

## 계명산층 페그마타이트에 수반되는 우라늄·토륨 광상의 지구화학적 특성

박맹언\* · 김근수\*\*

### Geochemistry of Uranium and Thorium Deposits from the Kyemyeongsan Pegmatite

Maeng-Eon Park\* and Gun-Soo Kim\*\*

**ABSTRACT** : Economic U- and Th-bearing pegmatite deposits occur in the Kyemyeongsan Formation, and are spatially closely associated with the Carboniferous alkali granite. The pegmatite is lithochemically alkaline and peraluminous, and consists mainly of potassic feldspar and quartz with allanite and U- and Th-bearing minerals. Paragenetic stages of mineralization in the pegmatite are divided as follows: early silicate mineralization, main rare metal mineralization, and late silicate mineralization. Thorite, euxenite, fergusonite and uranpyrochlore are the predominant U- and Th-bearing minerals. Both the enrichments of Nb, Y, Th, U, and Ta and the depletions of Hf, Ba, and Rb in the pegmatite were resulted from magmatic differentiation. The increases of Na and Ca in uranpyrochlore, of Th and U in fergusonite, of Si, Th, U and Pb in thorite, and of Nb and Y in euxenite were possibly resulted from both later internal fractionation and hydrothermal alteration. The variation of chemical composition in a mineral species reflects the different physico-chemical conditions during the crystallization.

#### 서 언

천연상태에서 우라늄은  $U^{238}$  (99.285%)과  $U^{235}$  (0.005%)으로 산출되며, 그 중  $U^{238}$ 이 원자력 발전에 사용된다. 우라늄 자원의 개발·이용에 대해서는 상반된 견해, 즉 석유 가격의 상승으로 인한 대체 에너지로서의 중요성과 안전성 문제가 서로 대립되고 있으나, 현재 국내에는 총 9기의 원자력 발전소가 상업 운전 중에 있다. 그러나 우리나라의 경우, 발전량의 증대에 따라 핵연료 자원의 수요 증가가 예상되며 전량 수입에 의존하는 현실을 감안하면 수입 다변화와 동시에 국내 자원의 잠재력을 파악함은 중요한 의미를 가진다. 토륨 역시 고온가스로와 중수로의 핵연료용을 비롯하여 세라믹, 전기전도, 항공기 재료, 연료전지, 냉동축매와 재료, 광전도 필름 등의 공업용 수요가 증가되면서 주요 전략자원의 대상이 되고 있다.

우라늄과 토륨은 주로 암석내의 부정분으로 함유되기 때문에 광석으로 이용될 만큼 함유도가 높은 것은 많지 않다. 광상은 주로 순상지나 육괴 (massif)를 이루는 지역의 산성 관입체나 변성암 중에 배대되며, 퇴적형, 페그마타이트와 섬장암 중의 맥으로 산출된다. 국내에서 우라늄·토륨 광물자원의 산출은 옥천계 함 우라늄 흑색 점판암 내에서의 선캠브리아기 편마암복합체내에 수반되는 2차 기원의 광상, 평해지역의 사암형 광상 및 동점규암내의 맥상형 광상, 무주, 금화, 철원, 화천, 단양 및 오대산 지역의 페그마타이트형 광상 등이 보고된 바 있다 (김봉균 등, 1982). 또한, 우라늄 광상에 대한 탐사와 광화작용에 대한 지구화학적 연구가 경기 편마암 복합체, 옥천층군내의 탄질 셰일, 계명산층에 수반되는 철광상 및 경상 누층군 기저부의 화성암체를 중심으로 수행된 바 있다 (김종환 등, 1974; 오민수 등, 1989; 박중권 등, 1990, 1994).

충주지역 계명산층 내에는 고생대 알카리 화성활동에 수반된 희유원소 (Zr, Nb, REE 등) 광상이 발달되며 (박맹언, 김근수, 1995), 광석내에는 함 우라늄 및 토륨 광물이 산출된다. 우라늄 및 토륨은 교대조적을 수반하는 담홍색 알카리 교대암 및 페그마타이트내에 부화되어 있

\* 부경대학교 지구환경과학부 (Division of Earth Environmental Science, Pukyong National University, Pusan 608-737, Korea), E-mail: mepark@dolphin.pknu.ac.kr

\*\* 부산대학교 지질학과 (Department of Geology, Pusan National University, Pusan 609-735, Korea)

며, 특히 알카리 교대암에 수반되는 고품위 광석에서의 U와 Th의 함량은 각각 580~690 ppm, 3,100~3,400 ppm으로서 (박맹언, 김근수, 1995), 일반적인 산성 화강암에서의 U 및 Th 함량 (각각 1~7 ppm 및 1~25 ppm) 범위와 비교할 때, 수 백배 이상 농집되어 있다.

본 연구는 우라늄 및 토륨의 광화작용을 수반한 페그마타이트에 대해 암석화학적 특성 및 U-Th군 광물의 산출양상과 광물화학적 특성을 파악하여 우라늄 및 토륨 광화작용의 특성을 규명하기 위한 연구의 일환으로 수행되었다. 본 연구결과는 국내 우라늄 및 토륨 광화작용의 특성과 부존 잠재력을 평가하는데 중요한 기초자료가 될 것으로 생각된다.

## 페그마타이트

### 산출상태

충주지역 계명산층은 화산-심성 화성활동의 소산으로 형성되었으며, 주 구성암석은 편암, 규암, 각섬석암, 결정질 석회암 및 후기의 관입 알카리 화강암으로 구분된다 (박맹언, 김근수, 1995; 박맹언 등, 1996, 1997). 우라늄과 토륨을 함유하는 페그마타이트 (북위: 38° 57', 동경: 127° 52')는 계명산층을 구성하는 편암류를 관입하는 소규모의 암맥 (최대 10 m)으로 산출된다. 그러나 단층작용에 의한 규제와 토양의 피복으로 인하여 채석장 또는 시추공에서 확인이 가능하며, 지표에서는 노두의 연장과 규모를 파악하기가 매우 어려운 상태이다 (Fig. 1A). 페그마타이트는 부분적으로 석영의 함량이 증가하는 분화대를 형성하기도 하며, 대략적으로 중심부, 중간부 및 외측부로 구분된다. 중심부는 주로 미사장석으로 구성되며 미량의 석영과 함께 U-Th 광물이 수반된다. 외측부로 갈수록 석영, 운모, REE 광물의 함량이 증가되고 세립질 조직을 나타낸다. 구성광물은 주로 담홍색 내지 백색의 거정질 미사장석이며, 소량의 중립질 석영과 운모 및 U-Th 및 미량의 REE 광물이 수반된다 (Fig. 1B). 흔히 압쇄현상이 수반되며, 후기 열수 변질작용에 의해 견운모화되어 있다. 또한 페그마타이트 중에는 다량의 갈렘석을 함유하는 소규모 암맥 (allanite vein)이 발달된다. 산출양상으로 볼 때, 페그마타이트는 계명산층내의 화성작용의 산물인 알카리 화강암의 관입 및 REE 광상과 밀접하게 수반되어 분포한다. 본 지역의 알카리 화강암류는 대륙판 단열형 (intracontinental rift type) 구조대를 따라 상승한 심부기원 마그마의 분화에 의하여 형성되었음이 연구된 바 있다 (박맹언, 김근수, 1995). 계명산층내

