

한국원자력연구원 지하심부 미생물에 의한 용존우라늄 제거 및 광물화 특성

Characterization of Uranium Removal and Mineralization by Bacteria in Deep Underground, Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI)

오 증 민(Jong Min Oh)¹ · 이 승 엽(Seung Yeop Lee)^{1*} · 백 민 훈(Min Hoon Baik)¹ ·
노 열(Yul Roh)²

¹한국원자력연구원 방사성폐기물기술개발부
(Korea Atomic Energy Research Institute, Daejeon 305-353, Korea)

²전남대학교 지구환경과학부
(Earth Systems and Environmental Sciences, Chonnam National University, Gwangju 500-757, Korea)

요약 : 한국원자력연구원 지하처분연구시설의 지하심부에 생존하는 미생물을 이용하여 용존우라늄의 제거 및 광물화에 대한 실험을 실시하였다. 미생물은 철환원박테리아와 황산염환원박테리아로 구분하여 개별적으로 실험을 실시하였으며, 실험 후 X-선 회절분석 및 주사전자현미경을 이용하여 생성광물을 확인하였고 용액상의 농도 변화는 유도결합플라즈마분석기를 이용하여 분석하였다. 철환원박테리아에서는 우라늄과 철이온이 공존할 때, 우라늄보다는 철이온이 선택적으로 환원과정에 참여하였으며, 결과적으로 우라늄의 환원 및 제거가 거의 이루어지지 못하였다. 하지만, 망간이 포함된 조건에서는 상당량의 우라늄 제거 효과가 나타났다. 황산염환원박테리아에서는 철과 망간이 공존할 때, 철이 선택적으로 황과 결합하여 맥키나와이트(FeS)라는 황화광물을 형성하였으며, 망간으로 구성된 황화광물은 만들어지지 않았다. 하지만, 망간이 공존하는 경우에 우라늄의 제거는 훨씬 효과적이었는데, 이는 황화광물에 불순물로 포함된 망간이 우라늄의 흡착 및 포획에 큰 영향을 미치기 때문인 것으로 판단된다.

주요어 : 한국원자력연구원, 미생물, 우라늄, 황화광물

ABSTRACT : Removal and mineralization of dissolved uranium by bacteria in KURT (KAERI Underground Research Tunnel), Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI) was investigated. Two different bacteria, IRB (iron-reducing bacteria) and SRB (sulfate-reducing bacteria) was used, and minerals formed by these bacteria were characterized by X-ray diffraction (XRD) and scanning electron microscopy (SEM). Compared to uranyl ions, ferric ions were preferentially reduced by IRB, showing that there is no significant reduction and removal of uranium. However, uranium concentration considerably decreased by addition of Mn(II). Results show that a sulfide mineral such as mackinawite (FeS) is formed by SRB respiration through combination of Fe(II) and S without manganese sulfide formation. In the presence of Mn(II), however, uranium is removed effectively, suggesting that the sorption and incorporation of uranium could be affected by Mn(II) onto the sulfide minerals.

Key words : KAERI, bacteria, uranium, sulfide mineral

*교신저자: seungylee@kaeri.re.kr

서 론

대부분의 주요 원전국들은 1970~1980년대부터 고준위 방사성폐기물 최종 관리를 위한 정책과 원칙을 결정하고 관련 준비 작업을 지속적으로 추진해왔으며, 이 중 캐나다와 스웨덴같은 나라들은 지하심부 동굴처분방식의 대상지역으로 화강암을 선택하였고, 프랑스 등 다른 나라들은 점토퇴적층을 선택하여 다양한 실험을 수행하여 왔다. 이러한 연구를 바탕으로 지하심부에 원자력 방사성폐기물을 처분할 경우, 지하 암반이 핵종에 대해 매우 훌륭한 자연방벽의 역할을 감당할 것이라는 연구 및 실험 결과들을 내놓고 있다(Koppi *et al.*, 1996; Sato *et al.*, 1997; Murakami *et al.*, 2005; Baik *et al.*, 2008).

