

생지화학적 환원조건에서 우라늄의 침철석 및 몬모릴로나이트에 대한 수착 특성

Sorption Characteristics of Uranium on Goethite and Montmorillonite under Biogeochemical Reducing Conditions

이 승 엽(Seung Yeop Lee)* · 조 혜 루(Hye-Ryun Cho) · 백 민 훈(Min Hoon Baik) ·
정 의 창(Euo Chang Jung) · 정 종 태(Jongtae Jeong)

한국원자력연구원 방사성폐기물처분연구부 및 원자력화학연구부
(Korea Atomic Energy Research Institute, 989 Daedeok-daero, Yuseong-gu, Daejeon 305-353, Korea)

요약 : 산화/환원 반응에 매우 민감한 우라늄의 침철석 및 몬모릴로나이트에 대한 수착 특성을 알아보기 위해 산화우라늄(VI)과 환원우라늄(IV)을 준비하였다. 환원우라늄은 황산염환원박테리아에 의해 황산염이 환원되는 과정에서 같이 환원된 우라늄(IV)을 회석하여 사용하였다. 광물에 대한 우라늄의 수착량은 우라늄(IV)이 우라늄(VI)에 비해 상대적으로 낮았으며, 이러한 원인 중의 하나는 용액상의 우라늄(IV)이 미세한 콜로이드 형태로 존재하여 광물 표면에 대한 수착력이 약했기 때문이다. 투과전 자현미경을 사용하여 우라늄(IV)이 나노 콜로이드의 특징을 가지고 있음을 확인하였고, 이러한 결과는 심부 자연계의 지하수를 따라 이동 가능한 우라늄종이 이온성 우라늄(VI)뿐만 아니라 콜로이드성 우라늄(IV)도 포함될 수 있음을 의미한다.

주요어 : 우라늄, 침철석, 몬모릴로나이트, 황산염환원박테리아, 콜로이드

ABSTRACT : Two kinds of uranium species, oxidized uranium(VI) and reduced uranium(IV), were prepared to be interacted with goethite and montmorillonite to identify sorption characteristic of uranium species, which are very sensitive to the redox-reaction. The reduced uranium was prepared by diluting a substantial uranium(IV) that was concomitantly produced during a sulfate reduction via a sulfate-reducing bacterium. The sorption amount of uranium(IV) by the minerals was relatively lower than that of uranium(VI) because the aqueous uranium(IV) had fine colloidal forms to cause its weak adsorption onto the mineral surfaces. We found that the uranium(IV) phase has a nano-colloid character by the transmission electron microscope, suggesting that the uranium species possibly migrating with the flow of groundwater in underground environments can be the colloidal uranium(IV) as well as the ionic uranium(VI).

Key words : uranium, goethite, montmorillonite, sulfate-reducing bacterium, colloid

*Corresponding author: +82-42-868-4735, E-mail: seungylee@kaeri.re.kr

서 론

토양 하부 및 지하 심부의 지하수를 따라 이동 가능한 우라늄 종들(species)에 관한 연구가 전 세계적으로 수십 년간 진행돼 오고 있다(Abdelouas *et al.*, 1999; Lloyd and Renshaw, 2005; Bargar *et al.*, 2008). 세계 각국에서 운영하는 원전들의 불의의 사고 및 이에 따른 토양오염뿐만 아니라, 원자탄 개발 및 핵폭 실험 등을 통해 야기된 광범위한 오염부지 및 장기간 핵종들의 확산 등에 의한 다양한 환경문제 등이 큰 이슈거리로 대두되고 있다.

네 가지의 우라늄 산화상태(oxidation state) 중에서 지하수를 따라 이동 가능한 우라늄의 산화상태는 우라늄(VI)과 우라늄(IV) 두 종류가 있는데, 이들은 자연계에서 가장 안정한 종들(species)이며 특히 우라늄(VI)에 관한 화학적 기본 특성 등이 많이 연구되어 왔다(Fredrickson *et al.*, 2000; Catalano and Brown, 2005; Bargar *et al.*, 2008). 또한, 수용액상의 pH, 탄산염(carbonate) 농도 및 기타 화학적인 조건에 따라 형성될 수 있는 다양한 용존 우라늄복합체(aqueous uranium complexes) 및 그들의 안정성 등에 관한 많은 연구가 수행되어 왔다(Ollila *et al.*, 1996; Ikeda-Ohno *et al.*, 2009). 현재까지 많은 학자들은 지하수를 따라 이동 가능한 우라늄을 대부분 우라늄(VI)로 생각하고 환경 실험과 모델링 등을 수행하고 있다(Silva and Nitsche, 1995).

