의 지시원소로서의 비소 지구화학(Boyle and Jonasson, 1973), 비소의 화학종 특성(Cullen and Reimer, 1989), 토양내 비소의 지구화학종 거동(Sadiq, 1997; Smith E. *et al.*, 1998), 석탄내 비소(Yudovich and Ketris, 2005) 등의 종합적 연구가 비소의 기원과 지구화학적 거동 및 지하수의 오염영향 등에 대한 이해를 돕고 있다.

특정 지역 또는 한 국가의 광역적인 지하수내 비소분포를 평가하기 위하여 수질관측망 등을 통한 조사를 실시한다. 예로서 미국의 경우 1996년에 개정된 안전한 음용수 법(The Safe Drinking Water Act)에 따라 USEPA는 비소 기준치에 대한 재검토 작업을 시작하였으며 이 과정에 우선적으로 공공 음용수로 사용되는 전국토의 지하수내 비소의 함량 자료가 필요하게 되었다. 이를 위해 USGS의 국가 수자원 정보시스템(NWIS; National Water Information System)과 USEPA의 안전한 음용수 정보시스템(SDWIS; Safe Drinking Water Information System)의 과거자료들

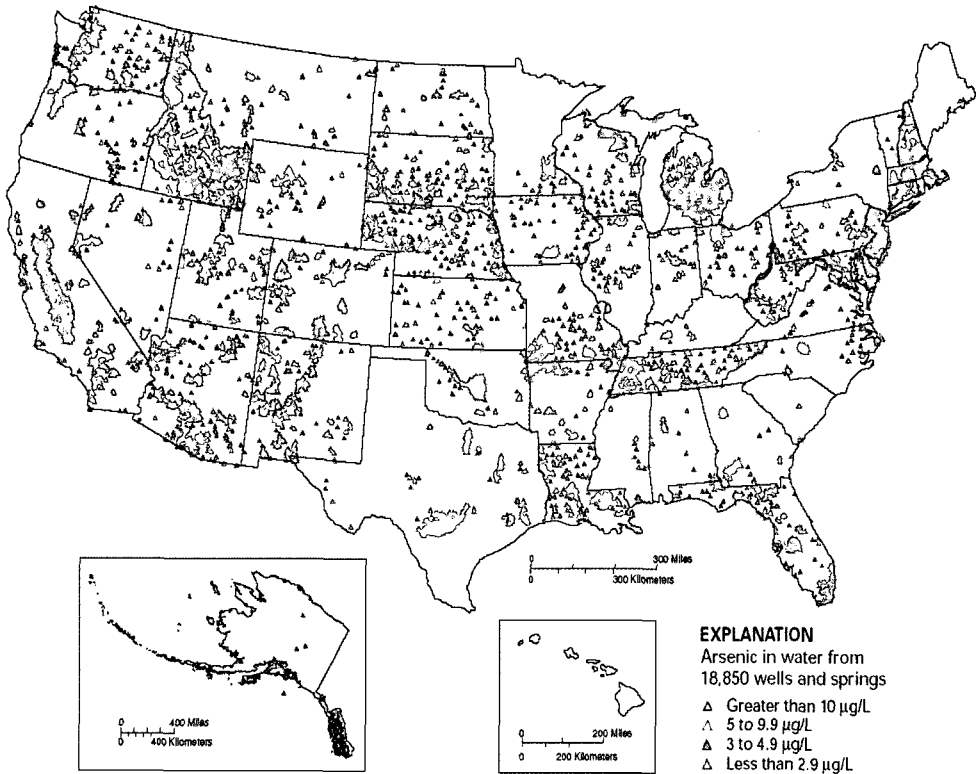


Fig. 1. Locations and concentration ranges of groundwater samples in USA (after USGS, 2000).

이용하여 전 국가 규모의 지하수 비소분포도를 작성하였으며(Fig. 1; USGS, 2000), 비소 산출양상과 지구화학적 특성에 관한 연구도 이루어진 바 있다(Welch *et al.*, 2000). Fig. 1은 총용존이온농도가 2,000 mg/L 이상으로 음용수로 불가한 지하수나 온도 50°C이상의 지열지역은 제외된 결과로서 대체로 동부지역보다 서부 지역에서 비소 함량이 높고 전체 18,850개소 중 8%가 10 µg/L 이상의 함량을 나타내었다. 지열수, 높은 총용존이온 함량의 지하수 등을 포함한 약 30,000여개의 NWIS 자료를 분석한 Welch *et al.* (2000)의 연구에서 약 절반이하는 $\leq 1 \mu\text{g/L}$ 의 함량을, 약 10%가 10 µg/L를 초과하는 것으로 나타났으며 메사추세츄, 메인, 미시간 주 등의 높은 함량은 황화광물에 기인한 것으로, 오레곤, 네바다, 서부 유타, 캘리포니아 주 등은 강한 건조기후로 인한 증발현상으로 천부지하수의 비소농도가 높은 것으로 나타나고 있다(Welch *et al.*, 2000; Levy *et al.*, 1999). 이후 일리노이즈, 인디애나, 오하이오, 미시간 및 위스콘신 주의 342개 관측공 및 가정용 관정을 대상으로 조사가 이루어진 바도 있으며 비소는 유기물이 풍부한 탄산염 모암내 흑색셰일 또는

석탄의 후생(epigenetic) 황화광물에 기인하여 산화과정으로 유출되지만 빙하 퇴적층의 상대적인 환원환경에서 높은 농도로 나타나 다단계의 과정을 거쳐 비소가 지하수로 유출되는 것으로 추론하고 있다(Warner *et al.*, 2001; USGS, 2003). 미시간 주의 경우 Kim *et al.* (2002), Szramek *et al.* (2004)에 의해 보다 정밀한 조사가 이루어졌으며 남동부 지역 73개 관정에서 0.5~278 µg/L의 범위와 평균 29 µg/L의 비소함량을 보였고 대부분의 비소는(53~98%) 3가 형태로 나타났다. 궁극적인 비소의 기원은 미시시피언 마살층의 함비소 황철석 또는 유비철석이지만 빙하퇴적물에 형성된 철산화물의 비소가 보다 하부의 환원환경 지하수에서 유출되는 것으로 판단하고 있다(Szramek *et al.*, 2004). 이 지역에서 새롭게 굴착된 지하수 관정을 통한 연구에서 지하수내 비소농도는 대수층내 비소함량에 의존하며 심부에서 감소하는 것으로 나타났다(Kim *et al.*, 2003). 또한 90% 이상의 비소가 3가로 존재하며 높은 2가 철함량, 낮은 산화환원 전위, 용존산소 함량 등과 함께 환원환경의 지하수 특성을 보여주었다.

국내에서도 환경부 주관으로 지하수 수질측정망이

운영되고 있으나 뚜렷한 비소오염 양상은 보고되지 않고 있다. 하지만 울산, 전남, 충남 등지에서 10 µg/L 이상의 자연적인 비소 부화양상이 국지적으로나마 나타나고 있어 지구화학적 기원과 유출 기작에 대한 이해가 요구된다. 이 논문에서는 음용 지하수의 비소오염이 가장 심각하게 나타났으며 환경수리지구화학적 연구가 활발히 이루어진 방글라데시를 대상으로 비교적 최근의 연구결과를 정리하여 지하수내 비소오염 특성에 대한 이해를 증진하고자 한다. 또한 국내의 현재까지 비소관련 지구화학적 조사 및 연구결과를 바탕으로 지하수내 비소 산출양상과 지구화학적 특성을 평가하고자 한다.

2. 방글라데시 지역의 지하수 비소오염 특성

벵갈분지에 위치한 방글라데시에서 가장 심각한 자연적 지하수 비소오염이 발생한 것으로 알려져 있다. 광역적인 지하수 비소오염 평가로서 UNICEF와 방글라데시 DPHE (Department of Public Health Engi-

neering)에 의해 1997~1999년에 실시된 방글라데시 전역(460개 upazilla 행정단위로 구성)의 51,000 여개 관정(tube well)에 대한 현장조사에서 29%의 지하수가 방글라데시 음용기준 50 µg/L 이상의 비소를 함유하며 60% 이상에서 현장분석키트로 비소오염이 확인된 바 있다(van Geen *et al.*, 2003; Ahmed *et al.*, 2004; Fig. 2). 또한 영국지질조사소(BGS)와 DPHE가 공동으로 수행한 3,534개의 관정에 대한 보다 체계적인 국가 규모 조사에서도 27%의 천부(<150 m) 관정에서 50 µg/L 이상, 46%가 WHO 기준 10 µg/L 이상의 비소함량을 나타내었다(BGS and DPHE, 2001). 기타 국지지역의 조사결과와 종합하여 현재까지 약 50%의 지하수에서 10 µg/L 이상, 약 28%가 50 µg/L 이상의 비소를 함유하고 있으며 이로 인해 약 4천6백만의 인구가 10 µg/L 이상, 2천8백만이 50 µg/L 이상의 비소에 노출된 것으로 추정한다(Yu *et al.*, 2003). 벵갈분지 지역주민의 비소오염 음용수로 인한 중독현상은 1983년에 처음 보고되었으며(Saha, 1995) 인도 서벵갈지역의 지하수 비소오염 발견 이후 방글라데시에서도

