

## 대보화강암내 함우라늄 광물의 산출특징과 존재형태의 중요성

### Characteristics of Uraniferous Minerals in Daebo Granite and Significance of Mineral Species

추 창 오 (Chang Oh Choo)

경북대학교 지질학과  
(Department of Geology, Kyungpook National University, Daegu, 702-701, E-mail: chooco@knu.ac.kr)

**요약 :** 지하수 중 우라늄이 높은 농도로 포함되어 있는 대보화강암 지역의 대수층구간에서 회수된 시추 코어에서 우라늄광물의 산출과 존재형태를 연구하였다. 우라늄광물은 일차적 기원으로 산출되며, 저어콘, 모나자이트, 제노타임 등과 같은 부성분 광물 내에 함유되는데 대부분 미량성분이나 포획물로 들어 있다. 우라늄 광물은 1~2  $\mu\text{m}$  이하의 미립질의 결정으로 산출되므로 후방산란 전자영상(BSE)으로서도 구분이 매우 어렵다. 우라늄 광물을 포함하는 부성분 광물에서 이들이 빠져 나간 용해동공이나 용해조직이 흔하게 관찰되는 것으로 보아 이들은 부분적으로 지하수로 용해되어 빠져 나간 것으로 판단된다. 모암내의 우라늄함량과 지하수중 우라늄의 함량이 서로 별다른 관련성을 보이지 않는 사실은 우라늄광물이 용해될 수 있는 수리화학적 환경 외에도 우라늄 광물의 산출특징과 존재형태도 중요한 요소임을 시사해 준다.

**주요어 :** 대보화강암, 우라늄광물, 부수광물, 저어콘, 모나자이트, 제노타임

**ABSTRACT :** A mineralogical study was made in order to identify the relationship between uranium content in groundwater and rock chemistry using core rocks recovered from the drilling holes for wells in the Daebo Granite areas. Uraniferous minerals are of primary origin and occur as inclusions in accessory minerals such as zircon, monazite, and xenotime. Since the uranium minerals are very small to be 1~2  $\mu\text{m}$  in size, it is difficult to distinguish their mineralogical species precisely. The frequent presence of dissolution cavities or dissolved textures in the accessory minerals suggests that uranium minerals dissolved partially and contributed to the groundwater chemistry. Because there is no clear relationship between host rocks and groundwater for uranium concentration, mineralogical characteristics of uranium minerals, together with aqueous geochemical conditions favorable for uranium dissolution, could play important roles in groundwater chemistry.

**Key words :** uranium, Daebo Granite, zircon, monazite, xenotime

#### 서 언

우라늄 광물은 구조와 화학조성이 다양하고 복잡하므로 지표 부근이나 수성환경에서 산출하는 경우에는 지구화학적 환경의 지시자로서

널리 활용되어져 왔다(Langmuir, 1997; Finch and Murakami, 1999; Murphy and Shock, 1999). 일반적인 광물들 중에서 약 5% 정도만이 결정구조적인 필수성분으로 우라늄을 함유하는 것으로 알려져 있다(Mandarino, 1999). 현

재까지 우라늄을 함유하는 광물은 218종이지만, 국제광물학협회(International Mineralogical Association, IMA)가 공인한 광물은 216종이다 (Gaines et al., 1997). Dahlkamp (1993)에 의하면 일반적인 화강암내 우라늄의 함량은 2.2~15 ppm 범위에서 평균 3.5 ppm인데, 문조화강암이나 우백질화강암은 이보다 약간 더 함량이 높다. 우라늄은 지질학적으로 볼 때, 암석의 부성분광물(accessory mineral) 및 우라늄광석 광물로 산출되는데, 후자의 경우는 주로 4가 상태의 광물이지만 6가 상태의 광물을 수반하기도 한다.

국내의 경우, 1950년대에 옥천계 탄질암석에서 방사성물질의 함유가 알려지면서 옥천계 우라늄에 대한 체계적인 탐사가 1977년에 시작되었으며, 본격적인 조사와 연구는 탄질흑색 셰일을 중심으로 수행되었고, 그 외에도 경기편마암 복합체, 계명산층에 배대하는 철광상 및 경상누층군 기저부의 화성암체 중 일부가 포함되었다 (이민성, 1978; 이동진 외, 1982; 이대성 외, 1983; 윤석규, 1984; 이동진, 1984; 이민성과 김상욱, 1985; 이동진, 1986; Kim, 1989; 박중권 외, 1990; 박명언과 김근수, 1998). 현재까지 가장 많이 연구된 옥천계 함우라늄 지층에서는 매우 다양한 우라늄 광물종(allophane, autunite, bergenite, chlopinite, coffinite, ferro-uranophane, francevillite, haiweeite, meta-autunite, metatorbernite, meta-tyuyamunite, torbernite, tuyamunite, uraninite, vendenbrandite, yoderite 등)이 보고되었다(이동진 외, 1982; 이대성 외, 1983; 이동진, 1984; 윤석규, 1984; 이동진, 1986, 정기영과 이석훈, 2001). 또한 이들 지역에는 이차적으로 형성된 우라늄광물이 지표 20 m 이내의 풍화된 표토층에서 주로 인산염이나 바나듐 광물로 산출된다(윤석규, 1984; 이동진, 1986; 김종환, 1989).

화강암류의 경우, 일부 연구(이민성, 1978; 박중권 외, 1990)를 제외하면 상대적으로 연구가 매우 미진할 뿐 아니라, 우라늄광물에 관한 광물학적 연구는 거의 전무한 상태이다. 이는 아마도 우라늄광상 탐사의 관점에서 볼 때 일반적인 화강암에서는 그 함유량이 매우 낮으므로 흔히 조사고려 대상에서 제외되기 때문인 것으로 보인다.

우라늄 광물은 지하수중 방사성 물질의 일차적인 근원물질이므로 암석내 방사성 원소를 함

유하는 광물들의 존재형태와 광물학적 정보가 중요한 요소이다. 우라늄 광물이 용해된 후 이동하여 지하수나 수성환경으로 운반, 침전되는 원리와 화학적 거동특성은 Langmuir (1978, 1997)와 Murphy and Shock (1999)에 의하여 심도 있게 논의된 바 있다. 그렇지만 정작 암석내 방사성원소를 함유하는 광물들이 어떠한 상태로 존재하는 가를 파악하는 것은 여전히 어려운 문제이다. 그 이유는 우라늄 광화대 지역을 제외하면, 대부분의 암석에서 우라늄광물은 수  $\mu\text{m}$  크기의 미립질로 산출되거나, 부성분 광물에 극소량으로 포함되고, 화학조성이 복잡하고 매우 다양하기 때문이다(Burns and Finch, 1999).