하지만, 지하심부 환경과 같은 극환원조건(highly reduced condition)에서는 산화우라늄(VI)뿐만 아니라 환원우라늄(IV)도 존재 가능하기 때문에, 환원우라늄(IV)의 수용액상의 거동에 관한 연구가 반드시 필요하다. 현재까지 환원우라늄(IV)에 관한 연구가 미흡한 이유 중의 하나는 우라늄(IV)가 우라늄(VI)에 비해 용해도가 100배 이상 낮고($10^{-7} \sim 10^{-8}$ M 이하), 대부분 침전광물(예: 우라니나이트(uraninite)) 형태로 존재한다고 믿고 있기 때문이다(Bargar *et al.*, 2008). 뿐만 아니라, 일반 지하수 조건에서 무기화학적으로 용존 환원우라늄(IV)를 만드는 것 자체가 매우 어려워서 우라늄(IV)에 관한 다양한 연구를 불가능하게 하는 요인이 되고 있다(Dreissig *et al.*, 2011).

본 연구에서는 생지화학 반응(biogeochemical reaction)에 의해 산화우라늄(VI)이 환원우라늄(IV)로 변환될 수 있으며, 변환된 환원우라늄(IV)가 용존 형태의 매우 작은 콜로이드(fine colloid) 우라

늄으로 존재 가능성을 실험적으로 증명하였다. 본 실험에서 우라늄(IV)의 생성 촉매로 작용하는 인자는 황산염환원박테리아(SRB) 외에 생물학적으로 만들어지는 ‘맥키나와이트(mackinawite)’ 광물이다. 특히, 생기원(biogenic) 맥키나와이트는 입자가 작고 표면적이 넓을 뿐만 아니라 전자를 수월히 이동시킬 수 있는 금속성의 특징을 가지고 있기 때문에(Kwon *et al.*, 2011), 우라늄의 산화/환원 반응에 직접적으로 참여하고 있는 것으로 보인다.

본 실험에서는 환원조건에서 변환된 우라늄(IV)의 존재에 관한 미시적인 관찰을 포함하여 일반 광물과의 수착실험을 통해 산화우라늄(VI)과 비교하였고, 환원조건에서 산화상태가 다른 우라늄 종들의 이동 특성을 예측하고자 하였다.

실험방법

SRB 배양

황산염환원박테리아인 디설피리칸스(*D. desulfuricans*, ATCC 29577)를 배양하기 위해 다음과 같은 성분을 갖는 배지용액을 제조하였다. 용액 1 L 당 주성분은 NaHCO₃ (2.5 g), NH₄Cl (1.0 g), K₂HPO₄ (0.5 g), MgSO₄ (2.0 g), CaSO₄ (1.0 g), sodium citrate (5.0 g), sodium lactate (3.5 g), yeast extract (1.0 g)이다(Lee *et al.*, 2011a, b). 이 배지용액을 세럼병 100 ml에 분배하여 질소로 퍼징한 후 부틸마개와 알루미늄 캡으로 입구를 봉하였다. 고압멸균시킨 후 5% ferrous ammonium sulfate를 2 mL 추가하고 디설피리칸스를 주입하여 30°C에서 약 1주일간 성장시켰다.

SRB와 황산염 및 우라늄과의 상호반응

배양된 세포는 새로운 세럼병에 단백질 1 mg/L로 주입되었고, 초기 우라늄 농도는 50 μM로 하였다. 배양용액은 NaHCO₃ (30 mM) 버퍼용액을 사용하였으며 전자공여체인 젖산은 10 mM로 주입되었다. 그리고, 전자수용체인 Fe(II)-sulfate (2 mM)와 산화를 방지하는 L-cysteine-HCl (0.25 g/L)가 첨가되었다. 최종적으로 준비된 용액의 pH는 7.3이었다. 실험시작 후 검은색의 황화침전물이 만들어지기 시작하였고 2주 동안 실험을 진행하였다.

