



Special Review on “Geological and Environmental Sciences for Sustainable Nuclear Energy”

A Review on Analysis of Natural Uranium Isotopes and Their Application

Yeongmin Kim*

Korea Basic Science Institute, Cheongju 28119, Republic of Korea

*Corresponding author : ykim86@kbsi.re.kr

ARTICLE INFORMATION

Manuscript received 6 September 2023

Received in revised form 5 October 2023

Manuscript accepted 11 October 2023

Available online 30 October 2023

DOI : <http://dx.doi.org/10.9719/EEG.2023.56.5.547>

Research Highlights

- This review paper provides brief introduction on uranium isotope measurements and naturally occurring isotope fractionation processes.
- $\delta^{238}\text{U}$ values of major terrestrial reservoirs and their variations depending on the naturally occurring isotope fractionation processes are discussed.
- The significance of uranium ore deposits as natural simulating model for constructing high level radioactive waste repository site is reviewed.

ABSTRACT

Due to enhanced precision in uranium isotope measurements with MC-ICP-MS, there has been a surge in studies concerning the naturally occurring uranium isotope ratio ($^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$) and its associated fractionation processes. Several researchers have highlighted that the $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ ratio, previously assumed to be constant, can vary by several per mil depending on different natural fractionation processes. This review paper outlines the uranium isotope values ($\delta^{238}\text{U}$) for major terrestrial reservoirs and their variations. It discusses the range of $\delta^{238}\text{U}$ values and uranium isotope fractionation seen in uranium ore deposits, based on deposit type and ore-forming conditions. In conclusion, this paper emphasizes the importance of studies on uranium ore deposits. Such deposits serve as natural simulation models vital for designing high-level radioactive waste repository sites.

Keywords : uranium isotope, $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$, MC-ICP-MS, uranium ore deposit, isotope fractionation

Citation: Kim, Y. (2023) A Review on Analysis of Natural Uranium Isotopes and Their Application. *Korea Economic and Environmental Geology*, v.56, p.547-555, doi:10.9719/EEG.2023.56.5.547.

해설 (“원자력과 지질환경과학” 특별호)

우라늄 동위원소의 분석과 활용에 대한 고찰

김영민*

한국기초과학지원연구원 환경분석연구부

*책임저자 : ykim86@kbsi.re.kr

요 약

분석 기기의 발달과 더불어 자연 우라늄 동위원소 비($^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$)와 분별작용에 대한 연구가 점차 증가하고 있다. MC-ICP-MS를 이용한 우라늄 동위원소의 정밀한 분석이 가능해지면서 137.88의 고정된 값으로 여겨졌던 자연 물질의 $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 비가 우라늄 동위원소 분별작용에 의해 최대 수 퍼밀까지 변화할 수 있다는 것이 밝혀졌다. 본 고찰에서는 우라늄 동위원소의 분석과 표기에 대해 간략하게 설명한 후, 지구 상 주요 물질들의 우라늄 동위원소 값($\delta^{238}\text{U}$)의 변화와 지구화학적 특징을 살펴본다. 특히, 우라늄 광상의 유형과 특징에 따른 우라늄 동위원소 조성 연구 사례를 소개하고, 상대적으로 큰 $\delta^{238}\text{U}$ 범위를 야기하는 우라늄 동위원소 분별작용에 대해 논의한다. 이를 바탕으로 고준위 방사성 폐기물 처분장의 모의 실험을 위한 자연 유사 모델로서 우라늄 광상이 갖는 연구 의의에 대해 고찰한다.

주요어 : 우라늄 동위원소, $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$, 다검출기 유도결합 플라즈마 질량분석기, 우라늄 광상, 동위원소 분별작용

1. 서 론

태양계의 일곱 번째 행성인 천왕성(Uranus)에서 그 이름이 유래한 우라늄(Uranium, U)은 긴 반감기를 갖고 방사성 붕괴를 하는 주요 방사성 원소 중 하나이다. 우라늄은 토륨(Thorium, Th)과 함께 크게 세 가지의 연쇄 반응을 통해 납(Lead, Pb) 안정동위원소로 자연적인 방사성 붕괴를 일으키며, 이러한 자연적인 방사성 붕괴에 대한 이해는 현재까지 널리 활용되는 U-Pb 및 Pb-Pb 연대 측정법의 정립에 토대가 되었다(e.g., Bourdon et al., 2003; Patterson et al., 1955). 이에 반해 우라늄 동위원소 조성 비($^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 와 $^{238}\text{U}/^{234}\text{U}$)의 측정과 활용은 최근 십 여년 사이 급격하게 발달하게 되었는데, 이는 질량분석기의 정밀도 향상과 더불어 자연 물질의 우라늄 동위원소 비가 고정된 값이 아니라 다양한 작용에 의해 변화가 가능하다는 것을 발견한 점에 기인한 바가 크다(e.g., Andersen et al., 2017).

우라늄은 자연에서 주로 U^{4+} 와 U^{6+} 두 개의 산화 상태로 존재하며, 광물의 결정 격자에 잘 들어가기 어려운 친액원소(incompatible element) 그룹 중에서 비교적 작은 이온 크기에 비해 원자가가 높은 고장력 원소(High Field Strength Elements, HFSE)에 해당한다(e.g., Langmuir, 1978). U^{5+} 도 자연적으로 발생하지만 불균화 반응으로 인해 자연계에서 금새 불안정해져 사라진다(Grenthe et al., 1992). 맨틀에서 우라늄은 낮은 용해도를 갖는 U^{4+} 화합

물로 주로 존재할 것으로 여겨지는 반면, 용해도가 높고 이동성이 큰 U^{6+} 은 산화 상태인 지표 근처에서는 주로 우라닐(UO_2^{2+}) 탄산염 복합체로 존재한다(Langmuir, 1978; Wood et al., 1999).

이러한 지화학적 특성으로 인해 우라늄은 CI 콘드라이트(~8.1 ppb), 전체 규산염지구(~20.3 ppb)에 비해 대륙 지각(~1.3 ppm)에 농집되어 있는 경향을 보이며, 지구에 존재하는 전체 우라늄 중 약 30%가 대륙지각에 분포하는 것으로 여겨진다(Palme and O'Neill, 2003; Rudnick and Gao, 2003). 해수에서 주로 우라닐(UO_2^{2+}) 탄산염 복합체로 존재하는 우라늄은 약 3.2 ppb의 평균 농도를 가지며, 매우 긴 체류시간(~400,000년)을 갖는다(Ku et al., 1977).

