



Special Research Paper on “Research on Aggregate Resources in Korea (II)”

Study on Geological Distribution of Fluorine in Forest Aggregate within Korea

Yeong-Il Jeong¹, Kun-Ki Kim², Soon-Oh Kim³, Sang-Woo Lee⁴, Jin-Young Lee^{5,*}

¹Geochang Granite Research Center, Geochang 50103, Korea

²Stone Industry Division, Korea Forestry Promotion Institute, Daejeon 35209, Korea

³Department of Geology and Research Institute of Natural Science(RINS), Gyeongsang National University(GNU), Jinju 52828, Korea

⁴HS Environmental Technology Research Center, Hosung Inc., Jinju 52818, Korea

⁵Quaternary Environment Research Center, Korea Institute of Geoscience and Mineral Resources, Daejeon 34132, Korea

*Corresponding author : jylee@kigam.re.kr

ARTICLE INFORMATION

Manuscript received 1 March 2024

Received in revised form 27 March 2024

Manuscript accepted 3 April 2024

Available online 29 April 2024

DOI : <http://dx.doi.org/10.9719/EEG.2024.57.2.233>

Research Highlights

- The natural origin of fluorine is caused by the weathering and dissolution of fluorine contained mineral such as fluorite(CaF_2) and apatite($\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{F}$).
- The national background concentration of forest aggregates was 344 mg/kg, and Gyeonggi-do was investigated to be highest concentration at 394 mg/kg in Korea.
- In Korea, gneisses and schists, which are Precambrian metamorphic rocks in the Gyeonggi massif, contain high fluorine concentrations.

ABSTRACT

This study was conducted to investigate the geological distribution characteristics of fluorine in rocks, which can be a major resource of forest aggregates in Korea. Samples of forest aggregates were collected from 224 sites in 22 cities and counties for this study. The national background concentration was 344 mg/kg, which was significantly lower than the average fluorine concentration of crustal, which was 625 mg/kg, and slightly higher than the average fluorine concentration of world soil, which was 321 mg/kg. In terms of region and tectonic structure, fluorine concentrations were investigated to be highest in Gyeonggi-do(394 mg/kg) and Gyeonggi massif(396 mg/kg), respectively. The concentration distribution by the origin of the parent rock was in the order of metamorphic rock(362 mg/kg) > sedimentary rock(354 mg/kg) > igneous rock(328 mg/kg), and the concentration distribution by geologic ages was the highest in the Paleozoic at 394 mg/kg. The concentration distribution by rock types was in the order of diorite(515 mg/kg) > gneisses(377 mg/kg) > schists(344 mg/kg) > phyllite(306 mg/kg) > granites(305 mg/kg) > quartz porphyry(298 mg/kg). Consequently, it is speculated that gneisses and schists, Precambrian metamorphic rocks in the Gyeonggi massif that forms the crust of Gyeonggi-do, contain high fluorine concentrations.

Keywords : fluorine, aggregate, forest aggregate, concentration distribution, Soil Contamination Warning Standard

Citation: Jeong, Y.-I., Kim, K.-K., Kim, S.-O., Lee, S.-W., Lee, J.-Y. (2024) Study on Geological Distribution of Fluorine in Forest Aggregate within Korea. *Korea Economic and Environmental Geology*, v.57, p.233-241, doi:10.9719/EEG.2024.57.2.233.

✉ Journal homepage: <http://www.kseeg.org/main.html>

This is an Open Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided original work is properly cited.
pISSN 1225-7281; eISSN 2288-7962/©2024 The KSEEG. Printed by Hanrimwon Publishing Company. All rights reserved.

연구논문 (“한국의 골재자원 연구 (III)” 특별호)

산림골재 내 불소의 지질학적 분포 연구

정영일¹ · 김건기² · 김순오³ · 이상우⁴ · 이진영^{5,*}

¹(재)거창화강석연구센터

²한국임업진흥원 석재산업실

³경상국립대학교 자연과학대학 지질학과 및 기초과학연구소

⁴(주)호성 HS환경기술연구소

⁵한국지질자원연구원 제4기환경연구센터

*책임저자 : jylee@kigam.re.kr

요 약

본 연구는 우리나라 산림골재 주요 공급원이 될 수 있는 암석 내 불소의 지질학적 분포 특성을 조사하기 위해 22개 시군의 224개 지점에서 산림골재(암석) 시료를 채취하여 불소 농도를 조사하였다. 전국 불소 배경농도는 344 mg/kg으로 암석의 지각 평균 불소 농도인 625 mg/kg 보다 현저히 낮으며, 세계 토양 평균 불소 농도인 321 mg/kg 보다는 다소 높았다. 권역별 농도분포는 경기도 394 mg/kg, 강원도 336 mg/kg, 충청도 318 mg/kg, 경상도 289 mg/kg, 전라도 271 mg/kg 순서로 조사되었다. 지체구조에 의한 농도분포는 경기육괴가 396 mg/kg 으로 가장 높았으며, 퇴적분지/화산대인 울릉도가 349 mg/kg, 옥천습곡대 291 mg/kg, 영남육괴 281 mg/kg, 경상분지 259 mg/kg 순서로 높았다. 모암의 성인에 의한 농도분포는 변성암이 362 mg/kg 으로 가장 높았으며, 퇴적암 354 mg/kg, 화성암 328 mg/kg 순서로 조사되었다. 지질시대에 의한 농도분포는 고생대가 394 mg/kg 으로 가장 높았으며, 트라이아스기 391 mg/kg, 선캄브리아시대 368 mg/kg, 쥐라기 359 mg/kg, 시대미상 324 mg/kg, 제4기 314 mg/kg, 백악기 304 mg/kg 순서로 높았다. 암종에 따른 불소 농도분포는 섬록암이 515 mg/kg 으로 가장 높았으며, 편마암류 377 mg/kg, 편암류 344 mg/kg, 천매암 306 mg/kg, 화강암류 305 mg/kg, 석영반암 298 mg/kg 순서로 조사되었다. 본 연구결과를 종합해보면 경기도 지역의 지각을 이루는 경기육괴 내 선캄브리아시대 변성암인 편마암류와 편암류가 높은 농도의 불소를 함유하고 있음을 알 수 있다.