국내에 분포하는 암종 가운데서 특히, 대보화강암 분포지역의 지하수에서 우라늄의 평균함량이 가장 높으며, 100 ppb(또는  $\mu\text{g/L}$ ) 이상의 우라늄이 포함된 지하수 공의 갯수도 가장 많은 것으로 밝혀졌다(국립환경연구원, 1999, 2000). 본 연구의 목적은 우라늄이 고농도로 함유된 일부 대보화강암 분포지역 가운데서 대수층 구간의 암석에 들어있는 우라늄 광물의 존재형태와 광물학적 특징을 밝히는 데 있다.

## 시료 및 분석방법

### 시 료

본 연구에 사용된 화강암은 경기도 포천군 이동면, 경기도 여주군 강천면, 충북 괴산군 증평면 지역의 암석으로서 대보화강암에 속한다. 이들 지역에서 지하수공(평균심도 200 m)을 개발할 당시에 회수된 시추코아 중에서 주대수층의 심도와 특징을 파악한 후, 이 구간의 암석을 대상으로 채집하였다(Table 1). 각 암석코아 시료는 현미경 관찰용 박편과 전자현미분석(electron microprobe analysis, EPMA)용 연마편으로 제작되었다. 또한 각 지하수의 화학조성을 분석하기 위하여 양이온과 음이온 용으로 각각 1 리터씩 채수하였다.

### 분석방법

화강암내에 존재하는 방사성광물의 감정과 산출상태를 파악하기 위하여 EPMA(Shimadzu 1600 electron microprobe)를 사용하였다. 정량

**Table 1.** Chemical compositions of groundwaters and description of core samples

	DYJ(Yeojju)	DHG(Pocheon)	DJW(Goesan)
	(mg/L)	(mg/L)	(mg/L)
Si	22.2	18.0	13.3
Al	0.0	0.0	0.0
Fe	0.0	0.0	0.0
Mg	1.1	1.1	0.5
Ca	21.2	13.2	2.9
Na	20.5	5.4	6.4
K	0.4	0.4	0.3
As	0.0	0.0	0.0
Cu	0.0	0.0	0.0
Pb	0.0	0.0	0.0
HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	112.9	51.9	67.1
Cl	2.6	3.0	2.6
F	0.0	0.0	0.1
U*	*43.4	*24.1	*22.8
EC(uS/cm)	211.0	104.9	128.9
Eh(mV)	189.0	244.0	
pH	7.8	6.8	7.5
T(°C)	18.6	13.8	15.1
water type	Na-Ca-HCO <sub>3</sub>	Ca-Na-HCO <sub>3</sub>	Na-Ca-HCO <sub>3</sub>
core sample depth(m)	55	43	90
maximum well depth(m)	200	200	200
uranium in rock(ppm)	9.1	8.4	15.3
rock type	Daebo granite	Daebo granite	Daebo granite

\*  $\mu\text{g/l}$ . for uranium

분석은 본 기기에 부착되어 있는 파장분산형 분광기(wavelength dispersive spectrometer, WDS)를 사용하였으며, 분석조건은 가속전압 15 kV 전류 10 nA이고, 전자빔의 직경은 1  $\mu\text{m}$ 이다. 정량분석결과는 ZAF 방식을 채택하여 보정하였다. 한편, 정성분석은 에너지분산 분광기(energy dispersive spectrometer, EDS)를 이용하였는데, 특히 WDS에 의한 정량분석이 곤란한  $\mu\text{m}$  이하의 초미립 결정의 경우에는 이 방식을 적용하였다. 미세조직 관찰과 화학조성 변화의 정성적인 해석을 위하여 후방산란 전자영상(backscattered electron image, BSE) 법을 사용하였다. 단일 결정내에서의 화학조성 변화와 특정성분의 분포정도를 관찰하기 위하여 X-선에 의한 성분 분포도(X-ray map)를 얻었다. 또한 결정의 중심부와 가장자리 부분의 화학성분의 변동정도를 파악하기 위하여, 결정의 횡축을 따라 연속적으로 선상주사(line scanning)를 실시하였다.

지하수시료는 현장에서 pH, 전기전도도(electrical conductivity, EC), 산화환원 전위(redox potential, Eh), 중탄산 및 수온을 측정하였다.

화학분석용 시료는 0.45  $\mu\text{m}$  필터를 통과시켜 부유물질을 제거하였으며, 양이온 분석용 시료는 농질산을 첨가시켜 pH 2로 유지시켜 분석때까지 냉장보관을 하였다. 양이온과 음이온의 분석은 원자흡광기(Atomic Absorption Spectrometer, AAS), 유도결합플라즈마 방출분광기(Inductively Coupled Plasma Emission Spectrometer, ICP-AES), 유도결합플라즈마 질량분광기(Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer, ICP-MS) 및 이온크로마토그래피(Ion Chromatography, IC)를 사용하여 수행되었다. 암석내의 우라늄함량은 유도결합플라즈마 질량분광기(Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer, ICP-MS)를 사용하여 분석하였다.

## 결 과

### 광물조성과 수질특징

#### 광물조성

지하수공의 심도는 전술한 바와 같이 모두 200 m인데, 본 연구에 사용된 암석시료는 주

대수층 구간에 위치하는 시추코아들이다. 여주군 강천면 지역은 55 m, 포천군 이동면 지역은 43 m, 괴산군 증평면 지역은 90 m 구간에서 주대수층이 발달하는데, 이 심도의 시추코아 중에서 10 cm 내외의 길이로 암석을 회수하였다 (Table 1).

여주군 강천면 지역 시추코아의 화강암은 주로 석영, 미사장석으로 구성되며, 사장석과 백운모가 수반된다. 흑운모는 부분적으로 녹색의 녹니석으로 변질되거나 치환되어 있다. 부성분광물은 석영이나 장석내에 수  $\mu\text{m}$  크기로 자형의 주상결정이나 타형의 결정으로 산출된다.