자연우라늄 동위원소(natural occurring uranium isotope)은 원시 생성 동위원소인 ^{238}U (99.2745%) 및 ^{235}U (0.72%)와 ^{238}U 의 방사성 붕괴 과정에서 생성되는 ^{234}U (0.0055%)가 존재한다(Fig. 1). 이 외에도 우라늄 광상에서 중성자 포획 과정을 통해 매우 극소량의 ^{236}U 이 자연적으로 발생할 수 있다(Murphy et al., 2015). 우라늄 동위원소는 서로 다른 반감기를 갖고 방사성 붕괴를 하기 때문에 (Table 1), $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 절대적 비는 시간이 흐를수록 점차 증가하게 된다. 태양계 초기의 $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 비는 약 3이었으며, 현재는 137.88로 널리 받아들여 지고 있다(Steiger and Jager, 1977). 그러나 2000년 대 중반 이후 지구 내 물질들이 고정된 $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 비가 아닌 다른 값을 가질 수

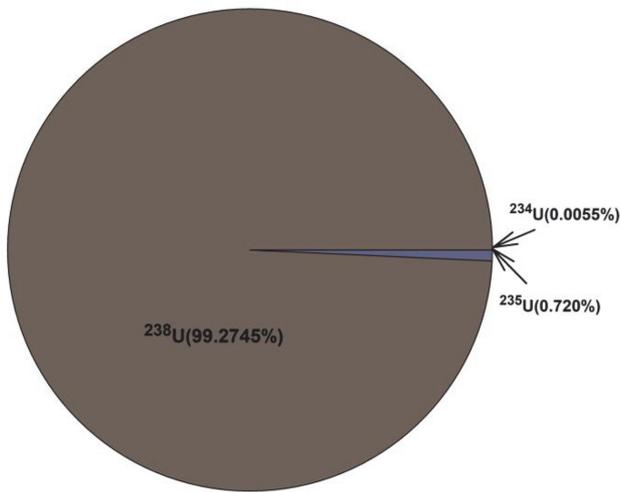


Fig. 1. Abundances of naturally occurring uranium isotopes.

Table 1. The half-lives of significant uranium isotopes. The m.y. and b.y. indicate million year and billion year, respectively (modified from Andersen et al., 2017)

Isotope	Half-life	Decay-constant (λ)
^{247}Cm	15.9 m.y.	4.28×10^{-8}
^{238}U	4.468 b.y.	1.55125×10^{-10}
^{236}U	23 m.y.	2.96×10^{-8}
^{235}U	703.7 m.y.	9.85×10^{-10}
^{234}U	246 k.y.	2.83×10^{-6}
^{233}U	159 5.y.	4.35×10^{-6}

있다는 연구 결과들이 본격적으로 보고되기 시작하였다 (Stirling et al., 2007; Weyer et al., 2008). 방사성 붕괴가 아닌 이러한 자연적인 $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 비의 변화는 동위원소 교환 반응에 의해 상대적인 동위원소의 비가 변화는 동위원소 분별작용으로 설명될 수 있다. 이러한 우리늄 동위원소 분별작용은 우리늄의 방사성 붕괴 과정과는 무관하게 주로 산화-환원 환경의 변화에 의해 지구 상 물질의 $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 비에 영향을 미친다. 자연적인 물질의 $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 비와 우리늄 동위원소 분별작용은 주로 우리늄 및 금속 광상, 탄산염암을 포함한 다양한 지구 상 암석, 운석, 담수 및 해수를 대상으로 보고되어 왔다(Fig. 2).

이번 고찰에서는 우리늄 동위원소의 방사성 붕괴 및 이를 활용한 연대측정 관련 연구는 제외하고, 최근 들어 보고되는 수가 늘어나고 있는 자연적인 $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 비의 변화에 대한 연구 사례들을 중심으로 지구 상 주요 물질들의 $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 비 조성과 자연상에서의 우리늄 동위원소 분별작용에 대해 다룰 예정이다. 먼저 열이온화 질량분석기(Thermal Ionization Mass Spectrometer, TIMS) 또는 다

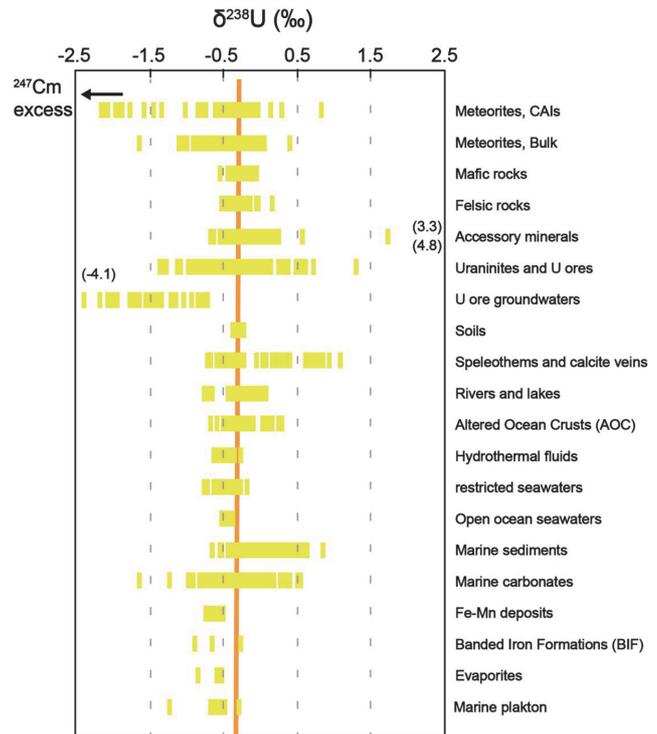


Fig. 2. Natural $\delta^{238}\text{U}$ values of different reservoirs (modified from Andersen et al., 2017). All data come from Andersen et al. (2017) and references therein.

검출기 유도결합 플라즈마 질량분석기(Multi Collector Induced Coupled Plasma Mass Spectrometer, MC-ICP-MS)를 이용한 우리늄 동위원소의 분석, 표준물질 및 표기법 등을 포함한 우리늄 동위원소 분석에 대해 간략하게 설명할 예정이다. 이후 암석, 우리늄 및 금속 광상, 담수 및 해수 등 지구 상 주요 물질들의 $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 비와 산화-환원 환경 변화에 의한 우리늄 동위원소 분별작용에 대한 연구 사례를 소개하고자 한다.