주요어 : 불소, 골재, 산림골재, 농도분포, 토양오염우려기준

1. 서 언

골재는 국민의 생명과 재산, 국가 경제에 중대한 영향을 미치는 사회기반시설과 국민의 주거지 및 생활시설을 짓기 위해 사용되는 필수 건설재료이다. 최근 사회기반시설 조성 및 도시개발 공사 등이 활발하게 진행되면서, 이를 위해 사용되는 골재가 불소로 오염된 사례가 지속적으로 보고되면서 사회적 문제로 대두되고 있다. (주)우성산업개발은 1998년 9월 서울지방국토관리청으로부터 하남시 미사동 643번지 일원에 중부고속도로 건설물 처리를 조건으로 야적장 허가를 받았으나, 2012년 6월 부도 처리되면서 야적장에 덩프트럭 수만 대 분의 불소로 오염된 폐골재가 10년 넘게 방치되어, 주변으로 불소 오염을 야기했다. 하남시는 2017년 폐골재에 대한 토양오염 조사를 실시한 결과 토양오염우려기준 불소 우려기준 400 mg/kg 을 초과하여 검출되었고, 2018년 조사에서는 387개 지점, 855개 시료가 초과한 것으로 검출되었다. 2018년 1월 개장한 인천국제공항 제2여객터미널 건설 사

업 부지에서는 토양오염우려기준을 초과하는 불소가 검출된 바가 있으며, 이는 사업 부지 조성을 위해 사용된 용유도 을왕산 내 암석에 의해 기인된 것으로 규명되었다(Lee et al., 2018). 이외에도 서울 서초구 구 정보사 부지, 인천 미추홀구 주안도시개발 1구역, 과천 3기 신도시 공공주택지구 구역 등에서 발생되는 토취원 내 불소 오염으로 환경문제에 대한 사회적 관심이 높아지고 있다.

불소는 주로 인간의 치아건강에 영향을 미치는 원소로 적정량의 섭취를 통해 치아의 결속 조직을 강화하고, 충치 예방에 큰 역할을 한다. 하지만 과도한 불소의 섭취는 뼈와 치아에 관련된 질환을 유발하고, 발달 및 지능장애, 내분비계나 신경계에 악영향을 미친다. 최근 연구들은 신장암, 골암 등과 같은 발암성 질환의 발병률을 높인다고 보고하고 있다(Camaro, 2003; Oh and Lee, 2003; Rao, 2003; Ayoob and Gupta, 2006; Ozsvath, 2009; Dehbandi et al., 2018; Yousefi et al., 2018; Zuo et al., 2018).

불소는 인간의 산업 활동에 의한 인위적인 요인에 의

해 발생될 수 있지만, 암석 내 존재하는 무기염의 풍화와 용해를 통해 자연적으로 생성되기도 한다(Na et al., 2010; An et al., 2013). 불소를 함유하고 있는 광물은 수백 개에 이르는 것으로 알려져 있으며(Weinstein and Davison, 2004), 대표적인 불소 함유 광물은 형석(CaF₂), 인회석(Ca₅(PO₄)₃F), 빙정석(NA₃AlF₆), 빌리아우마이트(NaF), 토파즈(Al₂(SiO₄)F₂ 등이 있다(Handa, 1975; Hem, 1985; Apambire et al., 1997; Cronin et al., 2000; Saxena and Ahmed, 2003; Weinstein and Davison, 2004; Chae et al., 2007; Edmunds and Smedley, 2013).

지각 전체의 불소 평균함량은 500~1,000 mg/kg이며, 특히 화성암 지대에서는 1,000 mg/kg 이상의 불소함량이 나타날 수 있다고 보고되었다. 국내의 경우에도 토양오염 우려기준인 400 mg/kg을 초과하는 사례가 보고되었으며, 모암 형성 및 풍화 과정에서 자연적 요인에 의해 발생하였다는 가능성을 제시하였다(Oh and Lee, 2003; Ozsvath, 2009; Na et al., 2010; An et al., 2013; Lee et al., 2018; 2019; 2022).

본 연구는 우리나라 산림골재 공급원이 될 수 있는 암석 내에 존재하는 불소의 분포 특성을 파악하기 위해 지역, 지질학적 특성인 지질시대, 모암의 성인, 지체구조 및 암종을 고려하여 조사지점 선정 및 불소 농도분포를 조사하고, 우리나라 산림골재로 사용될 암석의 불소 배경 농도를 확보하여 향후 골재 개발의 기초자료를 제공함에 목적이 있다. 우리나라 산림골재 불소 분포와 관련된 보고는 현재까지 제한적이기 때문에 향후 산림골재 개발 측면에서, 충분한 활용성이 있을 것으로 예상된다.

2. 연구방법

2.1. 조사지점의 선정

우리나라 산림골재의 불소 분포특성을 조사하기 위해 권역별 지질학적 특성을 고려하여 22개 시군의 224개 지점에서 산림골재(암석) 시료를 채취하였다(Table 1). 조사지점은 한국지질자원연구원 지오빅데이터 오픈플랫폼의 1 대 50,000, 1 대 250,000 수치지질도에서 제공하는 지질정보(암종, 지질시대 등)와 행정구역도를 기초로 하여 선정하였다. 강원도에서는 2개 시군에서 13개 시료, 경기도에서는 12개 시군에서 103개 시료, 충청도에서는 3개 시군에서 47개 시료, 전라도에서는 3개 시군에서 27개 시료, 경상도에서는 2개 시군에서 34개 시료를 채취하였다.

2.2. 산림골재 시료채취 및 전처리

산림골재 채취는 조사지점 선정 후 산림골재로 사용 가능성이 높은 암석을 대상으로 채취하여, 불소 농도 평가

Table 1. Survey areas and sample numbers

Survey Areas		Sample numbers	Sum
Gangwon	Sokcho	7	13
	Yanggu	6	
Gyeonggi/Incheon	Gapyeong	11	103
	Goyang	2	
	Gwangju	7	
	Dongducheon	8	
	Ansan	3	
	Yangpyeong	9	
	Yeoncheon	14	
	Icheon	4	
	Pocheon	33	
	Incheon Eurwang	2	
	Gangwha	9	
Chungcheong	Ongjin	1	47
	Goesan	16	
	Geumsan	14	
	Chungju	17	
Jeolla	Gangjin	17	27
	Muju	5	
	Goheung	5	
Gyeongsang	Ulleung	16	34
	Hapcheon	18	
Total		224	

를 실시하였다. 각 지점에서 암석 10 kg 정도를 채취하였으며, 채취한 암석시료를 단조강 해머를 사용하여 파쇄한 후 크라샤 작업 후 분말로 제작하였고, 제작한 분말을 0.075 mm(200 mesh) 체로 체가름을 하였다.