포천군 이동면의 시추코아의 화강암은 중립질 내지 조립질이고, 등립질이다. 주구성광물은 미사장석, 석영, 사장석이고 부성분광물로는 흑운모와 백운모가 산출된다. 석영은 파동소광을 보이고, 사장석은 대부분 견운모화작용을 받았으며, 알칼리 장석과 접촉한 부위는 밀메카이트(myrmekite) 조직을 보인다. 저어콘은 자형의 주상 내지 침상으로 석영내에 산점한다.

괴산군 증평면의 시추코아의 화강암은 미사장석, 석영, 백운모, 녹니석로 구성되며, 부성분광물은 미사장석이나 석영내에서 미립의 타형으로 존재한다. 개방니콜에서는 부성분광물 중 금속광물들은 밝은 색조를 띠며,  $\mu\text{m}$ 크기로 산점하여 나타난다.

대수층의 수질유형과 전암의 우라늄함량

본 연구대상 지역의 지하수의 수질유형(water type)은 Ca-Na-중탄산형 내지 Na-Ca-중탄산형이며, 지하수에 함유된 우라늄의 농도는 22.8~43.4 ppb 범위를 나타낸다(Table 1). 전암의 우라늄함량은 여주군 시료 9.1 ppm, 포천군 시료 8.4 ppm, 괴산군 시료는 15.3 ppm으로 나타났으며, 지하수 중의 우라늄함량과는 별다른 관련성을 보이지 않는다.

방사성 광물의 산출특징과 미세조직

본 연구에서 화강암의 광물내에 존재하는 방사성원소들은 우라늄(U)과 토륨(Th)이다. 이들을 함유하는 광물들은 다양한데, 은, 저어콘, 모나자이트, 제노타임(xenotime) 등에 소량으로 들어있는 것으로 나타났다. 각 지역 화강암별로 특징을 살펴보면 다음과 같다.

여주군 지역 화강암

여주지역 화강암의 경우 방사성광물은 은과 모나자이트에 포함되어 나타난다. 은은 금속상태로 산출되는데, 미량의 방사성원소를 함유한다. 은 결정은 20~30  $\mu\text{m}$  크기의 타형으로서 석영 내에 포함되는데, 방사성광물은 은 결정내에 미량으로 함유되어 있다(Fig. 1). EDS 분석 결과에 따르면, Th가 U보다 더 함유되어 있으

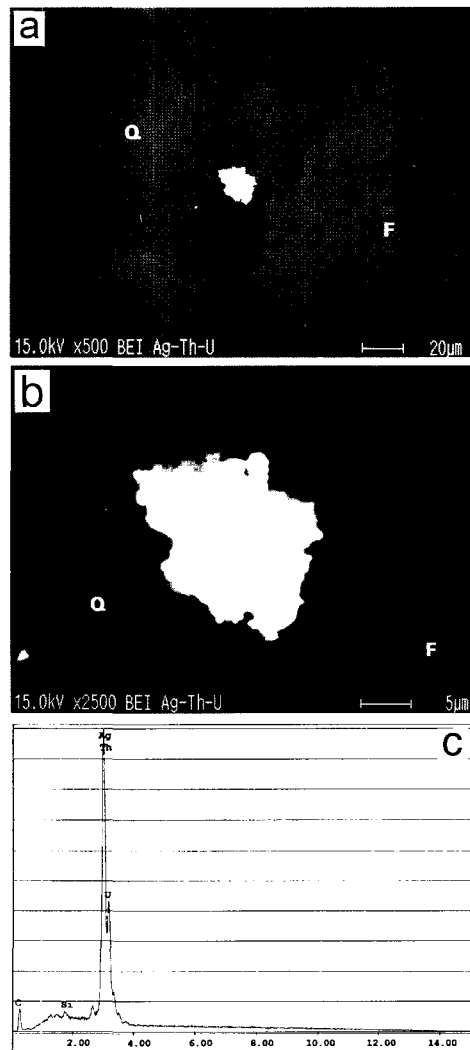
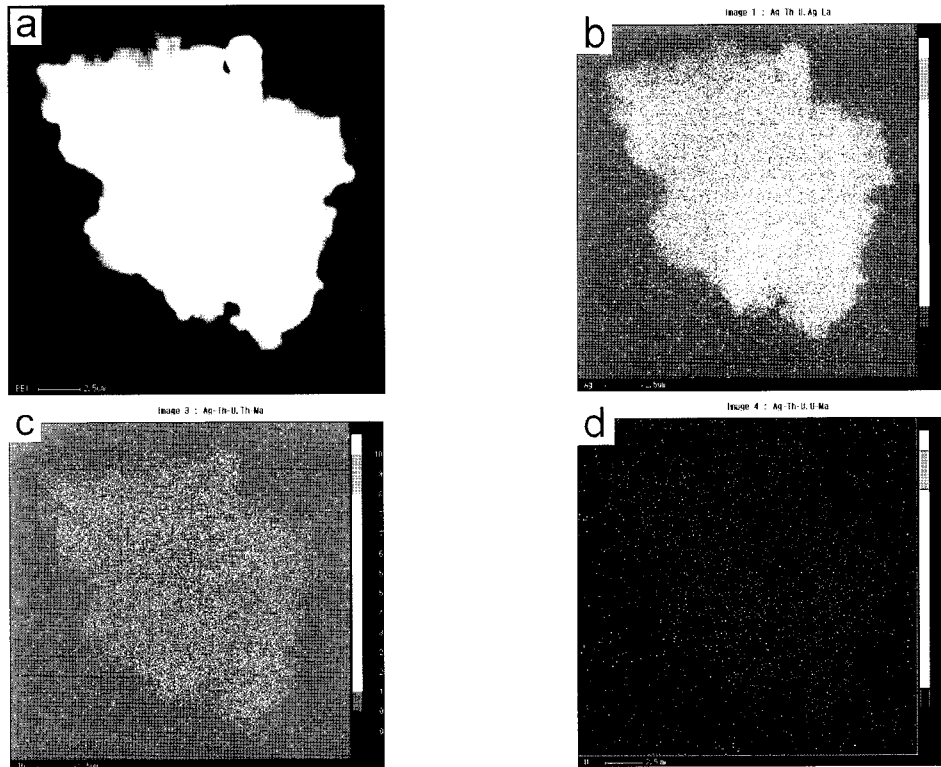