방사성 핵종들은 지하심부 지하수의 지화학적 그리고 미생물적 활동에 따라 산화 또는 환원 반응과 같은 화학반응과 그 산물로 다양한 화학종을 가진다. 특히, 미생물의 활동에 의한 핵종들의 생지화학적(biogeochemical) 반응은 최근에 큰 관심을 불러 일으키고 있다. 지하심부 환경인 혐기성 환경하에서 미생물은 산소 대신에 NO_3^- , SO_4^{2-} , Fe^{3+} , Mn^{4+} , U^{6+} , Cr^{6+} 등의 여러 무기이온들을 전자수용체로 이용하여 신진대사 작용을 진행한다(Lovley, 1991; 이종운과 전효택, 2000; Roh *et al.*, 2002). 미생물의 세포벽은 주로 카르복실기(COO), 인산기(PO_4^{3-}) 및 수산기(OH)가 분포되어 있으며(Beveridge and Murray, 1980), 주로 음전하를 띠므로 토양 공극수, 지하수 또는 지표수에 존재하는 용존 양이온 또는 핵종원소와의 상호작용을 통해 흡착 및 침전 등의 반응을 일으킨다(Fredrickson *et al.*, 2000; Suzuki *et al.*, 2002; 이승엽 외, 2009).

지하미생물 중에서 금속환원 미생물이라고 일컫는 혐기성박테리아들은 지하 깊숙한 곳에 생존하고 있으며, 이들은 중금속 혹은 핵종원소들을 환원시켜 용존상태의 이온들을 황화광물 및 기타 금속광물들로 광물화시킬 수 있다. 이와 같이 지하미생물의 대사작용은 특히 핵종원소들의 화학적 존재형태와 거동을 변화시켜 심부 지하매체에서 이들 핵종원소의 이동을 지연 및 차단시킬 수 있는 잠재성을 가지고 있다. 이러한 반응 중에서 과학적 관심사는 지하 심부환경에서 우라늄과 같은 용존 핵종들이 미생물에 의해 용해도가 낮은 광물로 변화되어 지하심부 지질매체에서의 이동성이 획기적으로 감소되는 것이다. 이는 지하심부에 처분되는 방사성폐

기물의 장기안전성과 매우 밀접한 관련성이 있다.

본 연구에서는 한국원자력연구원 지하처분연구시설 내 심부지하수에 서식하는 미생물을 채취하여 핵종에 대한 생지화학(biogeochemistry) 및 광물학적 영향을 살펴보았다. 국내에서는 아직까지 국내에 서식하는 지하미생물을 이용하여 핵종거동 영향 및 실험을 수행한 사례가 거의 없으며, 충분한 데이터도 없는 실정이다. 따라서, 이번 연구는 국내의 지하심부에 자생하는 토종미생물의 핵종에 대한 생지화학적 반응 및 반응산물(광물)에 대한 연구를 구체적으로 수행하는 첫 사례가 될 것이다. 본 실험에 사용된 미생물은 크게 철환원박테리아(IRB)와 황산염환원박테리아(SRB)로 구분하여 실험하였으며, 우라늄의 거동에 미치는 영향을 살펴보고 자연계에 필수적으로 존재하는 망간이 우라늄 환원 및 광물화 과정에 어떤 영향을 미치는지 관찰하였다. 이번 연구는 방사성폐기물처분에서의 미생물의 중요성을 새롭게 인식하게 하고 향후 효과적인 지하미생물 이용방안을 도출하는 것을 목표로 삼고 있다.

실험방법

미생물의 농화배양

한국원자력연구원 지하처분연구시설(KURT)의 지하심부(약 80 m 깊이)를 시추하고 더블패커를 이용하여 지하수를 채수하였다. 혐기성 미생물을 배양하기 위해, 현장에서 산소와의 접촉을 최소화시키면서 미리 준비해간 성장배지에 주사기를 이용하여 지하수를 주입한 후 실험실 내 인큐베이터에서 30°C로 배양하였다.