2.3. 산림골재 불소 분석

골재 중 불소 농도는 환경부의 토양오염공정시험기준에 따라 분석하였으며, 농도 분석은 미국 Agilent 사의 Agilent8453 자외선-가시광선 분광광도계(UV-Vis Spectrophotometer)를 사용하였다.

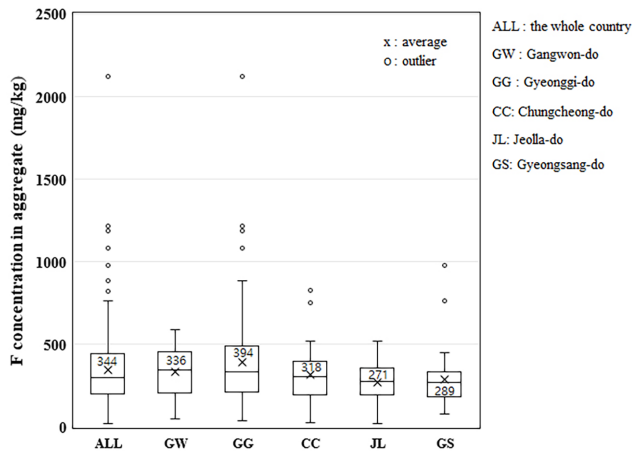
3. 결과 및 고찰

3.1. 국내 배경농도 및 권역별 농도 분포

224개 시료 분석결과 우리나라 산림골재 불소 전국 배경농도는 평균 344 mg/kg(중앙값 298 mg/kg), 최대 농도 2,122 mg/kg, 최소 농도 17 mg/kg 인 것으로 조사되었다. 암석의 지각 평균 불소 농도인 625 mg/kg 에 비해 현저

Table 2. Fluorine levels in continental crust and soils of the world(Lim et al., 2018)

Continental crust			Soil		
Con. (mg/kg)	Criterion	Source	Con. (mg/kg)	Criterion	Source
500	Upper crust	Shaw et al.(1967, 1976)	321	World-soil average	Kabata-Pendias(2010)
561	Upper crust	Gao et al.(1998)	453	China	Wang and Wei(1995)
611	Upper crust	Wedepohl(1995)	166-288	Switzerland	Polomski et al.(1982)
577	Upper crust	Rudnick and Gao(2003)	113-475	U.K	Fuge and Andrews(1998)
625	Crustal average	Hedrick(1995)	300-430	U.S	National Research Council(2006)

**Fig. 1.** Distribution of fluorine concentration in aggregate by region.

히 낮았으며, 세계 토양 평균 불소 농도인 321 mg/kg 보다는 다소 높았다(Table 2).

권역별 농도는 강원도가 평균 336 mg/kg(중앙값 344 mg/kg), 최대 농도 587 mg/kg, 최소 농도 46 mg/kg, 경기도가 평균 394 mg/kg(중앙값 333 mg/kg), 최대 농도 2,122 mg/kg, 최소 농도 35 mg/kg, 충청도가 평균 318 mg/kg(중앙값 303 mg/kg), 최대 농도 827 mg/kg, 최소 농도 25 mg/kg, 전라도가 평균 271 mg/kg(중앙값 275 mg/kg), 최대 농도 521 mg/kg, 최소 농도 17 mg/kg, 경상도가 평균 289 mg/kg(중앙값 269 mg/kg), 최대 농도 977 mg/kg, 최소 농도 80 mg/kg 으로 조사되었다(Fig. 1).

경기도가 가장 높은 농도로 조사되었고, 강원도와 충청도는 전국 평균 농도와 유사하였으며, 전라도와 경상도는 평균 보다 낮은 불소농도를 보였다. 이처럼 권역별로 불소 농도 차이를 보이는 것은 지역별 기반암 및 구성광물의 종류 등에 따른 지질학적 특성과 암석의 풍화 정도 차이에 의한 것으로 추측해 볼 수 있다.

3.2. 지질학적 특성에 따른 농도 분포

지질학적 특성에 따른 산림골재 불소 분포를 조사하기

위해 국내 배경농도를 확인코자 조사한 224개의 데이터를 지체구조, 모암의 성인, 지질시대, 주요 암종에 따라 분류하여 농도 분포를 조사하였다.

3.2.1. 지체구조

지체구조란 지각을 이루는 기반암의 형태, 구조, 성질 등이 유사한 구역을 나누어 육괴, 분지 등의 분포상태를 의미하여, 우리나라는 경기육괴, 옥천습곡대, 영남육괴, 경상분지(Choi, 2013) 및 소규모의 퇴적분지 및 화산대로 구성되어 있다.

경기육괴는 강원도 동쪽 고성-간성 지역에서 회천을 거쳐 가평-양평지역과 춘천을 지나 경기도 포천-고양과 충청남도 서산을 잇는 지역에 분포하는 지체구조이다. 본 연구에서 경기육괴에 해당하는 지역의 시료채취는 경기도 가평, 고양, 광주, 동두천, 안산, 양평, 연천, 이천, 포천, 인천 을왕동, 강화, 용진에서 103개의 시료를 채취하였으며, 강원도에서는 속초, 양구에서 7개 시료를 채취하여 경기육괴에 해당하는 시료는 총 110개이다. 불소농도 분석 결과 경기육괴에 해당하는 시료의 평균 불소 농도는 396 mg/kg(중앙값 342 mg/kg), 최대 농도 2,122 mg/kg, 최소 농도 35 mg/kg 인 것으로 조사되었다(Fig. 2).

옥천습곡대는 충청도 일대의 소위 옥천대라고 지칭하는 천매암류들로 구성된 변성퇴적암과 강원도 일대의 소위 삼척탄전지대의 석회암과 무연탄을 함유하는 퇴적암이 분포하는 두 영역으로 나뉜다. 옥천습곡대에 해당하는 지역의 시료채취는 강원도 속초에서 6개 시료, 충청도 괴산, 금산, 충주에서 47개, 전라도 강진, 무주에서 10개 시료를 채취하여 옥천습곡대에 해당하는 시료는 총 63개이다. 옥천습곡대에 해당하는 시료의 평균 불소 농도는 291 mg/kg(중앙값 292 mg/kg), 최대 농도는 827 mg/kg, 최소 농도는 25 mg/kg 인 것으로 조사되었다(Fig. 2).