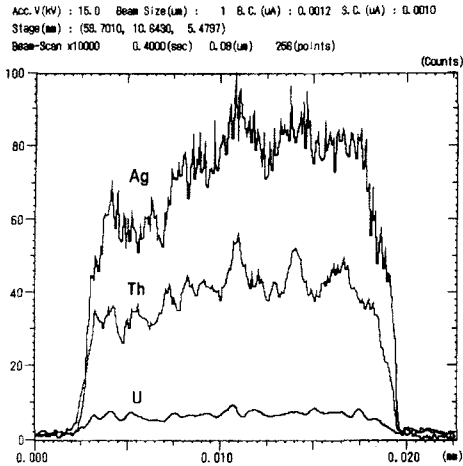
Fig. 1. BSE images of uraniferous mineral in the Yeosu granite. (a) Anhedral silver(centered mineral) reveals brightest contrast in quartz(Q) and feldspar(F) crystals. Scale is 20  $\mu\text{m}$ . (b) Enlarged image of (a). Scale is 5  $\mu\text{m}$ . (c) EDS result shows predominant Ag with trace Th, U and Si.

며 Si도 소량 검출된다. 이 경우에는 화학조성상 (Th, U)SiO<sub>4</sub> 광물인 허토나이트(huttonite)나 토라이트(thorite)로 보이지만, EDS 분석결과에서 보듯이 산소가 거의 확인되지 않는다. BSE 영상에서도 단일결정의 방사성광물은 발견되지 않았으므로 이는 단일결정의 광물일 가능성은 적다. U와 Th 성분의 함량변화는 BSE 영상에서 결정의 전반에 걸쳐 매우 약하여 뚜렷하게 인지될 수준은 아니다. 그러나 Ag의 함량은 동일결정 내에서 약한 성분변화를 보인다. Fig. 2는 BSE와 X-선 성분분포도를 나타낸 것인데 대부분의 BSE 명암은 Ag에 의한 것이지만, Th 성분도 비록 약하지만 결정의 전반에 걸쳐 고루 분포함을 보여준다. 그러나 U는 매우 미미하게 포함되어 있음을 알 수 있다. X-ray 성분영상에서 보듯이, Ag와 Th가 같은 분포양상을 보이는 것을 볼 때, 이들은 치환관계를 이루지 않는다는 사실을 지시한다. 결정 내부에서 관찰

되는 BSE 영상의 약한 명암은 화학성분의 함량 차이에 기인하는 것이라기 보다는 결정이 놓인 방향에 따라 발생한 명암의 차이로 보인다. Fig. 3은 Fig. 2와 동일한 결정에 대하여 좌에서 우로 가면서 선상주사를 하여 얻은 성분변화인데, Ag의 최대농도에 대하여 상대적인 농도를 퍼센트로 표현하였다. 결정의 중심부에서 각 성분의 함량은 가장 높으며, 진동 누대구조(oscillatory zoning)처럼 성분의 함량이 주기적으로 진동함을 보여준다. 그러나 이들 성분의 함량은 결정의 전반에 걸쳐 거의 동일한 변화양상을 나타내므로, X-ray 성분영상에서 관찰된 것과 마찬가지로 서로 치환관계가 아님을 알 수 있다. 그 보다는 U와 Th는 결정내 결함격자 자리나 틈새에 존재할 가능성이 높다. 더욱이 현재까지는 우라늄과 토륨광물 가운데서 Ag를 함유한 방사성광물은 보고되지 않았음을 볼 때 이 같은 추론이 가능하다. 그러나 실제로 우라늄광물로 존



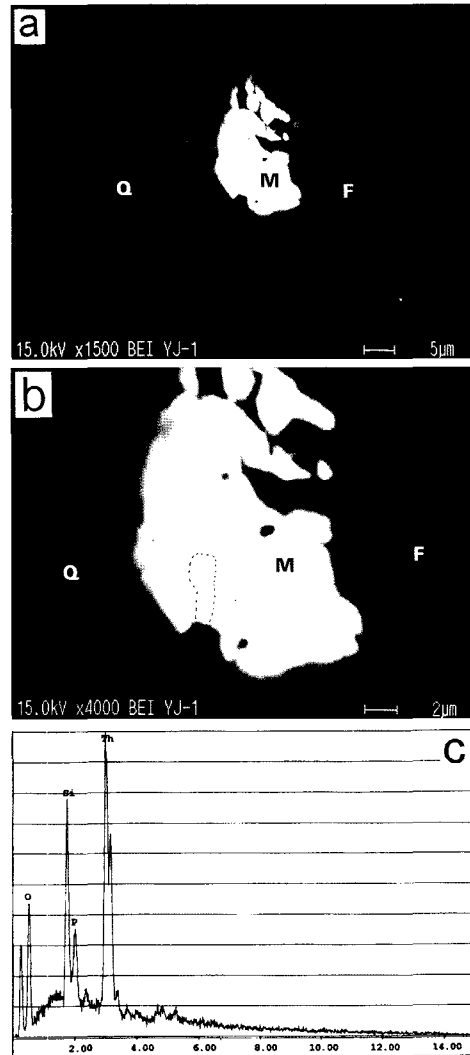
**Fig. 2.** BSE image and X-ray compositional maps of the same crystal presented in Fig. 1. All scale is 2.5 μm. (a) Enlarged BSE image showing slight different contrast. (b) Silver(Ag) distribution. (c) Th distribution. (d) U distribution.



**Fig. 3.** Compositional profiles of components Ag, Th and U in the same crystal given in Fig. 2. Line scanning was obtained from left to right with 256 scan points. Count numbers obtained were normalized with respect to the maximum count values of silver.

제한다면 나노미터 수준에서 투과전자현미경 (TEM)과 같은 고배율의 관찰법을 사용해야만 본 광물종이 확인될 것으로 보인다.