철환원박테리아의 농화배양을 위해 전자수용체로 Fe(III)-citrate를 이용하였으며, 황산염환원박테리아의 경우 철환원박테리아의 조건과 다르게 전자수용체로 SO_4^{2-} (sulfate)를 주입하였다. 박테리아의 농화배양은 배양액의 색깔 변화 및 침전광물의 형성에 의해 확인할 수 있었다. 자세한 실험과정은 다음과 같다.

성장배지는 미생물에 따라 각기 다르게 준비하였는데, 철환원박테리아의 경우에는 100 mL serum bottle에 3차 증류수 100 mL를 채우고 표 1, 2, 그리고 3의 시약 및 성분을 넣어주었으며, 혐기 환경을 만들어 주기위하여 30분간 질소로 purging하여 밀폐하였다. 철환원박테리아의 성장배지에는 전자공여체로 sodium lactate 10 mM와 전자수용체로

Table 1. Media components for the iron-reducing bacteria

Reagent	g/L
NaHCO ₃	2.5
CaCl ₂ · 2H ₂ O	0.08
NH ₄ Cl	1.0
MgCl ₂ · 6H ₂ O	0.2
NaCl	10
HEPEs	7.2
Yeast Extract (Difco)	0.5
Trace minerals	10 (mL/L)
Vitamins	1 (mL/L)

Table 2. Compositions of ‘Trace Minerals’ in Table 1

Reagent	mg/L
Nitrilotriacetic acid	1,500
FeCl ₂ · 4H ₂ O	200
MgCl ₂ · 6H ₂ O	100
Na ₂ WO ₄ · 2H ₂ O	20
MnCl ₂ · 4H ₂ O	100
CoCl ₂ · 6H ₂ O	100
CaCl ₂ · 2H ₂ O	1,000
ZnCl ₂	50
CuCl ₂ · 2H ₂ O	2
H ₃ BO ₃	5
Sodium molybdate	10
NaCl	1,000
Na ₂ SeO ₃	17
NiCl ₂ · 6H ₂ O	24

Fe(III)-citrate (4 mM)를 추가로 넣어주었다. 황산염환원박테리아의 경우에는 표 4의 3가지 성분을 각기 독립적으로 제조하여 넣어주었는데, 그 이유는 배양액 준비시 성분 간의 상호반응에 의한 침전을 미리 예방하기 위해서였다. 그리고, 위의 성분 외에 황산염 성분(5% Fe(II) ammonium sulfate)을 추가로 2 mL 넣어 주었다. 외부미생물에 의한 오염을 막기 위하여 serum bottle은 JISICO사의 압열 멸균기(98 kPa, 121°C, 15분)로 멸균하였고, 각종

Table 3. Compositions of ‘Vitamin’ in Table 1

Reagent	g (or mL)/L
Biotin	0.02
Folic acid	0.02
B6 (pyridoxine) HCl	0.1
B1 (thiamine) HCl	0.05
B2 (riboflavin)	0.05
Nicotinic acid (niacin)	0.05
Pantothenic acid	0.05
B12 (cyanobalamine) crystalline	0.001
PABA (P-aminobenzoic acid)	0.05
Lipoic acid (thioctic)	0.05

시약 및 성분의 주입시 0.2 µm 필터를 사용하였다.

실험조건

지하수로부터 농화배양시킨 미생물을 실험에 바로 사용하지 않고, 약 1년여 동안 10여 차례의 농화배양을 반복적으로 실시한 후 사용하였다. 이러한 이유는, 초기 지하수에는 미생물들의 개체수 및 종류가 매우 많고 각기 다른 반응 특성들을 가지고 있기 때문에 되도록 미생물의 개체 종류를 최대한 줄이고자 하였다. 물론, 최종적으로 배양하여 획득한 미생물이 단일종은 아니지만, 현장 조건을 대변할 수 있는 대표 미생물들이 될 수 있을 것이다. 즉, 단일 세균보다 현장의 우점종 세균들이 그 현장의 생지화학적 반응특성을 잘 나타낼 수 있으며, 실제로 이러한 복합세균(mixed culture)을 이용한 실험 결과가 현장 특성을 이해하고 생지화학적 거동을 해석하는데 더 중요할 수 있다. 본 실험에서는 철환원박테리아와 황산염환원박테리아 두 가지의 각기 다른 특성의 미생물들을 분리하여 핵종과의 반응 실험을 수행하였다.