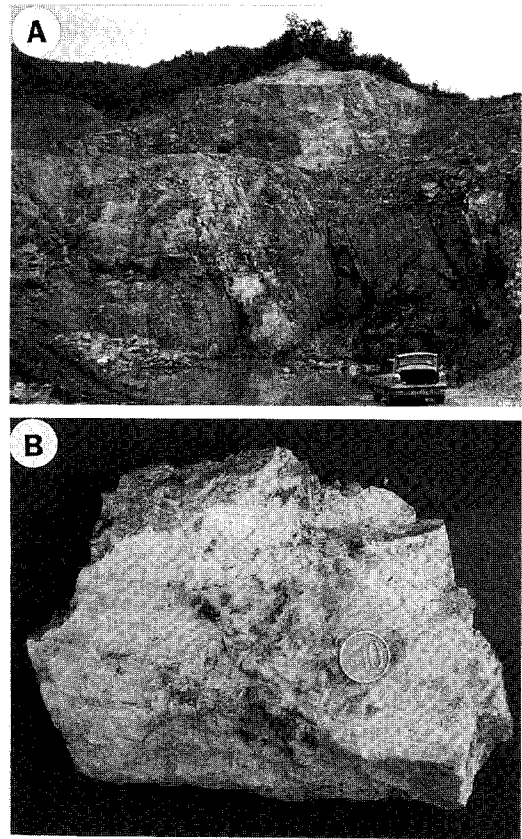


Fig. 1. Photographs of the Kyemyeongsan pegmatite. A: Photographs of pegmatite vein (light part at center). B: Typical high-grade ore containing thorite, fergusonite, euxenite and uranpyrochlore (dark gray) associated with K-feldspar.

의 화성암류는 알카리 화강암, 페그마타이트 및 알카리 교대암으로 구성되며, 불규칙한 분포 양상을 띠는 열수 석영맥이 발달되어 있다. 이들 열수맥 내에는 석영을 비롯하여 석류석, 형석, 갈렘석, 자철석 및 적철석 등이 함유되어 있다.

### 암석화학

페그마타이트의 암석화학적 특성과 광화작용과의 관계를 규명하기 위하여 주성분 및 미량성분 조성을 분석, 구성원소들의 상관 관계 및 함량 변화를 파악하였다. 전암 시료의 주성분과 미량성분 분석은 기초과학지원연구소에서 실시하였으며, Philips사의 XRF (X-ray Fluorescence Spectrometry/PW 1480)와 ICP/MS (Ion Cuppled Plasma Mass Spectrometry)가 이용되었다. 분석시 측정강도를 얻기위한 전압, 전류조건은 전압 40 Kv, 전류 30

mA이었으며, 검정은 미국지질조사소에서 제작한 국제공인 표준물질과 상용으로 시판되는 MBH analytical의 표준물질이 이용되었다.

**Table 1.** Chemical composition of pegmatites in the Kyemyeongsan Formation.

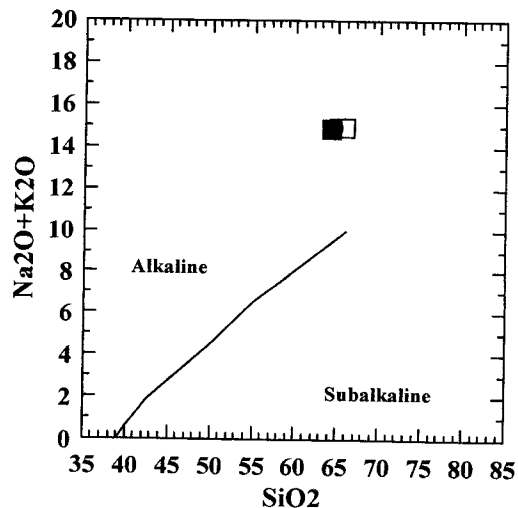
Rock Type	Barren pegmatite		U and Th rich pegmatite*
SiO <sub>2</sub>	64.14	64.45	65.77
TiO <sub>2</sub>	0.02	0.01	0.01
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	19.01	18.19	18.20
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> *	0.29	0.19	0.25
MnO	0.01	0.01	0.01
MgO	0.02	0.04	0.06
CaO	0.05	0.03	0.04
Na <sub>2</sub> O	1.77	2.13	2.34
K <sub>2</sub> O	13.04	12.76	12.59
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.01	0.01	0.01
LOI	0.78	0.73	0.65
Tatal	99.11	98.55	99.93
Ba	738.00	558.04	570.53
Rb	405.00	252.22	282.93
Sr	31.00	24.26	30.27
Cs	0.41	0.49	0.47
Ta	1.09	0.15	8.61
Nb	2.35	1.20	32.08
Hf	1.43	0.98	1.11
Zr	15.00	13.01	11.05
Y	12.98	9.67	33.90
Th	6.00	4.02	17.93
U	2.35	1.19	8.97
Cr	4.23	4.75	6.43
Ni	0.05	0.09	0.62
Co	43.68	46.75	48.83
Cu	1.88	1.98	2.00
Pb	2.71	2.76	2.77
Zn	3.09	3.88	4.90
La	3.14	1.52	13.48
Ce	7.26	2.95	34.91
Pr	1.20	0.56	5.22
Nd	0.45	3.04	22.56
Sm	2.03	0.79	5.62
Eu	0.10	0.08	0.46
Gd	3.23	1.07	5.27
Tb	0.54	0.22	0.97
Ho	0.89	0.30	1.26
Er	2.35	1.05	4.34
Tm	0.32	0.15	0.50
Yb	1.74	0.96	3.31
Lu	0.19	0.10	0.40
(Ce/Yb) <sub>N</sub>	1.08	0.79	2.73
Eu/Eu*	0.12	0.27	0.26

Total Fe as Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>; major elements in weight percent; minor and trace elements in ppm.

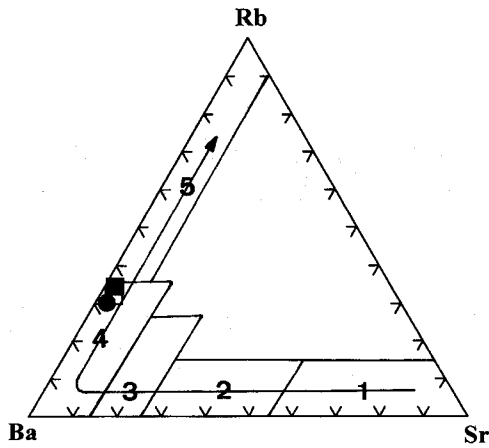
\* not include of the U-Th mineral parts.

계명산 페그마타이트의 SiO<sub>2</sub>, K<sub>2</sub>O, Na<sub>2</sub>O, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 함량 (wt.%)은 각각 64.14~65.77, 12.59~13.04, 1.77~2.34, 18.19~19.01로서 계명산층을 구성하는 편암류와 알카리 화강암의 화학조성 (김진섭 등, 1998)에 비해 K 및 Al의 함량이 특히 높다. 광상을 형성하지 않은 페그마타이트 (barren pegmatite)는 함 U-Th 광물을 수반하는 페그마타이트에 비해 주성분 원소의 함량 변화는 없으나, Nb, Y, Th, U, Ta 및 REE 등의 미량성분은 다소 부화되어 있고, Zr, Hf, Ba, Rb 등은 비슷하거나 낮은 함량을 나타낸다. 한편 갈렘석으로 주로 구성되는 페그마타이트는 경회토류 원소 성분이 특징적으로 부화되어 있음을 알 수 있다 (Table 1).