방사성광물이 모나자이트에 함유되는 경우, 모나자이트는 균열이 발달하고, 결정의 경계부는 타형으로서 용해된 조직을 보인다(Fig. 4). 모나자이트는 석영과 장석의 경계부에 산출되고 크기는 10 μm 내외이다. BSE 영상의 가장 밝은 부분(점선부)에서 Th와 U 성분이 검출되는데, 이들은 폭 2 μm, 길이 3 μm 정도의 미립의 결정질로 포획되어 있으며 전체적으로는 모나자이트 결정에 놓인다. EDS 분석결과에 따르면 이 부분은 모나자이트와 동구조인 허토나이트에 해당되나, 소량의 P가 함유된다. 이는 주변의 광물이 모나자이트이므로 분석상의 성분 오염 때문으로 판단된다. Table 2는 여주군 화강암 내 모나자이트에 들어 있는 방사성광물 (YJ-Th, YJ-U)과 주변의 모나자이트(YJ1-M)의 정량분석 결과를 나타낸 것이다. 모나자이트 내에 들어있는 방사성광물은 U와 Th를 함유하고 있는 반면에 모나자이트 자체는 방사성원소를 전혀 함유하지 않고 (Ce, La, Th)PO<sub>4</sub>의 조성을 가진다.



**Fig. 4.** BSE images of uraniferous monazite(M) in feldspar(F) and quartz(Z) in the Yeosu granite. (a) Monazite shows partially dissolved texture. Scale is 5 μm. (b) Enlarged image of (a) reveals slightly different contrast. Note the marked area by dotted line in the left bottom of the crystal. Scale is 2 μm. (c) EDS result of the marked area of (b).

괴산군 지역 화강암

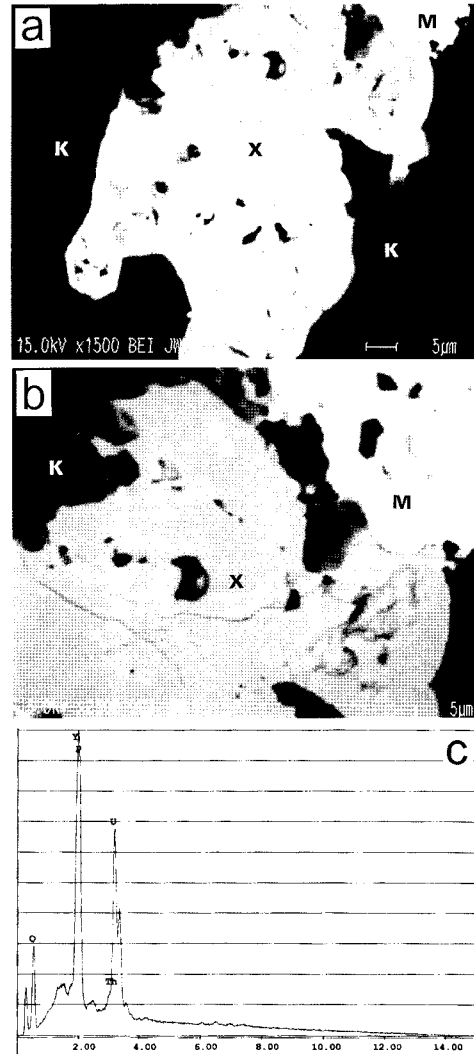
괴산지역 화강암의 경우에서 부성광물은 모나자이트, 제노타임(YPO<sub>4</sub>), 저어콘, 아칸다이트(acanthite, Ag<sub>2</sub>S)로 산출된다. 방사성 광물은 저어콘과 제노타임에서만 포획되는데, 1~2 μm 이하의 미정질 결정이 타형으로 들어있다. Fig. 5에서 보듯이 제노타임은 K-장석내에 20~30 μm

**Table 2.** Chemical compositions of radiogenic elements-bearing minerals.

Sample	YJ-Th	YJ-U	YJ1-M
UO <sub>2</sub>	2.375	46.393	
ThO <sub>2</sub>	47.015	5.107	6.349
Ce <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	11.609		25.688
SiO <sub>2</sub>	16.543		3.513
Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>		28.168	
La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	6.701		15.707
CaO	1.079	0.536	0.636
Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>			9.403
Bi <sub>2</sub> O <sub>3</sub>			4.888
Cs <sub>2</sub> O			0.899
Xe			0.733
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	14.678	19.785	31.137
total(wt.%)	82.947	100	67.816
Cation numbers based on 4 oxygens			
U	0.022	0.470	
Th	0.437	0.053	0.053
Ce	0.174		0.969
Si	0.676		0.129
Y		0.682	
La	0.101		0.213
Ca	0.047	0.026	0.025
Nd			0.124
Bi			0.043
Cs			0.014
Xe			0.012
P	0.508	0.762	0.969

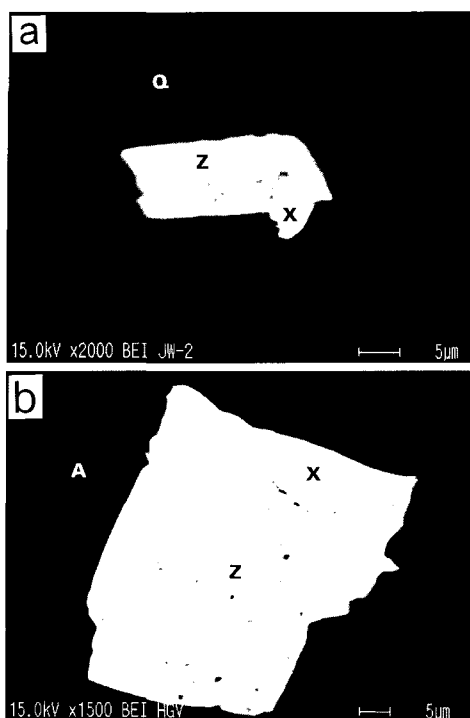
크기로 산출되며, 이곳에서 방사성광물이 관찰된다. 제노타입은 부분적으로 K-장석에 의하여 교대되거나, 용해조적을 보인다. EDS 분석결과에 따르면 제노타입의 화학조성은 미량의 Th를 함유하지만 거의 (Y, U)PO<sub>4</sub>로 구성되며, 제노타입 속에 포함된 미립질 광물에만 우라늄이 다소 포함된다. 대부분의 코피나이트(coffinite, USiO<sub>4</sub>)에서는 인산염과 REE가 혼한 불순물로 들어가므로 이와 동구조인 제노타입과는 어느 정도범위에서 고용체 관계가 있음이 제기된 바 있다(Hansley and Fitzpatrick, 1989). 그러나 분석료의 경우 방사성광물에는 Si가 거의 없으므로 코피나이트라기보다는 제노타입내에서 U와 P가 부분적으로 치환하는 것으로 보인다. 또한 주변의 모나자이트나 K-장석에는 우라늄 광물이 전혀 포함되지 않은 사실로 보아, 우라늄 광물은 독립된 결정으로 형성된 것이 아니라 제노타입 구조내에 부분적으로 치환되어 형성된 것으로 판단된다.