그리고, 미생물과 우라늄과의 반응실험에서 용액상의 망간이 생지화학적 반응에 미치는 영향을 알아보기 위하여, 일부 반응용액에 manganese chloride (2 mM)를 넣어주었다. 우라늄은 UO₂(NO₃)₂ · 6H₂O 형태로 5 × 10⁻⁵ M 주입하였다. 최종적으로, 미생물은 철환원박테리아와 황산염환원박테리아를 각각 2.7 mg/L와 1.5 mg/L 단백질량으로 넣어주었다. 그리고, 미생물 자체의 흡착 특성을 알아보기 위해

Table 4. Media components for the sulfate-reducing bacteria

Component I	Component II	Component III
Deionized water 400 mL	Deionized water 200 mL	Deionized water 400 mL
MgSO ₄ 2.0 g	K ₂ HPO ₄ 0.5 g	Sodium lactate 3.5 g
Sodium citrate 5.0 g		Yeast extract 1.0 g
CaSO ₄ 1.0 g		
NH ₄ Cl 1.0 g		

대조군(Control) 시료를 준비하였으며, 조건은 동일하지만 죽인 미생물(100°C에서 30분 가열)이 이용되었다.

분석방법

미생물 반응실험 이후 발생된 침전물들은 X-선 회절분석기(XRD)와 주사전자현미경(SEM)으로 분석되었다. 대부분의 침전물은 황산염환원박테리아의 반응용액에서 만들어진 것들이며, 원심분리(10,000 rpm, 10분)하고 무산소 증류수로 여러 번 세척 후, Glove box의 환원환경하에서 충분히 건조하여 소량의 시료를 분석하였다. 광물 감정을 위해서는 XRD를 이용하였고, 광물의 형태 및 표면 화학분포를 알기 위해 SEM (Hitach, S-4700)과 부착 장비인 EDS를 사용하였다. 용액상에 존재하는 다양한 이온들의 농도 변화를 알기 위해 실험과정 중 필요시마다 약 2 mL의 용액이 채취되었고 유도결합플라즈마분광분석기(ICP-MS)를 이용하여 분석되었다.

연구결과 및 토의

철환원박테리아의 우라늄 제거 특성

한국원자력연구원 지하처분연구시설의 지하심부에 생존하는 미생물을 이용하여 용존우라늄 제거 및 광물화 실험을 실시하였다. 실험용 병에 들어있는 Fe(III)-citrate (구연산철) 때문에 초기에는 노란색을 띠는 용액이 철환원박테리아(IRB)의 환원 기작에 의해 약 2일이 지나면서 Fe(III)가 Fe(II)로 변하고 용액의 색깔이 거의 무색으로 바뀌었다(그림 1b). 하지만, 망간이 일부 주입된 용액의 경우, 망간이온의 영향에 의해 초기 옅은 갈색 빛깔로 시작된 용액이 Fe(III)가 Fe(II)로 변하면서 연노랑색으



Fig. 1. Serum bottles of iron-reducing bacteria (IRB). (a) Mn-IRB, (b) IRB, and (c) Control.

로 바뀌었다(그림 1a). 그리고, 대조군 시료(즉, 죽은 미생물 반응용액)는 옅은 갈색 빛깔(망간 함유)을 처음부터 끝까지 유지하였다(그림 1c).