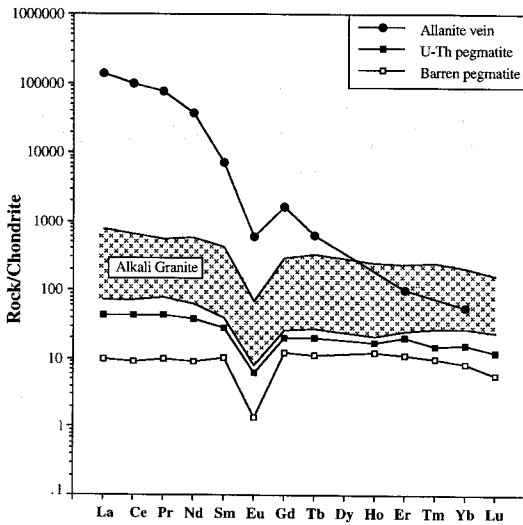
주성분의 조성으로 보아 페그마타이트는 알루미나 포화 정도에서 퍼알루미나 (peraluminous) 영역, 실리카와 알카리 원소와의 함량 변화를 보면 알카리 영역에 해당한다 (Fig. 2). Rb-Ba-Sr의 삼각 다이어그램에서 볼 때, 계명산 페그마타이트는 낮은 Sr비로 보아 상당히 분화된 특성을 나타낸다 (Fig. 3). 페그마타이트의 유형 변화에 따른 희토류원소 (REE)의 분포양상은 Fig. 4와 같다. 전체 REE 함량은 다량의 거정질 갈렘석을 함유하는 페그마타이트와 함 U-Th 광물을 수반하는 페그마타이트, K-장석으로 주로 구성된 비광화 페그마타이트 (barren pegmatite) 순으로 감소된다. 또한, 페그마타이트의 REE 패턴은 강한 Eu 부 (-) 이상치를 보여 주며, 계명산층을 구성하는 화산암 기원의 변성암류, 알카리 화강암 및 희유원소 광석에서 보여 주는 결과와 매우 유사하다 (박명언, 김근수, 1995; 김진섭 등, 1998).



**Fig. 2.** Plots of Na<sub>2</sub>O+K<sub>2</sub>O versus SiO<sub>2</sub> (after Irvine and Baragar, 1977) for the Kyemyeongsan pegmatite.



**Fig. 3.** Ternary Rb-Ba-Sr diagram for the Kyemyeongsan pegmatites (after Bouseily and Sokkary, 1975). 1; diorite, 2; granodiorite and quartz diorite, 3; anomalous granite, 4; normal granite, 5; strongly differentiated granite.



**Fig. 4.** Chondrite-normalized (after Boynton, 1984) REE patterns for the Kyemyeongsan pegmatites, and allanite vein (after Park and Kim, 1995) and alkali granite (after Kim *et al.*, 1998).

**광물 공생관계**

마그마 분화과정 후기에 형성된 유체는 주변암을 관입하여 다양한 유형의 페그마타이트 암맥을 형성한다. 일반적으로 마그마의 분화가 진행됨에 따라 혼용체의 평형은 온도의 지배를 받으며,  $\Sigma Fe$ 와 알칼리 원소의 함량은 증가한다. 마그마를 구성하는 미량원소는 결정이 정출되는 과정에서 소모되는 부류 (호정원소)와 결정화 과정 중에 잔류 마그마에 농집되는 부류 (불호정원소)로 구분되며

STAGE	Early silicate	Rare metal	Late silicate
MICROCLINE		-----	-----
PLAGIOCLASE			-----
MUSCOVITE			-----
QUARTZ	-----	-----	
ALLANITE		-----	
FERGUSONITE		-----	
EUXENITE		-----	
MAGNETITE			-----
URANOPYROCHLORE		-----	
THORITE		-----	
ZIRCON			-----

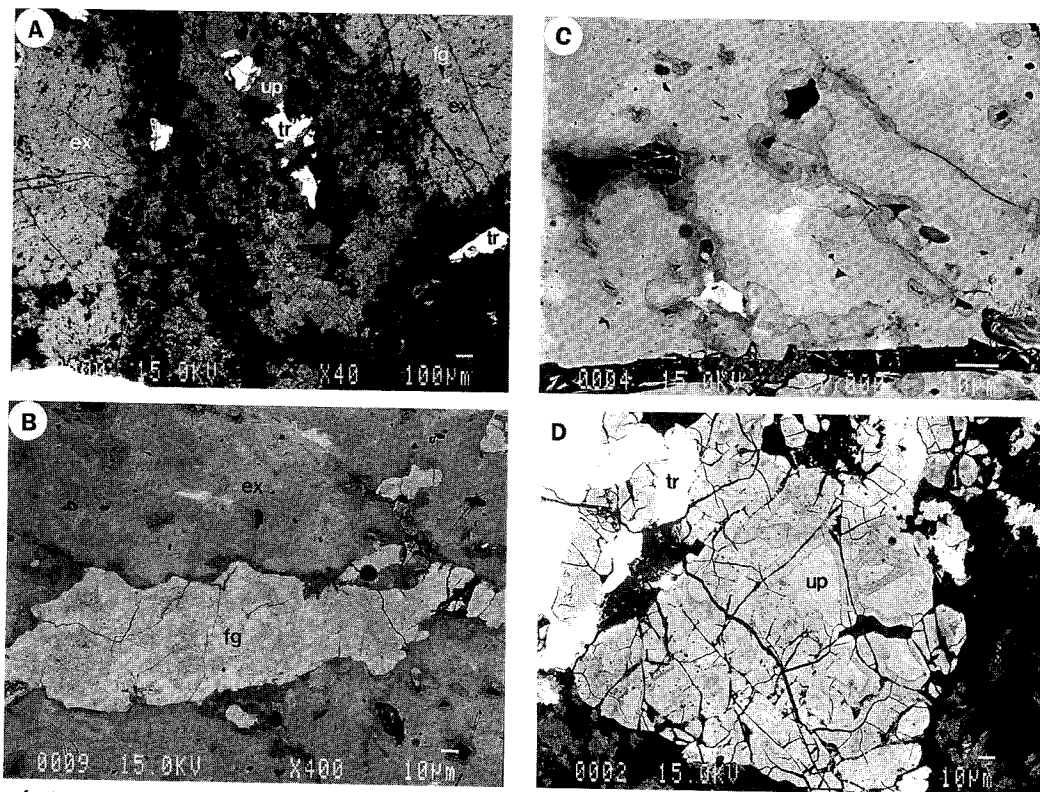
**Fig. 5.** Paragenetic sequence of identified minerals in the Kyemyeongsan pegmatite.

(Brounlow, 1979), 일반적으로 U, Th는 REE 등과 더불어 후기에 잔류하여 페그마타이트내에 농집된다.

계명산 페그마타이트 공생광물의 정출 순서는 초기 규산염 광물 정출기, 함 희유원소 광물 정출기, 후기 규산염 광물 정출기로 구분할 수 있다. 페그마타이트의 초기 단계에는 갈럼석의 조립질 집합체가 맥상으로 수반된다. 특히 함 희유원소 광물 정출기에는 갈럼석의 정출로 시작되어 퍼구소나이트, 유세나이트, 우란피로클로르, 토륨석, 저어콘 순으로 광물정출이 진행되었다 (Fig. 5).

퍼구소나이트 (fergusonite)는 담황색 내지 담갈색을 띠며, 결정의 외곽부는 암색을 이룬다. 대부분 타형으로 유세나이트와 갈럼석내에 포획물로 산출되며, 특히 토륨석과 밀접하게 공생한다 (Fig. 6A). 수반 공생광물과의 상호관계는 편광 현미경 하에서 불분명하나, BEI (Back-scattered Electron Image)에서는 상호관계를 보다 명확하게 알 수 있다. 즉, 높은 원자량을 갖는 원소가 분포하는 곳은 BEI 성분도에서 밝은 색을 띠며, 조성성분 (특히 이트륨)에 의한 명암 차이를 뚜렷이 나타낸다 (Fig. 6B). 또한, 열수변질에 의해 입자 가장자리나 광물내의 미세한 틈을 따라 회색의 불규칙한 조직을 나타낸다.