방사성광물이 저어콘에 들어가는 경우도 있



**Fig. 5.** BSE images of uraniferous xenotime(X) and monazite(M) within K-feldspar(K) of the Goesan granite. Scale is 5  $\mu$ m. (a) Xenotime contains uranium minerals(white spots with brightest contrast), whereas monazite includes no uranium mineral. (b) Enlarged image of (a) reveals anhedral, small crystals of uranium minerals with few microns in size. (c) EDS result of the uranium minerals within xenotime.

다(Fig. 6a). 저어콘은 석영 내에서 자형으로 산출되는데, 저어콘 결정내부에 1  $\mu$ m 이하의 미립질의 우라늄 광물이 산점상으로 분포한다. 제노타입은 저어콘 결정에 과성장(overgrowth)한 것이 특징이며, 저어콘 내부에는 많은 용해공극



**Fig. 6.** BSE images of uraniferous minerals with less than 1  $\mu\text{m}$  in size. Note dissolution cavities in zircon(Z). Scale is 5  $\mu\text{m}$ . (a) Zircon has very small uraniferous crystal(white spots with brightest contrast) within the quartz(Q) matrix of the Goesan granite. Note overgrowth of xenotime(X). (b) Zircon contains uraniferous minerals(white spots with brightest contrast) within albitic plagioclase(A) of the Pocheon granite. See overgrowth of xenotime.

이 존재한다. 이는 우라늄광물이 용해되거나 붕괴로 인하여 빠져나간 자리로 해석된다.

#### 포천군 지역 화강암

이 화강암에는 20~30  $\mu\text{m}$  크기의 은이 금속 형태로 산점하고 있으며, 우라늄은 저어콘과 제노타임에서 1  $\mu\text{m}$  이하의 크기로 산출된다. 이 같은 부성분 광물들은 알바이트질 장석에서 흔히 관찰된다. Fig. 6은 저어콘 위에 제노타임이 과성장한 조직을 보여주고 있는데, 우라늄 광물은 저어콘 내에서 흔하게 산점상으로 나타나는데, 저어콘 내부에서 우라늄광물이 빠져 나간 용해공극도 흔히 관찰된다. 우라늄 광물은 저어콘에 과성장한 제노타임에서는 산출되지 않는

것이 특징이다. 이같은 현상은 우라늄 광물이 저어콘과 성인적으로 밀접한 관련성이 있음을 시사한다.

#### 토 의

일반적으로 산화상태의 지질학적 환경의 발달과 더불어 암석내 방사성 광물의 존재양상과 함량이 일차적으로 대수층내 우라늄의 함유량을 크게 좌우한다. 그러나, 최근까지의 조사결과에 따르면 암석의 전체적인 우라늄 함량과 지하수중의 우라늄 함량과는 별 상관성을 보이지 않는다. 예를 들면, 지하수 중 우라늄의 함유정도가 가장 높은 지역중의 하나인 대전지역의 암석에서 우라늄의 함량은 편상화강암 4.1 ppm, 흑운모화강암 3.1 ppm, 복운모화강암 1.7 ppm인데 지하수 중 우라늄 고함량 지역이 분포하는 복운모화강암은 대전지역의 70%를 차지한다(국립환경연구원, 1999). 특히 복운모화강암 분포지역의 일부 지하수에서 100 ppb가 넘는 우라늄이 검출되고 있으며, 지하수의 심도와 대수층의 발달정도에 따라서 이것의 함량범위는 다양하게 나타났다(한정희와 박계현, 1996; 국립환경연구원, 1999, 2000; 김진영 외, 2000). 본 연구에서는 운모류에는 방사성 광물이 함유되지 않지만, 대전지역의 경우 복운모화강암 지역에서 지하수 중 우라늄의 함량이 유독 높게 나타나는 것으로 보아, 운모류를 대상으로 방사성광물의 존재형태를 밝히는 것이 중요할 것으로 여겨진다.

우라늄이 지하수나 하천수에 부화되는 정도는 수리화학적 환경과 밀접히 관련된다. 예를 들면, 암석 자체에는 수백 ppm 이상의 우라늄이 함유되는 옥천계 탄질이암을 비롯한 국내의 주요 우라늄산출지 부근의 지하수에서 우라늄의 함량은 낮게 나타난다. 특히, 옥천계 지역의 지하수(79 개소)의 우라늄의 함량은 0.01~4.36 ppb에 불과하며, 라돈과 전알파(total alpha) 수준도 다른 암종 분포지역에 비하여 낮게 나타났다(국립환경연구원, 1999). 옥천계의 경우 환원환경에 유리한 수리화학적 요소와 탄소와 같은 유기화합물에의 우라늄의 흡착 등에 의하여 지하수에는 우라늄이 낮게 검출되는 것으로 보인다. 그러나 신보활석 광산 주변의 수계의 하천수의 경우 우라늄의 함량은 최대 약 300 ppb



가 검출되었으며, 퇴적물에서는 172 ppm까지 검출되었다(나춘기와 정재일, 2000).

국내의 대표적인 화강암 지역의 지하수의 경우, 우라늄의 함량은 불국사화강암 지역에서 평균 0.94 ppb, 0.01 ~ 5.76 ppb 범위, 대보화강암 지역은 평균 11.15 ppb, 0.01 ~ 330 ppb 범위, 흥제사화강암 지역은 평균 1.45 ppb, 및 0.01 ~ 10.8 ppb 범위이고, 암석내 우라늄의 함량은 4 ~ 5 ppm 이하의 수준이다(국립환경연구원, 2000). 그러나, 대보화강암 지역의 일부 지하수에서는 포천군(시료 DB-59) 215 ppb, 여주군(시료 DB-38) 43.4 ppb, 진천군(시료 DB-21) 19.4 ppb, 산청군(시료 HJ-7) 23.8 ppb, 대전유성구(시료 DB-22) 23.9 ppb로 나타났으며, 동일한 지점의 화강암내 우라늄의 함량은 각각 1.5 ppm, 0.98 ppm, 2.45 ppm, 7.41 ppm, 2.44 ppm 순으로 나타났다(국립환경연구원, 2000).