영남육괴는 한반도 남서부에 소위 옥천대의 동쪽에 분포하는 선캠브리아시대의 변성암류로 경상분지의 기저부를 이루기도 한다. 영남육괴에 해당하는 지역의 시료채취는 전라도 강진, 무주, 고흥에서 16개의 시료를 채취하

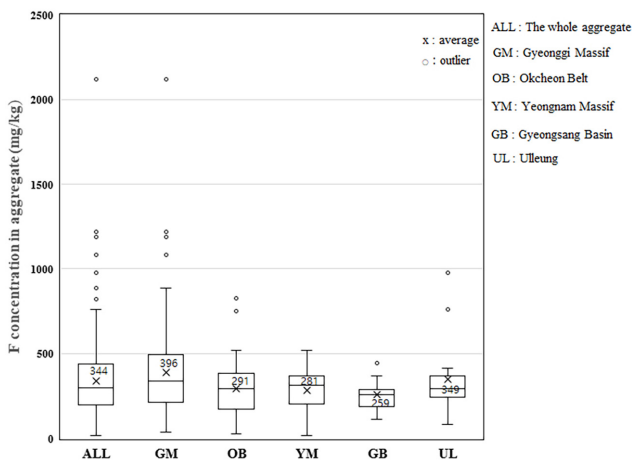


Fig. 2. Distribution of fluorine concentration in aggregate by tectonic structure.

였으며, 경상도에서는 함천군에서 4개의 시료를 채취하여 영남육괴에 해당하는 시료는 총 20개 이다. 영남육괴에 해당하는 시료의 평균 불소 농도는 281 mg/kg(중앙값 310 mg/kg), 최대 농도 521 mg/kg, 최소 농도 17 mg/kg인 것으로 조사되었다(Fig. 2).

경상분지는 한반도 동남부에 자리하며, 중생대 백악기 동안에 형성된 층적 선상지, 층적 평야, 호수 및 화산 테레인(terrane) 퇴적층들로 구성된다. 경상분지에 해당하는 지역의 시료채취는 전라도 고흥군에서 1개의 시료를 채취하였으며, 경상도에서는 함천군에서 14개의 시료를 채취하여 경상분지에 해당하는 시료는 총 15개 이다. 경상분지에 해당하는 시료의 평균 농도는 259 mg/kg(중앙값 257 mg/kg), 최대 농도 447 mg/kg, 최소 농도 109 mg/kg인 것으로 조사되었다(Fig. 2).

퇴적분지/화산대는 제주도·울릉도를 포함하여 동해안에 협소하게 분포하는 제3기의 퇴적분지와 백두산·울릉도·제주도를 연결하는 동해연변부의 화산대로 소규모지만 뚜렷한 지체구조를 이루고 있다. 퇴적분지/화산대에 해당하는 지역은 울릉도로 시료 수는 총 16개 이다. 울릉도의 평균 농도는 349 mg/kg(중앙값 292 mg/kg), 최대 농도 977 mg/kg, 최소 농도 80 mg/kg 으로 조사되었다(Fig. 2).

3.2.2. 모암의 성인

모암의 성인에 의한 분류에 따라 화성암(igneous rock), 변성암(metamorphic rock), 퇴적암(sedimentary rock) 으로 구분하여 불소 농도 분포를 조사하였다(Fig. 3). 화성암 시료는 112개 이며, 평균 농도는 328 mg/kg(중앙값 293 mg/kg), 최대 농도 2,122 mg/kg, 최소 농도 17 mg/kg 이다. 변성암 시료는 90개 이며, 평균 농도 362mg/kg(중앙값 332 mg/kg), 최대 농도 1,218 mg/kg, 최소 농도 17 mg/kg 이다. 퇴

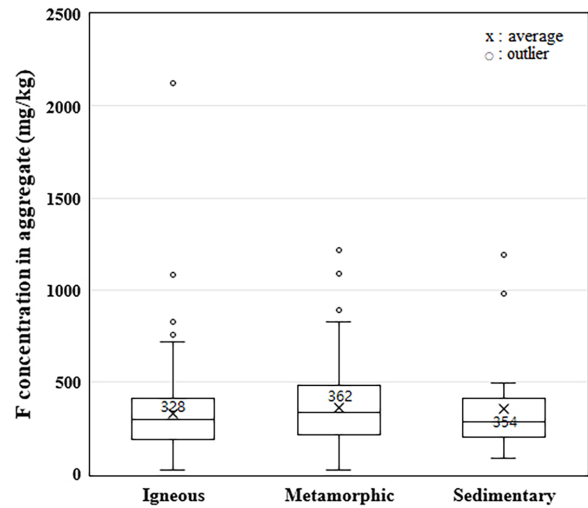


Fig. 3. Distribution of fluorine concentration in aggregate by parent rock.

적암 시료는 22개 시료이며, 평균 농도 354mg/kg(중앙값 283 mg/kg), 최대 농도 1,189 mg/kg, 최소 농도 81 mg/kg으로 조사되었다. 변성암은 상대적으로 높은 불소 농도를 함유하고 있는 것으로 보고되고 있으며(Fawell et al., 2006), 변성작용 과정에 따라 100 ppm에서 5,000 ppm 이상의 농도로 불소가 함유되어 있다고 알려져 있다(Malago et al., 2017).

화성암에서는 마그마가 지표로부터 약 10 km 이하의 심부에서 천천히 식어 생성된 심성암, 마그마가 지표까지는 도달하지 않고 심성암보다는 상부에서 식어 생성된 반심성암, 마그마가 지각을 뚫고 지표까지 도달하여 화산활동에 의해 생성된 화산암으로 분류하여 불소 농도 분포를 조사하였다(Fig. 4). 화성암 중 심성암에 해당하

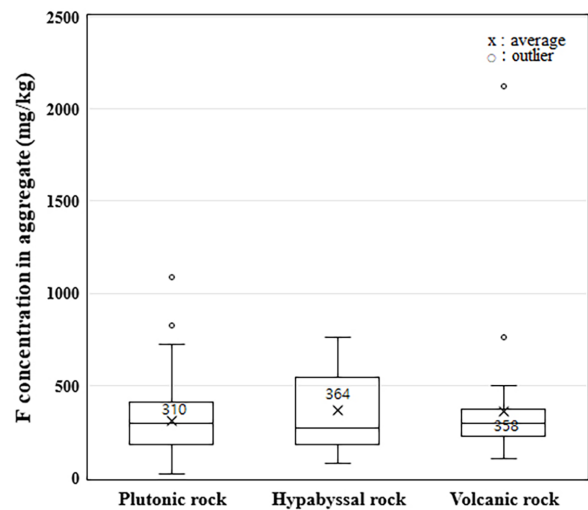


Fig. 4. Distribution of fluorine concentration in aggregate by origin of igneous rock.