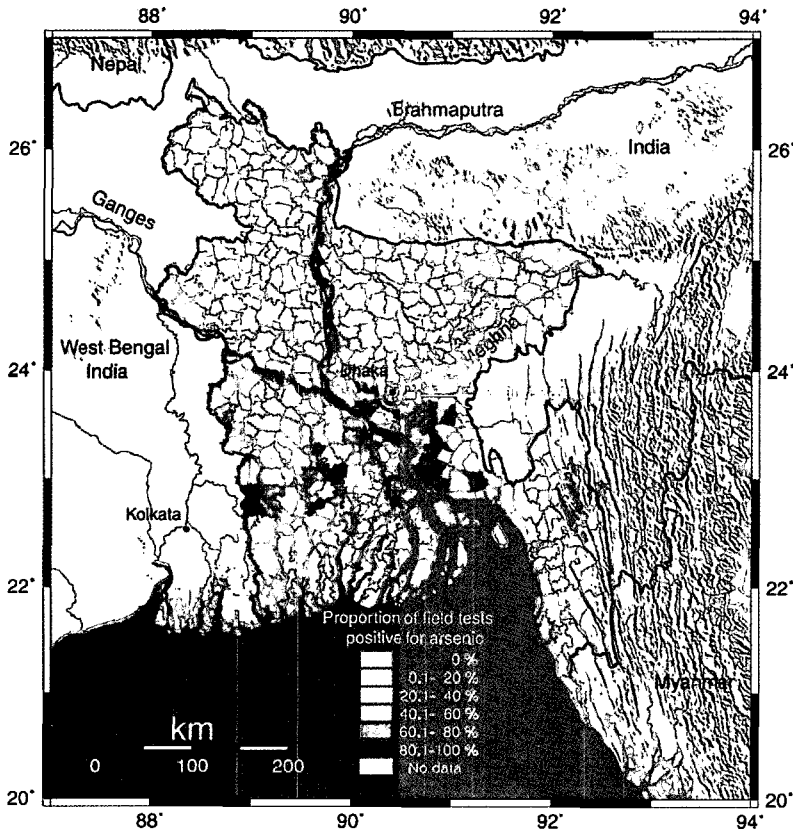


Fig. 2. Proportion of tube wells that tested positive for As in upazillas of Bangladesh (after van Geen *et al.*, 2003).

DPHE의 수질조사로 지하수의 비소오염 문제가 1993년에 공공의 관심을 받게 되었다. 심각한 비소중독의 경우 탈모, 피부 각화 및 궤양 등의 발생으로 인하여 이전에는 나병으로 오인되어 외부로 알려지지 못하였으며 질환이 나타난 여성이 이혼 또는 감금당하는 등 사회적인 문제로까지 비화되기도 하였다. 이러한 지하수의 비소오염 문제는 수인성 병원균으로 오염된 지표수를 대체할 음용수를 찾기 위해 1970년대부터 WHO 등의 원조로 수백만 개의 소규모 지하수 관정을 개발한 데서 비롯된 것으로 더욱 비극적이라 할 수 있다(Dowling *et al.*, 2002).

벵갈분지 지역 지하수의 비소는 히말라야 집수지 상류에서 비롯한 퇴적물에 유래하는 지질학적 기원이며 대수층내 고상 비소함량은 특별히 높지 않지만 (<2~20 mg/kg 세계 평균함량 범위내) 지구화학적 환원환경에서 상대적인 용존함량이 높아진 것으로 받아들여지고 있다(Yu *et al.*, 2003). 고농도 비소함유 지하수의 일반적인 화학적 특징으로 Fe(>0.2 mg/L), Mn(>0.5 mg/L), HCO₃⁻(320~600 mg/L)의 높은 함량과 간혹 P(>0.5 mg/L)가 검출되며 낮은 Cl⁻(<60 mg/L), SO₄²⁻(<3 mg/L), NO₃⁻(<0.22 mg/L) 및 F(<1 mg/L), 7 내외의 중성 pH를 들 수 있다. 또한 전반적으로 조사되지는 않았지만 용존유기탄소(DOC) 함량도 1.15~14.2 mg/L로서 상대적으로 높게 나타나며 홀로세 퇴적물내 유기물질이 그 기원으로 추정된다. 유기물질의 미생물학적 분해과정으로 SO₄²⁻, NO₃⁻의 환원과 따라서 S₂⁻(<2 mg/L)와 NH₄⁺(up to 13.2 mg/L)의 농도가 증가되는 양상을 보인다. 산화환원전위는 +0.594~-0.444 V로서 약한 산화환경과 중간 또는 강한 환원환경을 나타낸다. 지하수의 화학적 조성은 Ca-HCO₃ 또는 Ca-Mg-HCO₃ 형이지만 일부 지역에 따라 Ca-Na-HCO₃ 또는 Na-Cl 형을 나타내기도 한다. 용존이온들 간의 상관성은 일부 지역에서 높게 나오기도 하지만 일반적으로 좋은 결과를 보이지 않는다. 비소와 SO₄²⁻ 농도에는 대체로 음의 상관관계로 나타나는데 이는 SO₄²⁻의 환원반응을 지시하며 강한 환원환경에서 비소의 이동도가 높아지는 양상을 지시한다. 일부 지역의 지하수는 CH₄ 생성반응이 일어날 만큼 강한 환원조건을 나타낸다. 총 비소함량은 2.5~846 µg/L의 큰 변화를 보이지만 3가 형태가 대부분을 차지하며(67~99%) NH₄⁺와 좋은 상관관계를 보인다($r^2 = 0.57$). 또한 비교적 현재의 충적퇴적물로 이루어진 천부(<150 m) 대수층내 지하수에서 심부(150~200 m)의 홀로세 이전(pre-Holocene) 대수층에서보다 비소의 함량이 높게 나타나

고 있다(Smedley and Kinniburgh, 2002; Ahmed *et al.*, 2004; Zheng *et al.*, 2004).

이러한 지하수의 수리화학적 특성을 바탕으로 지하수내 비소의 유출기작을 해석하고자 하는 많은 연구가 이루어져왔다. 초기에는 크게 2가지 이론, 즉 산화이론 및 환원이론이 제시되었다. 산화이론은 대수층내 비소함유 황철석과 같은 비소가 풍부한 모재를 포함하는 층이 존재하고 지하수 채수량이 증가하면서 산화반응으로 비소가 유출되는 것으로 해석하였다(Das *et al.*, 1996; Chowdhury *et al.*, 1999). 하지만, 황철석 산화반응을 위해서는 용존산소 또는 질산염 등의 전자수용체가 필요하며 산성 pH와 일정 농도 이상의 황산염 존재가 나타나야 하지만 벵갈분지 지역의 대체적인 지하수에서 이러한 조건을 충족시키지 못하고 있다(McArthur *et al.*, 2001; Dowling *et al.*, 2002). 환원이론에서는 철수산화물에 수반된 비소가 환원성 용해반응으로 유출되는 것으로 해석하며 환원환경을 조성하는 이탄층(peat)의 존재 및 미생물의 활동에 초점을 두고 있다(Nickson *et al.*, 2000; McArthur *et al.*, 2001). 많은 지하수 시료에서 용존 비소, Fe 및 HCO₃⁻가 양의 상관관계를 보이며 대수층내 유기탄소가 풍부하므로 철수산화물의 용해와 비소유출 양상은 이탄층내 유기물의 미생물 분해와 관련된 것으로 본다(Nickson *et al.*, 2000; Akai *et al.*, 2004). 이외에 인산염질 비료의 사용으로 인해 인산염의 이온경쟁 효과로 비소가 유출되는 기작을 주장하기도 하지만(Acharyya *et al.*, 2000) 일반적인 현상으로는 인정받지 못하고 있다. 보다 최근의 연구에서는 이탄층이 존재하지 않는 지역에서도 건기의 양수로 인한 수위강하로 유기물질이 풍부한 지표수가 유입되고 이에 의해 환원환경의 형성과 철수산화물의 용해 및 비소의 유출이 발생할 수 있음이 제시되기도 하였다(Harvey *et al.*, 2002). 또한 미생물 활동으로 생성된 중탄산 이온에 의해 철수산화물 표면에서 Fe(II)-HCO₃⁻ 착화합(complexation) 반응에 의해 비소가 제거되어 용출되는 현상과(Appelo *et al.*, 2002), As-CO₃²⁻ 착화합 반응에 따라 황화광물로부터 비소의 용출을 촉진할 수 있는(Kim *et al.*, 2000) 기작이 제시되고 있기도 하다. 이와같이 방글라데시 지하수의 비소오염은 단일한 기작 보다는 복합적인 자연적 지구화학 반응을 거쳐 나타나고 있는 것으로 본다.