용존 이온들의 변화를 살펴보면, 초기 철의 농도가 급속히 감소하고 이후 안정을 유지하면서 조금씩 철의 농도가 증가하는 경향을 보인다(그림 2a). 이러한 결과는 Fe(III)-citrate가 미생물 표면과 쉽게 결합하는 것으로 보이며, 특히 구연산인 citrate는 유기물인 C₃H₅O(COO)₃³⁻로 구성되어 있어서 미생물 표면과 쉽게 반응한 것으로 보인다. 특히, 대조군의 경우 시간이 경과하여도 철의 농도에 변화가 없는 반면, 살아있는 철환원미생물(IRB 및 Mn-IRB)의 경우 시간이 지나면서 약간씩 철의 농도가 증가하는 경향을 보여준다. Fe(III)-citrate 자체는 용해성이 있지만 초기 미생물 표면과의 반응때문에 많은 양이 흡착되었고, 흡착된 Fe(III)이 점차 환원되면서 보다 용해성인 Fe(II)로 바뀌어 전체적인 철의 농도가 약간씩 증가되는 것으로 보인다. 하지만, 급속한 용존철의 증가가 관찰되지 않은 이유는 환원된 Fe(II)가 용해성이 높지만 음으로 하전된 미생물

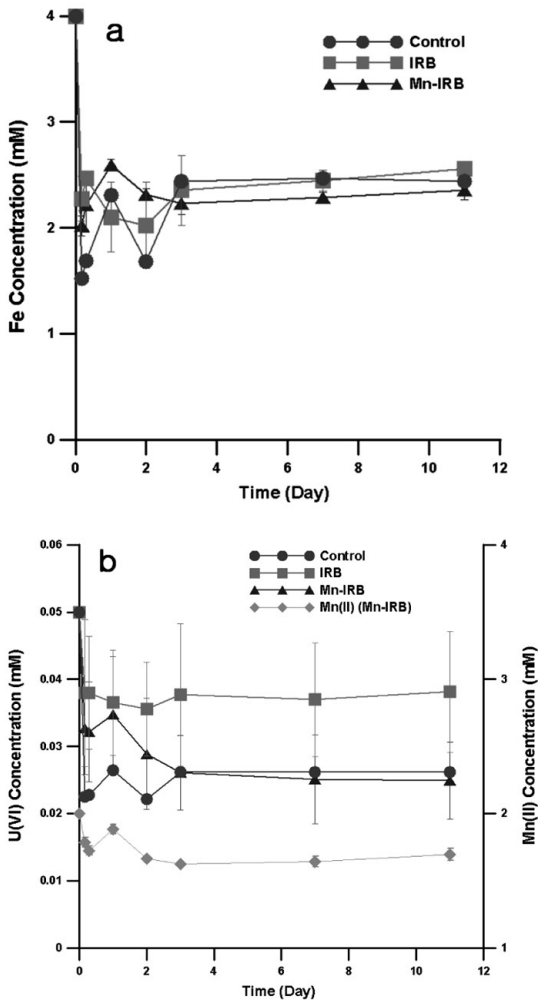


Fig. 2. (a) Variation of Fe concentrations during IRB bioreduction. (b) Removal trends of uranium and manganese ions during IRB bioreduction.

표면의 작용기들과 다시 반응하여 재흡착의 가능성이 있다(Liu *et al.*, 2001; Lee and Beveridge, 2001). 철이온들은 기본적으로 미생물과의 반응에 의해 미생물 표면에 흡착 및 광물화를 이루기 때문에 산화수에 상관없이 많은 양이 흡착될 수 있다(Lee and Beveridge, 2001). 다만, Fe(II) 보다는 Fe(III)-citrate가 산화수 및 결합유기물의 영향 때문에 미생물에 대한 흡착율이 높을 것으로 사료된다.

우라늄의 농도변화에 있어서, 초기 약간의 농도 감소만 있었을 뿐 시간에 따른 지속적인 우라늄의 농도 감소가 관찰되지 않았다(그림 2b). 이러한 결과는 박테리아에 의한 우라늄의 환원 및 광물화가

