



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

## Natural Analogue Study on the Disposal of Radioactive Waste Using Uranium Deposits and Geochemical Behaviors of Uranium

Min-Hoon Baik\*, Yeojin Ju, Dawoon Jeong, Ji-Hun Ryu

Disposal Safety Evaluation R&D Division, Korea Atomic Energy Research Institute, 111, Daedeok-daero 989 beon-gil, Yuseong-gu, Daejeon 34057, Korea

\*Corresponding author : mhbaik@kaeri.re.kr

---

### ARTICLE INFORMATION

---

Manuscript received 11 September 2023  
Received in revised form 13 October 2023  
Manuscript accepted 16 October 2023  
Available online 30 October 2023

DOI : <http://dx.doi.org/10.9719/EEG.2023.56.5.565>

### Research Highlights

- Natural analogue studies contribute to improve the safety and reliability of the radioactive waste disposal
- Uranium deposits can be used as a natural analogue for radionuclide behavior in disposal environment
- Biogeochemical interactions of uranium depend on various conditions of geological systems

---

### ABSTRACT

In this study, we reviewed and summarized comprehensive roles and importance of natural analogue studies for demonstrating the safety and improving the reliability of the safety for the deep geological disposal of high-level radioactive waste. We also investigated domestic and foreign status of natural analogue studies in order to study and substantiate complex and various radionuclide behaviors in subsurface disposal environments. In addition, we investigated uranium behaviors in groundwater and rock in uranium deposits including domestic uranium deposits in Ogcheon Metamorphic Belt and biogeochemical interactions in geological environments. Although there are many limitations and uncertainties in directly using the information and data for uranium behaviors obtained from uranium deposits in the disposal safety assessment, the information and data can be utilized in the disposal safety assessment and safety case construction both in qualitative and partly quantitative ways.

**Keywords** : disposal natural analogue, safety case, uranium deposit, uranium behavior, biogeochemical interaction

---

**Citation**: Baik, M.-H., Ju, Y., Jeong, D., Ryu, J.-H. (2023) Natural Analogue Study on the Disposal of Radioactive Waste Using Uranium Deposits and Geochemical Behaviors of Uranium. *Korea Economic and Environmental Geology*, v.56, p.565-580, doi:10.9719/EEG.2023.56.5.565.

해설 (“원자력과 지질환경과학” 특별호)

# 우라늄광상을 이용한 방사성폐기물 처분 자연유사연구와 우라늄의 지화학적 거동

백민훈\* · 주여진 · 정다운 · 류지훈

한국원자력연구원 저장처분기술개발부

\*책임저자 : mhbaik@kaeri.re.kr

## 요 약

본 연구에서는 고준위방사성폐기물 처분안전성 입증 및 신뢰성 향상을 위한 처분자연유사연구의 역할과 중요성을 개괄적으로 조사하였다. 아울러 지하 처분환경에서 복잡하고 다양한 핵종거동을 규명하고 해석하기 위한 우라늄광상을 이용한 국내외 자연유사연구 동향을 고찰하였다. 또한 국내 옥천변성대 우라늄광상을 포함하는 우라늄광상 지하수와 암석에서의 우라늄의 거동 특성과 지질환경에서의 우라늄의 생지화학적 상호작용을 조사하였다. 비록 우라늄광상에서 획득한 우라늄 거동 특성 자료들은 처분안전성평가에 직접적으로 활용하는 데는 많은 제약과 불확실성을 내포하고 있지만, 우라늄광상을 통해 획득한 자료와 정보들은 처분안전성평가와 Safety Case 구축에 정성적으로 또는 일부 정량적으로 활용될 수 있을 것이다.

**주요어** : 처분자연유사, safety case, 우라늄광상, 우라늄거동, 생지화학적 상호작용

## 1. 서 론

원자력은 온실가스 배출이 거의 없는 청정한 에너지원 중 하나로 인식되어, 선진국을 중심으로 광범위하게 운영되고 있으며, 우리나라는 세계 6위 원자력 발전국가로, 사용하는 에너지원의 약 27%를 원자력에너지가 차지하고 있어서 원자력에너지 의존도가 상대적으로 높은 나라이다(KEPCO, 2021). 원자력발전소에서는 다양한 형태의 방사성폐기물이 발생한다. 원자력발전소에서 발생하는 사용후핵연료, 발전소 운영 중에 발생하는 다양한 형태의 운영폐기물, 그리고 수명을 다한 원자력발전소의 해체 과정에서 발생하는 해체폐기물 등이 있다. 이러한 방사성폐기물은 방사능 준위에 따라 고준위폐기물, 중준위폐기물, 저준위폐기물, 극저준위폐기물 등으로 나누어진다(NSSC, 2013). 방사성폐기물은 처리, 제염, 처분 등 다양한 과정을 통해 관리되고 있는데, 현재 방사성폐기물의 최종관리 방법으로 지중처분 방식이 가장 안전한 방법으로 인식되고 있으며 전 세계적으로 가장 선호되고 있다(IAEA, 2011).

방사성폐기물의 지중처분에서 가장 중요한 것은 처분 안전성의 확보라고 하겠다. 아울러 처분안전성을 확보하기 위해서는 처분시설의 처분안전성에 대한 평가가 수행되어야 하고, 평가 결과에 대한 신뢰성이 확보되어야 한다. 따라서 처분안전성평가는 처분시설 안전성 확보의 핵

심이라고 하겠다. 최근에는 단순히 정량적인 처분안전성 평가 보다 확장된 개념인 Safety Case가 처분 프로그램을 수행하고 있는 선진국들을 중심으로 개발되고 있으며, IAEA (International Atomic Energy Agency) (IAEA, 2012) 와 OECD/NEA (Organization for Economic Cooperation and Development/Nuclear Energy Agency) (NEA, 2004) 등 국제기구에서도 이를 권고하고 있다. Safety Case의 기본적인 개념은 단순한 정량적 안전성평가보다는 다양한 방법을 통해 처분안전성을 입증하는 것이라 하겠다. 일반적으로 Safety Case는 처분시설의 폐쇄후와 시설의 신뢰할 수 있는 관리기간 이후에도 처분시설이 안전할 것이라는 주장을 정량화하고 입증할 수 있는 증거, 해석 및 논거들의 총합으로 정의된다(NEA, 2004). 특히 약 500 m 심지층에 처분시설을 건설하고, 수 만에서 수 십만 년 동안 처분안전성을 확보하여야 하는 사용후핵연료를 포함하는 고준위폐기물 처분의 경우엔 이러한 Safety Case 개념의 적용이 더욱 중요하다.

자연유사연구(natural analogue study)는 방사성폐기물 처분장 주변 환경과 어느 정도 유사성을 가진 자연 및 생태계의 고고학적 또는 산업적 시스템을 조사하는 것이다(IAEA, 1989). 그러나 모든 면에서 처분장과 완벽하게 일치하는 자연시스템은 없기 때문에 완전한 유사연구는 불가능하다. 지구상에는 처분장의 구성요소들 또는 처분장 변화를 제어하는 과정들과 유사성을 가진 많은 자연

시스템들이 존재하고, 적절한 유사시스템을 잘 연구하면 단기적 또는 장기적 처분시스템의 거동에 대한 이해와 함께 처분안전성평가 모델링의 신뢰성을 향상하는데 매우 유용하고 중요한 정보들을 얻을 수 있다(Miller et al., 2000; Smelli et al., 1997).

처분안전성의 신뢰성을 확보하기 위한 자료와 정보들은 기본적으로 Safety Case에 근거한 실험실적 연구, 현장 연구, 지하연구시설을 활용한 연구, 자연유사연구 등을 통해 수집되어야 한다(Baik et al., 2016). 특히, 일반 대중이 상대적으로 쉽게 이해할 수 있는 자연적인 또는 인류발생적인 유사물들에 대한 정보와 자료는 공학적방벽 구성물들의 장기안정성에 관한 증거를 제공하고, 단기적이고 소규모인 실험들에 내재된 시간적/공간적 규모의 한계들을 극복할 수 있게 한다. 이러한 유사물들은 우라늄, 유리, 구리, 철, 니켈, 벤토나이트, 시멘트 등 처분장의 공학적 재료 및 처분환경에 존재하는 지하수와 암석의 장기거동에 대한 정보도 함께 제공한다. 또한 유사물들은 실험실 연구와 지하연구시설의 부지특성 및 실험실적 연구들로부터 얻어진 자료들을 보완한다.

처분안전성평가에서 가장 중요한 분야는 지하 처분시설에 정치된 방사성폐기물로부터 유출된 방사성핵종들이 다중방벽(즉, 공학적방벽과 천연방벽)으로 구성된 처분시스템에서의 거동(주로 방사성핵종의 이동 및 지연 과정들)을 평가하는 것이다. 이러한 방사성핵종의 거동을 이해하고 평가하기 위해서는 처분 지질환경에서 방사성핵종의 복잡한 지화학적 거동을 이해해야 한다. 그러나 실험실적 연구와 지하연구시설을 활용한 연구를 통해서만 수만에서 수십만 년 이르는 장기적인 처분안전성 확보를 위한 복잡한 지화학적 핵종거동과 관련된 자료들을 획득하는 것은 불가능하다. 따라서 지질학적 연대 기간동안 자연발생적인 방사성핵종들(즉, 우라늄이나 토륨 동위원소)의 지화학적 거동을 조사하는 자연유사적 접근법이 필요하다(Baik et al., 2013). 특히, 우라늄광상과 같은 자연시스템들은 지질학적 시간대와 지각 길이 규모에 걸친 방사성핵종들의 다양한 지화학적 거동과 과정들을 연구하기 위한 훌륭한 자연유사물이 된다.

우라늄은 자연발생적인 천연 방사성물질의 대표적인 원소이며, 자연에서  $^{238}\text{U}$  (99.2745wt.%),  $^{235}\text{U}$  (0.7200wt.%),  $^{234}\text{U}$  (0.0054wt.%) 등 세개의 동위원소를 가진다(Tripathi et al., 2013). 우라늄은 화산암과 심성암의 주요 구성광물(석영, 장석, 운모 등)에 미량(<1-10 ppm)으로 함유되어 있으며, 저어콘(zircon), 인회석(apatite), 설석(sphene) 등의 부수광물에 약 1-10 ppm 정도로 농축되어 존재할 수 있다(Gascoyne, 1982). 우라늄은 우라늄광상 뿐만 아니라 다양한 암석에 존재하며, 지화학적환경에 따라 매

우 다양한 거동 특성을 가지기 때문에 방사성폐기물 지중처분을 위한 핵종 장기거동을 연구하기 위한 이상적인 유사물로 간주되어 왔다(Baik and Cho, 2022; Baik and Lee, 2020; Cui and Eriksen, 2000; Horie and Hidaka, 2004; Jokelainen et al., 2010; Noseck et al., 2004; Pérez del Villar et al., 1997; Quejido et al., 2005).

본 연구의 목적은 장기적인 처분안전성 입증과 처분안전성평가의 신뢰성 증진을 위한 Safety Case 개발의 일환으로써 자연유사연구의 역할과 중요성에 대해 살펴보고, 우라늄광상을 이용한 자연유사연구 결과들을 통해 처분 지질환경에서 우라늄의 지화학적 거동 특성에 대한 정보를 제공함으로써 향후 자연유사연구 및 관련 지질환경 분야의 연구 수행에 기여하는 것이다.