2. 우리늄 동위원소의 분석과 표기

2.1. MC-ICP-MS를 이용한 우리늄 동위원소 분석의 발달

Nier(1939)의 연구에 의해 우리늄 동위원소 조성($^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$)이 본격적으로 측정되기 시작한 이래, 우리늄 동위원소 분석은 2000년대 초반까지 주로 TIMS로 분석이 이뤄져 왔다(e.g., Chen and Wasserburg, 1981; Lounsbury, 1956). 그러나 2000년대 중반 이후 질량분석기의 발달과 더불어 MC-ICP-MS를 이용한 우리늄 동위원소 분석이 본격적으로 이뤄지기 시작했다(Brennacka et al., 2010; Rademacher et al., 2006; Richter et al., 2008; Stirling et al., 2005; Weyer et al., 2008). 특히 특정 동위원소가 인

위적으로 부화된 스파이크 물질을 시료와 혼합하여 분석하면 정확하게 시료 내 관심 동위원소의 농도와 동위원소 조성을 측정할 수 있다. 이러한 연구들에서 우리나라의 높은 이온화 효율로 인해 MC-ICP-MS를 이용하여 농도가 100 ppb 이하인 시료의 분석이 가능하게 되었으며, ^{236}U - ^{233}U 이중 스파이크 분석법(double spikes methods)을 통해 $\pm 0.1\%$ 이하의 정밀도를 갖는 $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 비를 측정할 수 있게 되었다. 이후 MC-ICP-MS 내 이온 검출기에 부착된 페러데이 컵 또는 전자 증폭기를 활용하여 상대적으로 양이 적은 ^{234}U 동위원소도 분석이 가능하게 되었으며, 검출기 저항을 10^{10} 과 $10^{11} \Omega$ 을 혼합하여 사용하는 방식으로 약 0.03 %의 정밀도로 $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 비 측정이 가능하게 되었다(Andersen et al., 2015; Cheng et al., 2013; Hiess et al., 2012; Romaniello et al., 2013; Tissot and Dauphas, 2015; Tissot et al., 2016).

MC-ICP-MS를 이용한 우리나라 동위원소 분석을 위해서 일반적으로 이온교환수지(ion exchange resin)를 활용한 이온 크로마토그래피(Ion Chromatography)을 통해 우리나라를 분리해 낸다. 이러한 우리나라의 분리는 실험 목적에 따라 세부 프로토콜이 다양하게 개발되어 활용된다(e.g., Chen and Wasserburg, 1981; Escareño-Juárez et al., 2019; Hiess et al., 2012; Horwitz et al., 1992; Stirling et al., 2005; Tissot and Dauphas, 2015; Weyer et al., 2008; Zhang et al., 2021). 우리나라는 MC-ICP-MS를 이용한 동위원소 분석 과정에서 생성되는 대부분의 간섭 물질들에 비해 질량이 크기 때문에 질량이 낮은 다른 원소들에 비해 간섭 현상이 적은 편이다. 그러나 UO^+ 나 UH^+ 와 같은 분자들이 분석 과정에서 생성될 수 있으며, 이들에 의한 기기의 질량 편이 현상으로 인해 측정된 $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 비의 편이가 일어날 수 있다(e.g., Russell et al., 1978). 이러한 문제는 같은 조건에서 시료와 표준물질을 함께 분석하는 방법(Sample-Standard Bracketing method, SSB)으로 해결이 가능하며, 이 경우 시료는 표준물질에 대한 상대적인 비로 나타내어 진다.

2.2. 우리나라 동위원소의 표준물질

앞서 설명한 바와 같이 $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 비는 아래 수식과 같이 주로 그 값을 알고 있는 표준물질에 대한 상대적인 값으로 표시되는 δ -표기법(δ -notation)으로 나타낸다.

$$\delta^{238}\text{U} = \left[\left(\frac{^{238}\text{U}/^{235}\text{U}}{^{238}\text{U}/^{235}\text{U}} \right)_{\text{sample}} / \left(\frac{^{238}\text{U}/^{235}\text{U}}{^{238}\text{U}/^{235}\text{U}} \right)_{\text{standard}} - 1 \right] \times 1000$$

우리나라 동위원소의 분석에 사용되는 표준물질은 미국의 NIST(National Institute of Standards and Technology)와 유럽의 IRMM(Institute of Reference Materials and Measurements)

에서 공급되는 물질들이 사용되며, CRM-112a, CRM-129a, CRM-145, SRM-950a, IRMM-184, REIMP-18a 등이 존재한다(Cheng et al., 2013; Goldmann et al., 2015; Hiess et al., 2012; Richter et al., 2010; Stirling et al., 2007; Tissot and Dauphas, 2015; Weyer et al., 2008). 이 중 가장 널리 활용되는 CRM-112a 표준물질의 $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 비의 절대값은 137.849 ± 0.0079 이며, 연구에 따라 137.829 ± 0.022 에서 137.843 ± 0.008 의 분석값이 보고되었다(Cheng et al., 2013; Goldmann et al., 2015; Hiess et al., 2012; Tissot and Dauphas, 2015).

3. 주요 지구 물질의 우리나라 동위원소 조성 및 분별작용

3.1. 맨틀과 주요 암석의 우리나라 동위원소 조성

지구에서 우리나라는 주로 맨틀과 상부지각 사이에 주로 분포하고 핵에는 거의 존재하지 않을 것으로 여겨진다(Wohlbers and Wood, 2015). 지구에서 발견된 운석들의 $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 비를 통해 Andersen et al. (2015)은 태양계의 $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 값이 137.79 ± 0.03 으로 균질했으며, BSE의 $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 값도 이와 같았을 것으로 추정하였다. 이에 반해 다양한 해양 암석(MORB, OIB, IAB)의 $\delta^{238}\text{U}$ 값을 보면 (Fig. 2), 상부맨틀의 우리나라 동위원소 조성은 균질하지 않은 것으로 여겨진다(Andersen et al., 2015). 이러한 상부 맨틀의 비균질한 우리나라 동위원소 조성은 부분용융 등의 마그마 작용에 의한 것이라기 보다는 지각물질의 섭입에 의한 것으로 여겨진다(Andersen et al., 2015; Noordmann et al., 2016). 이는 지표 근처의 산화 환경에서 U^{6+} 로 존재하는 우리나라가 U^{4+} 로 환원되는 산화-환원 반응에 의해 야기되는 우리나라 동위원소 분별작용이 큰 영향을 미쳤음을 지시한다(Andersen et al., 2015).