방글라데시를 포함한 주요 비소오염 지역에서 불-암석-미생물 반응에 의해 비소의 유출기작은 해석되지만 오염발생지로부터 원거리에 위치하는 궁극적인 비소의

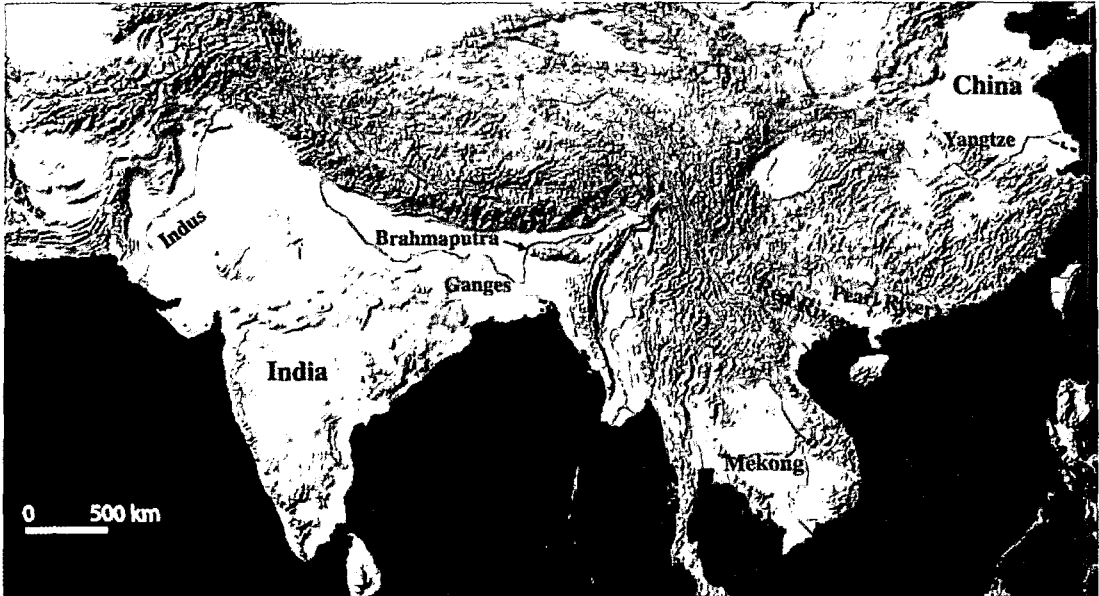


Fig. 3. Principal areas (yellow) covered by Pleistocene glacial ice in south Asia. Major occurrences of arsenic (red squares) are associated large alluvial or floodplain formed from glacial spillways (after Saunders *et al.*, 2005).

기원물질에 의한 오염 현상을 설명하는 GBH(Geo-Bio-Hydro)-비소 모델이 제시된 바도 있다(Saunders *et al.*, 2005). 이 모델에서는 플라이스토세(Pleistocene)의 지각상승 및 빙하활동에 의해 다양한 비소함량을 함유하는 기반암의 풍화가 가속되고 이후 홀로세(Holocene)의 화학적 풍화에 의한 비소유출, 철산화물로의 비소흡착과 하부퇴적물로의 집적, 유기물질의 퇴적, 철환원 박테리아의 활동에 의한 환원환경의 형성, 최종적으로 비소함유 철산화물의 환원성 용해 현상으로 비소의 지하수 오염양상을 설명하고 있다. 이러한 이론에 의해 방글라데시 지역뿐만 아니라 베트남, 태국, 남중국 등 빙하의 유로를 따라 형성된 홀로세 총적대수층 지역에서 비소오염이 발생하고 있음을 확인할 수 있다(Fig. 3; Saunders *et al.*, 2005). Fig. 3에서 제시되지는 않고 있지만 북쪽으로의 빙하 유로로서 내몽고, 중국 신장성 및 산시성 지역과 북미 미네소타, 미시간, 일리노이즈의 빙하퇴적 대수층에서의 비소오염발생도 해석하고 있다(Saunders *et al.*, 2005).

지하수 비소오염 문제를 해결하기 위하여 고도 수처리 기술뿐만 아니라 방글라데시와 같은 저개발국가에 적용가능한 경제적이며 현실적인 처리기술의 개발에 많은 연구가 이루어지고 있다. 또한 최근에는 보다 심부의 비오염 지하수 관정을 개발하고 기존관정과 교체하여 비소중독 영향을 저감하는 방안(van Geen *et al.*,

2002)과 관정개발 과정에서 지하수와 퇴적물 시료를 채취하는 장비를 개발하여 관정설치 이전에 비오염 대수층을 찾고자 하는 노력(van Geen *et al.*, 2004) 등도 이루어지고 있다.

3. 국내 지하수 비소 산출양상

3.1. 기존 지하수 비소오염 연구결과

현재까지 우리나라 지하수 비소오염에 관한 체계적인 연구조사는 이루어진 바 없으며 국부적인 지역에서 이루어진 결과, 또는 일부 폐금속광산 지역을 대상으로 실시된 사례들만 참조할 수 있다. 가장 전반적인 조사자료로서 먹는샘물 제조업체의 수질조사결과를 들 수 있으며 전국 60개 내외의 먹는샘물 수질관리를 위해 최근 5년 동안 수질기준 초과 가능성에 있는 항목에 대한 검토가 이루어진 바 있다(조병욱 등, 2002). 조사된 먹는샘물 취수정의 평균심도는 199.5m이며 지표수와 천부지하수의 유입방지용 케이싱의 차단정도가 확실하다면 지질요인이 지하수의 수질에 가장 중요한 변수가 된다. 이 조사에서 제주도를 제외한 먹는샘물 제조업체 지역의 주요 지질은 선캠브리아기 변성암류, 육천계 변성암류, 류라기 및 백악기의 화성암류로 3대 분할 수 있었다(조병욱 등, 2002). 비소함량 분석은 1999년, 2000년 및 2002년의 3차례에 걸쳐 이루어졌

으며 전국 먹는샘물의 평균함량은 2.4, 5.7 및 6.6 $\mu\text{g/L}$ 로서 극히 낮은 함량이지만 증가하고 있는 추세를 보였다. 또한 비소가 정량적으로 검출되는 제조업체의 수도 증가하고 있으며, 예로서 1999년 비소함량이 1 $\mu\text{g/L}$ 이상인 제조업체의 수는 전체의 20.1%에 불과하였으나 2000년에는 47.4%, 2002년에는 64.9%로 나타났다. USEPA의 음용수 기준인 10 $\mu\text{g/L}$ 을 초과하는 먹는샘물 제조업체의 수는 2002년 전체 57개중 19.3%인 11개소로 나타나고 있다. 비소함량과 취수정의 심도와는 상관성이 없는 것으로 나타나지만 지질별로 보면 선캠브리아기 변성암이나 화강암 지역에서보다 옥천계 변성암 지역의 먹는샘물 비소함량이 높은 것으로 나타났다(조병욱 등, 2002).

비교적 많은 시료로 체계적인 지하수의 자연적인 비소오염 조사사례로서 전남 화순군 청풍면, 이양면 지역과 춘양면, 장흥군 장평면, 보성군 노동면 일부지역

(약 336 km^2)에 대한 연구가 있다(이해훈, 2002). 이들 지역은 폐탄광 및 금은광산을 포함하고 있으며 135개 지하수 시료 중 71개 지점(52.6%)에서 정량적으로 검출되어 6~133 $\mu\text{g/L}$ 로 나타났고 이중 WHO 먹는물 수질기준 10 $\mu\text{g/L}$ 를 초과하는 지점은 49개소(36.3%), 13개소(9.6%)는 국내 먹는물 수질기준 50 $\mu\text{g/L}$ 을 초과하였다. 주로 연구지역의 남서-북동 방향에 이르는 폐탄광의 분포와 상응하는 것으로 보이며(Fig. 4) 주요 지질 중 편암(161.3 mg/kg), 응회암(186.8 mg/kg) 및 석탄(268.7 mg/kg)에서 상대적으로 비소의 평균함량이 높게 나타나 석탄광 및 이들 기반암에 의한 비소 유출을 가정할 수 있다. 고농도(50 $\mu\text{g/L}$)의 비소가 검출될수록 HCO_3^- 와 Na^+ 의 농도가 높아지는 경향을 보이며 심도별로는 50 m 이하보다 51~100 m의 상대적으로 심부의 지하수에서 비소의 농도가 높게 나타났다(이해훈, 2002).