## 2. 처분 자연유사연구의 역할, 중요성 및 한계점

현재 자연유사연구는 방사성폐기물의 최종 관리방법으로 지중처분을 고려하고 있는 대부분 국가들의 처분 프로그램에서 통합적인 부분의 하나로 간주되고 있는 실정이다(NEA, 2004). 이러한 자연유사연구의 중요성은 방사성폐기물 처분장의 안전성 및 성능 평가와 관련된 많은 자연유사연구 결과들이 논문들과 보고서의 형태로 제시되고 있다는 것에서도 확인할 수 있다. 따라서 자연유사연구가 처분장에서 발생하는 많은 과정들을 이해하는데 기초가 되고, 처분안전성 평가와 Safety Case 구축에 중요한 역할을 수행하고 있다는 것에는 이견이 없다. 자연유사연구는 다음과 같은 관점에서 방사성폐기물의 처분에서 매우 유용하다(Baik et al., 2013).

- 수 만에서 수 십 만년의 처분시스템 안전성평가 기간에 걸쳐 처분장 주변에서 발생할 수 있는 것들과 유사한 지질학적 과정과 현상들 및 관련 기작들을 확인하고 이해하는 것
- 장기적인 처분장 성능평가의 기초를 이루는 실험실적 연구에 기초한 성능평가 모델들을 시험하는데 사용된 입력자료와 가정들을 검증하는 것
- 안전성평가 모델들에 직접적으로 입력 가능한 입력 자료(예를 들면, 암반 확산깊이, 용해도, 수차분배계수 등)를 제공하는 것

더구나 자연유사연구는 브로셔, 비디오, 탐방 등을 통해 일반 대중들에게 방사성폐기물 처분개념이나 장기간에 걸친 처분시스템 안전성에 대한 신뢰성을 더 잘 이해시키고 설명함으로써 일반대중과의 의사소통이나 교육적인 역할을 수행하는데 매우 중요한 역할을 한다(Miller et al., 2000; NEA, 2004). 방사성폐기물 처분안전성평가에서의 자연유사연구의 주요 역할을 Fig. 1에 도시적으로

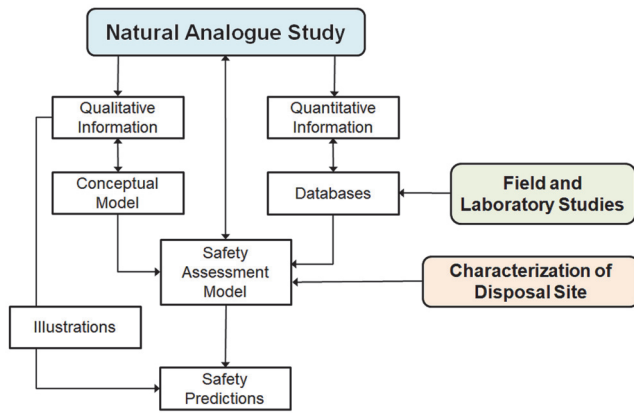


Fig. 1. Roles of natural analogue study in the safety assessment of radioactive waste disposal (modified from IAEA, 1999).

설명하였다. 정량적(quantitative) 정보로는 처분안전성평가에 입력자료로 활용되는 핵종 용해도, 수착계수, 암반 확산계수 등이며, 정성적(qualitative) 정보로는 처분시스템의 거동에 대한 설명 또는 안전성평가 모델에 필요한 시나리오와 여러 과정들에 대한 개념적 모델의 제공 등이 있다(Miller et al., 2000).

처분 자연유사연구에 이용되는 유사물은 크게 자연유사물(natural analogues)과 인류발생적(anthropogenic analogues)로 나눌 수 있다. 자연유사물로는 처분장 구성물로 사용되는 재료들의 자연발생적인 광상들이 해당하며, 인류발생적 유사물은 고대에 사용되었던 유물이나 시멘트 구조물 등이 해당된다(Miller et al., 2000).

처분안전성평가에서는 주로 실험실 및 현장 연구를 통해 획득된 자료들이 이용된다. 그러나 이러한 자료들은 시간적 및 공간적으로 제약을 가지고 있으며 이러한 제약이 처분안전성평가 결과에 본질적인 불확실성을 유발하게 된다. 자연유사물과 실험실 및 현장 연구는 여러가지 측면에서 차이를 가지는데, Table 1에는 중요한 인자들에 대한 유사연구와 실험실 및 현장 연구와의 차이 점을 대해 정리하였다.

방사성폐기물 처분 Safety Case 개발에서의 자연유사 연구의 중요성과 다양한 활용성에도 불구하고 처분시스템과 완벽하게 일치하는 자연유사물은 존재하지 않기 때문에 자연유사연구로부터 도출된 정보자료들은 고유한 한계점들을 가지고 있다(Miller et al., 2000). 기본적으로 실제 방사성폐기물의 처분환경과 자연유사 연구부지의 환경이 다를 것이고, 실제 처분시스템에 사용되는 물질들과 자연유사물의 특성도 다를 것이다. 특히, 박물관에서 쉽게 볼 수 있는 고고학적 유물과 같은 유사물은 특정 환경에서 파괴되거나 사라지지 않고 남아 있는 것들이라 해당 물질의 일반적 거동 특성을 대표한다고 말하기 어렵기 때문에 처분환경에서의 성능을 과대 평가할 가능성이 높다. 특히, 핵종거동 자연유사 연구부지로 이용되는 우라늄광상은 일반적으로 낮은 심도의 퇴적암에 존재하기 때문에 실제 심부의 암반에 처분되는 고준위폐기물의 처분환경과는 매우 다르다. 그리고 우라늄광상은 매우 오래전에 형성되었고, 형성 기원도 각기 다르고, 매우 복잡한 진화 과정들을 거쳤기 때문에 우라늄광상의 생성에 대한 초기조건과 지질학적 진화의 주요 사건들에 대한 정보가 부족하기 때문에 핵종거동 관련 현상과 과정들을 해석하고 조사하는 데 많은 어려움이 있다. 따라서 우라늄광상의 형성 연대와 진화 환경을 규명하는 것은 우라늄광상을 이용한 자연유사연구에 있어서 매우 중요한 시발점이 된다.

우리나라의 경우에도 우라늄광상이 옥천변성대와 같은 퇴적암 지역에 주로 분포하고 있다. 이러한 우라늄광상 연구부지는 우리나라에서 고준위방사성폐기물 처분부지 대상 암종으로 주요하게 고려되고 있는 결정질 화강암반과는 지하수와 암석 특성이 매우 다르다. 그리고 우라늄광상의 지화학적 환경은 실제 고준위폐기물 심층처분장의 처분환경과도 매우 다르다. 따라서 우라늄광상에서 획득한 우라늄 거동 특성 자료들을 처분안전성평가에 직접적으로 활용하는 데는 많은 제약과 불확실성을 내포하고 있다(Baik and Ryu, 2021). 그러나 비록 지하수와 암종이 달라도 우라늄 거동의 기본 기작은 매우 유사하며 처분

Table 1. Comparison of important factors between analogue study and laboratory/field study in terms of radioactive waste disposal

Factor	Analogue study	Laboratory/field study
Time	Long-term (10 <sup>3</sup> ~10 <sup>6</sup> yrs)	Short-term
Space	Wide (km order)	Limited in-situ area
Material	Natural or anthropogenic	Practical
Complexity	Complex and coupled	Simple
Reaction	Natural	Artificial
Application	Widely applicable	Limited designed system
Boundary condition	Poorly constraint	Well defined

안전성평가의 “보수성 유지(conservatism)” 관점에서 평가한다면 우라늄광상을 통해 획득한 자료와 정보들은 처분안전성평가와 Safety Case 구축에 정성적으로(또는 일부 정량적으로) 활용될 수 있을 것이다.

예를 들면, 옥천변성대에 위치한 보은군 회남면 자연유사연구부지는 심도가 깊지 않고 지하수 유출점(즉, 대청호)이 가까운 곳에 위치함에도 불구하고 지화화학적으로 환원적 특성을 잘 유지하여 우라늄이 주로 U(IV) 우라늄 광물인 우라니나이트와 코피나이트로 존재하며, 우라늄의 용출이나 이동이 제약되고 우라늄광물의 산화변질이 거의 발생하지 않았다(Ju et al., 2023). 이것은 지하수 유동이 매우 느린 깊은 심도의 환원환경을 유지할 것으로 예측되는 고준위폐기물 심층처분장의 장기안전성에 대한 긍정적인 요소로 작용한다고 하겠다.

### 3. 우라늄광상을 이용한 자연유사연구

전세계적으로 알려진 우라늄광상은 약 1807 개이며, 우라늄 매장량은 총 58 MtU이며, 우라늄광상은 크게 15 개의 형태로 분류되고 있다(IAEA, 2016). 이 중에서 우리나라는 8 개 우라늄광상이 등록되어 있으며, 매장량은 36,178 tU이고, 광상의 형태는 모두 흑색셰일(black shale)이며, 우라늄의 함량은 0.01–0.05 wt.%이다(IAEA, 2016). 우라늄광상을 이용한 자연유사연구를 수행하기 위해서는 우라늄광상의 형성 및 진화에 대한 정보를 확보하는 것이 중요하다. 아울러 우라늄광상의 지하수와 암석의 다양한 지질학적, 광물학적, 수리지화학적 기초 특성 자료를 확보하고, 우라늄의 다양하고 복잡한 지화학적 거동을 이해하는 것이 필수적이다.

#### 3.1. 국내 연구현황

우리나라의 우라늄광상에 대한 조사는 1955년부터 시작되어 1976년까지 간헐적으로 진행되었고, 대부분 경제성이 희박한 것으로 확인되었다. 그 이후로도 다양한 목적으로 우라늄광상 조사가 수행되어져 왔다(Kim et al., 2010). 지금까지의 탐사결과로 비록 저품위 광상이지만 가장 대규모의 광상에 해당하는 것으로 옥천층군(옥천계, 특히 옥천변성대)에 배태하는 흑색셰일형의 우라늄광상이 대표적이다(Lee et al., 1986; So and Kang, 1978). 이러한 옥천계 우라늄광상에 대한 조사결과는 이미 문헌을 통해 확인할 수 있기 때문에 여기에서는 상세히 언급하지 않겠다(Lee et al., 1986; Cluzel et al., 1990; Shin et al., 2011; So and Kang 1978). 우라늄광상을 이용한 방사성폐기물 처분 자연유사연구를 위한 타당성조사가 한국 원자력연구원에 의해 수행되었으나(Kim et al., 2000) 연

구과제로써 본격적인 연구는 수행되지 못했다. 2021년에 ‘사용후핵연료 저장처분 안전성확보를 위한 핵심기술개발 사업’이 본격적으로 착수되면서 사용후핵연료 처분환경에서 핵종거동 특성을 이해하고, 안전성을 입증하기 위한 처분 자연유사연구가 본격적으로 수행되었다. 현재 이 연구과제의 일환으로 옥천변성대 우라늄광상을 이용한 다음과 같은 주제들을 중심으로 자연유사연구 수행을 수행 중에 있다.

- 옥천변성대 우라늄광상 연구부지에 대한 지질학적, 광물학적, 수리지구학적 특성 규명
- 암석 및 지하수에서의 우라늄 거동 및 이동/지연 특성
- 우라늄의 지구화학적 반응특성
- 우라늄 거동에서의 미생물의 역할 및 영향

#### 3.2. 해외 연구현황

그동안 해외에서는 1980년대부터 우라늄광상을 이용한 다양한 형태의 자연유사연구가 수행되어져 왔지만 현재는 국제적인 대규모의 자연유사연구는 수행되고 있지 않다. 그러나 자연유사연구는 처분 프로그램을 수행하는 많은 나라들의 관심 분야이기에 소규모의 자연유사연구는 지속적으로 수행되고 있다. 본 연구에서는 우라늄광상에서 수행된 대표적인 자연유사연구를 소개하고자 한다.

자연발생적인 핵분열반응의 존재로 관심이 집중되었던 아프리카 가봉의 Oklo 지역 자연유사연구 프로젝트는 사용후핵연료 처분과 관련하여 다음과 같이 중요한 결과들을 도출하였다(Hollinger, 1992).