다양한 성분의 대륙지각의 평균적인 $\delta^{238}\text{U}$ 값은 -0.29% 이며(Noordmann et al., 2016; Tissot and Dauphas, 2015), 지각의 성분 및 분화도, 지각의 생성 연령 등에 상관없이 균질한 값을 갖고 있다(Fig. 2). 이러한 지각의 평균 $\delta^{238}\text{U}$ 값은 하부 맨틀($\delta^{238}\text{U} = -0.31\%$)이나 초기 지구($\delta^{238}\text{U} = 0.34\%$)의 우리나라 동위원소 조성보다 큰 차이가 없다. 이는 상대적으로 넓은 범위의 $\delta^{238}\text{U}$ 값을 보이는 우리나라 및 금속 광상의 경우를 제외하면 전지구적인 우리나라 순환에 의해 우리나라 동위원소 조성이 큰 범위에서 균질하게 유지되고 있음을 지시한다(Andersen et al., 2017).

전지구적인 큰 규모의 우리나라 순환 관점에서 살펴보면(Andersen et al., 2015, 2017) 해수와 담수에 의해 영향을 받은 해양지각이 섭입되면서 더 가벼운 우리나라 동위원소는 섭입대 마그마로 방출되고 더 무거운 우리나라 동

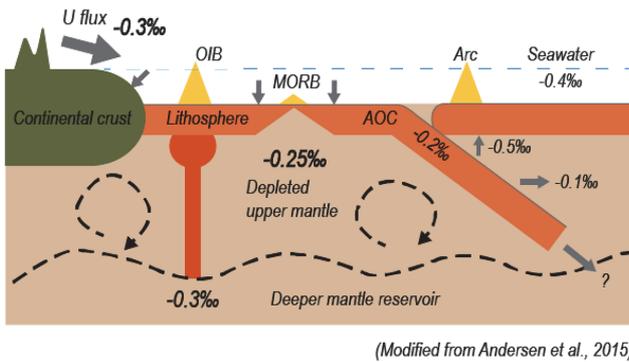


Fig. 3. Schematic illustration of the cycles of uranium isotope values ($\delta^{238}\text{U}$) of major reservoirs in Earth from deep mantle to surface (modified from Andersen et al., 2015). AOC indicates altered oceanic crust.

위원소는 상부맨틀로 유입되어 중앙해령 현무암(MORB)으로 유입된다고 여겨진다(Fig. 3).

3.2. 담수와 해수의 우라늄 동위원소 조성

유량에 가중치를 둔 전 세계 강물의 가중 $\delta^{238}\text{U}$ 값은 평균 -0.34‰ (Fig. 2)로 지각평균이나 초기 지구의 값과 비슷하다(Andersen et al., 2016, 2017; Noordmann et al., 2016; Tissot and Dauphas, 2017). 특히 상대적으로 낮은 조성을 보이는 중국 양쯔강의 $\delta^{238}\text{U}$ 값(-0.70‰)을 제외하면, $\delta^{238}\text{U}$ 값은 -0.29‰ 로 지각 평균 및 초기 지구 값에 더욱 근접한다(Andersen et al., 2017). 이러한 양쯔강의 낮은 $\delta^{238}\text{U}$ 값은 양쯔강 수역에 분포하는 돌로마이트를 포함한 탄산염암과 이암 등에 영향을 받은 것으로 여겨지나, 이에 대한 체계적인 연구가 필요하다(Brennecka et al., 2011).

앞서 언급하였듯이 해수에서 우라늄은 매우 긴 잔류시간(약 400,000년)을 갖기 때문에 해수에서 우라늄 동위원소 조성은 균질한 조성($\delta^{238}\text{U} = -0.39 \pm 0.01\text{‰}$)을 보인다(Fig. 2). 이러한 해수의 $\delta^{238}\text{U}$ 값은 전 세계 강물의 평균 $\delta^{238}\text{U}$ 값보다 약 0.1% 정도 낮다. 이는 해수에서 해양지각 혹은 해양퇴적물로 우라늄이 유입될 때 우라늄 동위원소 분별작용이 일어남을 지시한다(Andersen et al., 2017).

3.3. 우라늄 및 금속 광상의 우라늄 동위원소 조성

전 세계적으로 수많은 우라늄 광산이 개발되면서 이들 광상의 ^{238}U 값이 다른 지구상 물질들에 비해 상대적으로 많이 보고되었다(Fig. 2). 또한, 이러한 우라늄 및 금속 광상들의 $\delta^{238}\text{U}$ 값은 상대적으로 넓은 범위를 보이는데(Fig. 2), 이는 우라늄 광상의 형성 과정에서 일어나는 우라늄 동위원소 분별작용에 기인한다고 여겨진다.

우라늄 광상은 크게 사암형(Redox-controlled sandstone-type), 부정합형(Unconformity-related type), 마그마-열수형(Magmatic and hydrothermal-type)으로 구분된다(Pohl, 2011). 사암형은 지표 근처에 위치한 투수도가 높은 사암 대수층의 대수면 아래에서 형성된다. 우라닐 복합체(U^{6+})를 함유한 지하수가 지표 근처에서 더 깊은 곳으로 이동하면서 황화물 혹은 유기물 등의 환원제를 만나게 되면 용존되어 있던 U^{6+} 이 환원되면서 잘 녹지 않는 U^{4+} 를 포함하는 광물(uraninite, coffinite)로 침전하게 된다(Cuney, 2010; Robb, 2020). 이러한 함우라늄 광물의 침전은 'roll-front'라 불리는 산화-환원 작용 경계에서 일어나면, 이곳에 우라늄 산화물 광석들이 농집되게 된다(Robb, 2020). 부정합형 우라늄 광상은 대개 변성암질 기반암 상부를 퇴적암이 덮고 있는 부정합 환경에서 생성된다(Cuney, 2010; Robb, 2020). 지하수 혹은 열수에 U^{6+} 형태로 용존된 우라늄이 부정합 경계면 상부에 위치한 퇴적암 내에 침전되게 된다. 단층 혹은 전단대 등을 따라 이동하던 산화 유체가 부정합 경계 상부에 위치한 환원 환경인 퇴적암을 만나게 되면서 유체 내 용존되어 있던 U^{6+} 가 U^{4+} 로 환원되어 함우라늄 광물이 침전되게 된다(Pohl, 2011; Robb, 2020). 마그마-열수형 우라늄 광상은 친액원소인 우라늄이 부화되어 있는 고분화 화강암질 용융체의 분별결정작용에 의해 형성되거나, 이러한 용융체에서 기원한 섭씨 200~400도의 고온의 열수의 순환에 의해 형성된다(Cuney, 2010; Robb, 2020). 마그마에서 형성되는 경우 우라늄이 풍부하게 함유되어 있는 부수광물로 광석이 형성되는 반면에 열수에서 형성되는 경우에는 사암형과 비슷하게 열수 내에 용존된 U^{6+} 가 U^{4+} 로 환원되어 광물로 침전되는 과정을 거치게 된다(Cuney 2010).