광물에 의한 우라늄 수착 특성

우라늄과 두 가지 광물(침철석, 몬모릴로나이트)에 대한 수착반응 실험은 중성 혹은 약알칼리 조건에서 수행하였다. 침철석은 Schwertmann and Cornell (2000)의 문헌을 참고하여 합성하였고, 몬모릴로나이트(SWy-2)는 미국점토학회로부터 시료를 공급받아 사용하였다. 수착에 사용된 바탕용액은 3 mM NaHCO_3 이었고 우라늄은 산화상태가 다른 우라늄(VI)과 우라늄(IV)을 대상으로 하였다. 우라늄(VI) 용액은 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (Aldrich) 시약을 HClO_4 약산에 녹인 저장액으로부터 취하여 3 μM 농도로 만들었다. 우라늄(IV)은 앞선 SRB 환원실험에서 우라늄(VI)을 환원하여 얻을 수 있었는데, SRB 및 황화물과 반응이 끝난 우라늄 용액을 0.2 μm 필터로 여과 및 무산소 증류수로 희석(약 10분의 1)하여 5 μM 우라늄(IV) 용액을 준비하였다. 환원우라늄(IV)의 생성량이 예측량보다 많아 우라늄(VI)의 초기농도(3 μM)와 맞추기 위해 추가 희석이 필요했으나, 초기농도 차이가 크지 않아 우라늄(IV)은 5 μM 로 하였다.

준비된 우라늄 용액과 광물과의 반응은 환원조건에서 48 h 수행되었다. 사용된 광물은 침철석(0.5 g/L)과 몬모릴로나이트(5.0 g/L)였으며, 용액상의 pH는 각각 7.5와 8.4로 유지하였다. 몬모릴로나이트 시료의 경우 용액과 반응하면서 용액상의 pH가 약알칼리로 변하는데, 특별히 산(HClO_4)을 추가하여 중성으로 유지하려고 하지 않았다. 우라늄-광물간의 수착 반응을 위해 120 rpm (25°C)으로 교반하였으며, 필요시마다 2 mL의 용액을 주사기로 취하여 0.2 μm 필터로 여과한 후 ICP-MS를 이용하여 우라늄 농도를 분석하였다. 예비실험에서 세럼병에 대한 우라늄의 수착량은 매우 미미(2% 미만)한 것으로 나타났다.

분석방법

실험 과정에서 형성된 검은색의 침전물과 용액을 취하여 광물 및 흡수분광 분석을 각각 실시하였다. 용존우라늄의 화학종 변환 확인을 위해 상등액을 0.2 μm 필터로 여과하여 UV/Vis 분광분석기(Cary 5, Varian)로 분석하였으며, 분석과정은 Cho *et al.* (2010)에 자세히 기술되어 있다.

실험중에 검은색으로 침전한 황화물을 X-선 회절분석기(XRD)를 이용하여 감정하였고, 침전물을

원심분리(10,000 rpm, 10분)하여 무산소 증류수로 여러 번 세척한 후 글러브 박스(glove box)의 환원 환경(N_2 gas로 충전) 하에서 충분히 건조하여 분석하였다. 시료 분석 전까지 대기 중의 산소에 의한 산화 방지를 목적으로 진공 데시케이터에 질소가스를 충전하여 시료를 운반하였다. 실험실에서 합성한 침철석은 실온에서 건조하여 분말상태로 XRD 감정을 실시하였다. XRD 분석은 Rigaku D/MAX-2500 (Japan) 모델을 사용하였으며, 2 theta 5~55°까지 1°/min의 스캔속도와 0.01 step size로 $\text{CuK}\alpha$ (40 kV/300 mA) 조건에서 분석하였다.

침철석과 몬모릴로나이트의 입자 크기 및 표면 특성을 알아보기 위해 FE-SEM (Hitach, S-4700)을 이용하여 입자 표면을 관찰하였다. 대기 조건에서 분말시료를 홀더에 부착된 탄소 테이프(carbon tape) 위에 고루 문지르고 진공 하에서 OsO_4 를 시료에 분사하여 얇게 코팅(~10 nm)한 후 관찰하였다.

침전 황화물 고체시료의 미세구조를 알아보기 위해 고분해능 투과전자현미경(HR-TEM)을 사용하였는데, 준비 방법은 고체 황화물 시료를 무산소 증류수로 3번 씻은 다음, Caldofix resin으로 굳히고 단단해진 블록을 70-nm의 두께로 잘라 200-mesh 구리 격자망에 올려놓고 관찰하였다. 또한, SRB 및 황화물에 의해 환원 및 변환된 우라늄종의 미세 특징을 관찰하기 위해 질소충전된 글러브 박스 내에서 우라늄 상등액을 0.2 μm 로 여과하고 구리 격자망에서 건조하여 관찰하였다. 사용된 전자현미경은 JEOL JEM 2100F 모델이며 200 kV 가속전압 조건에서 관찰하였다. 또한, 시편의 화학성분을 분석하기 위해 Oxford EDS 시스템 부착장비를 활용하였다.