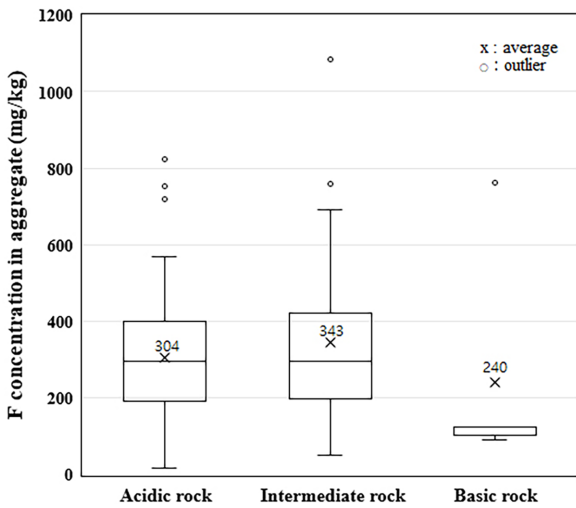


Fig. 5. Distribution of fluorine concentration in aggregate by SiO₂ content.

는 시료는 화강암류, 섬록암, 화강섬록암, 섬장암, 회장암 등으로 72개 시료가 해당되며, 평균 농도 310 mg/kg(중앙값 295 mg/kg), 최대 농도 1,084 mg/kg, 최소 농도 17 mg/kg 으로 조사되었다. 반심성암에 해당하는 시료는 석영반암, 화강암반 등으로 7개 시료가 해당되며, 평균 농도 364 mg/kg(중앙값 269 mg/kg), 최대 농도 759 mg/kg, 최소 농도 80 mg/kg으로 조사되었다. 화산암에 해당하는 시료는 응회암, 각력암, 조면암, 현무암, 안산암, 유문암 등으로 33개 시료가 해당되며, 평균 농도 358 mg/kg(중앙값 292 mg/kg), 최대 농도 2,122 mg/kg, 최소 농도 101 mg/kg으로 조사되었다.

또한, 화성암에서 SiO₂의 함량에 따라 65% 이상인 산성암, 65%에서 55% 까지인 중성암, 55% 이하인 염기성암으로 분류하여 불소 농도 분포를 조사하였다(Fig. 5). 산성암에 해당하는 시료는 반암, 화강암류 등으로 63개 시료가 해당되며, 평균 농도 304 mg/kg(중앙값 294 mg/kg), 최대 농도 823 mg/kg, 최소 농도 17 mg/kg으로 조사되었다. 중성암에 해당하는 시료는 섬록암, 화강섬록암 안산암, 조면암, 섬장암 등으로 28개 시료가 해당되며, 평균 농도 343 mg/kg(중앙값 295 mg/kg), 최대 농도 1,084 mg/kg, 최소 농도 50 mg/kg으로 조사되었다. 염기성암에 해당하는 시료는 현무암과 회장암으로 5개 시료가 해당되며, 평균 농도 240 mg/kg(중앙값 123 mg/kg), 최대농도는 763 mg/kg, 최소농도는 89 mg/kg 으로 조사되었다.

3.2.3. 지질시대

이번 연구에서 선캠브리아시대에 해당하는 지역 중 강원도는 속초, 양구로 시료수가 5개, 경기도는 가평, 고양, 광주, 동추천, 안산, 양평, 영천, 이천, 포천, 인천 강화로 시

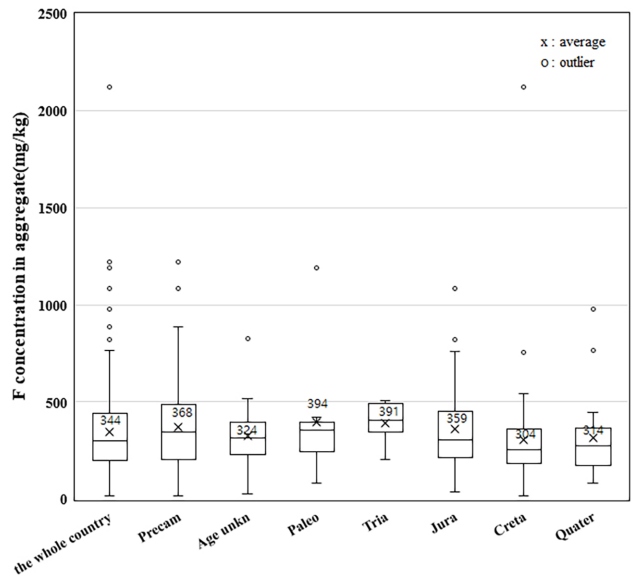


Fig. 6. Distribution of fluorine concentration in aggregate by geologic ages.

료수가 52개, 충청도는 충주로 시료수가 5개, 전라도는 강진, 고흥, 무주로 시료수가 8개, 경상도는 합천군으로 시료수가 2개로 선캠브리아시대에 해당하는 시료는 총 72개 이다. 선캠브리아시대 시료의 평균 농도는 368 mg/kg(중앙값 345 mg/kg), 최대 농도 1,218 mg/kg, 최소 농도 17 mg/kg 인 것으로 조사되었다(Fig. 6).

시대미상에 해당하는 지역 중 경기도는 가평으로 시료수가 1개, 충청도는 괴산, 금산, 충주로 시료수가 15개, 전라도는 강진으로 시료수가 4개, 경상도는 합천으로 시료수가 2개로 시대미상에 해당하는 시료는 총 22개 이다. 시대미상 시료의 평균 농도는 324 mg/kg(중앙값 313 mg/kg), 최대 농도 827 mg/kg, 최소 농도 25 mg/kg 인 것으로 조사되었다.

고생대에 해당하는 지역 중 경기도 연천, 포천, 용진으로 시료수가 3개, 충청도는 괴산, 충주로 시료수가 6개로 고생대에 해당하는 시료는 총 9개 이다. 고생대 시료의 평균 농도는 394 mg/kg(중앙값 354 mg/kg) 이며, 최대 농도 1,189 mg/kg, 최소 농도 81 mg/kg인 것으로 조사되었다.

중생대 트라이아스기에 해당하는 지역 중 강원도는 속초로 시료수가 2개, 경기도는 포천, 인천 을왕동으로 시료수가 3개로 트라이아스기에 해당하는 시료는 총 5개 이다. 트라이아스기의 평균 농도는 391 mg/kg, 최대 농도 509 mg/kg, 최소 농도 203 mg/kg 인 것으로 조사되었다.