우라늄 광상의 $\delta^{238}\text{U}$ 값은 다른 지구 상 물질들의 비해 더 넓은 범위를 보인다(Fig. 2). 이 중에서도 사암형 우라늄 광상과 마그마형 우라늄 광상의 $\delta^{238}\text{U}$ 값은 최대 1% 정도의 차이를 보이는데, 이는 nuclear field shift effect에 따른 U^{6+} 와 U^{4+} 의 산화-환원 작용에 의한 우라늄 동위원소 분별작용에 의한 것으로 여겨진다(Bopp et al., 2009; Brennecka et al., 2010; Murphy et al., 2014). 특히 사암형 광상에서 더 무거운 ^{238}U 동위원소가 더 가벼운 ^{235}U 동위원소보다 더 부화되어 있음이 관찰되었으며, 이러한 우라늄 동위원소 분별작용은 U^{4+} 광물로 침전되기 이전에 일어난다고 보고되었다(Bopp et al., 2009; Brennecka et al., 2010). 또한, 상대적으로 저온의 환경에서 형성되는 사암형 광상의 $\delta^{238}\text{U}$ 값의 범위가 최대 1%인데 반해, 고온의 마그마형 우라늄 광상의 $\delta^{238}\text{U}$ 값 변화는 0.4%로 상대적으로 적다(Bopp et al., 2009; Brennecka et al., 2010). 이러한 차이는 사암형 광상에서 우라늄 광석이 형

성, 이동 및 재침전 되는 일련의 과정이 비정량적으로 일어나면서 다양한 정도의 우라늄 동위원소 분별작용이 관찰되는 것에 기인한다고 여겨진다(Bopp et al., 2009; Brennecka et al., 2010). 이러한 우라늄의 산화-환원 작용 중에 일어나는 우라늄 동위원소 분별작용은 핵의 크기, 모양 및 전자 밀도 등의 변화로 인해 원자 에너지 단위에서 일어나는 동위원소의 이동(Nuclear field shift effect)을 통한 우라늄 핵 전하 밀도 변화에 영향을 받아 그 크기가 더 커질 수 있으며(e.g., Andersen et al., 2017), 같은 대수층에서 영향을 받은 광석이 포함된 퇴적물과 지하수의 우라늄 동위원소 구성에 각각 최대 5%과 2%까지 영향을 줄 수 있다는 결과가 보고되기도 하였다(Murphy et al., 2014).

이러한 우라늄의 산화-환원 작용에 의한 우라늄 광석의 우라늄 동위원소 조성 차이 이외에 우라늄을 공급하는 기반암의 우라늄 동위원소 조성 차이나 광물의 공생 관계(paragenetic sequences)에 따라 우라늄 동위원소 값의 변화가 나타나기도 한다(Chernyshev et al., 2014; Uvarova et al., 2014). Uvarova et al. (2014)의 연구에 따르면 우라늄 광상이 형성된 온도 차이가 아닌 우라늄 광석의 품위에 따라 $\delta^{238}\text{U}$ 값이 최대 2% 범위의 차이를 보이며, 이는 우라늄이 공급된 기원암의 종류와 지하수에 의한 우라늄 광물의 변질(e.g., carnotite, autunite and uraninite) 및 이동에 의한 것으로 여겨진다(Uvarova et al., 2014). 또한, 주 광화작용 시기에 생성된 함우라늄 광물의 $\delta^{238}\text{U}$ 값이 광화작용 이전이나 이후에 생성된 광물에 비해 최대 0.9% 더 큰 것으로 보고되었다(Chernyshev et al., 2014). 이는 광화작용이 일어나는 기간 동안에 산화-환원 환경의 변화에 영향을 받은 것으로 여겨진다(Chernyshev et al., 2014). 또한, 우라늄 광상이 형성된 이후 화학적 풍화를 겪으면서 우라늄 광석광물의 변질작용이 발생할 때 우라늄 동위원소 조성 변화가 일어날 수 있다(Andersen et al., 2017). 이러한 화학적 풍화 중에 광물과 유체의 반응에 의해 일어나는 우라늄 동위원소 분별작용 동안 격자에 더 강한 힘으로 결합되어 있는 ^{238}U 에 비해 ^{235}U 가 더 쉽게 반응에 의해 외부로 빠져나가면서 이러한 $\delta^{238}\text{U}$ 값의 차이가 발생하는 것으로 여겨진다(e.g., Hiess et al., 2012; Stirling et al., 2007).

4. 방사성 폐기물 처분장 연구를 위한 우라늄 광상 연구의 의의

앞서 설명하였듯이 자연 우라늄 동위원소의 측정과 활용은 보다 정밀한 측정이 가능해진 2000년 대 이후 본격

적으로 진행되었다. 따라서 그 이전까지는 지구 내 물질의 자연 $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 비는 137.88의 변하지 않는 값을 갖는 것으로 여겨졌다(Steiger and Jager, 1977). 그러나 상대적으로 낮은 우라늄 동위원소의 측정 정밀도에도 불구하고, 1970년대에 서아프리카 가봉 공화국(Republic of Gabon) 내 Oklo와 Bangombe에서 산출되는 사암형 우라늄 광상에서 매우 높은 $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 비가 보고되었다(Andersen et al., 2017 and references therein). 약 20억 년 전에 형성된 것으로 여겨지는 이 우라늄 광상에서 측정된 비정상적으로 높은 $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 비는 자연발생적으로 일어난 ^{235}U 의 핵분열로 인한 ^{235}U 의 감소에 의한 것으로 여겨졌으며, 이는 원자로에서 일어나는 핵분열 과정이 자연발생적으로 일어난 장소로 생각되어 관련 연구자들의 많은 관심을 받았다(Cowan and Adler, 1976; Cuney, 2010; De Laeter et al., 1980; Gauthier-Lafaye et al., 1996; Kuroda, 1982). 해당 지역은 약 17억년 전에 ^{235}U 양이 전체 우라늄 양의 3% 이하로 줄어들면서 자연적인 방사성 붕괴 현상이 일어나는 자연 원자로와 같은 역할을 더 이상 지속하지는 못했다고 여겨진다(Kuroda, 1982). 그러나 이와 같은 자연적인 ^{235}U 의 결핍으로 인해 우라늄 광상의 $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 비가 변화할 수 있는 가능성이 제기되었고, 자연 원자로와 같은 역할을 하는 우라늄 광상의 우라늄 동위원소 조성이 변할 수 있다는 의견이 제시되었다(e.g., Gauthier-Lafaye, 1996).