거의 이뤄지지 않았음을 의미한다. 일반적으로, 철 환원박테리아는 U(VI)를 U(IV)로 환원시켜 uraninite라는 결정체로 광물화시킬 수 있지만(Suzuki *et al.*, 2002), Fe(III)이 전자수용체로 공존하는 조건에서는 우라늄보다 철을 우선적으로 환원시키기 때문에 이러한 기작이 진행되지 않는 것으로 보인다. 반면, Fe(III)이 침철석이나 페리하이드라이트(ferrihydrite)와 같은 광물로 존재할 때에는 철의 환원과 동시에 우라늄도 함께 환원되는 것으로 보고되고 있다(Fredrickson *et al.*, 2000). 이러한 사실은 철의 존재형태의 중요성을 말해주는 결과로, 철이 광물로 존재할 때에는 철이 일차적으로 미생물에 의해 용해된 후 환원되어야 하기 때문에 반응속도도 느리고 쉽게 전자수용체로 이용되기 어렵다. 이러한 경우에는 주변의 산화우라늄이 전자수용체로 같이 참여할 수 있다. 그러나, 본 실험에서는 우라늄과 철이 동시에 환원(전자수용체로 작용)되는 것이 아니고, 용해되어 흡수 가능한 철이 우라늄보다 먼저 선택적으로 환원되는 것으로 보인다. 즉, 살아있는 미생물의 표면에 철이 선택적으로 흡착·반응하여 우라늄의 환원반응이 방해받는 것으로 보인다. 따라서, 본 실험에서 우라늄의 농도는 크게 감소되지 않았다.

그러나, 망간이 공존하는 조건에서는 우라늄의 감소가 다소 두드러졌는데, 이는 살아있는 미생물 표면에 망간의 일부가 흡착 또는 반응하여 철의 선택적인 환원작용이 활성화되지 못하였고, 더불어 우라늄의 일부도 환원반응에 참여한 것으로 보인다. 그 외에, 망간이 우라늄의 결정성장 핵으로 작용하여 우라늄의 광물화를 촉진하는 역할을 수행하였을 가능성이 있다. 이러한 판단은 그림 2b에서 망간이온의 농도변화 패턴과 Mn-IRB의 우라늄 농도변화 패턴이 매우 유사성을 띠는데서 유추할 수 있다. 그리고, 죽은 미생물이 존재하는 대조군 시료의 경우, 초기 급격한 우라늄의 감소가 나타나고 그 이후 큰 변화를 보이지 않았는데, 앞서 활동하는 미생물에 의한 우라늄의 전자수용체의 역할 및 환원 제거와는 다른 기작이 작용된 것으로 보인다. 대조군 시료에서는 철 및 우라늄의 환원작용은 거의 일어나지 않고, 망간이온을 포함하여 용존이온들의 미생물 표면에 대한 단순 흡착만이 지배하게 된다. 따라서, 선택적인 Fe(III) 미생물 흡착 및 환원기작이 주요하지 않고 일부 망간 및 우라늄도 상당량 미생물 표면에 동일하게 흡착될 수 있다(Haas *et al.*, 2001; Gorman-Lewis *et al.*, 2005). 하지만,

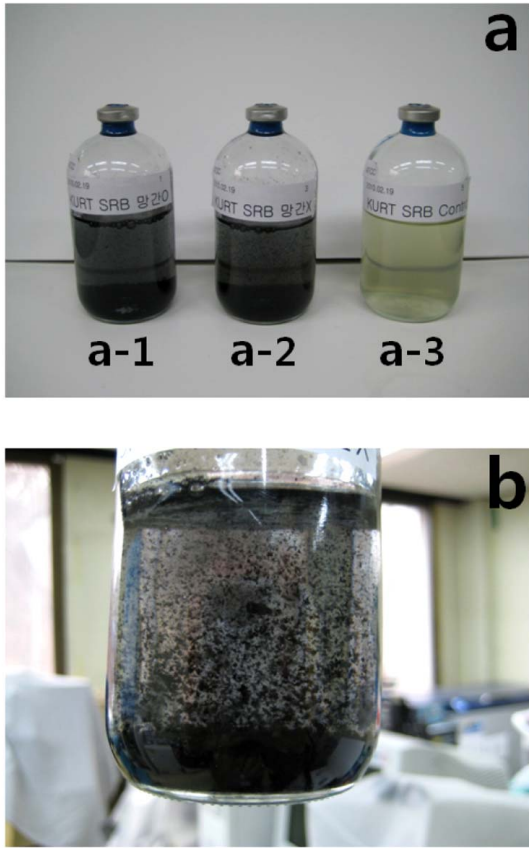


Fig. 3. (a) Serum bottles of sulfate-reducing bacteria (SRB) showing Mn-SRB (a-1), SRB (a-2), and Control (a-3). (b) Enlarged view of SRB precipitates.