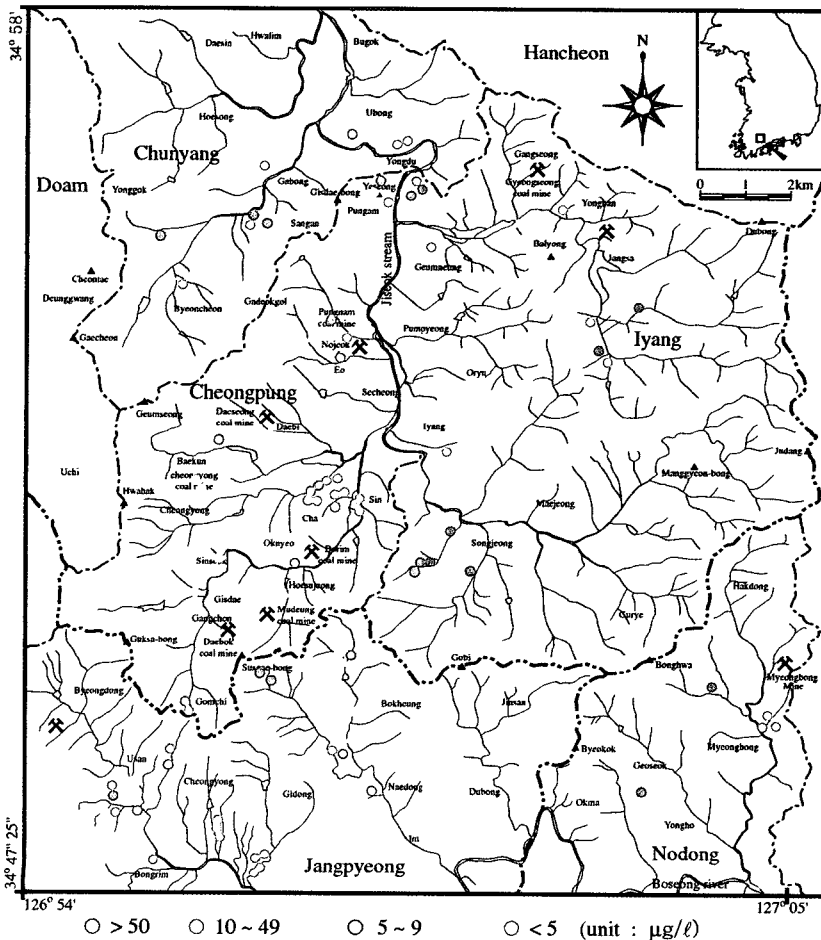


Fig. 4. Distribution of arsenic in groundwater in parts of the Jeonnam area (after Lee, 2002).

지하수 비소오염 문제가 가장 심각하게 공론화된 지역은 울산 달천동 일대이며 이 지역을 포함한 울산지역 46개 지하수 시료에 대한 비소함량 조사가 이루어진 바 있다(윤옥 등, 2004). 조사결과 29개 관정의 지하수에서 비소가 정량적으로 검출되었으며 주로 단층 주변의 변질대 및 충적층이 두터운 퇴적암 지역에 위치하고 있다. 이중 3개의 지하수에서 국내음용수 기준치(50 µg/L)를 초과하였고 10개 시료에서 10 µg/L보다 높은 함량을 보였다. 이들 지역의 수질유형으로 볼 때 지표오염 및 해수기원은 아닌 것으로 나타나며 가장 높게 검출된(72 µg/L) 달천동 지역은 과거 울산철광이 위치하여 자철석, 회중석, 유비철석, 사문석 등이 개발된 곳으로 높은 용존산소, 황산염 및 산화환원전위의 호기성환경으로서 대수층의 유비철석 및 함비소 황철석의 산화작용과 관련이 있는 것으로 해석하였다. 울산광산 지역의 보다 정밀한 연구로서 박맹언 등(2004, 2005)에 의해 이루어진 바 있으며 광산부지의 폐광석 더미와 광미를 주요 오염원으로 지정하였고 광미에서 유비철석의 산화광물로서 스코로다이트(scrodite $FeAsO_4 \cdot 2H_2O$) 및 클라우데타이트(claudetite As_2O_3) 등과 이의 함비소 철산화물을 비소오염의 근원물질로 확인하였다. 또한 지하수의 비소는 광미장을 중심으로 반경 30 m 이내에 고농도(>50 µg/L)로 나타나며 주변 지역에서는 10 µg/L 이하로 급속하게 감소되는 경향을 보여 pH 상승에 따른 이차 광물의 침전과 흡착에 따른 자연저감에 의해 비소의 안정화가 상당 수준 진행되고 있는 것으로 판단하였다.

금속광산, 특히 금은광산 주변지역에서 특징적으로 비소오염이 발생하고 있는 것으로 보고되며(전효택 등, 2005) 광미 등의 오염원, 지표 토양 및 지표수의 비소함량 및 광물학적, 화학적 형태 등에 관한 연구는 다수 이루어져왔다(e.g. Ahn *et al.*, 2005). 하지만 지하수를 대상으로 한 폐광산지역의 비소오염 연구는 미비하다. 이는 광산 주변의 지하수 개발이 활발하지 않으며 새로운 시추를 통한 현장 조사여건도 용이하지 않기 때문이다. 또한 금속광산 지역의 경우 풍부한 철산화물 등 이차광물의 생성으로 인하여 오염원에 비소함량이 높다 하더라도 흡착, 침전 등의 기작으로 자연저감되어 비소 오염양상은 극히 한정되어 나타나는 것이 일반적이다. 국내의 대표적인 금은광산이었던 충남 청양군 구봉광산 지역의 경우 반경 1~2 km 내 인근 인가 우물물을 대상으로 천부지하수의 비소오염 양상이 비교적 체계적으로 이루어진 바 있다(안주성 등, 1999; Woo and Choi, 2001). 안주성 등(1999)의 조사결과

0.5~55.1 µg/L의 함량으로 나타났으며 Woo and Choi (2001)는 최대 167 µg/L로서 더 높은 결과를 보였다. 이 지역의 궁극적인 비소오염원은 방치되어있던 광미 및 오염된 하천퇴적물의 유비철석이며 철산화물 및 탄산염 물질에 흡착된 비소가 pH의 민감한 변화에 의해 유출될 수 있는 것으로 보였다(Woo and Choi, 2001). 또한 광미장 코어시료 분석을 통하여 10 m 내외의 광미층 하부로 유출된 비소가 토양층에 흡착 및 침전의 기작으로 농축되어 있는 것으로 나타나 비소가 지하수 계로 유출될 수 있음을 보여주었다(안주성 등, 2001).

3.2. 지하수 수질 측정망 운영결과

환경부에서 주관하는 2,000여개 내외의(2003년도 이후 2,021개 지점 운영) 시도 및 지방환경청 지하수 수질측정망 운영결과에서 비소가 지하수 수질기준(음용, 생활용 및 농어업용 50 µg/L, 공업용 100 µg/L)을 초과한 사례는 2000년 부산지역 1개소에서 상, 하반기에 각각 58 µg/L, 104 µg/L(환경부, 2001)로, 2001년 상반기에 울산지역에서 188 µg/L(환경부, 2002)로 한차례 보고될 따름이다. 하지만 10 µg/L 이상의 함량을 보이는 지하수 자료를 볼 때, 2001년에서 2004년까지 매년 2차례의 조사에서 20개 내외의 지점으로(2004년 상반기만 41개 지점) 나타나고 있으며 이는 전체 측정망 수의 약 1% 정도를 차지한다. 지역별로 10 µg/L 이상의 함량을 보이는 자료를 정리해 보면(Table 1) 대체로 부산, 울산, 경남 등지에서 발생빈도와 최대 함량치가 높게 나타난다. 보다 많은 자료와 연구가 필요하지만 이들 지역에서 미고결 퇴적층, 퇴적암류 등의 지질영향에 의해 대수층내 비소의 기원물질이 있을 수 있으며 미생물 작용 및 산화반응 등으로 지하수로의 유출이 일어나는 것으로 가정한다. 수질특성으로 볼 때 pH 7~8의 중성영역에서 비소의 함량이 높게 나타나며 상관도를 제시하지 않았지만 질산성 질소와 염소 함량과는 상관성을 나타내지 못하였으며 외부유입에 의한 비소오염이 발생한 것으로는 볼 수 없다. 또한 수질측정망 자료만으로는 뚜렷한 근거를 보이지 않지만 부산 및 경남 지역에는 산성황산염 토양(acid sulfate soil)이 분포하는 것으로 알려져 있으며(정연태 등, 1989) 이에 의한 천부지하수내 비소오염도 우려할 수 있다. 산성황산염 토양은 높은 유기물 및 금속황화광물의 함량으로 인해 산화과정에서 강산성을 나타내고 철, 알루미늄의 용출량이 많으며 또한 부수적으로 황화광물의 비소 및 중금속이 유출되어 독성 미량원소의 대표적인 자연적 기원이 된다(Husson *et al.*, 2000;

Table 1. Characteristics of groundwater samples in different areas containing As greater than 10 µg/L adopted from results of the national groundwater quality monitoring survey during 2001 - 2004 (mean^a and range).