이러한 연구 결과들은 우라늄 광상이 고준위 방사성 폐기물 지중 처분장 건설에 있어 중요한 모의 실험 장소로 적합할 수 있음을 제시한다. 고준위 방사성 폐기물이 지중에 매립되었을 때 주변 암석 및 지하수 등과 반응하고, 이러한 반응의 결과물들이 주변에 어떠한 영향을 미치는지 확인하는 것이 매우 중요하다. 서아프리카의 Oklo 광산과 같이 우라늄 광석 내 ^{235}U 의 방사성 붕괴가 주변의 암석과 지하수에 미치는 영향들을 파악할 수 있다면 고준위 방사성 폐기물이 주변 환경에 미치는 영향을 미리 평가해 볼 수 있을 것이라 여겨진다.

대한민국의 보은, 옥천, 충주 등에는 소규모의 우라늄 탐사 광체들이 발달하고 있는 것으로 보고되었으며(Hwang and Moon, 2018; Hwang and Yi, 2023; Shin et al., 2016), 이들은 대부분 사암형 또는 부정합형 유형으로 상대적으로 저온에서 형성(2016). 이러한 소규모 우라늄 광상들은 고준위 방사성 폐기물이 주변의 암석 및 지하수와 반응하였을 때 미치는 영향에 대해 모의할 수 있는 좋은 장소라 여겨진다. 해당 지역에 위치한 일부 광상들의 성인과 형성과정에 대한 연구들이 일부 보고되었으나(Hwang and Moon, 2018; Hwang and Yi, 2023; Shin et al., 2016),

우라늄 동위원소 조성의 측정과 이를 활용한 논의는 거의 없는 실정이다. 사암형 또는 부정합형 우라늄 광상이 상대적으로 넓은 범위의 $\delta^{238}\text{U}$ 값을 가지는 것을 고려하면(Fig. 2), 이들 지역에 대한 우라늄 동위원소 조성의 분석 연구가 고준위 방사성 폐기물과 주변 환경과의 상호 작용에 의한 변화를 파악하는 연구로 활용될 필요성이 크다고 여겨진다.

5. 결 론

MC-ICP-MS 기기의 발달과 더불어 2000년대 중반 이후 자연 우라늄 동위원소 조성($^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$) 분석과 지구과학 분야에서의 활용이 점차 늘어나고 있다. 특히 ^{236}U - ^{233}U 이중 스파이크 분석법과 표준물질-시료 교차분석법의 도입으로 인해 0.05% 이하의 높은 정밀도로 우라늄 동위원소 조성이 가능하게 되었다. 이러한 분석 정밀도의 향상 덕분에 137.88로 고정된 값으로 여겨졌던 $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 비가 자연에서 최대 수 퍼밀 범위에서 차이가 날 수 있다는 것이 밝혀지게 되었다.

자연에서 주로 U^{6+} 와 U^{4+} 로 존재하는 우라늄은 대표적인 친액 성질을 갖기 때문에 맨틀에 비해 대륙지각에 더 풍부하게 존재한다. 우라늄은 광물 등의 고체상에서 주로 용해도가 낮은 U^{4+} 로 존재하는 반면에 산화 환경인 지표 근처에서는 용해도가 매우 큰 U^{6+} 로 존재한다. 우라늄 광상을 제외하고 지구 상에서 $\delta^{238}\text{U}$ 값은 상대적으로 좁은 범위에서 변화한다. 대륙지각과 하부맨틀의 $\delta^{238}\text{U}$ 값이 -0.3%, 상부맨틀의 $\delta^{238}\text{U}$ 값은 -0.25%로 매우 비슷하다. 반면 해양지각의 섭입 과정에서 일어나는 우라늄 동위원소 분별작용으로 인해 화산 호 환경에서 만들어지는 현무암질 암석의 경우 -0.5%로 더 무거운 ^{238}U 가 결핍된 특징을 보인다. 상대적으로 긴 체류 시간으로 인해 해수의 경우 균질한 $\delta^{238}\text{U}$ 값($\sim -0.4\%$)을 보이며, 전 세계적인 강의 평균 $\delta^{238}\text{U}$ 값도 대륙지각과 비슷한 값을 갖는다.

우라늄 광상의 경우 큰 1% 이상의 $\delta^{238}\text{U}$ 값 변화를 보인다. 특히 저온 환경에서 생성되는 사암형이나 부정합형 유형의 우라늄 광상은 U^{6+} 와 U^{4+} 의 산화-환원 반응에 의한 우라늄 동위원소 분별작용의 영향으로 인해 상대적으로 큰 범위의 $\delta^{238}\text{U}$ 변화를 보인다. 반면 고온 환경에서 형성되는 마그마-열수형 우라늄 광상은 보다 작은 범위의 $\delta^{238}\text{U}$ 값 변화 양상을 보인다. 이러한 산화-환원 반응에 기반한 우라늄 동위원소 분별작용 이외에도 기반암의 비균질성, 암석과 유체의 반응 및 변질 작용 등에 의해 우라늄 광상의 $\delta^{238}\text{U}$ 값이 영향을 받게 된다. 또한, 우라늄 광상에서 자연적인 방사성 붕괴에 의한 우라늄 동위원소 조성 변화가 관찰되기도 하는데, 이는 우라늄 광

상이 고준위 방사성 폐기물 처분 시 발생할 수 있는 주변 암석 및 지하수와의 반응과 이들의 영향을 파악할 수 있는 훌륭한 모의 실험 장소가 될 수 있음을 지시한다.

감사의 글

This work was supported by the National Research Foundation of Korea (2020R1C1C1008859) and a KBSI grant (C330120). We appreciated two anonymous reviewers for improving the manuscript.