또한 본 연구에 사용된 시추공 암석내의 우라늄 함량은 Table 1에서 보듯이 포천군시료(DHG)에서 8.4 ppm이며, 동일시추공의 페그마타이트에서는 10.8 ppm으로 약간 더 높게 나타났다. 괴산지역 시료(DJW)의 경우 8.4 ppm으로 나타났다. 여주군 시료(DYJ)의 경우, 심도 54 m 지점은 9.1 ppm이며, 참고로 심도 80 m 지점은 6.5 ppm, 및 심도 99 m 지점은 9.0 ppm으로 나타났다(Choo, in preparation). 그러므로 우라늄 고함량 분포지역이라도 지하수중의 우라늄의 함량은 항상 비례하는 것은 아니며, 결과적으로 암석내 우라늄의 함량과 지하수내 우라늄의 함량과는 별다른 관련성이 없다(국립환경연구원, 1999, 2000).

그 보다는 암석내 우라늄 광물이 어떤 상태로 산출되는 것인가가 지하수내 우라늄의 함량에 큰 영향을 미치는 것으로 보인다. 우라늄은 환원환경에서는 불용성의 특성을 가지므로 환원환경이 우세한 심부에서 방사성물질이 쉽게 용해될 가능성은 매우 적다(Langmuir, 1997). 그러나 과쇄대가 잘 발달한 경우, 심부에서도 산화환경이 유지될 수 있으므로 우라늄 광물의 용해는 빠르게 일어난다. 우라늄의 함량이 다른 지역에 비하여 높은 농도를 보이는 대전지역 온천수와 심부지하수의 산화환원전위(Eh)값은 대부분 100 ~ 200 meV 범위이며, 일부 온천수의 경우에만 50 ~ 100 meV 범위를 보인다(국립환경연구원, 1999; 김진영 외, 2000). 그러나 이

정도의 산화환원전위는 일반적인 지하수나, 100 ~ 300 m 심도범위인 국내 먹는샘물업체의 지하수(환경부, 1999, 2000)와 비슷한 범위에 해당되는 것이다. 대부분 pH가 중성범위이므로 이런 Eh 값은 전이환경 내지 산소분압이 약간 높은 산화환경에 속한다. 따라서 대전지역의 심부지하수의 환경은 산소의 공급이 비교적 용이한 과쇄대나 단열발달이 양호한 대수층일 가능성이 높다. 이같은 수리화학적 환경에서는 미량 광물내에 포함된 우라늄광물이 쉽게 용해되어 지하수로 빠져 나갈 것으로 보인다.

우라늄 광물의 존재형태는 용해정도와 특정한 성분의 용탈과 관련되므로 대수층 구간에 분포하는 광물종을 잘 파악하는 것은 매우 중요하다. 옥천계 함우라늄 흑색 슬레이트의 분석 결과에 따르면, 일차적 기원의 우라니나이트(uraninite)는 직경 2 ~ 20  $\mu\text{m}$  범위로 정방형, 장방형이나, 5 ~ 8  $\mu\text{m}$  크기의 자형으로 산출되는데, 이는 구과상구조나 점판암의 벽개 또는 기질부에 분포한다(이동진, 1986; Kim, 1989). 또한, 괴산군 덕평리 일대의 옥천대 탄질흑색 점판암 내에도 수  $\mu\text{m}$  크기의 우라니나이트가 존재한다(정기영과 이석훈, 2001). 전반적으로 볼 때, 옥천계 함우라늄 지역의 우라늄광물의 결정의 크기는 본 연구지역의 결정보다 더욱 큰데, 이는 변성작용이나 속성작용동안 우라늄 광물이 재결정화되어 성장한 것으로 보인다.

지하수 중 우라늄이 높은 농도로 들어있는 본 연구지역의 대보화강암에서 우라늄광물은 일차적 기원으로서 저어콘, 모나자이트, 제노타임 등에 함유되어 있으며, 대부분은 미량성분으로 이들 광물에 치환하여 들어가거나 포획되어 있다. 우라늄광물의 크기는 1 ~ 2  $\mu\text{m}$  이하의 극미립으로 산출되므로 EPMA에 의한 분석법으로는 감정과 해석상의 한계가 있으며, BSE 영상으로서도 구분이 매우 어렵다. 따라서 TEM 및 ATEM과 같은 고배율의 관찰 및 화학분석법을 사용해야만 보다 명확한 우라늄광물의 감정과 구조를 해석할 수 있을 것으로 보인다. 모나자이트를 비롯한 부성분 광물에서의 우라늄의 함량은 일반적으로 1% 이하이나, 암석내의 우라늄의 총량과 밀접히 관련되는데, 부성분 광물은 화강암에 들어있는 전체 우라늄함량의 50 ~ 60%를 차지하며, 기타는 우라니나이트로 존재하거나 광물의 벽개를 따라 분포하거나, 입간

의 공극에 존재한다(Dahlkamp, 1993). 따라서 부성분 광물이 소량 산출되고 우라늄 광물은 이 속에 포획되거나, 치환되어 들어간 상태로 산출되지만, 이 같은 광물이 지하수의 수질화학에 미치는 영향은 무시할 수 없다. 본 연구대상인 대보화강암의 경우, 우라늄 광물을 포함하는 부성분 광물에서 우라늄 광물이 빠져 나간 용해동공이나, 용해조직이 흔한 것으로 보아, 우라늄 광물이 비록 극미량이지만 지하수에 쉽게 용해된 것으로 판단된다. 결과적으로 본 지역에서 지하수 중 우라늄이 타 지역에 비하여 매우 높게 나타난 것은 주로 이같은 용해작용에 의한 것으로 보인다. 앞으로는 우라늄 광물이 쉽게 용해될 수 있는 지구화학적 환경과 대수층 내 파쇄대의 발달정도를 포괄하는 종합적인 수리지질학적 검토가 뒤따라야 할 것으로 보인다.