Area	As (mg/L)	pH	EC (µS/cm)	NO ₃ -N (mg/L)	Cl ⁻ (mg/L)	N ^b
Seoul/Gyeonggi	0.019 (0.01~0.045)	7.52 (5.9~8.5)	444.6 (251~585)	4.3 (<0.1~33.4)	23.9 (<0.1~122)	25
Busan	0.016 (0.01~0.047)	7.45 (6.5~8.2)	393.6 (106~695)	1.1 (<0.1~6.2)	38.0 (4.4~185)	36
Ulsan	0.018 (0.01~0.188)	7.78 (6.9~8.4)	445.4 (145~1,500)	0.67 (<0.1~4.4)	33.0 (<0.1~126)	35
Gyeongnam	0.017 (0.01~0.074)	7.37 (6.3~8.2)	368.4 (120~550)	1.5 (<0.1~10.4)	15.1 (1.8~1,200)	40
Gyeongbuk	0.012 (0.01~0.024)	7.70 (6.7~8.9)	-	2.31 (<0.1~12.4)	18.2 (4.3~429)	17
Jeonnam	0.015 (0.01~0.037)	7.42 (6.8~8.4)	-	2.1 (<0.1~7.5)	16.0 (1~130)	24
Chungbuk	0.013 (0.01~0.02)	7.0 (6.3~7.8)	-	1.31 (4~10)	6.6 (4~10)	8

^aGeomean values, if not available, arithmetic mean values.

^bNumber of data for As statistics. For other parameters, the numbers may be different.

Astrom, 2001). 이들 지역의 도시개발 및 토지이용의 다양화와 용수개발 확대에 의해 산성황산염 토양의 산화정도가 더욱 증가할 수 있으며 지하수로의 영향도 심각하게 나타날 수 있다. 특히 2004년 상반기에 부산, 울산 및 경남지역의 지방환경청 운영결과에서만 10 µg/L 이상의 함량을 보이는 지점이 26곳에 달하여(환경부, 2005) 이러한 우려를 뒷받침한다.

3.3. 간이급수시설 조사결과

21C 프론티어 연구사업의 일환으로 취수대상 대수층의 수질감시 및 오염예방 기술 과제를 수행중이며 이 과정에서 시범연구지역인 충남 논산과 금산을 대상으로 간이급수용 관정 지하수의 비소함량을 평가하였

다. 그 결과 논산의 지하수 수질기준 초과지역 30개소 중 질산성 질소, 탁도, 대장균군을 제외하고 불소 5개소, 비소 1개소가 수질기준을 초과하며 금산지역의 경우 전체 139개소 중 질산성 질소 15개, 불소 5개, 비소 1개소가 초과하는 것으로 확인되었다.

논산시 126개 간이급수용 관정에 대한 지하수 수질 특성 분석결과는 Table 2와 같다. 비소의 경우 WHO 기준인 10 µg/L를 적용하면 9개 정도의 시료가 기준을 초과하여 전체에서 약 7% 내외를 차지함을 알 수 있으며 금산지역에서도 이와 비슷한 결과를 나타내었다. Fig. 5에서 논산지역 지하수의 공간적인 비소분포양상을 보여주며 이는 주로 옥천대 변성퇴적암과 밀접한 상관성이 있는 것으로 나타났다. 각 수질성분의 지질

Table 2. Statistics of chemical parameters and components in groundwater of the Nonsan area.

	T	pH	EC	Eh	DO	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	HCO ₃ ⁻
	°C		µS/cm	mV	mg/l	mg/l	mg/l	mg/l	mg/l
Avg	14.1	7.00	199	258	5.28	14.8	19.0	10.7	66.7
Med	14.4	6.96	193	259	4.99	7.2	10.9	6.1	63.9
Std	1.6	0.47	106	29	1.80	15.2	18.9	14.3	29.5
Min	5.4	6.06	44	163	1.41	1.9	0.5	0.0	14.6
Max	17.1	8.09	583	329	9.26	74.3	79.3	110.3	151.6
	Ca	K	Mg	Na	Si	Mn	Fe	Sr	As
	mg/l	mg/l	mg/l	mg/l	mg/l	µg/L	µg/L	µg/L	µg/L
Avg	21.0	1.2	3.0	12.9	11.2	13.0	8.6	219	3.0
Med	20.1	1.0	2.7	11.3	10.7	9.0	3.8	164	1.0
Std	11.0	1.0	1.7	11.3	4.4	18.7	18.7	213	7.3
Min	2.6	0.06	0.4	2.2	3.7	8.0	2.0	5.0	1.0
Max	62.1	8.0	7.7	97.0	22.1	176	173	1,380	70.6

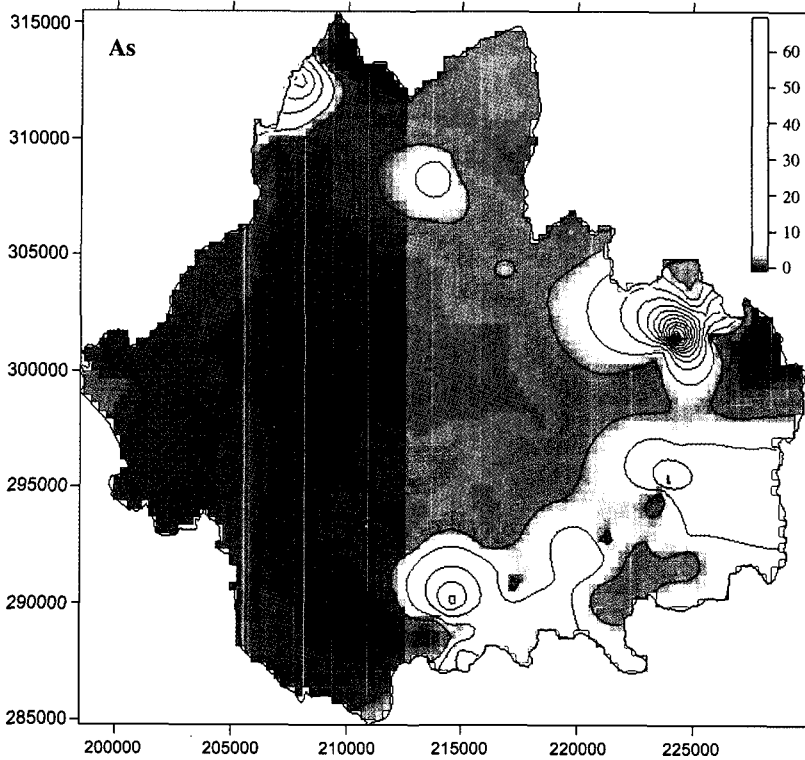


Fig. 5. Distribution of arsenic in groundwater of the Nonsan area (unit in $\mu\text{g/L}$).

별 농도분포 결과(Fig. 6)에서도 주요 오염성분인 Na^+ , Cl^- , NO_3^- 는 화강암 분포지역에서 높은 값을 보여주며 이 지역이 대부분 낮은 고도에 위치하고 농경과 거주지가 집중되어 오염에 취약한 특징을 가지는 것으로 판단한다. 이에 반해 pH와 비소는 옥천대 변성퇴적암 지역에서 상대적으로 높게 나타나고 있다. 이는 비소가 지표 오염물질의 유입과는 상관이 없으며 지질특성에 기원하였음을 보여준다. 흑색셰일 등을 포함하는 변성퇴적암류에 비소는 황화물 형태로 존재할 수 있으나 지질별 지하수 수질분석에서 pH는 상대적으로 높고 SO_4^{2-} 함량은 특별히 차이가 난다고 할 수 없으므로(Fig. 6) 이 지역의 비소유출 기작을 단언할 수 없으며 비소 기원물질의 지구화학적 특성에 대한 확인과 보다 정밀한 조사가 요구된다. nonsan 및 금산지역에서 $10 \mu\text{g/L}$ 이상 시료의 산화환원전위와 pH 자료를 비소화학적 안정도에 도시한 결과, 비소는 주로 5가의 HAsO_4^{2-} 또는 H_2AsO_4^- 형태로 존재할 수 있으며(Fig. 7) 이의 확인을 위해 추가로 채수하여 분석한 자료에서도 대부분 5가 형태로 나타나고 있다(Table 3). 이는 지하수내 비소가 충분한 반응을 통해 열역학적으로도 안정한 화학종으로 분포함을 보여준다.