References

- Andersen, M.B., Elliott, T., Freymuth, H., Sims, K.W., Niu, Y. and Kelley, K.A. (2015) The terrestrial uranium isotope cycle. *Nature*, v.517, p.356-359. doi: 10.1038/nature14062
- Andersen, M.B., Stirling, C.H. and Weyer, S. (2017) Uranium isotope fractionation. *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, v.82, p.799-850. doi: 10.2138/rmg.2017.82.19
- Andersen, M.B., Vance, D., Morford, J.L., Bura-Nakić, E., Breitenbach, S.F. and Och, L. (2016) Closing in on the marine $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ budget. *Chemical Geology*, v.420, p.11-22. doi: 10.1016/j.chemgeo.2015.10.041
- Bopp IV, C.J., Lundstrom, C.C., Johnson, T.M. and Glessner, J.J. (2009) Variations in $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ in uranium ore deposits: Isotopic signatures of the U reduction process?. *Geology*, v.37, p.611-614. doi: 10.1130/G25550A.1
- Bourdon, B., Turner, S., Henderson, G.M. and Lundstrom, C.C. (2003) Introduction to U-series geochemistry. *Reviews in mineralogy and geochemistry*, v.52, p.1-21. doi: 10.2113/0520001
- Brennecke, G.A., Borg, L.E., Hutcheon, I.D., Sharp, M.A. and Anbar, A.D. (2010) Natural variations in uranium isotope ratios of uranium ore concentrates: Understanding the $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ fractionation mechanism. *Earth and Planetary Science Letters*, v.291, p.228-233. doi: 10.1016/j.epsl.2010.01.023
- Brennecke, G.A., Wasylenki, L.E., Bargar, J.R., Weyer, S. and Anbar, A.D. (2011) Uranium isotope fractionation during adsorption to Mn-oxyhydroxides. *Environmental Science & Technology*, v.45, p.1370-1375. doi: 10.1021/es103061v
- Chen, J.H. and Wasserburg, G.J. (1981) The isotopic composition of uranium and lead in Allende inclusions and meteoritic phosphates. *Earth and Planetary Science Letters*, v.52, p.1-15. doi: 10.1016/0012-821X(81)90202-8
- Cheng, H., Edwards, R.L., Shen, C.C., Polyak, V.J., Asmerom, Y., Woodhead, J., Hellstrom, J., Wang, Y., Kong, X., Spötl, C., Wang, X. and Alexander Jr. E.C. (2013) Improvements in ^{230}Th dating, ^{230}Th and ^{234}U half-life values, and U-Th isotopic measurements by multi-collector inductively coupled plasma mass spectrometry. *Earth and Planetary Science Letters*, v.371, p.82-91. doi: 10.1016/j.epsl.2013.04.006
- Chernyshev, I.V., Golubev, V.N., Chugaev, A.V. and Baranova, A. N. (2014) $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ isotope ratio variations in minerals from

- hydrothermal uranium deposits. *Geochemistry International*, v.52, p.1013-1029. doi: 10.1134/S0016702914120027
- Cowan, G.A. and Adler, H.H. (1976) The variability of the natural abundance of ^{235}U . *Geochimica et Cosmochimica Acta*, v.40, p.1487-1490. doi: 10.1016/0016-7037(76)90087-9
- Cuney, M. (2010) Evolution of uranium fractionation processes through time: driving the secular variation of uranium deposit types. *Economic Geology*, v.105, p.553-569. doi: 10.2113/gsecongeo.105.3.553
- De Laeter, J.R., Rosman, K.J.R. and Smith, C.L. (1980) The Oklo natural reactor: cumulative fission yields and retentivity of the symmetric mass region fission products. *Earth and Planetary Science Letters*, v.50, p.238-246. doi: 10.1016/0012-821X(80)90135-1
- Escareño-Juárez, E., Pardo, R., Gascó-Leonarte, C., Vega, M., Sánchez-Báscones, M.I. and Barrado-Olmedo, A.I. (2019) Determination of natural uranium by various analytical techniques in soils of Zacatecas State (Mexico). *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, v.319, p.1135-1144. doi: 10.1007/s10967-019-06428-6
- Gauthier-Lafaye, F., Holliger, P. and Blanc, P.L. (1996) Natural fission reactors in the Franceville basin, Gabon: A review of the conditions and results of a "critical event" in a geologic system. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, v.60, p.4831-4852. doi: 10.1016/S0016-7037(96)00245-1
- Goldmann, A., Brennecke, G., Noordmann, J., Weyer, S. and Wadhwa, M. (2015) The uranium isotopic composition of the Earth and the Solar System. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, v.148, p.145-158. doi: 10.1016/j.gca.2014.09.008
- Grenthe, I., Fuger, J., Konings, R.J., Lemire, R.J., Muller, A.B., Nguyen-Trung, C. and Wanner, H. (1992) *Chemical thermodynamics of uranium* (Vol. 1). Amsterdam: Elsevier.
- Hess, J., Condon, D.J., McLean, N. and Noble, S.R. (2012) $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ systematics in terrestrial uranium-bearing minerals. *Science*, v.335, p.1610-1614. doi: 10.1126/science.1215507
- Horwitz, E.P., Dietz, M.L., Chiarizia, R., Diamond, H., Essling, A.M. and Graczyk, D. (1992) Separation and preconcentration of uranium from acidic media by extraction chromatography. *Analytica Chimica Acta*, v.266, p.25-37. doi: 10.1016/0003-2670(92)85276-C
- Hwang, J. and Moon, S.H. (2018) Geochemical evidence for K-metasomatism related to uranium enrichment in Daejeon granitic rocks near the central Ogcheon Metamorphic Belt, Korea. *Geosciences Journal*, v.22, p.1001-1013. doi: 10.1007/s12303-018-0053-9
- Hwang, J. and Yi, K. (2023) Occurrence, Chemical, and Pb-isotopic Composition of Uraninite: A Verification of the Effective Source of Uranium in a Granite Aquifer of the Daejeon Area, South Korea. *Aquatic Geochemistry*, p. 1-15. doi: 10.1007/s10498-023-09415-2
- Ku, T.L., Mathieu, G.G. and Knauss, K.G. (1977) Uranium in open ocean: concentration and isotopic composition. *Deep Sea Research*, v.24, p.1005-1017. doi: 10.1016/0146-6291(77)90571-9
- Kuroda, P.K. (1982). The Oklo phenomenon. The Origin of the Chemical Elements and the Oklo Phenomenon, p.31-55.
- Langmuir, D. (1978) Uranium solution-mineral equilibria at low temperatures with applications to sedimentary ore deposits. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, v.42, p.547-569. doi: 10.1016/0016-7037(78)90001-7
- Lounsbury, M. (1956) The natural abundances of the uranium isotopes. *Canadian Journal of Chemistry*, v.34, p.259-264. doi: 10.1139/v56-039
- Murphy, M.J., Froehlich, M.B., Fifield, L.K., Turner, S.P. and Schaefer, B.F. (2015) In-situ production of natural ^{236}U in groundwaters and ores in high-grade uranium deposits. *Chemical Geology*, v.410, p.213-222. doi: 10.1016/j.chemgeo.2015.06.024
- Murphy, M.J., Stirling, C.H., Kaltenbach, A., Turner, S.P. and Schaefer, B.F. (2014) Fractionation of $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ by reduction during low temperature uranium mineralisation processes. *Earth and Planetary Science Letters*, v.388, p.306-317. doi: 10.1016/j.epsl.2013.11.034
- Nier, A.O. (1939) The isotopic constitution of uranium and the half-lives of the uranium isotopes. I. *Physical Review*, v.55, p.150. doi: 10.1103/PhysRev.55.150
- Noordmann, J., Weyer, S., Georg, R.B., Jöns, S. and Sharma, M. (2016) $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ isotope ratios of crustal material, rivers and products of hydrothermal alteration: new insights on the oceanic U isotope mass balance. *Isotopes in environmental and health studies*, v.52, p.141-163. doi: 10.1080/10256016.2015.1047449
- Palme, H. and O'Neill, H.S.C. (2003) Cosmochemical estimates of mantle composition. *Treatise on geochemistry*, v.2, p.1-38. doi: 10.1016/B0-08-043751-6/02177-0
- Patterson, C., Tilton, G. and Inghram, M. (1955) Age of the Earth. *Science*, v.121, p.69-75. doi: 10.1126/science.121.3134.69
- Pohl, W.L. (2011) *Economic geology: principles and practice*. John Wiley & Sons.
- Rademacher, L.K., Lundstrom, C.C., Johnson, T.M., Sanford, R.A., Zhao, J. and Zhang, Z. (2006) Experimentally determined uranium isotope fractionation during reduction of hexavalent U by bacteria and zero valent iron. *Environmental Science & Technology*, v.40, p.6943-6948. doi: 10.1021/es0604360
- Richter, S., Alonso-Munoz, A., Eykens, R., Jacobsson, U., Kuehn, H., Verbruggen, A., Aregbe, Y., Wellum, R. and Keegan, E. (2008) The isotopic composition of natural uranium samples—Measurements using the new $^{233}\text{U}/^{236}\text{U}$ double spike IRMM-3636. *International Journal of Mass Spectrometry*, v.269, p.145-148. doi: 10.1016/j.ijms.2007.09.012
- Richter, S., Eykens, R., Kühn, H., Aregbe, Y., Verbruggen, A. and Weyer, S. (2010) New average values for the n (^{238}U)/n (^{235}U) isotope ratios of natural uranium standards. *International Journal of Mass Spectrometry*, v.295, p.94-97. doi: 10.1016/j.ijms.2010.06.004
- Robb, L. (2020) *Introduction to ore-forming processes*. John Wiley & Sons.
- Romaniello, S.J., Herrmann, A.D. and Anbar, A.D. (2013) Uranium concentrations and $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ isotope ratios in modern carbonates from the Bahamas: Assessing a novel paleoredox proxy. *Chemical Geology*, v.362, p.305-316. doi: 10.1016/j.chemgeo.2013.10.002
- Rudnick, R.L. and Gao, S. (2003) Composition of the continental crust. *Treatise Geochem*, v.3, p.1-64.
- Russell, W.A., Papanastassiou, D.A. and Tombrello, T.A. (1978) Ca