연구결과 및 토의

SRB에 의한 황화물 형성

세럼병에 주입된 초기 용존황산염(2 mM)은 SRB에 의해 점차 환원되면서 검은색의 황화물로 변하기 시작하였다. 용액상에는 2 mM의 용존철이 있기 때문에 양이온 철과 결합하여 황화철 침전물을 형성하게 된다. XRD 및 TEM 분석을 통하여 확인한 결과 ‘맥키나와이트(mackinawite)’라는 FeS 광물로 판명되었으며 판상형 구조로 결정성이 잘 발달되었다(그림 1). TEM을 통한 FeS 판상구조의 간격(d -spacing)은 0.5 nm를 보여주었다.

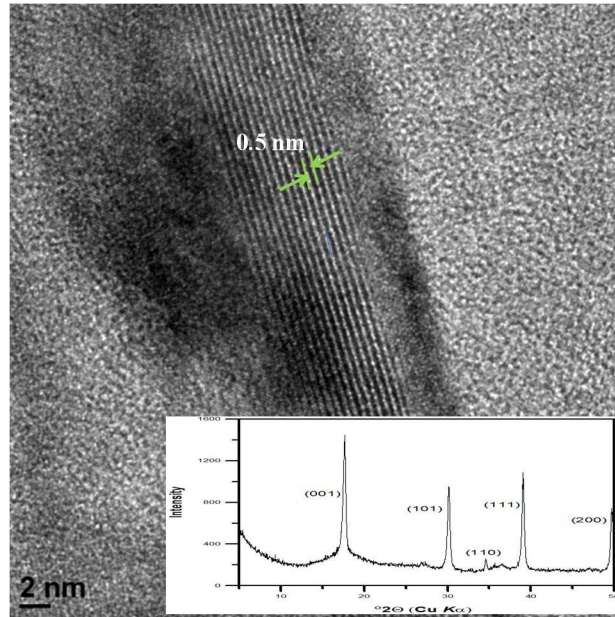


Fig. 1. A HRTEM image of a crystallized mackinawite particle showing 0.5-nm lattice fringes. An inset shows the X-ray diffraction pattern and (hkl) indices for the biogenerated mackinawite precipitates.

용존우라늄의 환원

약 2주 동안의 반응실험 결과 검은색의 황화물 형성 외에 용존우라늄의 환원반응이 진행되었다(그림 2). 초기 용존우라늄은 산화상태의 우라늄(VI)로서, 462 nm 흡수피크를 갖는 $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ 형태의 우라늄(VI)-탄산염복합체(uranium(VI)-carbonate complexes)이다(Lee *et al.*, in review). 하지만, 전자공여체인 젓산이 SRB에 의해 분해되고 전자가 공급되면서 황산염뿐만 아니라 우라늄도 점차 환원되기 시작하였다. 반응실험 2주 후에는 용존우라늄(VI) 대부분이 우라늄(IV)로 환원되어 관찰되었다(그림 2). 환원우라늄은 663 nm 흡수피크를 갖는 우라늄(IV)로 확인되었으며 우라늄 총량의 95% 이상이 우라늄(IV) 형태로 용액상에 존재하였다(나머지 5%는 박테리아와 일부 맥키나와이트 광물에 수착되어 침전된 것으로 보임).

위의 결과는 일반적인 박테리아의 환원 과정과 다른 결과를 보여준다. 지금까지는 금속환원박테리아에 의해 우라늄이 환원될 때, 대부분의 우라늄이 환원 및 침전하여 용액상에 거의 남아있지 않게 된다(Lovley *et al.*, 1991). 이러한 이유는 환원된 우라늄(IV)가 우라니나이트로 광물화될 뿐만 아니라

EPS (extracellular polymeric substances, 세포외중합체)라는 미생물 단백질에 의해 붙잡혀 침전 가능한 형태로 점점 커지기 때문이다(Lee *et al.*, 2010).

무기화학적으로는 환원우라늄(IV)은 μm 이상의 크기를 갖는 고체 형태로 변하여 물속에 존재하지 못하고 대부분 침전하는 것으로 알려져 있다. 이것은 우라늄(VI)과 우라늄(IV)의 용해도가 100배 이상 차이가 나는 원인이기도 하다(Ollila *et al.*, 1996). 하지만, 본 실험에서는 0.2 μm 필터로 여과된 환원우라늄(우라늄 총량의 약 95%)이 UV/Vis 분광분석기에 의해 우라늄(IV)로 확인되었고 대부분 용액상에 존재하였다.