4. 향후 연구방향 제언 및 결론

일반적으로 지질학적 요인에 의한 지하수의 주요 오염원으로서 불소, 우라늄, 라돈 등을 들 수 있으며 이에 대한 자연적 부화의 지구화학적 요인규명 연구는 국내에서도 일부 이루어지고 있다(e.g. Kim and Jeong, 2005). 이에 비해 비소는 보다 다양한 지구화학적 요인에 의해 자연적 부화양상이 나타날 수 있는 것으로 방글라데시와 같이 세계적인 주요 오염지역의 연구결과에서 나타나고 있으며 지구화학, 지구미생물학, 수리학 등 다양한 학문분야의 접근을 요구하고 있다. 국내의 지하수 관정자료 뿐만 아니라 다른 지역의 연구결과에서도 지하수내 비소함량은 대수층내에서 극히 짧은 종적, 횡적 변화에서도 정량한계 미만에서 수십~수백 $\mu\text{g/L}$ 까지의 민감한 변화를 보여주고 있어 비소 거동에 대한 지구화학적 해석을 어렵게 한다. 이는 광물학적 침전-용해 반응뿐만 아니라 산화-환원, 흡착-탈착, 미생물학적 반응 등의 다양한 지구화학적 과정과 대수층의 수리학적 특성에 의해 비소의 거동이 결정되어지기 때문이다. 따라서 이러한 복잡한 지구화학적 반응에 의한 비소의 거동과 대수층 특성에 대한 이해가 지

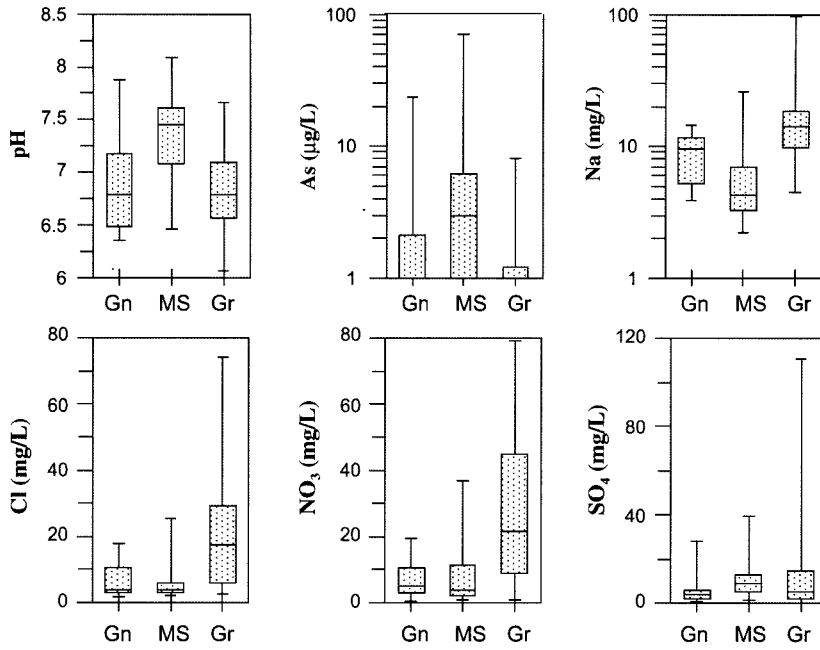


Fig. 6. Box-whisker diagrams for some chemical parameters in groundwater of the Nonsan area (Gn: gneiss, MS: metasedimentary rock, Gr: granite).

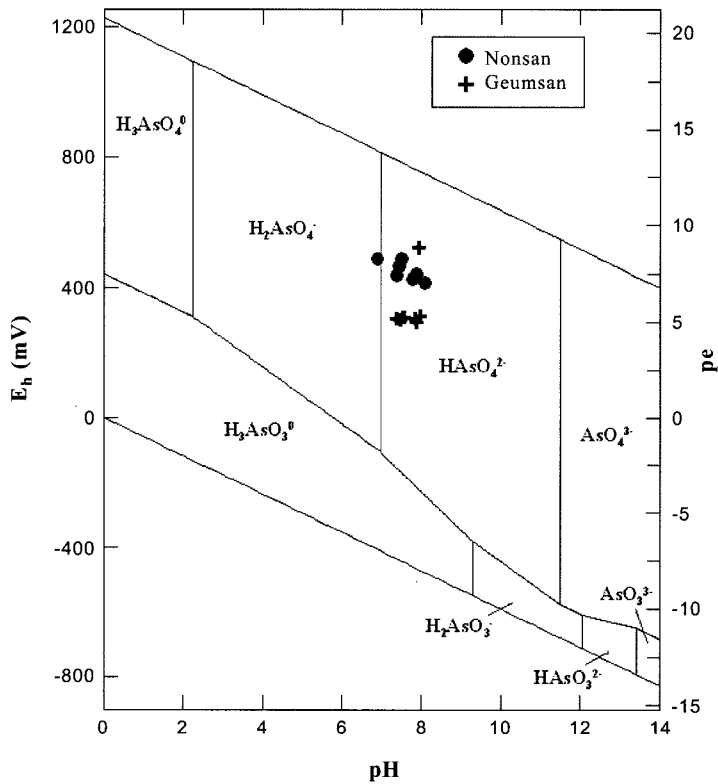


Fig. 7. Eh-pH diagram for groundwater samples containing greater than 10 µg/L from Nonsan and Geumsan (As-O₂-H₂O system at 25°C and 1 bar total pressure; Brookins, 1988).

Table 3. Chemical compositions and arsenic speciation in some groundwater samples from Nonsan and Geumsan.

Sample	Nonsan-1	Nonsan-2	Geumsan-1	Geumsan-2
Temp. (°C)	17.3	16.9	15.5	21.3
pH	7.02	7.61	7.79	7.17
Eh (mV)	412	433	420	423
EC ($\mu\text{S}/\text{cm}$)	140	227	226	497
DO (mg/L)	4.3	2.2	5.1	3.5
Ca (mg/L)	19.7	39.3	25.9	87.5
K (mg/L)	1.0	0.9	4.1	4.8
Mg (mg/L)	2.3	3.7	6.6	7.3
Na (mg/L)	8.1	5.9	7.0	11.3
Si (mg/L)	7.5	7.3	8.4	6.6
HCO ₃ ⁻ (mg/L)	52.1	72.7	100	236
F ⁻ (mg/L)	1.4	0.9	0.6	0.2
Cl ⁻ (mg/L)	5.8	3.6	3.7	17.9
NO ₃ ⁻ (mg/L)	5.3	-	7.0	26.0
SO ₄ ²⁻ (mg/L)	11.9	21.2	10.8	18.5
As ³⁺ ($\mu\text{g}/\text{L}$)	5.1	-	8.4	2.2
As ⁵⁺ ($\mu\text{g}/\text{L}$)	37.5	14.2	72.3	13.6
As _{tot} ($\mu\text{g}/\text{L}$)	42.6	14.2	80.7	15.8

하수내 비소함량 평가 및 해석에 우선적으로 필요하다.

전세계 음용지하수의 비소함량 기준은 10~50 $\mu\text{g}/\text{L}$ 범위에 있지만, WHO는 1993년에 이미 10 $\mu\text{g}/\text{L}$ 로 설정하였고 최근 USEPA도 10 $\mu\text{g}/\text{L}$ 을 제시하며 일반적으로 강화되고 있는 경향이다(USEPA, 2001). 현재 50 $\mu\text{g}/\text{L}$ 인 국내에서도 적어도 음용지하수(먹는샘물 등)의 비소함량 기준에 대한 제고가 필요하며 이를 위한 선행작업으로서 국내 전반적인 지하수의 비소 산출양상에 대한 조사가 필요하다. 이를 통해 국내의 자연적인 지하수내 비소함량 분포를 제시하고 이에 따른 비소농도별 노출인구 산정 및 위해성 평가 등의 연구가 이루어져야 한다. 특히 조병욱 등(2002)의 연구에서 10 $\mu\text{g}/\text{L}$ 을 초과하는 먹는샘물 제조업체의 수가 전체의 19.3%인 11개소에 달하는 결과로 볼 때 시급한 연구 과제라 할 수 있다.

본 논문에서 기존의 지하수 비소오염 관련연구로서 먹는샘물 제조업체 수질조사, 전남 일부 및 울산 지역의 지하수 수질 연구, 금속광산 지역의 환경지구화학적 연구, 환경부 수질측정망 운영결과, 논산 및 금산 일대의 간이급수시설 조사결과 등을 정리하여 국내 지하수에서의 비소의 산출양상을 평가하였다. 그 결과, 국내에서도 지질적인 요인과 광화작용에 의해 지하수내 자연적인 함량 이상의 비소 부화 또는 오염양상이 발생할 수 있음을 보여준다. 하지만 비소의 정확한 기원과 유출기작, 지구화학적 거동을 해석하기에는 연구의 접근방법이 미흡하며 시료의 종류 및 분석항목 등

이 부족한 실정이다. 이는 현장 여건에 따른 불가피한 상황이기도 하지만 향후 지하수 비소오염 연구추진 과정에서 연구자가 염두에 두어야 할 과제이다. 국지적인 지하수내 비소오염 연구로서 금속광산, 특히 금은광산 지역에서의 유비철석의 존재로 인한 비소오염 양상은 흔히 보고되지만 지하수내 비소의 분포 및 거동에 대한 연구는 미진하며 뚜렷한 광체로 구별되지 못하는 저품위 광화대에 의한 오염현상 등은 평가조차 이루어지지 않고 있다. 또한 옥천대 흑색세일내 상대적으로 높은 비소함량에 의해 토양오염 양상은 조사된 바 있으나 역시 지하수로의 유출양상은 극히 일부 연구에 불과하다. 본 연구의 논산 및 금산 지역의 수질 분석 결과에서도 옥천대 변성퇴적암 분포지역의 비소 부화 양상이 쉽게 관찰되며 앞으로 이에 대한 정밀조사가 요구된다. 환경부 지하수 수질측정망 결과에서는 특히 부산, 울산 및 경남 일대에서 상대적으로 높은 발생빈도와 최대함량의 지하수내 비소가 확인되며 이 지역의 퇴적층 및 산성광산염 토양의 분포에 따른 비소유출에 대한 정밀조사가 필요하기도 하다.