- 물의 방사화분해(radiolysis) 결과, 용액에서 수소와 산소가 생성되었음에도 전체적인 지질환경은 금속성 납, 방연광(galena), 코피나이트(coffinite)의 존재가 보여주는 바와 같이 여전히 환원적 환경이었음
- 테크네튬(Tc)의 격리가 가능한 백금 원소의 금속함유물이 사용후핵연료에서 생성됨
- 핵반응지역 주변의 점토(녹니석)에 <sup>235</sup>U로 붕괴된 플루토늄(Pu) 잔존물의 포획이 확인됨
- 수력학적 흐름과 산화환원 끝단(redox front) 이동 계산을 위한 모델을 적용하고, 동위원소 추적자와 지화학적 변화 관측으로 이를 검증함
- 지화학과 물질이동이 결합된 모델을 Bangombé에서 관측된 산화환원 끝단에 적용하고 검증함
- 콜로이드, 용해성 유기물, 미생물 채취를 위한 장비를 현장에서 시험 확인하였으며, 시료들을 분석하였음

Oklo 우라늄광상 연구부지에서 자연유사연구의 일차적인 결론은 수리지질과 수리화학 결과가 서로 잘 일치함을 보여주었다는 점이었으며, Oklo 부지에서는 우라늄의 이동이 발생되지 않았으며, 우라늄이 이차적인 환원구역에

의해 포획되었다는 사실 등이었다. 가봉의 Bangombé 지역에서의 자연유사연구에서는 국지적으로 유기물이 풍부한 구역이 지하수의 산화환원 조건들을 충분히 만족할 수 있었고, 투수도를 감소시켜서 핵분열 반응기 구역(nuclear fission reactor zone)이 잘 보존되도록 하였고, 모암으로의 우라늄 이동이 거의 발생되지 않았다(Milodowski et al., 2015).

브라질 Poços de Caldas 자연유사연구 프로젝트의 연구지역은 브라질 Minas Gerais 주에 위치하며, 화산 칼데라(caldera), 지열수 및 우라늄광 등과 관련하여 자연방사능이 상당히 큰 지역에 있다. 자연유사연구는 Osamu Utsumi 우라늄광과 Morro de Ferro 토륨/희토류광 등 두 곳을 중심으로 수행되었다(SK, 1988). Poços de Caldas 프로젝트를 통하여 부지특성조사와 안전성평가와 관련된 각종 모델링 연구들이 수행되었다. 부지특성조사와 관련하여 암석 및 지하수에 대한 지질학적, 광물학적, 지구화학 및 동위원소적 연구가 수행되었다. 모델링 연구와 관련해서는 지구화학 모델링, 산화환원 끝단 이동 모델링, 고온 환경 이동모델, 물-암석 상호작용 모델링 등이 수행되었다(Chapman et al., 1992; Weber et al., 1991). 대표적인 연구내용은 다음과 같다.

- 지구화학적 모델 검증
- 산화환원 끝단의 모델화
- 콜로이드
- 열수에 의한 이동

캐나다 Saskatchewan주 북부지역에 위치한 Cigar Lake 우라늄광상을 대상으로 자연유사연구가 수행되었다. Cigar Lake 광상은 방사성폐기물의 심부결정질암 처분개념의 평가에서 고려될 수 있는 많은 특성이 있다. Cigar Lake 우라늄광상은 지표 약 430 m 아래의 사암(sandstone)층에 배태되어 점토기질부 내에 발달하며 5-30 m 두께의 점토 후광(clay halo)에 피복되어 있어 실제 심층처분시스템과 매우 유사하다. 이 연구에서는 주로 다음과 같은 항목들에 관한 연구를 수행하였다(Cramer and Sargent, 1986; Fayek and Brown, 2015).

- UO<sub>2</sub>의 용해와 안전성
- 점토의 밀봉 성능
- 콜로이드의 역할
- 유기물과 미생물의 역할
- 지하수 화학
- 방사화분해 영향
- 방사성핵종 이동

호주 북부의 Alligator Rivers 지역에 있는 Koongarra 우라늄광은 국제공동연구인 ARAP (Alligator Rivers Analogue Project) 및 ASARR (Analogue Studies in the

Alligator Rivers Region) 프로젝트를 통해 수행되었으며, 주로 천연방벽을 통한 방사성핵종의 유출률에 대한 장기 예측을 평가하기 위해 수행되었다. 주요 연구목적은 방사성폐기물 처분장의 안전성평가와 관련한 지질학적 환경에서의 방사성핵종 이동에 대한 신뢰성 있고 사실적인 모형을 생산하는데 기여하고, Koongarra 우라늄광상과 관련 있는 실내 시험연구와 현장 자료를 조합하여 모델을 검증하는 방법을 개발하는 것이었다(Payne and Airey, 2006). 다음과 같은 연구들이 주로 수행되었다.

- 모암 및 균열 내에서 1차 및 2차 우라늄의 이동
- 방사성핵종 이동에서 지하수 및 콜로이드의 역할
- 핵분열생성물 <sup>129</sup>I, <sup>99</sup>Tc, <sup>239</sup>Pu의 생산 및 이동
- 모델링 코드를 개발하고, 모델링 연구를 위하여 Koongarra 부지를 평가

핀란드 남서부에 있는 Palmottu Lake에서 우라늄 광화 작용으로 조성된 17-18 억 년 된 우라늄-토륨 광상에서의 자연유사연구는 화강암질 암반에서의 사용후핵연료의 심지층 처분과 관련된 자연유사연구 대상으로 조사되었고, 핀란드와 스웨덴의 심지층 처분장으로 선정된 부지와 지질, 수리지질, 지하수의 화학적 성질 및 기후 등이 유사하다. 주요 연구목적은 광상지역의 구조 및 수리지질학적 조건들의 특성을 분석하고 1차 광물로부터 방사성핵종의 유리화 현상의 확인 및 정량화하는 것이었으며, 물-암석 상호작용 시스템에서 방사성핵종의 지연을 제어하는 현상을 규명하고 방사성핵종의 이동을 지배하는 인자들의 확인하는 것이었다(Suutarinen et al. 1991).

1995년 말에는 새로운 Palmottu Project가 재개되어 1999년도까지 연구가 진행되었고, 프로젝트의 주요 연구 내용은 다음과 같다(Miller et al., 2000; Suutarinen et al. 1991).

- Palmottu Lake 근처 화강암 분포 지역 내에 우라늄-토륨 광상의 정량적 특성
- 결정질암반에서 지하수 유속을 제어하는 현상들의 상대적 중요도 조사
- 지구화학적 산화 및 환원 상태가 결정질암반 내의 방사성핵종 이동에 미치는 영향 조사 및 모형화
- 방사성핵종의 지연에 대한 여러 메커니즘의 중요도 조사
- 반복된 빙하작용이 암석 특성에 미치는 중요도 조사
- 처분장의 성능평가 및 안전성평가에 사용된 모델을 개선하기 위해 자연유사연구에서 도출된 지식 및 자료의 사용

일본의 Tono 우라늄광상은 다양한 주제의 자연유사연구의 대상이 되었다(Iwatsuki et al., 2004; Kanai et al., 1998; Nohara et al., 1992). Tono 우라늄광상은 지진이 활성인 지역 내에서 발생하여 단층화된 암반이 일반적이다(Nohara et al., 1992). 그러나 지진 활동과 많은 단층에도

불구하고 대수층의 물질수지 계산 결과들은 우라늄광상 물질 대부분이 원래의 자리에 위치하고, 심각한 우라늄의 이동은 발생하지 않는 것으로 제시하였다. 따라서 이 유사물은 적절한 산화환원 조건이 유지된다면 지진적으로 활동적인 환경에서도 방사성핵종의 유동성이 작을 것임을 보여준다. 사실 대부분의 경우, 결정질암반에서 처분장 위치는 Tono 우라늄광상 보다는 물리적으로 더 안정적이고 지진이 비활성적인 지역에 위치하므로 더 안전하다고 할 수 있다(Miller et al., 2000).

#### 4. 우라늄의 지화학적 거동에 대한 자연유사연구

우라늄광상을 이용한 핵종거동 자연유사연구를 수행하기 위해서는 먼저 지하 환경에서 우라늄의 거동과 관련된 다양한 현상을 분석할 필요가 있다. 지하 처분환경에서는 방사성핵종, 지하수, 지하매질이 장기간에 걸쳐 상호작용하는 복잡한 시스템이다. 우라늄광상 주변 지하환경에서 방사성핵종 거동과 관련된 여러 지화학적 과정들을 Fig. 2에 도시적으로 보여주고 있다.

우라늄은 매우 반응성이 강한 원소로 지하수에서 매우 다양한 지화학반응에 참여하고, 지화학적 환경에 따라 이동성(mobility)이 달라진다. 자연상태에서 우라늄은 주로

$U^{4+}$ 와  $U^{6+}$ 의 산화상태에서 안정적이다. +4 산화상태(즉,  $U(IV)$ )에서 우라늄광물들은 대부분 매우 용해도가 낮은 불용성이며, +6 산화상태(즉,  $U(VI)$ )의 우라늄보다 더 안정적인 화합물을 형성한다(Grenthe et al., 2020).  $U(VI)$ 의 우라늄광물들은 대체로 용해도가 높은 편이고, 용해된  $U(VI)$  핵종들은  $U(IV)$  보다는 지하매질에 덜 포획되기 때문에 더 쉽게 이동할 수 있다(Langmuir, 1978). 일반적으로 지하수의 특성은 지화학적 변수들인 온도, 수소이온농도(pH), 산화환원전위(Eh), 전기전도도(EC), 탄산염 농도, 주요 원소 조성, 그리고 유기물, 콜로이드, 미생물 등의 종류와 함량에 따라 달라진다(Cambell et al., 2012; Law et al., 2011; Newsome et al., 2014). 그리고 지하 매질은 다양한 암반(결정질암반이나 점토암, 퇴적암 등)으로 이루어져 있으며, 암반에 따라 주구성광물과 부구성 광물, 이차광물 등이 매우 다양하다. 특히 암반의 단열에 존재하는 단열충전광물은 지하수를 따라 이동하는 우라늄과 직접 반응하므로 매우 중요하다. 지하환경은 많은 인자와 변수들이 서로 상호작용하는 매우 복잡한 시스템이므로 이러한 환경에서 우라늄의 거동을 해석하고, 평가하여 예측하는 것에는 많은 불확실성이 존재할 수밖에 없다.

우라늄광상에서 우라늄의 거동을 규명하기 위해서는 다음과 같은 연구들이 필요할 것으로 생각된다.