쥐라기에 해당하는 지역 중 강원도는 속초, 양구로 시료수가 4개, 경기도는 가평, 고양, 광주, 양평, 이천, 포천, 강화로 시료수가 28개, 충청도가 괴산, 금산, 충주로 시료수가 11개, 전라도가 강진으로 시료수가 1개로 쥐라기

에 해당하는 시료는 총 44개 이다. 쥐라기의 평균 농도는 359 mg/kg(중앙값 302 mg/kg), 최대 농도 1,084 mg/kg, 최소 농도 35 mg/kg 인 것으로 조사되었다.

백악기에 해당하는 지역 중 강원도는 속초로 시료수가 2개, 경기도는 양평, 연천, 포천, 인천 강화로 시료수가 12개, 충청도가 괴산, 금산으로 시료수가 10개, 전라도는 강진, 고흥, 무주로 시료수가 14개, 경상도는 합천으로 시료수가 13개로 백악기에 해당하는 시료는 총 51개 이다. 백악기의 평균 농도는 304 mg/kg(중앙값 252 mg/kg), 최대 농도 2,122 mg/kg, 최소 농도 17 mg/kg 인 것으로 조사되었다.

제4기에 해당하는 지역 중 경기도는 가평, 연천으로 시료수가 4개, 경상도는 합천, 울릉도로 시료수가 17개로 제4기에 해당하는 시료는 총 21개 이다. 제4기의 평균 농도는 314 mg/kg(중앙값 273 mg/kg)이며, 최대 농도 977 mg/kg, 최소 농도 80 mg/kg 인 것으로 조사되었다.

3.2.4. 암종

한반도에는 화성암류, 변성암류 및 퇴적암류 등이 발달하며, 그 지질시대도 선캄브리아시대에서부터 고생대, 중생대를 거쳐 신생대 제4기에 이른다. 화성암류는 암류 및 암 등으로, 변성암류와 퇴적암류는 복합체, 누층군, 층군과 층 등으로 세분되고 있다.

이번 연구에서 화강암류에는 흑운모화강암, 복운모화강암, 장석화강암, 각섬석 흑운모화강암, 함석류석 흑운모화강암 등 총 57개 시료이며, 선캄브리아시대는 2개 시료, 시대미상은 1개 시료, 중생대 트라이아스기는 4개 시료, 쥐라기는 38개 시료, 백악기는 12개 시료가 해당된다.

화강암류의 불소 평균 농도는 305 mg/kg(중앙값 296 mg/kg), 최대 농도 823 mg/kg, 최소 농도 17 mg/kg 인 것으로 조사되었다(Fig. 7).

편마암류는 흑운모편마암, 화강암질 편마암, 호상흑운

모편마암, 미그마타이트질 편마암 등 총 54개 시료이며, 선캄브리아시대는 48개 시료, 시대미상은 4개 시료, 백악기는 1개 시료, 제4기는 1개 시료가 해당된다. 편마암류의 불소 평균 농도는 377 mg/kg(중앙값 339 mg/kg), 최대 농도 1,086 mg/kg, 최소 농도 17 mg/kg인 것으로 조사되었다.

편암류에는 경기변성암복합체 흑운모편마암 내 편암, 흑운모편암, 석영운모편암 등 총 12개의 시료가 해당되며, 선캄브리아시대 8개 시료, 시대미상 4개 시료가 해당된다. 편암류의 불소 평균 농도는 344 mg/kg(중앙값 304 mg/kg), 최대 농도 701 mg/kg, 최소 농도 94 mg/kg 인 것으로 조사되었다.

천매암은 시대미상 6개 시료, 고생대 3개 시료로 총 9개 시료가 해당되며, 불소 평균 농도는 306 mg/kg(중앙값 296 mg/kg), 최대 농도 483 mg/kg, 최소 농도 90 mg/kg인 것으로 조사되었다.

섬록암은 선캄브리아시대 1개 시료, 시대미상 1개 시료, 쥐라기 5개 시료로 총 7개 시료가 해당되며, 불소 평균 농도는 515 mg/kg(중앙값 472 mg/kg), 최대 농도 1,084 mg/kg, 최소 농도 114 mg/kg 인 것으로 조사되었다.

석영반암은 백악기 6개 시료가 해당되며, 불소 평균 농도는 298 mg/kg(중앙값 242 mg/kg), 최대 농도 753 mg/kg, 최소 농도 80 mg/kg 인 것으로 조사되었다.

4. 결 론

향후 우리나라 산림골재의 주요 공급원이 될 수 있는 암석 내 불소의 지질학적 분포 특성을 조사하기 위해 22개 시군의 224개 지점에서 산림골재(암석) 시료를 채취하여 전국 배경농도, 권역, 지질학적 특성인 지질시대, 지체구조, 모암의 성인, 주요 암종으로 구분하여 불소 농도 분포를 조사하였다.

전국 불소 배경농도는 평균 344 mg/kg 으로 암석의 지각 평균 불소 농도인 625 mg/kg 보다는 현저히 낮으며, 세계 토양 평균 불소농도인 321 mg/kg 보다는 다소 높았다. 권역별 농도는 경기도가 평균 394 mg/kg 으로 가장 높았으며, 강원도가 평균 336 mg/kg, 충청도가 318 mg/kg, 경상도가 평균 289 mg/kg, 전라도가 평균 271 mg/kg 순서로 높았다.

지체구조에 의한 불소 농도분포는 경기육괴가 396 mg/kg 으로 가장 높았으며, 퇴적분지/화산대인 울릉도가 349 mg/kg, 옥천습곡대가 291 mg/kg, 영남육괴가 281 mg/kg, 경상분지가 259 mg/kg 순서로 높았다.

모암의 성인에 의한 불소 농도분포는 변성암이 평균 362 mg/kg으로 가장 높았으며, 퇴적암이 평균 354 mg/kg, 화성암이 평균 328 mg/kg 순서로 높았다. 화성암의 생성

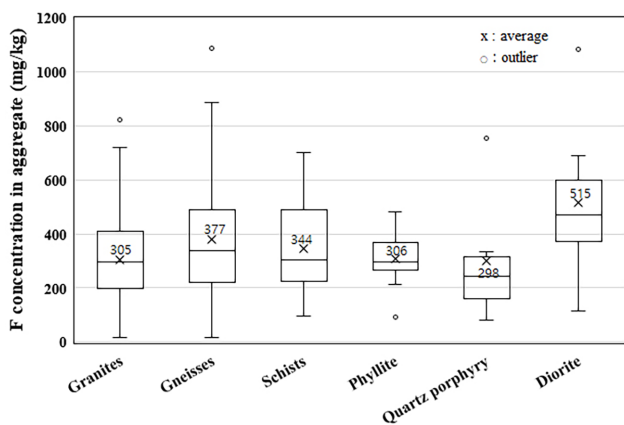


Fig. 7. Distribution of fluorine concentration in aggregate by rock types.