### 결 론

지하수 중 우라늄 고농도 지역의 대보화강암 내에서 우라늄 광물은 일차적 기원으로서 저어콘, 모나자이트, 제노타임 등에 함유되어 대부분 미광성분으로서 이들 광물에 치환하여 들어간다. 우라늄 광물의 크기는 1~2  $\mu\text{m}$  이하의 극미립으로 산출되므로 EPMA에 의한 분석법으로는 정량분석의 한계가 있으며, BSE 영상으로서도 구분이 매우 어렵다. 우라늄 광물을 포함하는 부성분 광물에서 우라늄광물이 빠져 나간 용해동공이나, 용해조직이 흔한 것으로 보아, 우라늄 광물이 비록 극미량이지만 지하수에 쉽게 용해된 것으로 판단된다. 지하수체의 수리지화학적 환경과 아울러 우라늄 광물의 존재형태에 관한 연구는 지하수내 우라늄의 함량을 해석하는데 중요한 단서를 제공할 것으로 기대된다.

### 사 사

초교의 미비한 부분을 지적하고 보완점을 제시하여 주시고 일부 연구용 시료를 제공해주신 강원대학교 부설 산업광물은행과 노진환 교수님, 그리고 익명의 심사위원께 심심한 사의를 표합니다. 본 연구는 BK21 Program의 지원아래 일부 수행되었으며, EPMA 분석시 도와준 손승환 석사에게도 고마움을 전합니다.

### 참 고 문 헌

- 국립환경연구원 (1999) 지하수 중 방사성물질 함유실태에 관한 조사연구. 한국자원연구소. 338p.
- 국립환경연구원 (2000) 지하수 중 방사성물질 함유실태에 관한 조사연구(2). 한국자원연구소. 323p.
- 김건영, 고용권, 김천수, 배대석, 박맹인 (2000) 유성지역 지열수의 지구화학적 특성연구. 지하수환경학회지, 7, 32-46.
- 나춘기, 정재일 (2000) 신보활석광산 주변에 형성된 우라늄 이상치가 지표수에 환경에 미치는 영향. 자원환경지질학회지, 33, 261-271.
- 박맹인, 김근수 (1998) 계명산층 페그마타이트에 수반되는 우라늄, 토륨광상의 지구화학적 특성. 자원환경지질학회지, 31, 365-374.
- 박중권, 오천혁, 최수찬 (1990) 우라늄 광상연구(우라늄 고함유 화강암지역 1년차). KR-90-213-2. 한국자원연구소. 87p.
- 윤석규 (1984) 대전서남지역에 있어서의 옥천대 우라늄광상에 대한 광물학적 및 지구화학적 연구. 광산지질학회지, 17, 289-298.
- 이대성, 윤석규, 이종혁, 김정택 (1983) 옥천대 우라늄광층의 구조규제 및 지화학적 연구. 한국과학재단 연구보고서 (미발간). 146p.
- 이동진, 상기남, 이성록 (1982) 흑연질 점판암내 우라늄 및 조성광물에 대한 광물학적 연구. 동력자원연구소, 조사연구보고, 13, 167-181.
- 이동진 (1984) 옥천층군에 부존하는 우라늄광석에 대한 광물학적 및 성인적 연구. 서울대학교 박사학위논문. p.75.
- 이동진 (1986) 옥천계 흑색슬레이트내 부존하는 저품위 우라늄광석에 대한 광물학적 연구. 광산지질학회지, 19, 133-146.
- 이민성 (1978) 옥천계 함우라늄 지층 주변에 관입분포하는 화강암류의 지구화학. 지질학회지, 14, 113-119.
- 이민성, 김상욱 (1985) 옥천계 함우라늄 탄질암층의 우라늄의 존재상태와 광물종. 광산지질학회지, 18, 135-138.
- 정기영, 이석훈 (2001) 옥천대 탄질 흑색점판암내 물리브덴의 존재형태. 한국광물학회지, 14, 52-57.
- 한정희, 박계현 (1996) 대전지역 지하수에 함유된 우라늄 및 라돈의 함량. 자원환경지질학회지, 29, 589-595.
- 환경부 (1999) 먹는샘물 관리시스템구축연구(II). 한국자원연구소. 418p.
- 환경부 (2000) 먹는샘물 관리시스템구축연구(III). 한국자원연구소. 273p.
- Burns, P.C. and Finch, R. (eds.), (1999) Uranium: Mineralogy, Geochemistry and the Environment. Reviews in Mineralogy, Vol. 38, Miner. Soc.

- America, Washington, 679p.
- Dahlkamp, F.J. (1993) Uranium Ore Deposits. Springer-Verlag, New York. 460p.
- Finch, R. and Murakami, T. (1999) Systematics and Paragenesis of Uranium Minerals. In: Burns, P. C. and Finch, R. (eds.), Uranium: Mineralogy, Geochemistry and the Environment. Reviews in Mineralogy, Vol. 38, Miner. Soc. America, 91-179.
- Gaines, R.V., Skinner, H.C.W., Foord, E.E., Mason, B., Rosenzweig, A., King, V.T., and Dowty, E. (1997) Dana's New Mineralogy, 8th Ed. Wiley and Sons, New York, 1819p.
- Hansley, P.L. and Fitzpatrick, J.J. (1989) Compositional and crystallographic data on REE-bearing coffinite from the Grants Uranium region, northwestern New Mexico. Am. Mineral., 74, 263-270.
- Kim, J.H. (1989) Geochemistry and genesis of the Guryongsan(Ogcheon) uraniferous black slates. Jour. Korean Inst. Mining. Geol., 22, 35-63.
- Langmuir, D. (1978) Uranium solution-mineral equilibria at low temperatures with applications to sedimentary ore deposits. Geochem. Cosmochim. Acta, 42, 547-569.
- Langmuir, D. (1997) Aqueous Environmental Geochemistry. Prentice-Hall. New Jersey. 600p.
- Mandarino, J. (1999) Fleischer's Glossary of Mineral Species. Mineralogical Record, Tucson, Arizona.
- Murphy, W.M. and Shock, E.L. (1999) Environmental aqueous geochemistry of actinides. In: Burns, P.C. and Finch, R. (eds.), Uranium: Mineralogy, Geochemistry and the Environment. Reviews in Mineralogy, Vol. 38, Miner. Soc. America, 221-253.
- 
- 2001년 8월 5일 원고접수, 2002년 1월 10일 게재승인.