- 우라늄광상 형성 모델의 개발과 설정: 우라늄광상 형성 및 진화에 대한 모델 설정에 초기 및 경계조건을 제공하는 것으로, 현재 우라늄광상의 존재 형태와 미래에 우라늄광상의 진화를 예측할 수 있는 기초자료가 된다. 이를 위해서는 동위원소를 이용한 연대측정 등이 수행될 필요가 있다.
- 우라늄광상 주변의 지하수 유동체계 개발 및 설정: 우라늄의 이동은 지하수를 따라 발생하므로 광상 주변의 지하수 유동 모델링과 단열 특성 규명 등을 통한 유동체계 설정이 필요하다. 이는 우라늄의 이동과 지연을 평가할 수 있는 기초자료가 된다.
- 지하수에서의 우라늄 거동 해석: 지하수에서의 우라늄 거동을 해석하기 위해서는 우선적으로 지하수의 특성을 상세하게 파악해야 한다. 아울러 지하수에 존재하는 우라늄의 화학종을 분석하는 것이 필수인데, 이는 지화학 프로그램을 이용한 계산으로 예측하거나 실험적 분석방법으로 확인할 수 있다.
- 암석에서의 우라늄 거동 해석: 우라늄광상에 존재하는 우라늄광물을 확인하고, 지질학적 진화에 따른 우라늄광물의 변질 특성을 규명하고, 다른 광물들(변질된 이차광물 및 균열충전광물)과 우라늄의 상호작용 및 결합형태를 분석하는 것이 필요하다.
- 지하수-암석-우라늄의 생지화학적 상호작용 규명: 복

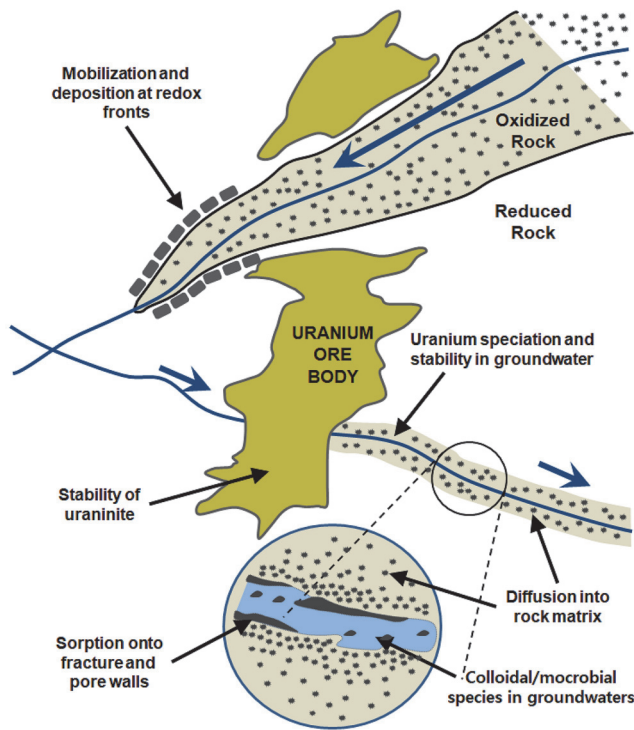


Fig. 2. Various geochemical processes related with radionuclide behaviors in subsurface environment of uranium deposits.

잡한 지하환경에서 다양한 우라늄의 생지화학적 상호작용에 대한 특성을 완벽히 규명하는 것은 불가능하지만, 우라늄의 이동과 지연에 영향을 미치는 주요 기작에 대한 연구는 필수적이다.

- 우라늄의 이동 및 지연 특성 평가: 최종적으로 우라늄광상에서의 우라늄의 이동과 지연 과정에 대한 평가를 수행해야 하는데, 이는 현장실험을 통해서 이루어질 수도 있지만 여러가지 제약으로 인해 주로 모델링 연구를 통해 수행되는 것이 일반적이다.

여기에서는 지하수에서 우라늄 거동, 암석에서의 우라늄 거동, 우라늄의 생지화학적 거동을 중심으로 우라늄광상에서의 우라늄 거동 특성을 조사하고자 한다.

#### 4.1. 지하수에서 우라늄 거동

우라늄의 이동성은 지하수에 존재하는 다양한 리간드들(예를 들면, OH<sup>-</sup>, CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>, PO<sub>4</sub><sup>3-</sup>, 유기물 등)에 의해 영향을 받게 되는데, 특히 U(VI)는 우라닐이온(UO<sub>2</sub><sup>2+</sup>)의 형태로 다양한 리간드들과 반응하여 양이온성 및 음이온성 복합체를 형성하게 된다(Burns, 2005; Grenthe et al., 2020). 지하수에서 우라늄의 거동 해석에서 가장 우선 되어야 할 것은 주어진 지하수 조건에서의 우라늄 농도와 화학종을 결정하는 것이다. 지하수에서 우라늄의 농도와 화학종은 다양한 분석방법으로 결정할 수 있다(Baik et al., 2015). 특히, 우라늄의 화학종은 우라늄의 산화상태, 용해도 및 이동성과 밀접한 관련이 있으므로 매우 중요하다. 그러나 대부분의 지하수에서 우라늄의 농도는 대부분 수 ppb에서 수 십 ppb 수준이기 때문에 분석에 의해 우라늄 화학종을 결정하는 것은 쉽지 않다. 따라서 대부분의 경우 열역학 반응자료를 활용한 지화학 계산 프로그램으로 우라늄을 화학종의 결정한다.

Table 2에는 우리나라 옥천변성대 우라늄광상 지하수에 존재하는 우라늄의 화학종 분포를 계산한 결과를 예시로 보여주고 있다. 계산에 사용된 지화학적 변수들과 지하수 조성은 문헌(Ju et al., 2023)에서 제시된 값을 사용하였고, 계산은 지화학 프로그램인 Geochemist's Workbench (GWB 9.0) (Bethke and Yeakel, 2013)을 이용하여 계산하였다. 계산에 사용된 우라늄의 주요 수용액 반응과 형성상수 자료는 최근에 개선된 OCED/NEA TDB (Thermochemical Data Base) (Grenthe et al., 2020)에 제시된 값들을 이용하였다.

계산 결과에 의하면 측정된 지하수에서의 우라늄 농도인 0.184 ppb 중에서 수용액에 존재하는 것은 약 88%인 0.162 ppb이고, 나머지 약 12%는 침전되는 것으로 계산되었다. 지하수 시료에 존재하는 주요 우라늄 화학종은 약 95.7% 정도가 Ca-UO<sub>2</sub>-CO<sub>3</sub> 삼중복합체인 Ca<sub>2</sub>UO<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>(aq)

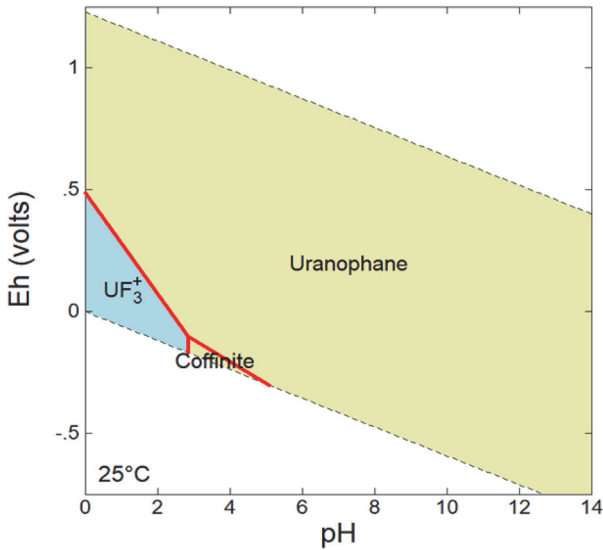
**Table 2.** Calculation result of uranium speciation in a groundwater sample (OB3-80) from a domestic uranium deposit in the Ogcheon Metamorphic Belt (Ju et al., 2023) using Geochemist' Workbench program and Nuclear Energy Agency thermochemical database

Calculation conditions		Values	
Sampling depth (m)		80	
Temperature (°C)		12.9	
pH		7.82	
Eh (mV)		122	
Concentration of U (ppb)		0.184	
Major elements	Concentrations (ppm)	Major elements	Concentrations (ppm)
Na	6.3	Cl <sup>-</sup>	2.3
K	1.6	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	68.5
Ca	41.1	F <sup>-</sup>	0.3
Mg	20.2	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	149.9
SiO <sub>2</sub>	20.4		
Aqueous species of U	Molality (M)	Fraction (%)	
[U] <sub>total</sub>	6.816×10 <sup>-10</sup> (0.162 ppb)	100.000	
Ca <sub>2</sub> UO <sub>2</sub> (CO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> (aq)	4.843×10 <sup>-10</sup>	71.053	
CaUO <sub>2</sub> (CO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> <sup>2-</sup>	1.682×10 <sup>-10</sup>	24.677	
MgUO <sub>2</sub> (CO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> <sup>2-</sup>	2.195×10 <sup>-11</sup>	3.220	
UO <sub>2</sub> (CO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> <sup>4-</sup>	4.856×10 <sup>-12</sup>	0.712	
UO <sub>2</sub> (CO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> <sup>2-</sup>	2.080×10 <sup>-12</sup>	0.305	
Mg <sub>2</sub> UO <sub>2</sub> (CO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> (aq)	6.550×10 <sup>-14</sup>	0.010	
UO <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> (aq)	6.160×10 <sup>-14</sup>	0.009	

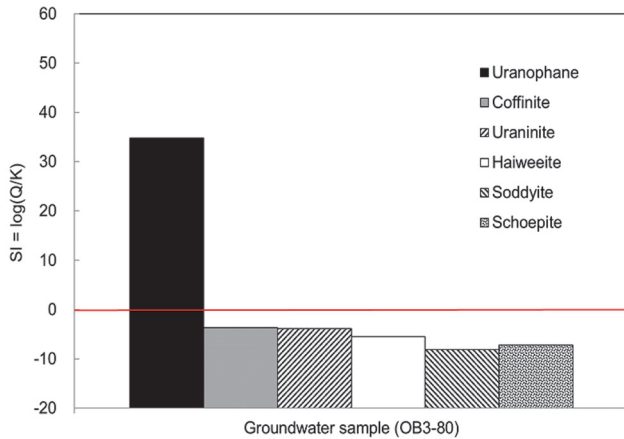
와 CaUO<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>3</sub><sup>2-</sup>로 구성되어 있음을 보였다. 특히 Ca<sub>2</sub>UO<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>(aq)가 70% 이상을 차지하는 지배 화학종인 것으로 계산되었다. 이러한 Ca-UO<sub>2</sub>-CO<sub>3</sub> 화학종은 독일의 우라늄광산 폐수에서 처음 확인되었고(Bernhard et al., 1996), 이후에 결정질 화강암반 지하수에서도 지배적인 우라늄 화학종인 것으로 확인되었으며(Baik et al., 2015; Schemeide et al., 2014), 칼슘과 탄산염이 풍부한 중성 또는 약 알칼리성의 천연지하수에서 Ca-UO<sub>2</sub>-CO<sub>3</sub> 삼중복합체가 우라늄의 주요 화학종임을 제시하였다.

계산 결과를 바탕으로 지하수에서 우라늄의 Pourbaix 도표를 Fig. 3에 나타내었다. 주어진 모든 지하수의 지화학조건에서 우라늄은 주로 U(VI) 칼슘우라닐규산염(calcium uranyl silicate) 광물인 우라노페인(uranophane, Ca(H<sub>2</sub>O)<sub>2</sub>(UO<sub>2</sub>)<sub>2</sub>(SiO<sub>2</sub>)<sub>2</sub>(OH)<sub>6</sub>) 광물의 형태로 존재하는 것으로 계산되었다. 주어진 지하수 조건에서 지배적인 우라늄광물은 포화지수(Saturation Index, SI) 계산 결과에서도 확인 가능하다(Fig. 4 참조). GWB를 이용하여 계산한 우라늄광물들의 포화지수 값은 우라노페인 광물에 대





**Fig. 3.** Poubaix diagram for the groundwater sample (OB3-80) from a domestic uranium deposit in the Ogcheon Metamorphic Belt (Ju et al., 2023) using Geochemist's Workbench program and NEA thermochemical database.



**Fig. 4.** Calculated saturation index (SI) for the groundwater (OB3-80) from a domestic uranium deposit in the Ogcheon Metamorphic Belt (Ju et al., 2023) using Geochemist's Workbench program and NEA thermochemical database.

해서만 과포화상태 (즉, 우라노페인 광물이 침전가능한 상태)로 존재함을 나타내었다. 그리고 다른 우라늄광물들은 모두 불포화 상태인 것으로 계산되었다.