사 사

본 연구는 21C 프론티어 연구개발사업인 수자원의 지속적 확보기술개발사업단의 연구비지원(과제번호: 3-4-2)에 의해 수행되었습니다.

참고문헌

- 박맹언, 김민철, 김선옥 (2004) 반응경로 해석에 의한 비소의 지구화학적 자연저감 능력 평가: 울산광산 부지 내의 중금속 오염에 적용. 대한자원환경지질학회 춘계 학술발표회, p. 17-21.
- 박맹언, 성규열, 이평구, 김필근 (2005) 울산광산내 비소로 오염된 광미의 자연저감 능력에 대한 pH와 산화-환원 전위 영향. 한국지하수토양환경학회 춘계학술발표회, p. 182-185.
- 안주성, 전효택, 김경웅 (2001) 광산 폐기물에 의한 비소 및 중금속의 지표하부 유출과 격리저장 처리기법. 한국자원공학회지, 38권, p. 246-256.
- 안주성, 전효택, 손아정, 김경웅 (1999) 구룡 금은광산 주변지역의 비소 및 중금속에 의한 환경오염과 비작물의 흡수특성. 한국자원공학회지, 36권, p. 159-169.
- 윤옥, 조병욱, 성규열 (2004) 울산지역 지하수중 비소의 산출 및 존재형태. 자원환경지질, 37권, p. 657-667.
- 이해훈 (2002) 화순 남부지역 지표수 및 지하수의 비소 분포 특성. 전남대학교 박사학위논문, 197p.
- 전효택, 안주성, 정명채 (2005) 국내 전형적 금은 및 비(base)금속 폐광지역의 중금속 오염특성. 자원환경지질, 38권, p. 101-111.
- 정연태, 노영팔, 백정오 (1989) 하해혼성 잠적특이산성토양의 분포와 분류. 한국토양비료학회지, 22권, p. 173-179.
- 조병욱, 이병대, 이인호, 추창오 (2002) 국내 먹는샘물의 특정 수질 항목에 대한 고찰. 지질공학, 12권, p. 395-404.
- 환경부 (2001) 2000년 지하수 수질측정망 운영결과. 환경부.
- 환경부 (2002) 2001년 지하수 수질측정망 운영결과. 환경부.
- 환경부 (2005) 2004년 지하수 수질측정망 운영결과. 환경부.
- Acharyya, S.K., Lahiri, S., Raymahashay, B.C. and Bhowmik, A. (2000) Arsenic toxicity of groundwater of the Bengal basin in India and Bangladesh: the role of Quaternary stratigraphy and Holocene sea-level fluctuation. Environ. Geol. v. 39, p. 1127-1137.
- Ahmed, K.M., Bhattacharya, P., Hasan, M.A., Akhter, S.H., Alam, S.M.M., Bhuyian, M.A.H., Imam, M.B., Khan, A.A. and Sracek, O. (2004) Arsenic enrichment in groundwater of the alluvial aquifers in Bangladesh: an overview. Appl. Geochem., v. 19, p. 181-200.
- Ahn, J.S., Park, Y.S., Kim, J.Y. and Kim, K.W. (2005) Mineralogical and geochemical characterization of arsenic in an abandoned mine tailings of Korea. Environ. Geochem. Health, v. 27, p. 147-157.
- Akai, J., Izumui, K., Fukuhara, H., Masuda, H., Nakano, S., Yoshimura, T., Ohfujii, H., Anawar, H.M. and Akai, K. (2004) Mineralogical and geomicrobiological investigations on groundwater arsenic enrichment in Bangladesh. Appl. Geochem., v. 19, p. 215-230.
- Appelo, C.A.J., Van Der Weiden, M.J.J., Tournassat, C. and Charlet, L. (2002) Surface complexation of ferrous iron and carbonate on ferrihydrite and the mobilization of arsenic. Environ. Sci Technol., v. 36, p. 3096-3103.
- Astrom, M. (2001) Effect of widespread severely acidic soils on spatial features and abundance of trace elements in streams. J. Geochem. Explor., v. 73, p. 181-191.
- Berg, M., Tran, H.C., Nguyen, T.C., Pham, H.V., Schertenleib, R. and Giger, W. (2001) Arsenic contamination of groundwater and drinking water in Vietnam: A human health threat. Env. Sci. Technol., v. 35, p. 2621-2626.
- BGS and DPHE (2001) Arsenic contamination of groundwater in Bangladesh, Vol. 2, Final Report. BGS Technical Report WC/00/19.
- Boyle, R.W. and Jonasson, I.R. (1973) The geochemistry of arsenic and its use as an indicator element in geochemical prospecting. J. Geochem. Explor., v. 2, p. 251-296.
- Brookins, D.G. (1988) Eh-pH Diagrams for geochemistry. Springer-Verlag, Berlin.
- Bundschuh, J., Farias, B., Martin, R., Storniolo, A., Bhattacharya, P., Cortes, J., Bonorino, G. and Albouy, R. (2004) Groundwater arsenic in the Chaco-Pampean plain, Argentina: case study from Robles county, Santiago del Estero province. Appl. Geochem., v. 19, p. 231-243.
- Cappuyans, V., Van Herreweghe, S., Swennen, R., Ottenburgs, R. and Deckers, J. (2002) Arsenic pollution at the industrial site of Reppel-Bocholt (north Belgium). Sci. Tot. Environ., v. 295, p. 217-240.
- Charlet, L., Ansari, A.A., Lespagnol, G. and Musso, M. (2001) Risk of arsenic transfer to a semi-confined aquifer and the effect of water level fluctuation in North Mortagne, France at a former industrial site. Sci. Tot. Environ., v. 277, p. 133-147.
- Chen, S.L., Dzung, S.R., Yang, M.H., Chlu, K.H., Shirh, G.M. and Wal, C.M. (1994) Arsenic species in groundwaters of blackfoot disease areas, Taiwan. Environ. Sci. Technol., v. 28, p. 877-881.
- Chowdhury, T.R. et al. (1999) Arsenic poison in the Ganges Delta. Nature, v. 401, p. 545-546.
- Cullen, W.R. and Reimer, K.J. (1989) Arsenic speciation in the environment. Chem. Rev., v. 89, p. 713-764.
- Das, D. et al. (1996) Arsenic in groundwater in six districts of West Bengal, India. Environ. Geochem. Health, v. 18, p. 5-15.
- Del Razo, L.M., Rellano, M.A. and Cebrian (1990) The oxidation states of arsenic in well-water from a chronic arsenic area of northern Mexico. Environ. Pollut., v. 64, p. 143-153.
- Dowling, C.B., Poreda, R.J., Basu, A.R. and Peters, S.L. (2002) Geochemical study of arsenic release mechanism in the Bengal basin groundwater. Water Resour. Res., v. 38, No. 9, 1173, doi:10.1029/2001WR000968.
- Guo, H.R. (1997) Arsenic in drinking-water and skin cancer: comparison among studies based on cancer registry, death certificates and physical examinations. In Abernathy, C.O., Calderon, R.L. and Chappell, W.R. (eds.) Arsenic: Exposure and health effects. Chapman & Hall, London, p. 243-259.
- Harvey, C.F., et al. (2002) Arsenic mobility and groundwater extraction in Bangladesh. Science, v. 298, p. 1602-1606.
- Husson, O., Verburg, P.H., Phung, M.T., and van Mensvoort, M.E.F. (2000) Spatial variability of acid sulphate soils in the Plain of Reeds, Mekong delta, Vietnam. Geoderma, v. 97, p. 1-19.
- JICA and MRD (2002) The study on groundwater devel-