유세나이트 (euxenite)는 담황색의 중립질 결정으로 산출되며, 결정 내부에 세립의 산점상 퍼구소나이트를 함유한다. 교대조직이 관찰되며, 변질되지 않은 부분에서는 누대 구조를 형성한다 (Fig. 6C). 결정 경계부와 미세한 틈을 따라 우라노피로클로르 및 토륨석이 공생한다. 결정의 외곽



**Fig. 6.** A; Back-scattered electron image (BEI) of U- and Th-bearing minerals. A; Coarse-grained euxenite (ex) showing minute fergusonite (fg) inclusions. Thorite (tr) and uranpyrochlore (up) are closely associated with euxenite. Late silicates (black) replace the marginal part of euxenites. B; Lenticular-shaped fergusonite (fg) in euxenite (ex) matrix, showing irregular hydrothermal alteration. C; BEI-photomicrograph showing discontinuously zoned euxenite. Note that the light part is more enriched in Nb and Y contents. D; Subhedral uranpyrochlore (up) in microcline matrix, showing hydrothermal alteration along grain boundary and fractures. Thorite (tr) is closely associated with uranpyrochlore.

부를 따라 규산염 광물에 의해 불규칙하게 치환되어 있으며 (Fig. 6A), 치환양상에 따라 다양한 반사도를 보여준다.

우란파이로클로르 (uranpyrochlore)는 암색의 자형 내지 반자형의 결정으로 산출되며, 토륨석과 밀접하게 공생한다. 내부의 미세한 균열을 따라 치환조직을 형성하며, 그 결과 반사도의 차이를 형성한다 (Fig. 6D).

토륨석 (thorite)은 페그마타이트 중 주로 미사장석으로 구성된 부분에 수반된다. 거정질 장석의 기질 내에 흑색의 반자형 반정으로 산출되며, 소량의 세립질 석영, 유세나이트, 퍼구소나이트 등과 공생한다. 부분적으로 갈색의 조립질 반자형 결정으로서 우란파이로클로르와 밀접하게 수반되기도 하며, 대부분 결정의 외측부를 따라 암갈색 내지 불투명한 흑색 띠를 형성한다. 내부는 방사성 원소의 작용으로 인한 메타미틱화 (metamictization)를 받아 등방성을 나타낸다. 반사현미경하에서 보면 암색의 포획물이 다수 관찰되며, 이러한 현상은 광물의 외측부나 미세한 균열부위에서 특히 현저하다. 결정내

에 발달되는 미세한 균열을 따라 치환작용과 열수변질작용이 수반된다 (Fig. 7).

### U-Th 광물의 화학조성

페그마타이트에 수반되는 U-Th 광물의 화학조성을 파악하기 위하여 토륨석, 유세나이트, 퍼구소나이트, 우란파이로클로르에 대한 전자현미분석을 실시하였다. 사용된 분석기는 JXA 8600 (고려대학교 전략광물자원 연구센터)이며, 정성 및 정량 분석은 EDS (energy dispersion mode) 방식에 의해 가속전압 15 kv, 빔 직경 10  $\mu\text{m}$ , 빔 전류 30 nA, 빔 조사시간 100 sec의 조건에서 실시하였다.

### 퍼구소나이트

퍼구소나이트는 Y-Nb (Ta)를 함유하는 복합 산화물로서 구조식의 정의에 따라  $\text{ABO}_6$ 로 표현되며, 이상식은 A:

Table 2. Chemical composition and calculated formula of thorite and fergusonite from the Kyemyeongsan pegmatite.

Sample no.	Thorite										Fergusonite									
	1	4	5	16	19	38	2	17	18	37	8	26	21	22	24	32	33			
SiO <sub>2</sub> (wt.%)	12.54	14.79	15.04	15.29	14.02	15.66	0	20.22	20.35	20.13	0	0	0.27	0	0	0	0			
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.58	0.50	0.70	0.58	0.56	0.53	0	0	0	0	1.34	1.27	0.88	1.15	1.07	0.95	0.97			
TiO <sub>2</sub>	0.08	0	0.18	0.07	0	0	0.13	0.06	0.21	0.02	0.11	0.16	0.50	0.19	0.14	0.24	0.20			
FeO	0.23	0.04	0.14	0	0	0	0	0.06	0.03	0.07	0	0	0.03	0	0	0.04	0			
MgO	0.37	0	0	0	0.06	0.26	0	0.16	0	0	0.63	0.75	0.53	0	0.13	0.59	0.28			
CaO	0.06	0.34	0.47	0.51	0.49	0.13	0	0	0	0	0.37	0.51	1.04	0.21	0.34	0.45	0.70			
K <sub>2</sub> O	0.52	0.40	0.24	0.53	0.35	0.40	0.52	0.41	0.59	0.42	0.05	0.12	0	0.06	0	0.02	0.07			
Na <sub>2</sub> O	0.36	0	0	0	0.07	0.54	0	0.05	0.11	0	0.51	0.28	0.22	0.43	0.19	0.89	0.37			
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	3.20	2.82	1.61	4.76	2.47	3.08	0	0.36	0	0.21	0	0	0	0	0	0	0			
Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.01	0.30	0	0.29	0	0.25	0	0	0	0	56.44	56.00	53.06	57.14	56.10	55.35	55.58			
Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1.70	3.60	1.82	3.13	0.84	4.78	2.03	1.55	0.93	1.55	33.43	37.61	33.62	38.13	38.64	35.1	38.14			
Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.34	0	0.04	0	0.11	0.35	0.18	0.12	0	0	1.57	1.18	2.12	0.92	1.17	2.22	1.53			
UO	0	0.50	3.04	0	0.21	1.38	2.25	0.11	0.13	1.60	3.40	2.36	4.45	1.37	1.71	1.46	0.70			
ThO	73.84	73.91	71.08	73.82	74.99	74.25	75.08	77.11	77.23	75.08	1.32	2.05	3.05	1.36	0.76	3.39	1.87			
PbO <sub>2</sub>	0.40	0.65	0.51	0.28	0.71	0.63	1.04	1.63	1.34	1.36	0.46	0.42	0.40	0.46	0.42	0.35	0.21			
Total	94.33	97.97	94.87	99.26	94.88	102.24	101.78	101.84	101.22	100.44	99.63	102.71	100.17	101.42	100.67	101.05	100.62			
Formula(O=4)																				
Si <sup>4+</sup>	0.94	1.02	1.08	0.98	1.04	0.99	1.36	1.31	1.34	1.34	0	0	0.01	0	0	0	0			
Al <sup>3+</sup>	0.05	0.04	0.06	0.04	0.05	0.04	0	0	0	0	0.06	0.06	0.04	0.06	0.05	0.05	0.05			
Ti <sup>4+</sup>	0	0	0.01	0	0	0	0.01	0	0.01	0	0	0.01	0.02	0.01	0	0.01	0.01			
Fe <sup>2+</sup>	0.01	0	0.01	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0			
Mg <sup>2+</sup>	0.04	0	0	0	0.01	0.02	0	0.02	0	0	0.04	0.05	0.03	0	0.01	0.04	0.02			
Ca <sup>2+</sup>	0.01	0.02	0.04	0.04	0.04	0.01	0	0	0	0	0.02	0.02	0.05	0.01	0.02	0.02	0.03			
K <sup>+</sup>	0.05	0.04	0.02	0.04	0.03	0.03	0.04	0.03	0.05	0.04	0	0.01	0	0	0	0	0			
Na <sup>+</sup>	0.05	0	0	0	0.01	0.07	0	0.01	0.01	0	0.04	0.02	0.02	0.04	0.02	0.07	0.03			
P <sup>5+</sup>	0.20	0.16	0.10	0.26	0.16	0.17	0	0	0.02	0.01	0	0	0	0	0	0	0			
Nb <sup>5+</sup>	0	0.01	0	0.01	0	0.01	0	0.01	0	0	1.02	1.06	1.02	1.09	1.04	1.06	1.06			
Y <sup>3+</sup>	0.07	0.13	0.07	0.11	0.03	0.16	0.07	0.05	0.03	0.06	0.88	0.84	0.76	0.86	0.89	0.79	0.86			
Nd <sup>3+</sup>	0.01	0	0	0	0	0.01	0	0	0	0	0.02	0.02	0.03	0.01	0.02	0.03	0.02			
U <sup>2+</sup>	0	0.01	0.05	0	0	0.02	0.03	0	0	0.02	0.03	0.02	0.04	0.01	0.02	0.01	0.01			
Th <sup>2+</sup>	1.34	1.23	1.24	1.15	1.35	1.14	1.20	1.21	1.23	1.21	0.01	0.02	0.03	0.01	0.01	0.01	0.01			
Pb <sup>2+</sup>	0.01	0.01	0.01	0	0.01	0.01	0.02	0.03	0.02	0.02	0	0	0.01	0.01	0	0.03	0.02			