계산결과에 의하면 주어진 지하수조건에서 우라늄의 용해도는 수용액에서 모든 우라늄 화학종의 총농도는  $8.816 \times 10^{-10}$  M이 되고(Table 1 참조), SLSP (Solubility Limiting Solid Phase)는 우라노페인인 것으로 나타났다. 그러나 해당 지역의 우라늄광물을 확인한 결과에 의하면 우라노페인과 같은 U(VI) 광물은 확인할 수 없었으며, 거

의 대부분의 우라늄광물은 U(IV)의 우라니나이트( $UO_2$ )와 코피나이트( $USiO_4$ )로 존재하는 것으로 나타나 지하수를 이용한 계산 결과와는 달랐다 (Ju et al., 2023). 그 원인으로는 크게 두가지를 생각해 볼 수 있다. 첫째로 측정된 지하수의 산화환원전위(Eh)가 실제 지하수의 Eh 값보다 낮았기 때문이다. 그 원인으로는 시추에 의한 지하수의 교란이나 측정 중 산소의 투과 등으로 Eh 측정값이 지하수의 지화학적 조건을 반영하지 못했기 때문일 것이다. 둘째로는 우라늄광상과 지하수와의 접촉 또는 상호작용의 제약으로 인해 지하수 특성과 암석의 특성이 서로 평형 상태에 있지 않았기 때문일 것이다(Ju et al., 2023). 그러나 보다 정확한 원인을 파악하기 위해서는 추가 연구가 필요하다.

#### 4.2. 암석에서 우라늄 거동

지각에서 우라늄의 농도는 약 1-3 ppm 정도의 농도를 가지며 발생된다(Fayek et al., 2011). 현무암은 약 1 ppm 정도의 우라늄 함량을 보이며(Alloway, 2013), 화강암과 유문암 같은 화성암은 각각 약 3.5 ppm과 5.0 ppm의 우라늄 함량을 가진다(Hobday and Galloway, 1999). 어떤 화강암들은 8 ppm 이상의 우라늄 함량을 보이며(Alloway, 2013), 퇴적 광상 주변의 화강암은 50 ppm 이상의 함량을 가지기도 한다(Hobday and Galloway, 1999). 우라늄은 약 32억년까지 맨틀에 녹아 있다가 32-22억년 전의 시생대(Archean)에 냉각되어 U(IV)로 결정화된 이후, 약 22억년 전 원생누대(Proterozoic)에 발생된 것으로 추정되는 GOE (Great Oxidation Event)에 의해 U(VI)로 산화되면서 다양한 우라늄 형태를 가지게 되었으며, 이후에 해양으로 유출된 U(VI)가 해양 유기물 등에 의해  $UO_2$ 로 광물화 되었을 것으로 추정된다(Cumberland et al., 2016). 국내의 옥천변성대 우라늄광상의 경우에도 해양 퇴적 기원의 광상으로 해양 유기물에 의해 U(IV) 광물인 우라니나이트로 광화되어 흑색슬레이트로 퇴적되었다가 열수에 의해 흑색슬레이트(black slate)가 탄질슬레이트(coaly slate)로 변질되는 과정에서 우라늄이 농축된 것으로 추정된다(Shin and Kim, 2016; Shin et al., 2016). 따라서 암석에서의 우라늄 거동을 보다 정확하게 해석하기 위해서는 우라늄광상 또는 우라늄광물의 형성 과정과 진화모델에 대한 이해가 필수적이다.

우라늄광물은 우라늄광상에서 일차적으로 형성되기도 하지만, 일반적으로 광물화 과정에 의해 이차고체상으로 형성되고, 이러한 이차고체상들은 방사성폐기물 처분장 또는 지하수의 우라늄 오염지역에서 우라늄이나 다른 방사성핵종들에 대한 중요한 제거 기능을 제공하기도 한다(Finch and Ewing, 1992). 이러한 환경에서 우라늄의 이

동성과 분포는 존재하는 주요한 우라늄광물의 용해도에 의해 크게 영향을 받는다. 따라서 지하 처분환경에서 우라늄의 이동과 거동을 이해하기 위해서는 우라늄광물의 용해도와 상대적인 안정도(stability)가 결정되어야 한다. 그러나 수십 년간의 연구에도 불구하고 여러 우라늄광물에 대한 열역학적 특성들이 여전히 잘 규명되지 못하고 있는 것이 현실이다.

산화조건에서 우라늄 이동에 영향을 미치는 우라늄광물의 잠재적 중요성에도 불구하고 이러한 고체상들에 대한 신뢰할만한 용해도 측정 또는 용해도를 계산할 수 있는 열역학적 특성들에 대한 자료는 현재 매우 부족하다. 지금까지 우라늄 화학종의 열역학적 특성들에 대한 검토는(Grenthe et al., 2020) 주로 수용성 화학종에 집중됐으며, 소수의 광물 용해도 측정 결과만을 포함하고 있다. 광물 용해도 측정은 주어진 수용액 조건에서 특정 광물상과 평형에 있는 다른 광물 형성 양이온들의 농도를 정량화할 뿐만 아니라, 그 결과는 용해도상수( $K_{sp}$ ) 값과 광물상 형성의 Gibbs 자유에너지를 계산하는데 사용될 수 있다.

사용후핵연료 및 고준위폐기물의 심층처분에서 자연적인 우라늄광물의 산화적 풍화와 우라늄광물의 형성과 함께 이들 우라늄 광물들의 상전이 또한 매우 중요하다(Baker, 2014). 예를 들면, 실험실적 연구에서 모사된 사용후핵연료나 실제 사용후핵연료를 2년 동안 물에 침수했을 때 상변화가 관측되었다(Baker, 2014). 이러한 상변화는 기본적으로  $UO_2$ 에서 우라늄광물로의 전이이다. 물의 방사화분해에 의해 발생하는  $H_2O_2$ 와의 반응 또한 이러한 상변화를 유발한다. 특히, 우라늄광물이 장반감기를 가진 다른 방사성핵종들과 어떻게 상호작용할 것인지는 심층처분장 근계에서 방사성핵종의 수착 또는 산화환원 반응에 영향을 미치므로 매우 중요하다.

오랫동안 우라늄광상은 심층처분시스템의 자연유사물로 연구되어져 왔다. 우라늄광상에 존재하는 우라늄광물은(Baker, 2014) 사용후핵연료와 근계영역과 관련된 방사성핵종의 지하학적 거동에 대한 훌륭한 자연유사물이라 할 수 있다(Baker, 2014; Fayek et al., 1997; Janeczek et al., 1996). 우라늄 이차광물과 재유동화된 광물들은 처분장 조건과 유사한 저온( $<100^\circ C$ ) 유체로부터 생성되기 때문에 더욱 관심을 가지게 되었다(USGS, 2010). 따라서 우라늄광상은 처분시스템에서의 핵종 거동과 관련하여 다음과 같은 정보들을 제공할 수 있다(Bruno and Ewing, 2006; Fayek et al., 2006; Miller, 2000; USGS, 2010).

- 사용후핵연료의 유사물로서 우라니나이트의 부식 또는 용해를
- 유동화하는 핵종들의 산화환원반응 및 과정들
- 콜로이드 이동을 포함하는 지하수에서 핵종들의 화

#### 학종과 용해도

- 수착, 확산 및 암반체 공극
- 단열 및 단층을 통한 원소의 재유동화와 광물 용해를 결정하기 위한 지질연대

특히, 우라늄광상에 존재하는 우라늄광물들은 지질시간대( $>10$ 억년)와 큰 길이 규모에 대한 자연유사 정보를 제공하기 때문에 더 가치가 있다.

Fig. 5는 옥천변성대 보은군 회남면 자연유사연구 부지에서 채취한 암석시료에 존재하는 우라늄광물에 대한 SEM (Scanning Electron Microscopy) 사진과 EDS (Energy-Dispersive Spectrometer) 분석 결과를 예시적으로 보여준다. 그림에서 주로 관찰된 우라늄광물은 우라니나이트이고, 석영맥(quartz vein)에서 운모(mica)와 함께 산출됨을

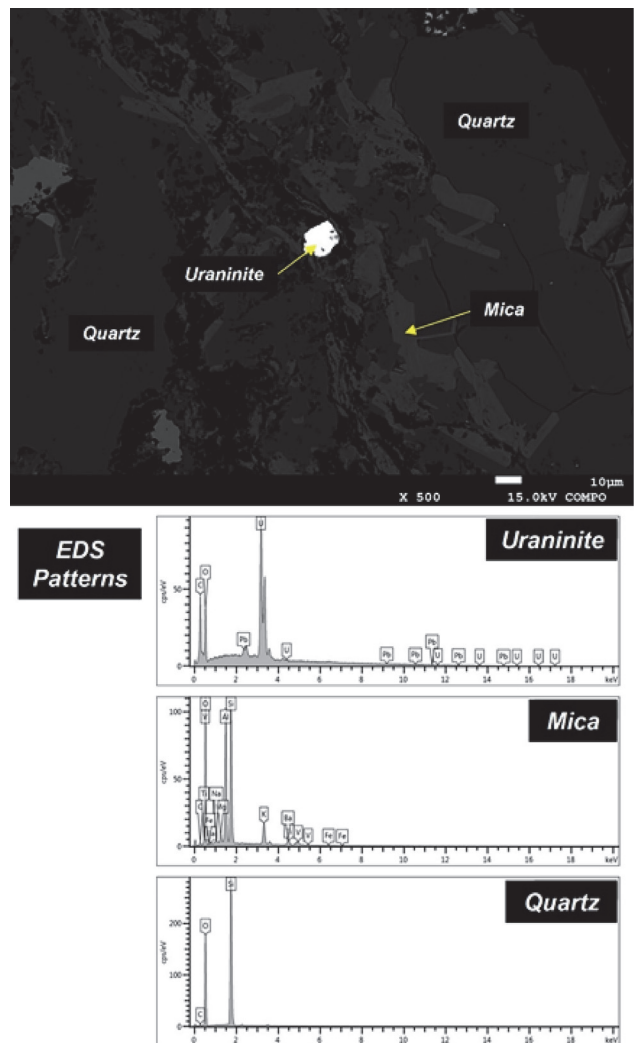


Fig. 5. A photograph of scanning electron microscopy with energy-dispersive spectroscopy pattern for a rock sample from a natural analogue study site in Boeun-gun, Hoenam-myun containing uranium mineral of uraninite.

보여주고 있다. 그러나 앞에서도 언급했지만 해당 부지의 암석시료에서는 U(VI)의 우라늄광물이나 다른 변질된 우라늄광물들은 발견되지 않았다.

### 4.3. 우라늄의 생지화학적 상호작용

암반에서의 우라늄의 이동은 암반의 단열이나 공극에 존재하는 지하수를 따라 발생할 것이다. 따라서 우라늄이 이동할 때 단열이나 공극을 구성하는 광물들과의 상호작용은 필연적이다. 이러한 이러한 단열들은 암석의 수화적 또는 열수적 변질에 의해 형성된 이차광물들로 코팅되거나 충전되어 있다(Landström and Tullborg, 1990). 특히 주로 변질된 광물들로 충전되어 있는 다공성 단열에서는 이류(advection)와 분산(dispersion)에 의해 핵종이 이동하게 된다. 화강암반 단열에서 수행된 연구의 대부분은 재유동화된 우라늄과 이차철수산화물들과의 상호작용에 관한 내용들이다(Cui and Eriksen, 2000; Pérez del Villar et al., 1997; Smellie et al., 1986; Suksi et al., 1991). 예를 들면, 스페인의 화강암반 자연유사연구 부지인 El Berrocal 부지에서 수행된 결과에 의하면, 석영, 장석, 점토광물, 탄산염 및 철옥시수산화물로 구성된 단열충전광물에 대한 우라늄과 토륨의 수축은 화강암에 각각 2배와 3배 높은 것으로 나타났다(Pérez del Villar et al., 1997). 그리고 핀란드 Palmottu 부지에서 수행된 연구에 의하면, 단열 충전광물에서의 우라늄 농도가(400 ppm) 모암에서의 농도(18–100 ppm)보다 훨씬 높은 것으로 나타났다(Cui and Eriksen, 2000). 핀란드 Palmottu 부지에서 수행된 다른 연구에서는 우라늄의 유동성은 지하수 순환의 변화와 관련이 되어있지만 우라늄의 분산은 우라늄 광 주변 수 미터 내에 제한됨을 확인되었다(Pomiès et al., 2004).