- isotope fractionation on the Earth and other solar system materials. *Geochimica et cosmochimica acta*, v.42, p.1075-1090. doi: 10.1016/0016-7037(78)90105-9
- Shin, I., Kim, S., & Shin, D. (2016). Mineralogy and sulfur isotope compositions of the uraniferous black slates in the Ogcheon Metamorphic Belt, South Korea. *Journal of Geochemical Exploration*, v.169, p.1-12. doi: 10.1016/j.gexplo.2016.07.008
- Steiger, R.H. and Jäger, E. (1977) Subcommittee on geochronology: convention on the use of decay constants in geo- and cosmochronology. *Earth and Planetary Science Letters*, v.36, p.359-362. doi: 10.1016/0012-821X(77)90060-7
- Stirling, C.H., Andersen, M.B., Potter, E.K. and Halliday, A.N. (2007) Low-temperature isotopic fractionation of uranium. *Earth and Planetary Science Letters*, v.264, p.208-225. doi: 10.1016/j.epsl.2007.09.019
- Stirling, C.H., Halliday, A.N. and Porcelli, D. (2005) In search of live ^{247}Cm in the early solar system. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, v.69, p.1059-1071. doi: 10.1016/j.gca.2004.06.034
- Tissot, F.L. and Dauphas, N. (2015) Uranium isotopic compositions of the crust and ocean: Age corrections, U budget and global extent of modern anoxia. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, v.167, p.113-143. doi: 10.1016/j.gca.2015.06.034
- Tissot, F.L., Dauphas, N. and Grossman, L. (2016) Origin of uranium isotope variations in early solar nebula condensates. *Science Advances*, v.2, p.e1501400. doi: 10.1126/sciadv.1501400
- Uvarova, Y.A., Kyser, T.K., Geagea, M.L. and Chipley, D. (2014) Variations in the uranium isotopic compositions of uranium ores from different types of uranium deposits. *Geochimica et cosmochimica acta*, v.146, p.1-17. doi: 10.1016/j.gca.2014.09.034
- Weyer, S., Anbar, A.D., Gerdes, A., Gordon, G.W., Algeo, T.J. and Boyle, E.A. (2008) Natural fractionation of $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, v.72, p.345-359. doi: 10.1016/j.gca.2007.11.012
- Wohlert, A. and Wood, B.J. (2015) A Mercury-like component of early Earth yields uranium in the core and high mantle ^{142}Nd . *Nature*, v.520, p.337-340. doi: 10.1038/nature14350
- Wood, B.J., Blundy, J.D. and Robinson, J.A.C. (1999) The role of clinopyroxene in generating U-series disequilibrium during mantle melting. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, v.63, p.1613-1620. doi: 10.1016/S0016-7037(98)00302-0
- Zhang, R., Nadeau, K., Gautier, E.A., Babay, P.A., Ramella, J.L., Virgolic, M., Serban, A.E., Fugaru, V., Kimura, Y., Venchiarutti, C., Richter, R., Aregbe, Y., Varga, Z., Wallenius, M., Mayer, K., Seo, H., Choi, J.Y., Tobi, C., Fayek, M., Sharpe, R., Samperton, K.M., Genetti, V.D., Lindvall, R.E., Inglis, J.D., Denton, J.S., Reinhard, A.A., Francisco, B., Zhao, X., Kieser, W., He, J., Gao, Y., Meija, J., El-Jaby A., Yang, L. and Mester Z. (2022) Certification of uranium isotope amount ratios in a suite of uranium ore concentrate certified reference materials. *Geostandards and Geoanalytical Research*, v.46, p.43-56. doi: doi.org/10.1111/ggr.12409