깊이에 따른 농도분포는 반심성암이 평균 364 mg/kg 으로 가장 높았으며, 화산암이 평균 358 mg/kg, 심성암이 평균 310 mg/kg 순서로 높았다. SiO₂ 함량에 따른 농도분포는 중성암이 평균 343 mg/kg으로 가장 높았으며, 산성암이 평균 304 mg/kg, 염기성암이 평균 240 mg/kg 순서로 높았다.

지질시대에 의한 불소 농도분포는 고생대 시료가 평균 394 mg/kg 으로 가장 높았으며, 트라이아스기 시료가 평균 391 mg/kg, 선캄브리아시대 시료가 평균 368 mg/kg, 쥐라기가 평균 359 mg/kg, 시대미상 시료가 평균 324 mg/kg, 제4기 시료가 평균 314 mg/kg, 백악기 시료가 평균 304 mg/kg 순서로 높았다.

암종에 의한 불소 농도분포는 섬록암이 평균 515 mg/kg 으로 가장 높았으며, 편마암류가 평균 377 mg/kg, 편암류가 평균 344 mg/kg, 천매암이 평균 306 mg/, 화강암류가 305 mg/kg, 석영반암이 평균 298 mg/kg 순서로 높았다.

본 연구결과를 종합해보면 경기도 지역의 지각을 이루는 경기육괴 내 선캄브리아시대 변성암인 편마암류와 편암류가 높은 농도의 불소를 함유하고 있음을 알 수 있다.

환경부 토양환경보존법의 불소 기준을 적용해보면, 토양오염우려기준 1, 2 지역 불소오염기준인 400 mg/kg 을 초과하는 시료수는 65개로 29.0%에 해당되며, 우려기준 3지역과 대책기준 1, 2 지역 불소오염기준 800 mg/kg 을 초과하는 시료는 9개로 4%에 해당된다. 대책기준 3지역 불소오염기준 2,000 mg/kg 을 초과하는 시료는 1개로 조사되었다.

현재 골재 내에 존재하는 불소 농도에 대한 평가방법이나 기준은 제정되지 않아 환경부의 토양환경보존법을 준용하였는데, 지각 불소 평균농도는 625 mg/kg 보다 낮은 400 mg/kg으로 규정되어있다. 이번 연구에서 경기 권역의 불소 배경농도가 평균 394 mg/kg 로 조사되었으며, 전체 224개 시료 중 65개인 29.0%가 토양오염우려기준 1, 2 지역 불소오염 기준인 400 mg/kg 을 초과한 것으로 조사되었는바 향후 골재뿐만 아니라 토양의 불소 기준 설정에 본 연구의 결과를 참고하여 자연기원에 의한 불소 영향을 고려해야 할 것으로 사료된다.

5. 향후 연구

국내 산림골재에 존재하는 불소 배경농도 및 분포 특성과 관련된 연구는 전무한 상황이며, 암석 내 불소를 함유한 광물에 대한 암석학적, 광물학적 연구는 소수에 불과하다(Lee et al., 2018; 2019; 2022). 이에 본 연구는 우리나라 산림골재 주요 공급원인 암석의 불소 농도 분포와 지질학적 분포 특성을 파악하는 데 의의가 있다. 향

후 지역, 지체구조, 모암의 성인, 지질시대, 암종 및 구성 광물 등의 차이에 따라 불소함량 차이를 발생시키는 원인 규명에 대한 암석학적, 광물학적 연구가 이루어져야 할 것이다. 또한, 불소의 총 함량이 아닌, 수용체에 직접적으로 영향을 미칠 수 있는 함량을 측정하는 연속추출법을 이용하여 불소의 결합형태 및 이동성 평가에 대한 지구화학적 연구가 수반되어야 한다.

사 사

이 논문은 한국지질자원연구원에서 수행하고 있는 국토교통부 “2024년 골재자원조사 및 관리 (IP2024-008-2024)”과제를 통해 작성되었습니다. 또한 논문에 대한 세심한 검토와 제안을 주신 심사위원 분들께 감사드립니다.

Reference

- An, J.S., Kim J.A. and Yoon, H.O. (2013) A Review on the analytical techniques for the determination of fluorine contents in soil and solid phase samples. *Journal of Soil and Groundwater Environment*, v.18(1), p.112-122. doi: 10.7857/JSGE.2013.18.1.112
- Apambire, W.B., Boyle, D.R. and Michel, F.A. (1997) Geochemistry, genesis, and health implications of fluoriferous groundwaters in the upper regions of Ghana, *Environmental. Geology*, v.33, p.13-24. doi: 10.1007/s002540050221
- Ayoob, S. and Gupta, A.K. (2006) Fluoride in drinking water: A Review on the status and stress effects. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology*, v.36, p.433-487. doi: 10.1080/10643380600678112
- Camargo, J.A. (2003) Fluoride toxicity to aquatic organisms: a review. *Chemosphere*, v.50, p.251-264. doi: 10.1016/s0045-6535(02)00498-8
- Chae, G.T., Yun, S.T., Mayer, B., Kim, K.H., Kim, S.Y., Kwon, J.S., Kim, K. and Koh, Y.K. (2007) Fluorine geochemistry in bedrock groundwater of South Korea. *Science of the Total Environment*, v.385, p.272-283. doi: 10.1016/j.scitotenv.2007.06.038
- Choi, D.K. (2013) Tectonic provinces of the Korean Peninsula, *Proceedings of the Annual Conference of the Geological Society of Korea*. Geol. Soc. Kor., Jeju, Korea, p.22-22.
- Cronin, S.J., Manoharan, V., Hedley, M.J. and Lognathan, P. (2000) Fluoride: a review of its fate, bioavailability, and risks of fluorosis in grazed-pasture system in New Zealand. *New Zealand Journal of Agricultural Research*, v.43(3), p.295-321. doi: 10.1080/00288233.2000.9513430
- Dehbandi, R., Moore, F. and Keshavarzi, B. (2018) Geochemical sources, hydrogeochemical behavior, and health risk assessment of fluoride in an endemic fluorosis area, central Iran. *Chemosphere*, v.193, p.763-776. doi: 10.1016/j.chemosphere.2017.11.021
- Edmunds, W.M. and Smedley, P.L. (2013) Fluoride in natural waters, In: O. Selinus, B. Alloway, J.A. Centeno, R.B. Finkelman, R. Fuge, U. Lindh, and P.L. Smedley(eds.), *Essentials of medical*