Table 3. Chemical composition and calculated formular of euxenite and uranpyrochlore from the Kyemyeongsan pegmatite.

Sample no.	Euxenite														Uranpyrochlore						
	25	9	3	10	20	23	34	35	36	27	6	28	30	7	31	29					
SiO <sub>2</sub> (wt.%)	2.20	3.51	2.24	2.34	2.28	2.38	4.85	4.09	6.41	2.47	6.45	5.42	4.77	5.78	4.89	5.52					
TiO <sub>2</sub>	18.98	19.74	19.52	18.57	20.05	19.52	16.76	18.21	18.14	20.07	7.80	7.69	7.53	8.03	8.10	8.87					
FeO	0.47	0.29	0.21	0.16	0.23	0.09	0.44	0.16	1.82	0	0.46	0.37	0.13	0.40	0.20	0.21					
MgO	0.42	0.77	0.50	0.80	0.47	0.34	0.18	0.57	0.48	0.56	0.15	0.25	0.07	0.18	0	0					
CaO	1.28	0.96	1.76	1.79	1.24	1.28	1.45	1.82	2.51	1.70	13.24	13.23	12.87	3.88	6.78	5.62					
K <sub>2</sub> O	0.05	0	0	0.10	0	0.08	0.09	0.05	0.11	0	0	0	0	0	0.06	0.10					
Na <sub>2</sub> O	0.61	0.83	0.62	1.00	0.02	0.19	0.23	0.76	1.05	0.77	1.90	1.53	1.81	0.58	0.52	0.43					
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0.07	0	0.04	0	0	0	0					
Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	33.94	28.23	32.43	34.01	31.7	33.62	35.06	34.36	25.95	32.24	49.42	49.32	51.43	53.44	51.69	50.41					
Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	2.61	3.24	2.77	1.54	2.00	2.34	5.25	4.96	4.96	2.56	0	0	0	0	0	0					
Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	16.28	12.43	16.07	17.54	16.04	16.55	14.37	15.36	12.26	15.11	0.75	0.49	0.11	0.35	0.02	0.48					
Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	6.11	6.52	5.21	4.69	5.94	5.28	6.83	5.60	5.00	6.19	0	0	0	0.06	0.05	0.24					
UO	1.97	3.70	2.59	3.45	2.80	1.94	0.73	0.86	0.46	2.33	20.99	20.68	21.73	21.26	22.08	23.60					
ThO	7.16	8.85	6.83	5.42	5.39	5.57	7.26	7.27	7.62	6.51	0.23	0.54	0.78	0.73	0.99	0.01					
PbO <sub>2</sub>	0.14	0.36	0.58	0.57	0.02	0.65	0.64	0.56	0.26	0.73	0.60	0.96	0.96	0.91	1.05	1.06					
Total	92.22	89.43	91.33	91.98	88.18	89.83	94.14	94.63	87.03	91.31	101.99	100.52	102.19	95.6	96.43	96.55					
Formular (O=6)											Formular (O=7)										
Si <sup>4+</sup>	0.14	0.24	0.15	0.15	0.15		0.31	0.26	0.43	0.16	0.39	0.33	0.29	0.42	0.35	0.40					
Ti <sup>4+</sup>	0.93	1.02	0.97	0.90	1.01	0.97	0.81	0.88	0.92	0.98	0.35	0.35	0.34	0.43	0.44	0.49					
Fe <sup>3+</sup>	0.02	0.01	0.01	0.01	0.01	0	0.02	0.01	0.09	0	0.02	0.02	0.01	0.02	0.01	0.01					
Mg <sup>2+</sup>	0.04	0.08	0.05	0.08	0.05	0.03	0.02	0.05	0.05	0.05	0.01	0.02	0.01	0.02	0	0					
Ca <sup>2+</sup>	0.09	0.07	0.12	0.12	0.09	0.09	0.10	0.13	0.18	0.12	0.86	0.87	0.83	0.30	0.52	0.44					
K <sup>+</sup>	0	0	0	0.01	0	0.01	0.01	0	0.01	0	0	0	0	0	0.01	0.01					
Na <sup>+</sup>	0.08	0.11	0.08	0.12	0	0.02	0.03	0.09	0.14	0.10	0.20	0.30	0.31	0.08	0.07	0.06					
P <sup>5+</sup>	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0					
Nb <sup>5+</sup>	1	0.87	0.97	0.99	0.96	1	1.02	0.99	0.79	0.95	1.35	1.37	1.40	1.74	1.69	1.66					
Ta <sup>5+</sup>	0.08	0.10	0.08	0.05	0.06	0.07	0.16	0.15	0.15	0.08	0	0	0	0	0	0					
Y <sup>3+</sup>	0.57	0.45	0.56	0.60	0.57	0.58	0.49	0.52	0.44	0.52	0.02	0.02	0	0.01	0	0.02					
Nd <sup>3+</sup>	0.14	0.16	0.12	0.11	0.14	0.12	0.16	0.13	0.12	0.14	0	0	0	0	0	0.01					
U <sup>2+</sup>	0.03	0.06	0.04	0.05	0.04	0.03	0.01	0.01	0.01	0.03	0.28	0.28	0.29	0.34	0.36	0.38					
Th <sup>2+</sup>	0.11	0.15	0.11	0.08	0.09	0.09	0.11	0.11	0.12	0.10	0	0.01	0.01	0.01	0.02	0					
Pb <sup>2+</sup>	0	0.01	0.01	0.01	0	0.01	0.01	0.01	0	0.01	0.01	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02					

B의 비율이 1:1이다. A 사이트는 이온반경이 크고 8배위를 갖는 낮은 원자가의 양이온으로 이루어지며, B 사이트는 상대적으로 이온반경이 작고 6배위를 갖는 높은 원자가의 양이온으로 구성된다. 높은 원자량으로 인하여 BEI 성분도에서 밝은 색을 띠지만, 열수변질에 의해 입자 가장자리나 광물내의 미세한 틈을 따라 회색의 불규칙한 조직을 나타낸다. 특히, Th, U 및 Y의 함량에 의해 명암 차이를 뚜렷이 나타낸다. Nb, Th 및 U 등의 원소를 비롯하여 미량의 Nd와 Pb가 함유되며, 이들 원소의 치환에 의해 고용체의 성분이 광범위하게 변화한다 (Table 2). 화학조성의 변화 범위는 Y은 26.47~30.21 wt.%, Nb은 37.09~39.94 wt.%로, U+Th은 2.22~6.78 wt.%로 변질양상 (BEI 성분도의 차이)에 따라 다양한 함량변화를 나타낸다. 특히, 변질정도가 높아질수록 Y 함량이 감소하며, 방사성 원소 (Th, U)는 증가하는 경향을 나타낸다 (Fig. 6B).