몇몇 자연유사연구들이(Crespo et al., 2003; Payne and Airey, 2006; Quejido et al., 2005) 단열 표면에 대한 수축과 침전의 영향을 설명하였지만 이러한 과정들을 명확하게 구분하기는 매우 어렵고, 지하수에서 우라늄의 이동 지연에 대한 정량적인 정보를 제공하는 것도 제약이 있다. 따라서 자연유사연구는 핵종과 암석 표면과의 상호작용에 대한 유용한 관측 정보를 제공하고 어떤 고체상들이 중요한지에 대한 정보는 제공하지만, 처분장 안전성평가에 요구되는 수축 자료들을 직접적으로 제공하는 것은 매우 제약적이다. 스페인 Mina Fe 연구부지에서 우라늄의 암반 균열에 의한 지연특성 규명 연구가 수행되어 핵종의 지연 메커니즘에 대한 정보를 제공하였다(Crespo et al., 2003; Quejido et al., 2005). Mina Fe와 같이 단열이 많고 풍화가 많이 된 부지에서조차도, 단열에서의 우라늄 수축으로 인해 많은 단열들이 우라늄의

이동에 기여하지 못하였다. 아울러 우라늄의 이동 지연은 철 수산화물이나 점토광물과 같은 단열충전광물로의 수축에 의해 이루어짐을 재차 확인하였다. 호주의 Koongarra 우라늄광 자연유사연구에서 이러한 철수산화물에 의한 우라늄의 이동 지연이 확인된 바 있다(Payne and Airey, 2006). 방사성폐기물 처분에 대한 미생물의 영향은 1980년대 중후반부터 많은 국가들의 방사성폐기물 처분 연구 프로그램에 포함되어 수행되어져 왔으며(Pedersen, 2000; Stroes-Gascoyne and West, 1997; West et al., 1982), 국내에서도 방사성폐기물 처분에서 미생물의 역할과 중요성에 대해서는 정리된 바가 있다(Baik et al., 2009). 우라늄광상 지하수에 존재하는 미생물들은 우라늄의 거동에 주로 다음과 같은 메커니즘에 의해 우라늄의 거동에 영향을 미치는 것으로 알려져 있다(Cumberland et al., 2016).

- 생수착(bio-sorption): 박테리아성 또는 균류성(fungal) 미생물에 의해 우라닐 이온과 같이 양성의 이온을 끌어들이는 전기적 표면전하에 의해 발생한다.
- 효소적 환원작용(direct enzymatic reduction): U(VI)의 U(IV)로의 직접적 또는 간접적인 효소작용 환원을 통해 우라늄이 부동화될 수 있다. 특히, 이러한 과정은 유기물이 풍부한 우라늄광상에서 발생할 확률이 높다.
- 생광물화(bio-mineralization): 우라늄이 세포 표면에 침전되어 덜 결정화된 또는 결정화된 구조를 형성하며 미생물에 의해 광물화되는 현상을 말한다.
- 생축적(bio-accumulation): 생축적은 세포에 우라늄을 포획하는 것으로 대사작용에 의존한다는 점에서 생수착과는 다르다.

특히 지하수에 풍부하게 존재하는 탄산염의 경우는 U(VI)의 U(IV)로의 미생물에 의한 환원 속도를 지연시키는 것으로 알려져 있다(Ulrich et al., 2011). 이는 지하수 pH 조건에서 탄산염이 우라늄과 매우 강한 복합체를 형성하여 우라늄의 이동성에 큰 영향을 미치기 때문인 것으로 잘 알려져 있다(Behrends and Van Cappellen, 2005; Cheng et al., 2012). 또한  $Ca^{2+}$  이온 또한 우라늄의 미생물에 의한 환원 속도를 지연하는 것으로 알려져 있다(Ulrich et al., 2011).

사용후핵연료 처분의 안정성을 평가하기 위해 우라늄 계열의 동위원소 비평형을 활용한 자연유사연구가 활발히 진행되고 있다(Chapman et al., 1984). 우라늄의 이동 및 지연 그리고 장기 진화 특성을 설명하는 자연유사연구의 경우, U 붕괴 계열 핵종 중에서도 장수명 핵종들을 이용하는 것이 효율적이다(MacKenzie et al., 1992). 지구에 가장 많이 존재하는 동위원소는  $^{238}U$ 와  $^{235}U$ 으로서, 각

각 45억년과 7억년의 긴 반감기를 가지고 있어서 생성된 후 오랜 기간 동안 존재할 수 있다. 천연 우라늄은 대부분  $^{238}\text{U}$ 로 구성되어 있고 소량의  $^{235}\text{U}$ 와  $^{234}\text{U}$ 을 포함한다 (Tripathi et al., 2013). 지구상에서의 표준  $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 의 질량비는 약 137.88의 일정한 값을 가진다고 알려져 있다 (Steiger and Jager, 1977). 그리고 우라늄 동위원소들이 지중환경에서 U 환원을 추적할 수 있는 도구로 이용되었다.

토륨(Th)과 U(IV)의 경우, U(VI) 및 라듐(Ra)과 비교했을 때 지하수에 대한 용해도가 상대적으로 낮은 편인데, 이 때문에 넓은 스펙트럼의  $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$  방사능비(AR: Activity Ratio),  $^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th}$  AR 분포가 자연계에서 관찰된다(Gascoyne, 1982). 기본적으로 암석에 존재하는 우라늄의 지하수로의 유출은 주로 다음의 두 가지 프로세스에 중점을 두고 설명할 수 있다(Scott et al., 1992).

- 광물의 벌크 용해는 동위원소 비율을 변화시키지 않는다.
- 광물 표면에서 되튐효과에 의한  $^{234}\text{U}$ 의 선택적인 유출이 발생할 수 있다.

두 기작의 상대적인 중요성은 물-암석 반응이 일어나고 있는 지역의 환경에 따라 크게 달라질 수 있다.

Thiel et al. (1983)은 우라늄 인벤토리(inventory)의 장기 진화를 설명하기 위해  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  AR와  $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$  AR를 활용하였다(Fig. 6).  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  AR이 1에 가까운 경우, 해당 우라늄 인벤토리는 약 1 Ma 시간 규모 동안 폐쇄계를 유지한 것으로 가정해 볼 수 있다. 즉, 오랜 기간 물-암석 반응에 노출되지 않고 영년평형을 이룬 경우가 이에 해당한다. 이 구간의 범위는 약 10%의 분석오차를 가

정하여 사각의 회색선으로 표시하였다.

정리하면, 우라늄 이동 및 지연 그리고 우라늄 재고량의 장기진화 특성 연구는 우라늄계열동위원소들의 비평형을 바탕으로 다음과 같은 해석을 도출할 수 있다 (MacKenzie et al., 1992).

- 암석의  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  AR 값이 1보다 작은 경우 지난  $10^6$ 년 동안  $^{234}\text{U}$  핵종이 지하수로 유출되었음을 의미한다.
- 고형물(암석)의  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  AR 값이 1보다 큰 경우 지난  $10^6$ 년 동안  $^{234}\text{U}$  핵종이 지하수로부터 침적되었음을 의미한다.
- $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$  AR >1이 경우 지난  $3 \times 10^5$ 년 동안 우라늄의 선택적 제거(지하수로의 유출)가 있었음을 의미한다.
- $^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th}$  AR >1이 경우 지난  $10^4$ 년 동안  $^{226}\text{Ra}$ 의 침적이 있었음을 의미한다.
- $^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th}$  AR <1이 경우 지난  $10^4$ 년 동안  $^{226}\text{Ra}$ 의 유출이 있었음을 의미하며, 이 경우에는 알파되튐(alpha recoil)효과의 영향을 받았을 수 있다.

아울러 우라늄의 미생물적 환원은 핵장전이효과에 기인한 질량 독립적인 동위원소적 분극화로 인해 수용액으로부터 무거운 우라늄 동위원소를 우선적으로 제거한다는 사실에 기인한다(Bigeleisen, 1996). 이 과정에서 수중에 존재하는 무거운 우라늄 동위원소인  $^{238}\text{U}$ 을 빠르게 소비하는 우라늄 동위원소 분극화에 의해 수중에 존재하는  $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 비가 감소된다(Stylo et al., 2015; Stirling et al., 2015). 반면, 비생물적 우라늄 환원에서는 우라늄 동위원소의 비에 큰 변화를 보이지 않는 것으로 알려져 있다(Stylo et al., 2015). 우라늄 환원이 고체상에 무거운 동위원소를 축적하기 때문에, 지하수에서 가벼운 동위원소들은 우라늄 환원을 지시할 것이다(Robbert et al., 2021). Robbert et al. (2021)은 환원 미생물인 *Shewanella Oneidensis* MR-1에 의해 U(VI) (400  $\mu\text{M}$ )의 환원에 의해 비결정성 U(IV)가 형성되고, EDTA, citrate, bicarbonate 등의 리간드들에 의해 유동화 될 수 있음을 보였다. 이러한 리간드와의 복합화는 U(IV)를 심각하게 유동화시키고, 동위원소 분율에서  $^{238}\text{U}$ 이 농축됨을 보였다.

만약 고시대부터 현재까지의 긴 시간 동안 자연환경에서의  $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 비가 환경 및 미생물의 생리에 따라 변화했다면, 이를 기반으로 과거부터 현재까지의 생지화학적 정보를 동위원소 기록을 통하여 파악할 수 있다. 따라서, 자연환경에서의 우라늄 환원에 대한  $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 비는 우라늄의 생지화학적 거동을 이해하는데 유용한 자료로 활용 가능하며, 동위원소비를 활용한 우라늄 생지화학적 거동의 이해는 사용후핵연료를 심지층에 처분하는 관점에서 안전하고 지속가능한 환경을 만들어가는 데 필수적이라 할 수 있다.

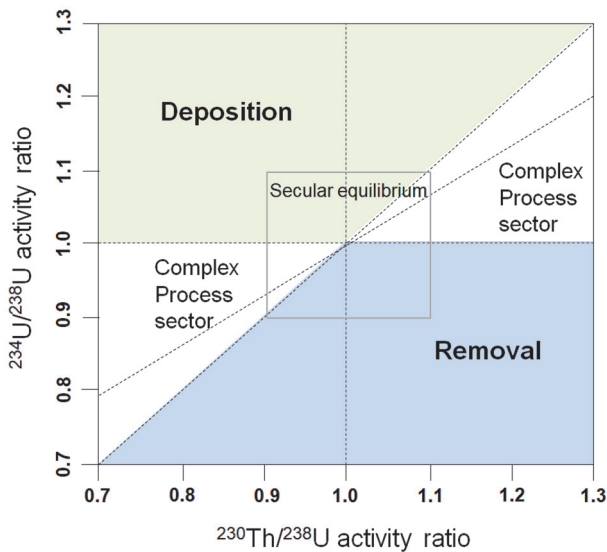


Fig. 6. The Thiel diagram illustrating uranium deposition and removal processes (modified from Thiel et al., 1983).

## 5. 결 론

본 연구에서는 고준위방사성폐기물 처분안전성 입증 및 안전성평가의 신뢰성 확보를 위한 처분자연유사연구의 역할과 중요성을 개괄적으로 정리하였다. 아울러 지하 처분환경에서 복잡하고 다양한 핵종거동을 규명하고 해석하기 위한 자연유사연구의 일환으로 우라늄광상을 이용한 국내외 연구동향을 고찰하였다. 그리고 국내 옥천변성대 우라늄광상을 포함하는 우라늄광상 지하수와 암석에서의 우라늄의 거동 특성과 지질환경에서의 우라늄의 생지화학적 상호작용을 조사하고 정리하였다.