- opment in southern Cambodia, Final Report. Japan International Cooperation Agency & Ministry of Rural Development, Cambodia.
- Juillot, F., Ildelfonse, Ph., Morin, G., Calas, G., de Kersabies, A.M. and Benedetti, M. (1999) Remobilization of arsenic from buried wastes at an industrial site: mineralogical and geochemical control. *Appl. Geochem.*, v. 14, p. 1031-1048.
- Kim, K. and Jeong, G.Y. (2005) Factors influencing natural occurrence of fluoride-rich groundwaters: a case study in the southeastern part of the Korean Peninsula. *Chemosphere*, v. 58, p. 1399-1408.
- Kim, M.J., Nriagu, J. and Haack, S. (2000) Carbonate ion and arsenic dissolution by groundwater. *Environ. Sci. Technol.*, v. 34, p. 3094-3100.
- Kim, M.J., Nriagu, J. and Haack, S. (2002) Arsenic species and chemistry in groundwater of southeast Michigan. *Environ. Poll.*, v. 120, p. 379-390.
- Kim, M.J., Nriagu, J. and Haack, S. (2003) Arsenic behavior in newly drilled wells. *Chemosphere*, v. 52, p. 623-633.
- Kuo, T.L. (1968) Arsenic content of artesian well water in endemic area of chronic arsenic poisoning. *Rep. Inst. Pathol. National Taiwan Univ.*, v. 20, p. 7-13.
- Levy, D.B., Schramke, J.A., Esposito, K.J., Erikson, T.A. and Moore, J.C. (1999) The shallow ground water chemistry of arsenic, fluorine, and major elements: Eastern Owens lake, California. *Appl. Geochem.*, v. 14, p. 53-65.
- Mandal, B.K. and Suzuki, K.T. (2002) Arsenic around the world; a review. *Talanta*, v. 58, p. 201-235.
- Matschullat, J. (2000) Arsenic in the geosphere-a review. *Sci. Tot. Environ.*, v. 249, p. 297-312.
- McArthur, J.M., Ravenscroft, P., Safiulla, S. and Thirlwall, M.F. (2001) Arsenic in groundwater: testing pollution mechanisms for sedimentary aquifers in Bangladesh. *Water Resour. Res.*, v. 37, p. 109-117.
- Nickson, R., McArthur, J.M., Ravenscroft, P., Burgess, W., Ahmed, K.M. (2000) Mechanisms of arsenic release to groundwater, Bangladesh and West-Bengal. *Appl. Geochem.*, v. 15, p. 403-413.
- Nickson, R.T., McArthur, J.M., Shrestha, B., Kyaw-Myint, T.O. and Lowry, D. (2005) Arsenic and other drinking water quality issues, muzaffargarg district, Pakistan. *Appl. Geochem.*, v. 20, p. 55-68.
- NRC (2001) Arsenic in Drinking Water: 2001 Update. Subcommittee to Update the 1999 Arsenic in Drinking Water Report, Committee on Toxicology, Board on Environmental Studies and Toxicology, National Research Council. National Academy Press, Washington, D.C., 244p.
- Pfeifer, H.R., Gueye-Girardet, A., Reymond, D., Schlegel, C., Temgoua, E., Hesterberg, D. and Chou, J.W. (2004) Dispersion of natural arsenic in the Malcantone watershed, Southern Switzerland: field evidence for repeated sorption-desorption and oxidation-reduction processes. *Geoderma*, v. 122, p. 205-234.
- Sadiq, M. (1997) Arsenic chemistry in soils: an overview of thermodynamic predictions and field observations. *Wat. Air Soil Pollut.*, v. 93, p. 117-136.
- Saha, K.C. (1995) Chronic arsenic dermatoses from tube-well water in West Bengal during 1983-1987. *Indian J. Dermatol.*, v. 40, p. 1-11.
- Saunders, J.A., Lee, M.K., Uddin, A., Mohannad, S., Wilkin, R.T., Fayek, M. and Korte, N.E. (2005) Natural arsenic contamination of Holocene alluvial aquifers by linked tectonic, weathering, and microbial processes. *G3 Geochemistry Geophysics Geosystems*, v. 6, Q04006, doi:10.1029/2004GC000803.
- Smedley, P.L. and Kinniburgh, D.G., (2002) A review of the source, behaviour and distribution of arsenic in natural waters. *Appl. Geochem.*, v. 17, p. 517-568.
- Smedley, P.L., Zhang, M., Zhang, G. and Luo, Z. (2003) Mobilisation of arsenic and other trace elements in Fluvialacustrine aquifers of the Huhhot basin, Inner Mongolia. *Appl. Geochem.*, v. 18, p. 1453-1477.
- Smith, A.H., Goycolea, M., Haque, R. and Biggs, M.L. (1998) Marked increase in bladder and lung cancer in a region of northern Chile due to arsenic in drinking water. *Am. J. Epidemiol.*, v. 147, p. 660-669.
- Smith, A.H., Hopenhayn-Rich, C., Bates, M.N., Goeden, H.M., Herts-Piccioletto, I. Duggan, H.M., Wood, R., Kosnett, M.J. and Smith, M.T. (1992) Cancer risks from arsenic in drinking water. *Environ. Health Persp.*, v. 97, p. 259-267.
- Smith, A.H., Lopipero, P.A., Bates, M.N. and Steinmaus, C.M. (2002) Arsenic epidemiology and drinking water standards. *Science*, v. 296, p. 2145-2146.
- Smith, E., Naidu, R., Alston, A.M. (1998) Arsenic in the soil environment: a review. *Adv. Agron.*, v. 64, p. 149-195.
- Szramek, K., Walter, L. and McCall, P. (2004) Arsenic mobility in groundwater/surface water systems in carbonate-rich Pleistocene glacial drift aquifers (Michigan). *Appl. Geochem.*, v. 19, p. 1137-1155.
- Tseng, W.P., Chu, H.M., How, S.W., Fong, J.M., Lin, C.S. and Yeh, S. (1968) Prevalence of skin cancer in an endemic area of chronic arsenicism in Taiwan. *J. Nat. Cancer Inst.*, v. 40, p. 453-463.
- USEPA (2001) National primary drinking water regulations; Arsenic and clarifications to compliance and new source contaminants monitoring. *Federal Register*, 66(14), p. 6976-7066.
- USGS (2000) A retrospective analysis on the occurrence of arsenic in groundwater resources of the United States and limitations in drinking water supply characterizations. *Water-resources Investigations Report 99-4279*.
- USGS (2003) Arsenic in midwestern glacial deposits- Occurrence and relation to selected hydrogeologic and geochemical factors. *Water-resources Investigations Report 03-4228*.
- van Geen *et al.* (2002) Promotion of well-switching to mitigate the current arsenic crisis in Bangladesh. *Bull. W. H. O.*, v. 20, p. 732-737.
- van Geen, A., Protus, T., Cheng, Z., Horneman, A., Seddique, A.A., Hoque, M.A. and Ahmed, K.M. (2004) Testing groundwater for arsenic in Bangladesh before installing a well. *Environ. Sci. Technol.*, v. 38, p. 6783-6789.
- van Geen, A., Zheng, Y., Versteeg, R., Stute, M., Horneman, A., Dhar, R., Steckler, M., Gelman, A., Small, C., Ahsan, H., Graziano, J.H., Hussain, I. and Ahmed, K.M. (2003) Spatial variability of arsenic in 6000 tube

- wells in a 25 km² area of Bangladesh. *Water Resour. Res.*, v. 39, No. 5, 1140, doi:10.1029/2002WR001617.
- Varsanyi, I., Fodre, Z. and Bartha, A. (1991) Arsenic in drinking water and mortality in the southern Great Plain, Hungary. *Environ. Geochem. Health*, v. 13, p. 14-22.
- Wang, G. (1984) Arsenic poisoning from drinking water in Xinjiang. *Chin. J. Prevent. Med.*, v. 18, p. 105-107.
- Warner, K.L. (2001) Arsenic in glacial drift aquifers and the implication for drinking water-Lower Illinois river basin. *Ground Water*, v. 39, p. 433-442.
- Welch, A.H., Westjohn, D.B., Helsel, D.R. and Wanty, R.B. (2000) Arsenic in ground water of the United States: occurrence and geochemistry. *Ground Water*, v. 38, p. 589-604.
- Woo, N.C. and Choi, M.J. (2001) Arsenic and metal contamination of water resources from mining wastes in Korea. *Environ. Geol.*, v. 40, p. 305-311.
- Yu, W.H., Harvey, C.M. and Harvey, C.F. (2003) Arsenic in groundwater in Bangladesh: a geostatistical and epidemiological framework for evaluating health effects and potential remedies. *Water Resour. Res.*, v. 39, No. 6, 1146, doi:10.1029/2002WR001327.
- Yudovich, Ya.E. and Ketris, M.P. (2005) Arsenic in coal: a review. *Inter. J. Coal Geol.*, v. 61, p. 141-196.
- Zheng, Y., Stute, M., van Geen, A., Gavrieli, I., Dhar, R., Simpson, H.J., Schlosser, P. and Ahmed, K.M. (2004) Redox control of arsenic mobilization in Bangladesh groundwater. *Appl. Geochem.*, v. 19, p. 201-214.

2005년 8월 9일 원고접수, 2005년 9월 6일 게재승인.