### 유세나이트

AB<sub>2</sub>O<sub>6</sub>군의 광물로서 일반적으로 A 사이트는 주로 Nb, Y으로 구성되며, B 사이트는 Ca, Si, Th, U, Nd 등으로 구성된다. 변질반지 않은 부분에서는 누대구조를 형성하며, 점이적인 반사도를 보여준다. Nb과 Y의 함량이 높을수록 BEI에서 밝게 나타나며, 어두운 부분에서는 상대적으로 Th과 Si 함량이 높다 (Table 3, Fig. 6A, 6C).

### 우란파이로클로르

Nb이 주성분인 산화광물로서 비교적 많은 양의 우라늄을 함유한다 (U: 18.23~19.46 wt.%). Nb (평균 35 wt.%) 이외에 소량의 Si (평균 2.53 wt.%) 및 Ti (평균 4.76 wt.%)가 함유되며, Na와 Ca 함량은 변질 양상에 따라 비교적 큰 변화 폭을 나타낸다 (Table 3, Fig. 6D). Na는 최대 11.73 wt.%에서 최소 0.43 wt.% 범위이며, Ca는 최대 9.45 wt.%에서 최소 2.77 wt.% 범위를 가진다.

### 토록석

Th 및 Si를 주성분으로 하는 규산염 광물로서 A 사이트의 양이온군은 일반적으로 Th 및 U, B 사이트 양이온군은 Si, Al로 구성된다 (Lumpkin and Chakoumakos, 1988). 주성분인 ThO<sub>2</sub>의 함량 (wt.%)은 71.08~77.23의 범위를 보이며, SiO<sub>2</sub> (wt.%)는 12.54~20.55의 함량 변화를 가진다. 미량으로 U, Pb, Y, P, K 및 Al이 함유된다

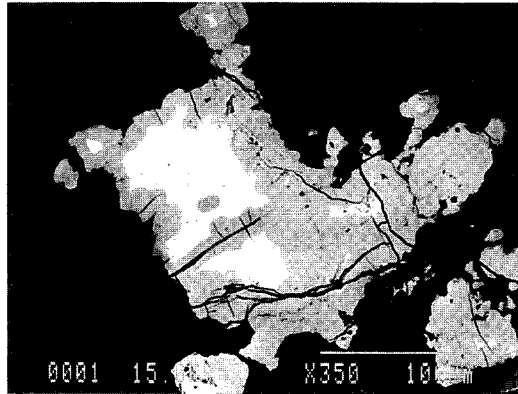


Fig. 7. BEI-photomicrograph of discontinuously zoned thorite grain. Note that the U and Th contents are enriched in core (light parts).

(Table 2). 시료에 따라 2가 및 3가 양이온의 함량차이가 심하며, 2가 원소 중 U과 Th의 변화 폭은 각각 Th 69.06~72.25 wt.% 및 U 최대 2.68 wt.%로서 U+Th는 평균 71.36 wt.%이다. BEI에서 명암의 차이가 뚜렷한 조성 변화를 보인다 (Fig. 7). 중심부의 밝은 부분은 외곽이나 균열부 주변의 어두운 부분에 비해 Th, U, Pb 및 Si의 함량이 높고, Al, P 및 전체함량이 낮아지는 경향이 뚜렷하다. 이러한 성분변화는 후기 열수의 치환작용에 의한 것으로 추정된다.

## 토 의

화성작용과 광상형성간의 관계를 이해하기 위해서는 공간적 분포, 동위체를 포함한 지구화학적 특징, 연대 측정 등의 시공간적 관련성 등을 검토하여야 한다. 본 연구 대상인 함 우라늄·토륨 페그마타이트는 공간적으로 계명산층내의 화성암류와 밀접하게 수반되어 산출되며, 주 성분, 미량성분 및 희토류 원소 특성 등으로 볼 때, 계명산층내의 알카리 화성활동과 성인적으로 관련성이 있음이 추정된다. 함 우라늄·토륨 페그마타이트의 관입시기는 알카리 화강암의 관입 및 REE 광화작용 시기 (330±20 Ma: 박맹언, 김근수, 1995; 김진섭 등, 1998)와 연관성을 가짐을 시사한다. 페그마타이트는 형성 심도, 광화작용, 화성작용과의 관계 등에 의해 분류되며 (Ginsurg, 1979), 계명산 페그마타이트는 일반적으로 화강암류의 관입 양상에 영향을 받아 윗부분에 형성되는 희유원소 페그마타이트 (rare earth pegmatite)에 해당된다.

페그마타이트의 주성분 및 미량성분의 지구화학적 특성 연구는 공간적으로 주변에 분포하는 계명산층을 구성



하는 화성암류와 변성퇴적암과의 관계를 이해하는데 중요한 단서가 된다.  $Al_2O_3$  포화 정도와  $SiO_2$  함량에 대한  $Na_2O+K_2O$  함량과의 관계를 이용한 암석분류에 의하면, 계명산 페그마타이트는 알루미늄이 높은 알카리 영역에 해당되며, Rb, Ba, Sr 성분조성에서 낮은 Sr 함량과 상대적인 함량비의 특성은 분화가 상당히 진행된 암석을 알 수 있다. 페그마타이트 광석에서 높은 Nb, Y, Th, U, Ta 함량을 가지는 것은 함 희유원소 광물의 정출을 의미하고, 낮은 Zr, Hf 함량은 저어콘이 이들 광석 광물과 동시에 침전되지 않았음을 시사한다.

충주지역 알카리암 기원의 희토류 원소 및 희유원소 광상에서 산출되는 공생광물의 정출순서는 유세나이트 내부에 포획체로서 밀접하게 수반되는 갈럼석의 침전에 이어 Y과 Nb를 함유한 광물 (피구소나이트, 유세나이트)이 먼저 정출되고, 이어서 U 함량이 높은 우란파이로클로르, 후기에 토륨석과 저어콘이 정출하는 경향이 있다. 즉, 광물의 정출순서는 주구성 성분의 함량으로 보아 Y, Nb 함량이 높은 광물 (피구소나이트, 유세나이트)로부터 U, Th의 함량이 증가되는 광물 (우란파이로클로르, 토륨석)의 순서로 진행되었음을 시사한다 (Fig. 8). 이러한 특성은 마그마성에서 고대 및 열수성으로 진행됨에 따라 Y과 Nb의 함량 감소와 마그마의 분별작용이 진행되어 마그마의 영향에서 멀어지면서 Y의 감소와 Th 및 U의 증가를 반영한다.