환원우라늄(IV)의 특징

투과전자현미경(TEM)으로 관찰한 환원우라늄(IV)는 주로 20 nm 미만의 콜로이드성 입자로 관찰되었다(그림 3). 또한, 우라니나이트의 특징인 (111)의 0.32 nm *d*-spacing도 관찰되었다. 일반적으로 SRB 단독으로 반응하는 경우에는 박테리아에 의해 환원되어 침전하는 환원우라늄 입자들이 최소 100 nm 이상의 응집된 형태를 갖는다(Lee *et al.*, 2010). 즉, 우라늄(IV)의 기본입자는 2~3 nm 정

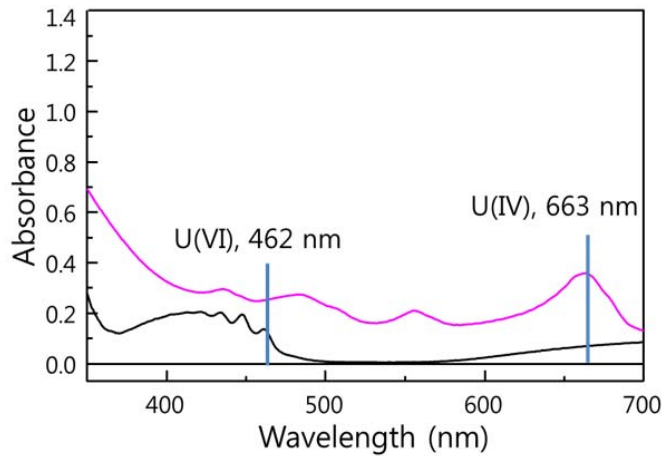


Fig. 2. Spectrophotometric absorption spectra for the filterable U solutions (< 0.2 μm). Black line is the initial U(VI) spectrum, while red line is the reduced U(IV) one after 2 weeks of experiment.

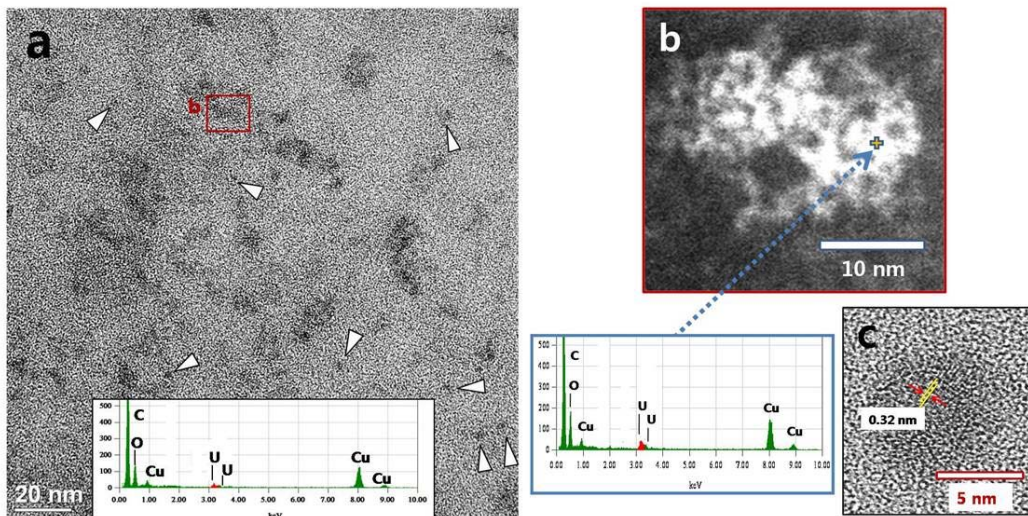


Fig. 3. (a) A HRTEM image showing U nanoparticles. Spearheads indicate single U nanoparticles (< 2 or 3 nm). (b) An enlarged view of a small square in (a) shows a cluster of 1-to 5-nm-sized U nanoparticles. (c) A UO₂ nanocrystal with lattice fringes of ~0.32 nm. Carbon and copper components in the EDS spectrum were derived from the carbon-coated grid used in the HRTEM.

도에 불과하지만 EPS 등에 의해 응집(aggregate) 되면서 점점 큰 형태로 발전하는 것이다.

본 실험에서는 환원우라늄 입자들의 응집이 잘 관찰되지 않고 있는데, 그 이유로 주변의 다량의 황화물 입자들의 작용을 생각해볼 수 있다. 즉, 본 실험에서는 기존의 방법과 다르게 용액상에 철이온이 일정량 존재하고 있으며 황산염이 환원되면서 다량의 철원소를 가진 맥키나와이트가 만들어지고

있기 때문이다. 맥키나와이트는 표면에서 산화/환원반응(redox reaction)을 잘 일으킬 뿐만 아니라, 전자를 잘 전달하는 금속성의 특징도 가지고 있다 (Kwon *et al.*, 2011). 따라서, 박테리아와의 직접적인 반응에 의해 산화우라늄이 환원되기도 하지만, 생기원(biogenic) 맥키나와이트와 간접적으로 반응하면서 많은 양의 우라늄이 환원될 수 있다. 생기원 미립자 광물 표면에서 우라늄의 환원이 진행되