현재 국내에서도 우라늄광상을 이용한 자연유사연구가 옥천변성대에 위치한 우라늄광상들을 대상으로 수행되고 있다. 우라늄광상을 이용한 자연유사연구를 통해 획득한 정보와 자료들은 고준위폐기물(사용후핵연료 포함) 처분 환경에서의 핵종거동 특성 평가에 필요한 자료를 제공하고 심층처분 Safety Case 구축에 필요한 정보를 제공할 수 있을 것이다.

## 사 사

이 논문은 2021년도 정부(과학기술정보통신부)의 재원으로 사용후핵연료관리핵심기술개발사업단 및 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구사업으로(No.2021M2E1A1085186) 생산된 것임.

## References

Alloway, B.J. (2013) Chapter 26 Uranium. In: Alloway, B.J. (ed.) Heavy Metals in Soils. Springer, New York, p.565. doi: 10.1007/978-94-007-4470-7\_26

Baik, M.H. and Cho, H.R. (2022) Roles of uranyl silicate minerals in the long-term mobility of uranium in fractured granite. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, v.331, p.451-459. doi: 10.1007/s10967-021-08084-1

Baik, M.H., Jung, E.C. and Jeong, J. (2015) Determination of uranium concentration and speciation in natural granitic groundwater using TRLFS. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, v.305, p.589-598. doi: 10.1007/s10967-015-3971-2

Baik, M.H., Ko, N.Y., Jeong, J. and Kim, K.S. (2016) Confidence improvement of disposal safety by development of a safety case for high-level radioactive waste disposal. *J. Nucl. Fuel Cycle Waste Technol.*, v.14(4), p.367-384. doi: 10.7733/jnfcwt.2016.14.4.367

Baik, M.H. and Lee, J.K. (2020) Long-term mobility of uranium in the granitic KURT site using isotopic analysis and sequential chemical extraction. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, v.326, p.1173-1183. doi: 10.1007/s10967-020-07380-6

Baik, M.H., Lee, S.Y. and Roh, Y. (2009) Roles and importance of microbes in the radioactive waste disposal. *J. Korean Radioactive*

*Waste Society*, v.7(1), p.63-72.

Baik, M.H., Park, T.J., Kim, I.Y. and Choi, K.W. (2013) Research status and roles of natural analogue studies in the radioactive waste disposal. *J. Korean Radioactive Waste Soc.*, v.11(2), p.133-156. doi: 10.7733/jkrws.2013.11.2.133

Baik, M.H. and Ryu, J.H. (2021) Uncertainties and relevance of natural analogue Studies for radionuclide behaviors in HLW disposal. KAERI technical report KAERI/TR-8615/2021. Korea Atomic Energy Research Institute, Daejeon.

Baker, R.J. (2014) Uranium minerals and their relevance to long-term storage of nuclear fuels. *Coordination Chem. Rev.*, v.266-267, p.123-136. doi: 10.1016/j.ccr.2013.10.004

Behrends, T. and Van Cappellen, P. (2005) Competition between enzymatic and abiotic reduction of uranium(VI) under iron reducing conditions. *Chem. Geol.*, v.220(3-4), p.315-327. doi: 10.1016/j.chemgeo.2005.04.007

Bernhard, G., Geipel, G., Brendler, V. and Nitsche, H. (1996) Speciation of uranium in seepage waters of a mine tailing pile studied by time-resolved laser-induced fluorescence spectroscopy (TRLFS). *Radiochim. Acta*, v.74, p.87-91. doi: 10.1524/ract.1996.74.special-issue.87

Bethke, C.M. and Yeakel, S. (2013) The Geochemist's Workbench Release 9.0: GWB Essentials Guide. Aqueous Solutions LLC, Champaign, Illinois.

Bigeleisen, J. (1996) Nuclear size and shape effects in chemical reactions. *Isotope chemistry of the heavy elements. J. Am. Chem. Soc.*, v.118, p.3676-3680. doi: 10.1021/ja954076k

Bruno, J. and Ewing, R. (2006) Spent Nuclear Fuel. *Elements*, v.2, p.343-349. doi: 10.2113/gselements.2.6.343

Burns, P.C. (2005) U<sup>6+</sup> minerals and inorganic compounds: insights into an expanded structural hierarchy of crystal structures. *Can. Mineral.*, v.43(6), p.1839-1894. doi: 10.2113/gscanmin.43.6.1839

Campbell, K.M., Kukkadapu, R.K., Qafoku, N.P., Peacock, A.D., Leshner, E., Williams, K.H., Bargar, J.R., Wilkins, M.J., Figueroa, L., Ranville, J., Davis, J.A. and Long, P.E. (2012) Geochemical, mineralogical and microbiological characteristics of sediment from a naturally reduced zone in a uranium-contaminated aquifer. *Appl. Geochem.*, v.27(8), p.1499-1511. doi: 10.1016/j.apgeochem.2012.04.013

Chapman, N.A., McKinley, I.G., Shea, M.E. and Smellie, J.A.T. (1992) The Poços de Caldas Project: natural analogues of processes in a radioactive waste repository, Part I. *J. Geochem. Explor.*, v.45, p.1-24.

Chapman, N.A., McKinley, I.G. and Smellie, J.A. (1984) The potential of natural analogues in assessing systems for deep disposal of high-level radioactive waste. Eidgenössisches Inst. für Reaktorforschung, Wuerenlingen, Switzerland.

Cheng, Y., Holman, H.-Y. and Lin, Z. (2012) Remediation of chromium and uranium contamination by microbial activity. *Elements*, v.8(2), p.107-112. doi: 10.2113/gselements.8.2.107

Cluzel, D., Cadet, J.P. and Lapiere, H. (1990) Geodynamics of the Ogcheon belt (S. Korea), In Angelier, J. (ed.) Geodynamic Evolution of the Eastern Eurasian Margin, Tectonophysics, v.183, p.41-156. doi: 10.1016/0040-1951(90)90187-d

Cramer, J.J. and Sargent, F.P. (1986) Cigar Lake project: A U-

- deposit natural analogue. In: Come, B. and Chapman, N.A. (eds.) Natural analogue working group; First meeting, Brussels, November 1985. CEC Nuclear Science and Technology Report, EUR 10315, 216-223. Commission of the European Communities, Luxembourg.
- Crespo, M.T., Pérez del Villar, L., Quejido, A.J., Sánchez, M., Cózar, M. and Fernández-Díaz, J.S. (2003) U-series in Fe-U-rich fracture fillings from the oxidised cap of the "Mina Fe" uranium deposit (Spain): implications for processes in a radwaste repository. *Appl. Geochem.*, v.18, p.1251-1266. doi: 10.1016/s0883-2927(02)00248-2
- Cui, D. and Eriksen, T. (2000) Fracture-filling minerals as uranium sinks and sources, a natural analogue study at Palmottu, Finland. *Radiochim. Acta*, v.88, p.751-755. doi: 10.1524/ract.2000.88.9-11.751
- Cumberland, S.A., Douglas, G., Grice, K. and Moreau, J.W. (2016) Uranium mobility in organic matter-rich sediments: A review of geological and geochemical processes. *Earth-Science Reviews*, v.159, p.160-185. doi: 10.1016/j.earscirev.2016.05.010
- Fayek, M. and Brown, J. (2015) Natural and anthropogenic analogues for high-level nuclear waste disposal repositories: A review. A report to the Canadian Nuclear Safety Commission, RSP-310. Canadian Nuclear Safety Commission (CNSC), Ottawa.
- Fayek, M., Horita, J. and Ripley, E.M. (2011) The oxygen isotopic composition of uranium minerals: a review. *Ore Geol. Rev.*, p.41(1), p.1-21. doi: 10.1016/j.oregeorev.2011.06.005
- Fayek, M., Janeczek, J. and Ewing, R.C. (1997) Mineral chemistry and oxygen isotopic analyses of uraninite, pitchblende and uranium alteration minerals from the Cigar Lake Deposit, Saskatchewan, Canada. *Appl. Geochem.*, v.12, p.549-565. doi: 10.1016/s0883-2927(97)00032-2
- Finch, R.J. and Ewing, R.C. (1992) The corrosion of uraninite under oxidizing conditions. *J. Nucl. Mater.*, v.190, p.133-156. doi: 10.1016/0022-3115(92)90083-w
- Gascoyne, M. (1982) Geochemistry of the actinides and their daughters. In Ivanovich, M. and Harmon, R. S. (eds) Uranium series disequilibrium: applications to environmental problems. Clarendon Press, Oxford.
- Grenthe, I., Plyssunov, A.V., Runde W.H., Kinings, J.M., Moore, E.E., Gaona, X., Rao, L. and Grambow, B. (2020) Second Update on the Chemical Thermodynamics of Uranium, Neptunium, Plutonium, Americium and Technetium. OECD Nuclear Energy Agency, Boulogne-Billacourt.
- Hobday, D.K. and Galloway, W.E. (1999) Groundwater processes and sedimentary uranium deposits. *Hydrogeol. J.*, v.7(1), p.127-138. doi: 10.1007/s100400050184
- Hollinger, P. (1992) Geochemical and isotopic characterisation of the reactor zones. In: von Maravic, H. (ed.) Second Oklo Working Group Meeting. CEC Radioactive Waste Management Series. Commission of the European Communities, Luxembourg.
- Horie, K. and Hidaka, H. (2004) Redistribution of U, Pb and REE in association with alteration of uranium minerals from the Koongarra deposit, Northern Territory, Australia. *Radiochim. Acta*, v.92, p.805-808. doi: 10.1524/ract.92.9.805.55013
- IAEA (1989) Natural analogues in performance assessments for the disposal of long-lived radioactive wastes. IAEA Technical Reports, Series No. 304. International Atomic Energy Agency, Vienna.
- IAEA (2011) Disposal of Radioactive Waste. IAEA Specific Safety Report, IAEA-SSR-5. International Atomic Energy Agency, Vienna.
- IAEA (2012) The Safety Case and Safety Assessment for the Disposal of Radioactive Waste. IAEA Specific Safety Guide, IAEA-SSG-23. International Atomic Energy Agency, Vienna.
- IAEA (2016) World Distribution of Uranium Deposits (UDEPO). IAEA TECDOC Series, IAEA-TECDOC-1843. International Atomic Energy Agency, Vienna.
- Iwatsuki, T., Arthur, R., Ota, K. and Metcalfe, R. (2004) Solubility constraints on uranium concentrations in groundwaters of the Tono uranium deposit, Japan. *Radiochim. Acta*, v.92, p.789-796. doi: 10.1524/ract.92.9.789.54986
- Janeczek, J., Ewing, R.C., Overby, V. and Werme, L. (1996) Uraninite and UO<sub>2</sub> in spent nuclear fuel: a comparison. *J. Nucl. Mater.*, v.238, p.121-130. doi: 10.1016/s0022-3115(96)00345-5
- Jokelainen, L., Markovaara-Koivisto, M., Read, D., Lindberg, A., Siitari-Kauppi, M. and Hellmuth, K.H. (2010) Understanding uranium behavior at the Askola uranium mineralization. *Radiochim. Acta*, v.98, p.743-747. doi: 10.1524/ract.2010.1776
- Ju, Y., Baik, M.H., Lee, S.Y., Lee, K.K., Kaown, D., Shin, D. and Ryu, J.H. (2023) Identifying the origin and fate of dissolved U in the Boeun aquifer based on microbial signatures and C, O, Fe, S, and U isotopes. *J. Hazardous Mater.*, v.459, p.132501. doi: 10.1016/j.jhazmat.2023.132051
- Kanai, Y., Okuyama, Y., Seo, T. and Sakamaki, Y. (1998) Geochemical micro-behaviour of natural U-series in granitic conglomerate from the Tono mine, central Japan. *Geochem. J.*, v.32(6), p.351-366. doi: 10.2343/geochemj.32.351
- KEPCO (2021) Statistics of Electric Power in Korea. Korea Electric Power Corporation, Gimcheon.
- Kim, C.S., Bae, D.S., Koh, Y.K. and Park, B.Y. (2010) A Preliminary Feasibility Study on Natural Analogue in Korea. KAERI technical report, KAERI/TR-1527/2000. Korea Atomic Energy Research Institute, Daejeon.
- Landström, O. and Tullborg, E. (1990) The influence of fracture mineral/groundwater interaction on the mobility of U, Th, REE and other trace elements. SKB technical report, SKB TR 90-37. Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Company, Stockholm.
- Langmuir D. (1978) Uranium solution-mineral equilibria at low temperatures with applications to sedimentary ore-deposits. *Geochim. Cosmochim. Acta*, v.42, p.547-569. doi: 10.1016/0016-7037(78)90001-7
- Law, G.T.W., Geissler, A., Burke, I.T., Livens, F.R., Lloyd, J.R., McBeth, J.M. and Morris, K. (2011) Uranium redox cycling in sediment and biomineral systems. *Geomicrobiol. J.*, v.28(5-6), p.497-506. doi: 10.1080/01490451.2010.512033
- Lee, D.Y., Yun, S., Lee, J.H. and Kim, J.T. (1986) Lithologic and structural controls and geochemistry of uranium deposition in the Ogcheon black-slate formation. *Jour. Korean Inst. Mining Geol.*, v.19, p.19-41.