박맹언 등 (1997)은 계명산층내 알카리 화강암 기원의 Nb-Y 광화작용 산물인 피구소나이트에 대한 지구화학적 연구 결과에서, 피구소나이트는 마그마 기원에서 열수 기

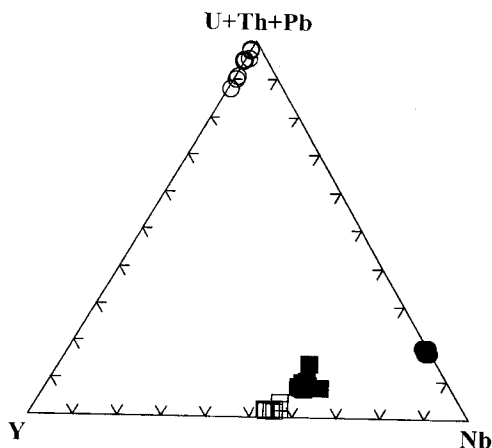


Fig. 8. Compositional variation of U-Th-bearing minerals from the Kyemyeongsan pegmatite. open circle; thorite, closed circle; uranpyrochlore, open square; fergusonite, closed square; cuxenite.

원으로 변함에 따라 Y과 Nb이 감소하는 경향을 보여주며, Y/Nb 값은 모암인 알카리 화성암에서 고대암, 열수기 원으로 변천됨에 따라 감소함을 보고하였다. 또한 이러한 화학조성의 변화는 마그마의 분별 작용 (fractionation)이 진행되면서 마그마의 영향에서 멀어질수록 Y이 감소함을 반영하고, 피구소나이트의 화학조성은 다양한 지질현상의 결과로 설명하였다. 함 U-Th 광물은 후기 열수변질의 영향에 의해 구성 성분원소의 현저한 함량 변화를 나타낸다. 열수변질작용의 결과, 피구소나이트는 U, Th의 함량이 감소하였고, 토륨석은 Si, U, Th, Pb이 감소하였다. 유세나이트에서는 Nb, Y 함량이 점이적으로 감소되었고, 우란파이로클로르는 Na, Ca, Ti, U, Th 함량이 감소되었다. 이러한 공생광물의 화학조성 변화는 마그마에서 열수 환경으로 변천함에 따라 온도, 압력을 비롯하여 산소분압 및 열수용액의 활동도 등의 다양한 물리·화학적 환경의 변화에 기인한 것으로 추정되며, 구체적인 환경은 유체포 유물 및 동위원소 연구 등에 의해 규명될 수 있다.

## 결론

계명산 페그마타이트 및 함 U-Th 광물의 지구화학적 특성은 다음과 같다.

1. 계명산 페그마타이트는 산출양상과 화학적 특성 (구성분, 미량성분 및 희유원소 성분의 분포)으로 볼 때, 고생대 석탄기 알카리 화강암과 동일한 분화과정에서 형성된 것으로 판단된다.

2. 페그마타이트는  $Al_2O_3$  포화 정도와  $SiO_2$  함량에 대한 알카리 함량의 변화 특성으로 볼 때, 높은 분화정도를 나타내는 페알루미나와 알카리 화성암의 영역에 속한다.

3. 페그마타이트 광상은 함 U-Th 광물 맥과 갈럼석 맥으로 구분되며, 함 U-Th 광물을 수반하는 페그마타이트는 광상을 형성하지 않은 페그마타이트 (barren pegmatite)에 비해 Nb, Y, Th, U, Ta 및 REE 등이 다소 부화되어 있으며, Zr, Hf, Ba, Rb 등은 비슷하거나 상대적으로 낮은 함량을 나타낸다.

4. 페그마타이트를 구성하는 공생광물의 정출은 초기 규산염 광물 정출기, 희유원소 광물 정출기, 후기 규산염 광물 정출기의 순서로 진행되었으며, 희유원소 광물 정출기에는 피구소나이트, 유세나이트, 우란파이로클로르, 토륨석, 저어콘 순으로 침전되었다.

5. 함 U-Th 광물은 후기 열수변질의 영향에 의해 주구성 성분원소의 현저한 함량 변화를 나타낸다. 열수변질작용의 결과, 피구소나이트는 U, Th의 함량이 감소하였고, 토륨석은 Si, U, Th, Pb이 감소하였다. 유세나이트에서는

Nb, Y 함량이 점이적으로 감소되었고, 우란피이로클로르  
는 Na, Ca, Ti, U, Th 함량이 감소되었다. 이러한 공생광  
물의 화학조성 변화는 마그마 기원 물질에서 열수환경으  
로 변천함에 따라 수반된 다양한 물리·화학적 환경의 변  
화에 기인한 것으로 사료된다. 본 연구 결과는 국내 우라  
늄과 토륨 광화작용의 특성과 잠재력을 평가하는데 중요  
한 자료가 될 것으로 생각된다.

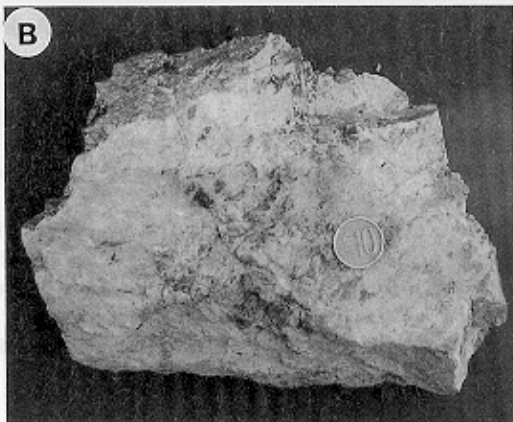
## 사 사

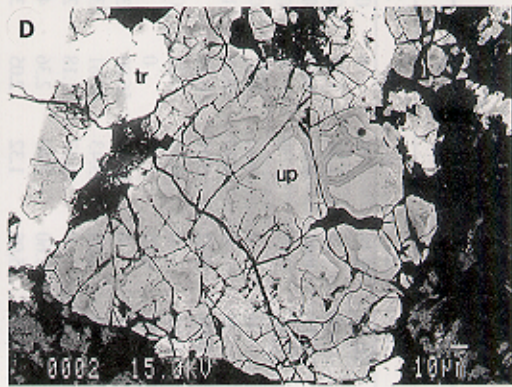
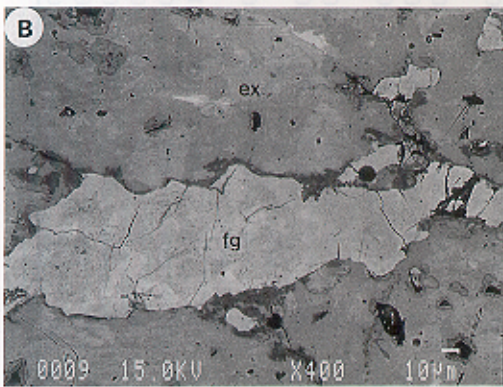
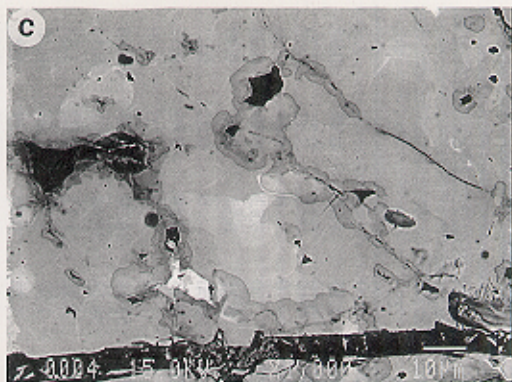
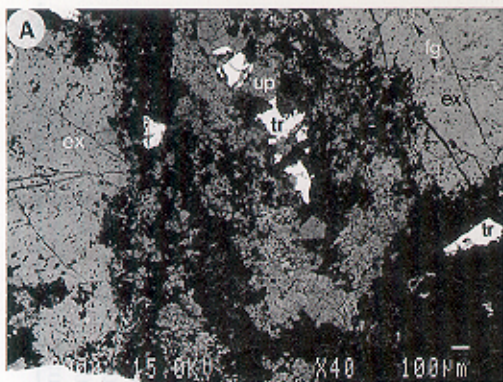
본 연구를 지원해 준 한국과학재단 전략광물자원 연구  
센터에 감사 드린다. 아울러 심사과정에서 중요한 관점에  
대하여 지적과 수정을 해 주신 고려대학교 윤성택 교수님  
과 익명의 심사위원에게 심심한 사의를 표합니다.