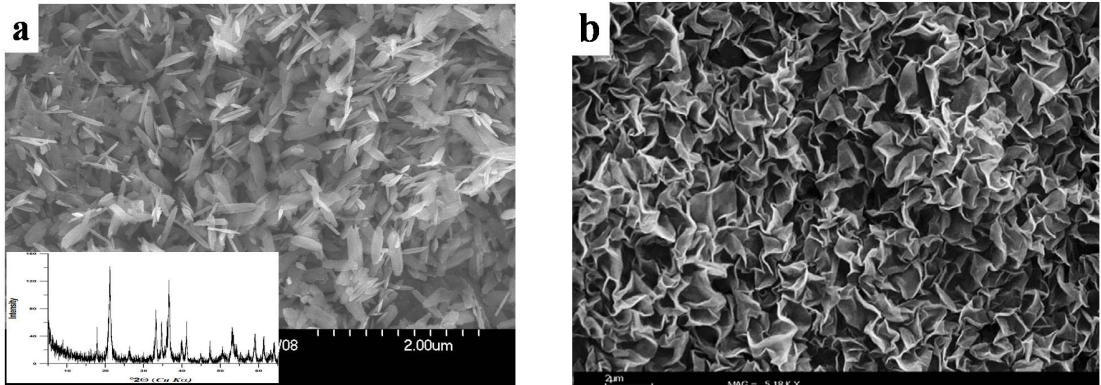


Fig. 4. SEM images of (a) goethite and (b) montmorillonite (SWy-2). An inset in (a) image shows an X-ray diffraction pattern for the synthesized goethite particles.

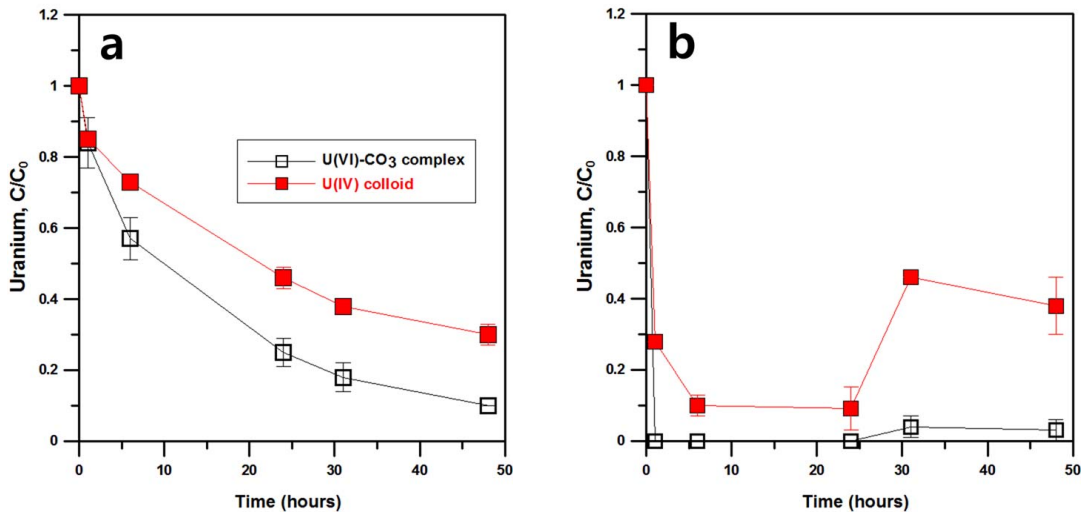


Fig. 5. Adsorption ratios of U(IV) colloid and U(VI)-carbonate phases for the underground noticeable adsorbents, (a) goethite and (b) montmorillonite in the 3 mM NaHCO₃ buffer solution. C₀: initial U concentration; C: residual U concentration.

면 EPS 혹은 기타 유기단백질에 의한 응집 작용이 주도적이지 못할 것이다. 즉, 박테리아의 직접적인 환원작용이 약하기 때문에 환원우라늄과 유기리간드간의 결합 가능성이 줄어들게 된다.