- geology. Elsevier Academic Press, London, UK, p.311-336. doi: 10.1007/978-94-007-4375-5_13
- Fawell, J., Bailey, K., Chilton, J., Dahi, E., Fewtrell, L. and Magara, Y. (2006) Fluoride in drinking water, IWA Publishing, London, p.144.
- Fuge, R. and Andrews, M.J. (1988) Fluorine in the UK environment, *Environ. Geochem. Health*, 10, p.96-104. doi: 10.1007/bf01758677
- Gao, S., Luo, T.C., Zhang, B.R., Zhang, H.F., Han, Y.W., Hu, Y.K. and Zhao, Z.D. (1998) Chemical composition of the continental crust as revealed by studies in east China. *Geochim. Cosmochim. Acta*, v.62, p.1959-1975. doi: 10.1016/S0016-7037(98)00121-5
- Handa, B.K. (1975) Geochemistry and genesis of fluoride-containing ground waters in India. *Groundwater, Ground Water*, v.13, p.275-281. doi: 10.1111/j.1745-6584.1975.tb03086.x
- Hedrick, J.B. (1995) The global rare-earth cycle. *J. Alloys Comps.*, v.225, p.609-618. doi: 10.1016/0925-8388(94)07134-9
- Hem, J.D. (1985) Study and interpretation of the Chemical Characteristics of natural water, 3rd edition, US Geological Survey Water-Supply Paper 2254, University of Virginia, Charlottesville, p.263. doi: 10.3133/wsp2254
- Kabata-Pendias, A. and Pendias, H. (1984) Trace elements in soils and plants, CRC Press, Boca Raton, 315.
- Lee, J.H., Jeong, J.O., Kim, K.K., Lee, S.W. and Kim, S.O. (2018) Origin of fluorine contained in rocks within the Eulwangsang, Yongyudo. *Economic and Environmental Geology*, v.51(6), p.521-529. <http://dx.doi.org/10.9719/EEG.2018.51.6.521>
- Lee, J.H., Jeong, J.O., Kim, K.K., Lee, S.W. and Kim, S.O. (2019) Geochemical Study on the Naturally Originating Fluorine Distributed in the Area of Yongyudo and Sammokdo, Incheon. *Economic and Environmental Geology*, v.52(4), p.275-290. doi: 10.9719/EEG.2019.52.4.275
- Lee, J.H., Jeon, J.H., Lee, S.H. and Kim, S.O. (2022) Elucidation of the enrichment mechanism of the naturally originating fluorine within the Eulwangsang, Yongyudo: Focusing on the study of the fault zone. *Korean J. Mineral. Petrol.*, v.35(3), p.367-376.
- Lim, G.H., Lee, H.G., Kim, H.S., Noh, H.J., Ko, H.W., Kim, J.I., Jo, H.J. and Kim, H.K. (2018) *Journal of Soil and Groundwater Environment*, v.23, p.90-103.
- Malago, J., Makoba, E. and Muzuka, A.N.N. (2017) Fluoride levels in surface and groundwater in Africa: a review. *American Journal of Water Science and Engineering*, v.3(1), p.1-17. doi: 10.11648/j.ajwse.20170301.11
- Na, K.H., Yun, I.C. and Lee, J.B. (2010) The validation study of auto analysis method combined with aqua regia digestion for fluorine of soil. *Journal of Soil and Groundwater Environment*, v.15, p.8-15.
- National Research Council (NRC) (2006) Fluoride in drinking water: a scientific review of EPA's standards, National Academies Press, Washington DC, p.530.
- Oh, H.J. and Lee, J.Y. (2003) A study on the characteristic evaluation of metals and fluorine concentrations in the southern part of Seoul. *Journal of KoSSGE*, v.8, p.68-73.
- Ozsvath, D.L. (2009) Fluoride and environmental health: a review. *Reviews in Environmental Science and Bio/Technology*, v.8, p.59-79. doi: 10.1007/s11157-008-9136-9
- Polomski, J., Flüthler, H. and Blaser, P. (1982) Accumulation of airborne fluoride in soils. *Journal of Environmental Quality*, v.11, p.457-461. doi: 10.2134/jeq1982.00472425001100030028x
- Rao, N.C.R. (2003) Fluoride and environment-a review. In: Bunch, M.J.V., Suresh, M., Kumaran, T.V. (eds) Proceedings of third international conference on environment and health. York University, Chennai, India, p.386-399.
- Rudnick, R.L. and Gao, S. (2003) Composition of the continental crust, In: R.L. Rudnick(ed.), *The Crust, Treatise on Geochemistry*, v.3, p.1-64.
- Saxena, V.S. and Ahmed, S. (2003) Inferring the chemical parameters for the dissolution of fluoride in groundwater. *Environmental Geology*, v.43, p.731-736. doi: 10.1007/s00254-002-0672-2
- Shaw, D.M., Reilly, G.A., Muysson, J.R., Pattenden, G.E. and Campbell, F.E. (1967) An estimate of the chemical composition of the Canadian Precambrian shield. *Canadian Journal of Earth Sciences*, v.4, p.829-853. doi: 10.1139/e67-058
- Wang, Y. and Wei, F.S. (1995) Chemistry of elements in the pedosphere environment, China Environmental Science Press, Beijing, China, p.129-144.
- Wedepohl, H. (1995) The composition of the continental crust, *Geochim. Cosmochim. Acta*, v.59, p.1217-1239. doi: 10.1016/0016-7037(95)00038-2
- Weinstein, L.H. and Davison, A.W. (2004) Fluorides in the environment: effects on plants and animals, 1st edition, CABI Publishing, Wallingford, Oxford, UK.
- Yousefi, M., Ghoochani, M. and Mahvi, A.H. (2018) Health risk assessment to fluoride in drinking water of rural residents living in the Poldasht city, Northwest of Iran. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, v.148, p.426-430. doi: 10.1016/j.ecoenv.2017.10.057
- Zuo, H., Chen, L., Kong, M., Qiu, L., Lü, P., Wu, P., Yang, Y. and Chen, K. (2018) Toxic effects of fluoride on organisms. *Life Sciences*, v.198, p.18-24. doi: 10.1016/j.lfs.2018.02.001