## 참고문헌

- 구자학, 박영수 (1986) 항공 방사능 및 자력탐사 연구. 광역  
탐사연구 (KR-86-2-4). 한국동력자원연구소. p. 7-28.
- 김봉균 (1982) 한국의 지질과 광물자원. 연세대학교 지질학  
과 동문회. 김옥준교수 정년퇴임기념. 523p.
- 김중환, 조규장, 김선익, 정현욱, 조진동 (1974) 괴산지역 우  
라늄탐사종합보고. 지질광상연구, 지질광상조사보고.  
Part II, 2호, p. 1-122.
- 김진섭, 박맹언, 김근수 (1998) 충주지역 계명산층 내에 산출  
하는 알카리 화강암의 지구화학적 연구. 자원환경지질,  
31권, p. 349-360
- 박중권, 오천혁, 최수천 (1990) 우라늄 광상연구 (우라늄 고  
함유 화강암지역 1년차) (KR-90-213-2). 한국자원연구  
소. 87p.
- 박중권, 오민수, 박성원 (1994) 충주 아래산지역 희유금속광  
물자원 탐사 연구 (II). 한국자원연구소 연구보고서 (KR-  
93-1C-2), p. 1-105.
- 박맹언, 김근수 (1995) 충주지역 회토류광상의 성인; 산출상  
태와 지화학적 특성. 자원환경지질, 28권, p. 599-612.
- 박맹언, 김근수, 최인식 (1996) 충주지역 희유원소광상에서  
산출되는 갈렙석의 지화학적 특성. 자원환경지질, 29권,  
p. 545-559.
- 박맹언, 김근수, 최인식 (1997) 계명산층내 알카리 화강암 기  
원의 Nb-Y 광화작용에 수반되는 퍼구소나이트의 지구화  
학 및 산출특성 연구. 자원환경지질, 30권, p. 395-406.
- 오민수, 서정률, 구성분, 최종호 (1989) 충청북도 증원군 어  
래산지역 희유금속 광물 (갈렙석) 자원의 지질 광상연구.  
한국동력자원연구소 연구보고서 (KR88-8A). p. 3-111.
- 이민성 (1978) 육천계 합 우라늄 지층 주변에 관입분포하는  
화강암류의 지구화학. 지질학회지, 14권, p. 113-119.
- 진명식, 김성제 (1988) 순경 합주석 페그마타이트의 K-Ar 연  
령. 광산지질, 21권, p. 171-174.
- 최성훈, 이정만 (1990) 태백산 광화대 중부지역 페그마타이  
트에 대한 지화학적 연구. 광산지질, 23권, p. 35-57.
- Amlı, R. (1975) Mineralogy and rare earth geochemistry  
of apatite and xenotime from the gloscheria granite  
pegmatite, Froland, Southern Norway. American Min-  
eralogist, v. 60, p. 607-620.
- Bouseily, A.M. and Sokkary, A.A. (1975) The relation  
between Rb, Ba, and Sr in granitic rocks. Chemical  
Geology, v. 16, p. 207-219.
- Boynton, W.V. (1984) Cosmochemistry of the rare earth  
elements: Meteorite studies. In P. Henderson (ed.)  
Elsevier Science Publishers B. V., p. 63-114.
- Brownlow, A.H. (1979) Geochemistry, p. 356-413.
- Cerny, P., Goad, B.E., Hawthorne, F.C. and Chapman, R.  
(1986) Fractionation trends of the Nb-and Ta-bear-  
ing oxide minerals in the Greer Lake pegmatitic gran-  
ite and its pegmatite aureole, southeastern Manitoba.  
American Mineralogist, v. 71, p. 501-517.
- Cerny, P., Hawthorne, F.C., Laflamme, H.G. and  
Hinhorne, J.R. (1979) Stibiobefatite, A new member  
or the pyrochlore group from Vezna, Czechoslovakia.  
Canadian Mineralogist, v. 17, p. 583-588.
- Ewing, R.C. (1975) The crystal chemistry of complex  
niobium and tantalum oxides. IV. The Metamict state;  
Discussion. American Mineralogist, v. 60, p. 728-733.
- Foord, E.E., Cobban, R.R and Brownfield, I.K. (1985)  
Uranian thorite in lithophysal rhyolite-topaz moun-  
tain, Utah, USA. Mineralogical Magazine, v. 49, p.  
729-731.
- Halleran, A.D. and Russell, J.R. (1996) REE-bearing al-  
kaline pegmatites and associated ligh REE-enriched  
fenites at mount bisson, British Columbia. Economic  
Geology, v. 91, p. 451-459.
- Helba, H., Trumbull, R.B., Morteani, G., Khalil, S.O. and  
Arslan, A. (1997) Geochemistry and petrographic stu-  
dies of Ta mineralization in the Nuweibi albite gran-  
ite complex, Eastern Desert, Egypt. Mineralium De-  
posita, v. 32, p. 164-179.
- Irvine, T.N. and Baragar, W.R.A (1977) A guide to the  
chemical classification of common volcanic rocks.  
Canadian Jour. of Earth Sci., v. 8, p. 523-548.
- Lumpkin, G.R. and Chakoumakos, B.C. (1988) Chemistry  
and radiation effects of thorite-group minerals from  
the harding pegmatite, Taos Country, New Mexico.  
American Mineralogist, v. 73, p. 1405-1419.
- Lumpkin, G.R., Chakoumakos, B.C. and Ewing, R.C.  
(1986) Mineralogy and radiation effects of microlite  
from the harding pegmatite, Taos Country, New Mex-  
ico. American Mineralogist, v. 71, p. 569-588.
- Partington, G.A. and McNaughton, N.J. (1995) A review  
of the geology, mineralization, and geochronology of  
the greenbushes pegmatite, Western Australia.  
Economic Geology, v. 90, p. 616-635.
- Pinkston, D.R. and Smith, G.W. (1995) Mineralogy of  
the lake zone, thor lake rare-metals deposit, N.W.T.,  
Canada. Can. J. Earth Sci., v. 32, p. 516-532.
- Pointer, C.M., Ashworth, J. R. and Ixer, R.A. (1988) The  
zircon-thorite mineral group in metasomatized gran-  
ite, ririwai, nigeria 1. Geochemistry and metastable  
solid solution of thorite and coffinite. Mineralogy and  
Petrology, v. 38, p. 245-262.

1998년 5월 18일 원고접수, 1998년 9월 1일 게재승인.

**A****B**



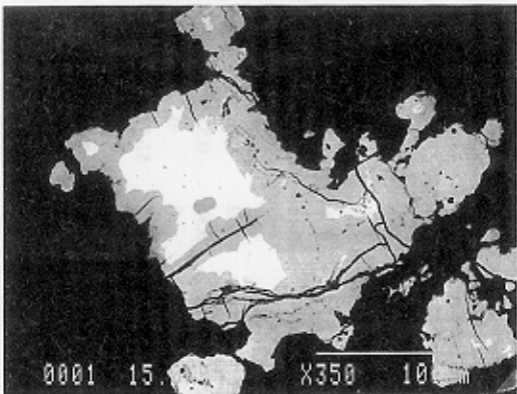


Fig. 3. DIC photomicrograph of discontinuously coated thin