광물에 의한 우라늄 수착 반응

SRB의 활동에 의해 변환된 우라늄의 광물에 대한 수착 특성을 알아보기 위해 두 가지 종류의 광물을 준비하였다(그림 4). 지하 환경 및 암석 단열 (rock fracture)에서 흔하게 볼 수 있는 침철석 및

몬모릴로나이트에 대한 우라늄종들의 수착 특성을 살펴보았다. 본 실험 조건에서 산화우라늄(VI)은 용존 탄산염복합체(aqueous carbonate complexes) 형태이며 광물 표면에 정전기적으로 수착될 수 있다. 반면, 환원우라늄(IV)은 산화수가 다를 뿐만 아니라 대부분 나노 크기의 콜로이드 특성을 가지고 있다(그림 3). 그림 5에서 볼 수 있듯이, 시간에 따른 우라늄의 수착 변화는 우라늄(VI)의 경우 상대적으로 광물에 대한 수착 반응이 활발하고 특히 점토광물인 몬모릴로나이트에 강하게 수착되고 있다. 반면, 우라늄(IV)의 경우 우라늄(VI)에 비해 상대

적으로 수착량이 작다. 다만, 몬모릴로나이트 시료에 대한 우라늄 수착의 경우 24 h 이전에는 점토가 완전히 분산되지 않아 수착 평형값을 보여주지 못하였다. 점토 분산이 완전히 이루어지지 못하면 응집을 이루는 점토들 사이의 공간들(void space)이 발달하게 되어 수착되지 않은 우라늄을 과도하게 가질 수 있다. 전반적으로 우라늄(IV)가 우라늄(VI)에 비해 수착이 약한 것으로 관찰되었다.

위의 실험결과는 우라늄의 산화수 차이뿐만 아니라 용존 형태의 차이가 주는 영향을 고려해 볼 수 있다. 우라늄(VI)의 경우 수용성복합체 형태로 존재하지만, 우라늄(IV)의 경우 작은 콜로이드 형태로 존재하고 있다. 일반적으로 콜로이드는 액상 안정성(stability)이 높아서 토양 및 지하 환경에서 광물 및 암석에 대한 수착이 작고 지하수를 따라 빠르게 이동 및 가속화할 수 있다고 알려져 있다 (Crançon *et al.*, 2010). 즉, 우라늄(IV)가 큰 입자로 침전하지 못하고 매우 작은 콜로이드 형태로 분산된다면 이온성 우라늄(VI)보다 훨씬 더 빠른 지하수 이동성을 보여줄 수 있다. 용해도만 고려한다면 우라늄(VI)이 우라늄(IV)보다 높으나, 콜로이드성 우라늄(IV)는 낮은 수착율과 높은 이동 가능성 때문에 환경적으로는 훨씬 중요한 우라늄종이 될 수 있다. 지금까지는 지하수 용존우라늄은 우라늄(VI)로만 가정하여 실험 및 모델을 수행하여 왔으나, 생지화학반응이 활발한 환경에서는 콜로이드형 우라늄(IV)가 상당히 존재할 가능성도 배제할 수 없다. 향후 우라늄의 농도가 높은 지하현장에 in-situ 분광분석 장치를 갖추어 채취된 지하수에 존재하는 우라늄의 산화상태를 확인하고 실내실험과 비교 및 검증하는 작업이 수행되어야 할 것으로 보인다.

결 론

지하환경에서 우라늄의 지화학적 거동에 관한 연구는 과거 수십 년 전부터 다양한 실험 및 모델을 통해 이뤄져 왔으나, 실내 실험과 현장 실험에서의 결과가 일치하지 않은 경우가 많았다. 특히, 생물학적으로 활성화된 지역(biostimulated sites)에서 관찰된 우라늄의 생지화학적 거동이 실내 실험 결과와 많은 차이를 보여 주었다(Anderson *et al.*, 2003).

본 연구에서는 SRB뿐만 아니라 맥키나와이트 광물에 의한 우라늄의 동시 환원을 수행하고 여기에서 환원된 우라늄(IV)을 산화우라늄(VI)과 비교

하여 광물 수착 특성을 살펴보았다. 지금까지 알려진 바와 다르게, 본 실험조건에서는 환원된 우라늄(IV)의 대부분이 나노 콜로이드 형태였고 용액상에 장기간 부유하는 특성을 보여 주었다. 또한, 침철석 및 몬모릴로나이트에 대한 수착 실험에서 산화우라늄(VI) 보다 상대적으로 낮은 수착율을 보여 주었다. 위와 같은 결과로부터 알 수 있는 사실은 모든 환원우라늄이 항상 응집 및 광물화하여 침전하는 것이 아니고, 경우에 따라서는 매우 작은 콜로이드 형태로 안정화되어 낮은 수착율과 높은 이동성을 가질 수도 있음을 알 수 있다.

사 사

이 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 연구비 지원을 통해 수행되었습니다.