- MacKenzie, A., Scott, R., Linsalata, P. and Miekeley, N. (1992) Natural decay series studies of the redox front system in the Poços de Caldas uranium mineralization. *J. Geochem. Explor.*, v.45(1-3), p.289-322. doi: 10.1016/0375-6742(92)90128-u
- Miller, W., Alexander, W.R., Chapman, N., McKinley, I. and Smellie, J. (2000) *Geological Disposal of Wastes and Natural Analogues - Lessons from Nature and Archaeology*. Waste Management Series, Volume 2. Pergamon Press, Amsterdam.
- Milodowski, A.E., Alexander, W.R., West, J.M., Shaw, R.P., McEvoy, F.M., Scheidegger, J.M. and Field, L.P. (2015) A Catalogue of Analogues for Radioactive Waste Management. Commissioned report, CR/15/106, Nottingham British Geological Survey, Keyworth.
- NEA (2004) Post-Closure Safety Case for Geological Repositories - Nature and Purpose, NEA report, NEA-3679. Nuclear Energy Agency, Paris.
- Newsome, L., Morris, K. and Lloyd, J.R. (2014) The biogeochemistry and bioremediation of uranium and other priority radionuclides. *Chem. Geol.*, v.363, p.164-184. doi: 10.1016/j.chemgeo.2013.10.034
- Nohara, T., Ochiai, Y., Seo, T. and Yoshida, H. (1992) Uranium-series disequilibrium studies in the Tono uranium deposit, Japan. *Radiochim. Acta*, v.58/59, p.409-414. doi: 10.1524/ract.1992.5859.2.409
- Noseck, U., Brasser, Th., Rajlich, P., Laciok, A. and Hercik, M. (2004) Mobility of uranium in tertiary argillaceous sediments - a natural analogue study. *Radiochim. Acta*, v.92, p.797-803. doi: 10.1524/ract.92.9.797.54972
- NSSC (2013) Regulations on the Criteria of Classification and Clearance of Radioactive Wastes. NSSC notification, No. 2017-65. Nuclear Safety and Security Commission, Seoul.
- Ozaki, T., Kimura, T., Ohnuki, T. and Francis, A.J. (2005) Associations of Eu(III) with Gram-negative bacteria, *Alcaligenes faecalis*, *Shewanella putrefaciens*, and *Paracoccus denitrificans*. *J. Nucl. Radiochem. Sci.*, v.6, p.73-76. doi: 10.14494/jnrs2000.6.73
- Payne, T.T. and Airey, P.L. (2006) Radionuclide migration at the Koongarra uranium deposit, Northern Australia - Lessons from the Alligator Rivers analogue project. *Phys. Chem. Earth*, v.31, p.572-586. doi: 10.1016/j.pce.2006.04.008
- Pedersen, K. (2000) Microbial processes in radioactive waste disposal. SKB technical report, TR-00-04. Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co., Stockholm.
- Pérez del Villar, L., Pelayo, M., Cózar, J.S., De la Cruz, B., Pardillo, J., Reyes, E., Caballero, E., Delgado, A., Nuñez, R., Ivanovich, M. and Hasler, S.E. (1997) Mineralogical and geochemical evidence of the migration/retention processes of U and Th in fracture fillings from the El Berrocal granitic site (Spain). *J. Contam. Hydrol.*, v.26, p.45-60. doi: 10.1016/s0169-7722(96)00057-5
- Pomies, C., Hamelin, B., Lancelot, J. and Blomqvist, R. (2004)  $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  and  $^{238}\text{U}/^{230}\text{Th}$  dating of uranium migration in carbonate fractures from the Palmottu uranium ore (southern Finland). *Appl. Geochem.*, v.19, p.273-288. doi: 10.1016/s0883-2927(03)00134-3
- Quejido, A.J., Pérez del Villar, L., Cózar, J.S., Fernández-Díaz, M. and Crespo, M.T. (2005) Distribution of trace elements in fracture fillings from the "Mina Fe" uranium deposit (Spain) by sequential leaching: implications for the retention processes. *Appl. Geochem.*, v.20, p.487-506. doi: 10.1016/j.apgeochem.2004.09.010
- Robbert, Y., Rosendahl, C.D., Brown, A., Schippers, A., Bernier-Latmani, R. and Weyer, S. (2021) Uranium isotope fractionation during the anoxic mobilization of noncrystalline U(IV) by ligand complexation. *Environ. Sci. Technol.*, v.55, p.7959-7969. doi: 10.1021/acs.est.0c08623
- Schmeide, K., Gürtler, S., Müller, K., Steudtner, R., Joseph, C., Bok, F. and Brendler, V. (2014) Interaction of U(VI) with Äspö diorite: a batch and in situ ATR FT-IR sorption study. *Appl. Geochem.*, v.49, p.116-125. doi: 10.1016/j.apgeochem.2014.05.003
- Scott, R., MacKenzie, A. and Alexander, W. (1992). The interpretation of  $^{238}\text{U}$ - $^{234}\text{U}$ - $^{230}\text{Th}$ - $^{226}\text{Ra}$  disequilibria produced by rock-water interactions. *J. Geochem. Explor.*, v.45(1-3), p.323-343. doi: 10.1016/0375-6742(92)90129-v
- Shin, D. and Kim, S. (2011) Geochemical characteristics of black slate and coaly slate from the uranium deposit in Deokpyeong Area. *Econ. Environ. Geol.*, v.44(5), p.372-386. doi: 10.9719/eeg.2011.44.5.373
- Shin, D. and Kim, S. (2016) PGE distribution in the metalliferous black slates in the Okcheon Metamorphic Belt, South Korea. *Geosciences J.*, v.20(6), p.827-835. doi: 10.1007/s12303-016-0029-6
- Shin, I., Kim, S. and Shin, D. (2016) Mineralogy and sulfur isotope compositions of the uraniumiferous black slates in the Ogcheon Metamorphic Belt, South Korea. *J. Geochem. Explor.*, v.169, p.1-12. doi: 10.1016/j.gexplo.2016.07.008
- SKB (1988) Including summaries of technical reports issued during 1988, SKB Annual report, 88-32, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co., Stockholm.
- Smellie, J.A.T., Karlsson, F. and Alexander, W.R. (1997) Natural analogue studies: present status and performance assessment implications. *J. Contam. Hydrol.*, v.26, p.3-17. doi: 10.1016/s0169-7722(96)00053-8
- Smellie, J.A.T., MacKenzie, A.B. and Scott, R.D. (1986) An analogue validation study of natural radionuclide migration in crystalline rocks using uranium-series disequilibrium studies. *Chem. Geol.*, v.55, p.233-254. doi: 10.1016/0009-2541(86)90027-6
- So, C.S. and Kang, J.K. (1978) Mineralogy and geochemistry of uranium-bearing black slates in the Ogcheon Group, Korea. *J. Geol. Soc. Korea*, v.14(3), p.93-102.
- Steiger, R.H. and Jager, E. (1977) Subcommittee on geochronology: Convention on the use of decay constants in geo- and cosmochronology. *Earth Planet Sci. Lett.*, v.36, p.359-362. doi: 10.1016/0012-821x(77)90060-7
- Stirling, C.H., Andersen, M.B., Warthmann, R. and Halliday, A.N. (2015) Isotope fractionation of U-238 and U-235 during biologically-mediated uranium reduction. *Geochim. Cosmochim. Acta*, v.163, p.200-218. doi: 10.1016/j.gca.2015.03.017
- Stroes-Gascoyne, S. and West, J.M. (1997) Microbial studies in the Canadian nuclear waste management program. *FEMS Microbiol. Rev.*, v.20, p.573-590. doi: 10.1111/j.1574-6976.1997.tb00339.x
- Stylo, M., Neubert, N., Wang, Y., Monga, N., Romaniello, S.J., Weyer, S. and Bernier-Latmani, R. (2015) Uranium isotopes

- fingerprint biotic reduction. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, v.112(18), p.5619-5624. doi: 10.1073/pnas.1421841112
- Suksi, J., Ruskeeniemi, T., Linberg, A. and Jaakkola, T. (1991) The distribution of natural radionuclides on fracture surfaces in Palmottu analogue study site in SW Finland. *Radiochim. Acta*, v.52/53, p.367-372. doi: 10.1524/ract.1991.5253.2.367
- Suutarinen, R., Blomqvist, R., Halonen, S. and Jaakkola, T. (1991) Uranium in groundwater in Palmottu analogue study site in Finland. *Radiochim. Acta*, v.52/53, p.373-380. doi: 10.1524/ract.1991.5253.2.373
- Thiel, K.R., Vorwerk, R., Saager, R. and Stupp, H.D. (1983). Uranium fission tracks and <sup>238</sup>U-series disequilibria as a means to study recent mobilization of uranium in Archean pyritic conglomerates. *Earth Planet. Sci. Lett.*, v.65, p.249-262. doi: 10.1016/0012-821x(83)90164-4
- Tripathi, R.M., Sahoo, S.K., Mohapatra, S., Lenka, P., Dubey, J.S. and Puranik, V.D. (2013) Study of uranium isotopic composition in groundwater and deviation from secular equilibrium condition. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, v.295, p.1195-1200. doi: 10.1007/s10967-012-1992-7
- Ulrich, K.-U., Veeramani, H., Bernier-Latmani, R. and Giammar, D.E. (2011) Speciation-dependent kinetics of uranium(VI) bioreduction. *Geomicrobiol. J.*, v.28(5-6), p.396-409. doi: 10.1080/01490451.2010.507640
- USGS (2010) Analogues to features and processes of a high-level nuclear waste repository proposed for Yucca Mountain, Nevada. Professional Paper 1779. United State Geological Survey, Denver.
- Weber, N., Schorscher, H.D. and Peters, T. (1991) Mineralogy, petrology and geochemistry of the Poços de Caldas analogue study sites, Minas Gerais, Brazil. I: Osamu Utsumi uranium mine. SKB technical report 90-11. Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co., Stockholm.
- West, J.M., McKinley, I.G. and Chapman, N.A. (1982) Microbes in deep geological systems and their possible influence on radioactive waste disposal. *Radioac. Waste Management Nucl. Fuel Cycle*, v.3, p.1-15.