참 고 문 헌

- Abdelouas, A., Lutze, W., and Nuttall, H.E. (1999) Oxidative dissolution of uraninite precipitated on Navajo Sandstone. *Journal of Contaminant Hydrology*, 36, 353-375.
- Anderson, R.T., Vrionis, H.A., Ortiz-Bernad, I., Resch, C.T., Long, P.E., Dayvault, R., Karp, K., Marutzky, S., Metzler, D.R., Peacock, A., White, D.C., Lowe, M., and Lovley, D.R. (2003) Stimulating the in situ activity of *Geobacter* species to remove uranium from the groundwater of a uranium-contaminated aquifer. *Applied Environmental Microbiology*, 69, 5884-5891.
- Bargar, J.R., Bernier-Latmani, R., Giammar, D.E., and Tebo, B.M. (2008) Biogenic uraninite nanoparticles and their importance for uranium remediation. *Elements*, 4, 407-412.
- Catalano, J.G., and Brown, Jr.G.E. (2005) Uranyl adsorption onto montmorillonite: Evaluation of binding sites and carbonate complexation. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 69, 2995-3005.
- Cho, H.R., Jung, E.C., Park, K.K., Song, K., and Yun, J.I. (2010) Effect of reduction on the stability of Pu (VI) hydrolysis species. *Radiochimica Acta*, 98, 555-561.
- Crançon, P., Pili, E., and Charlet, L. (2010) Uranium facilitated transport by water-dispersible colloids in field and soil columns. *Science of the Total Environment*, 408, 2118-2128.
- Dreissig, I., Weiss, S., Henning, C., Bernhard, G., and Zanker, H. (2011) Formation of uranium(IV)-silica

- colloids at near-neutral pH. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 75, 352-367.
- Fredrickson, J.K., Zachara, J.M., Kennedy, D.W., Duff, M.C., Gorby, Y.A., Li, S.M.W., and Krupka, K.M. (2000) Reduction of U(VI) in goethite (α -FeOOH) suspensions by a dissimilatory metal-reducing bacterium. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 64, 3085-3098.
- Ikeda-Ohno, A., Hennig, C., Tsushima, S., Scheinost, A.C., Bernhard, G., and Yaita, T. (2009) Speciation and structural study of U(IV) and -(VI) in perchloric and nitric acid solutions. *Inorganic Chemistry*, 48, 7201-7210.
- Kwon, K.D., Refson, K., Bone, S., Qiao, R., Yang, W. L., Liu, Z., and Sposito, G. (2011) Magnetic ordering in tetragonal FeS: evidence for strong itinerant spin fluctuations. *Physical Review B*, 83, 064402.
- Lee, S.Y., Baik, M.H., Cho, H., Jung, E.C., Jeong, J. T., Choi, J.W., Lee, Y.B., and Lee, Y.J. Abiotic reduction of uranium by mackinawite (FeS) biogenerated under sulfate-reducing condition. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, (in review).
- Lee, S.Y., Baik, M.H., and Choi, J.W. (2010) Biogenic formation and growth of uraninite (UO₂). *Environmental Science and Technology*, 44, 8409-8414.
- Lee, S.Y., Oh, J.M., Baik, M.H., and Lee, Y.J. (2011a) Change of oxidation/reduction potential of solution by metal-reducing bacteria and roles of biosynthesized mackinawite. *Journal of the Mineralogical Society of Korea*, 24, 279-287. (Korean with English abstract).
- Lee, S.Y., Oh, J.M., and Baik, M.H. (2011b) Uranium removal by *D. baculatum* and effects of trace metals. *Journal of the Mineralogical Society of Korea*, 24, 83-90. (Korean with English abstract).
- Lloyd, J.R., and Renshaw, J.C. (2005) Bioremediation of radioactive waste: radionuclide-microbe interactions in laboratory and field-scale studies. *Current Opinion in Biotechnology*, 16, 254-260.
- Lovley, D.R., Phillips, E.J.P., Gorby, Y.A., and Landa, E.R. (1991) Microbial reduction of uranium. *Nature*, 350, 413-416.
- Ollila, K., Olin, M., and Lipponen, M. (1996) Solubility and oxidation state of uranium under anoxic conditions (N₂ atmosphere). *Radiochim. Acta*, 74, 9-13.
- Schwertmann, U., and Cornell, R.M. (2000) *Iron Oxides in the Laboratory* (2nd Ed.), Wiley-VCH, Verlag GmbH, 188p.
- Silva, R.J., and Nitsche, H. (1995) Actinide environmental chemistry. *Radiochimica Acta*, 70, 377-396.

접수일(2012년 12월 14일), 수정일(1차 : 2012년 12월 24일),
 게재확정일(2012년 12월 26일), 책임편집위원 : 노 열