이러한 단순 흡착된 우라늄은 환원된 U(IV) 형태가 아니고 초기 용존상태의 U(VI) 형태로 안정한 표면 복합체(surface complexes)를 형성하며 미생물 표면과 결합되어 있을 것이다(Haas *et al.*, 2001; Gorman-Lewis *et al.*, 2005).

황산염환원박테리아의 우라늄 제거 특성

KURT 지하심부 미생물 중에서 황산염환원미생물(sulfate-reducing bacteria)의 용존우라늄 거동에 미치는 영향을 알아보기 위해 황산염(sulfate)이 용해된 조건에서 실험을 실시하였다. 실험 시작 후, 미생물의 활동에 의해 용액상의 변화가 관찰되었으며 처음에는 투명했던 용액이 24시간이 지나면서 점차 검은색으로 변화하였다. 그림 3a에서 볼 수 있

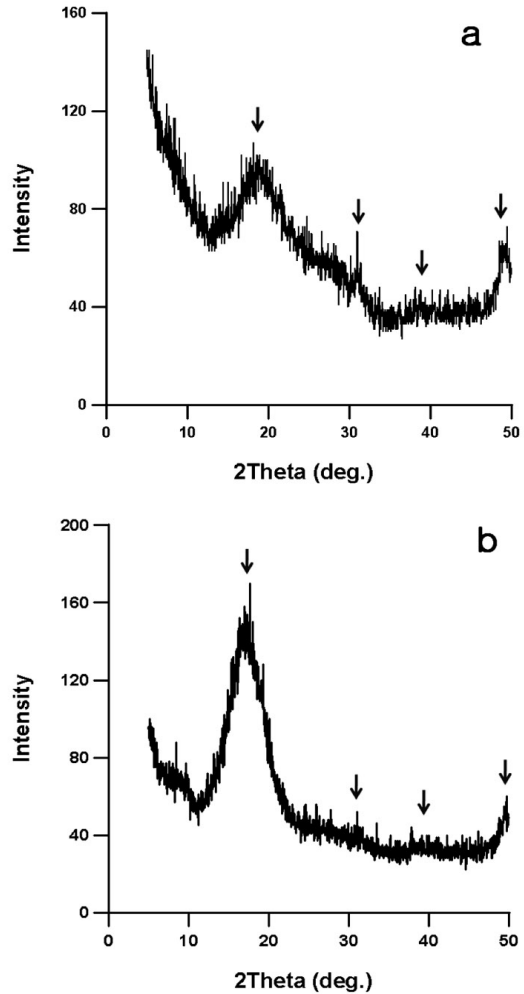


Fig. 4. XRD patterns of (a) SRB precipitates and (b) Mn-SRB precipitates. Arrows indicate main peaks of mackinawite.

듯이, 두 개의 시료병(a-1과 a-2)에서 검은색으로 변한 용액(땅간 함유 시료병 포함)을 확인할 수 있다. 하지만, 대조군 시료에서는 죽은 미생물의 미활동성 때문에 용액의 색깔 변화가 이루어지지 않았다. 그림 3b는 미생물의 활동에 의해 검은색으로 변한 침전물을 확대하여 보여주고 있으며, 관찰자의 육안으로도 확인이 가능할 만큼 검은색의 광물 입자는 수 μm 이상의 큰 결정으로 성장하였다.

그림 4는 이러한 미생물의 활동에 의해 형성된 침전물을 X선 회절분석기(XRD)로 분석한 결과이다. 분석결과에 의하면, 형성된 광물은 mackinawite (FeS)라는 황화광물의 한 종류로 판상구조의 형태

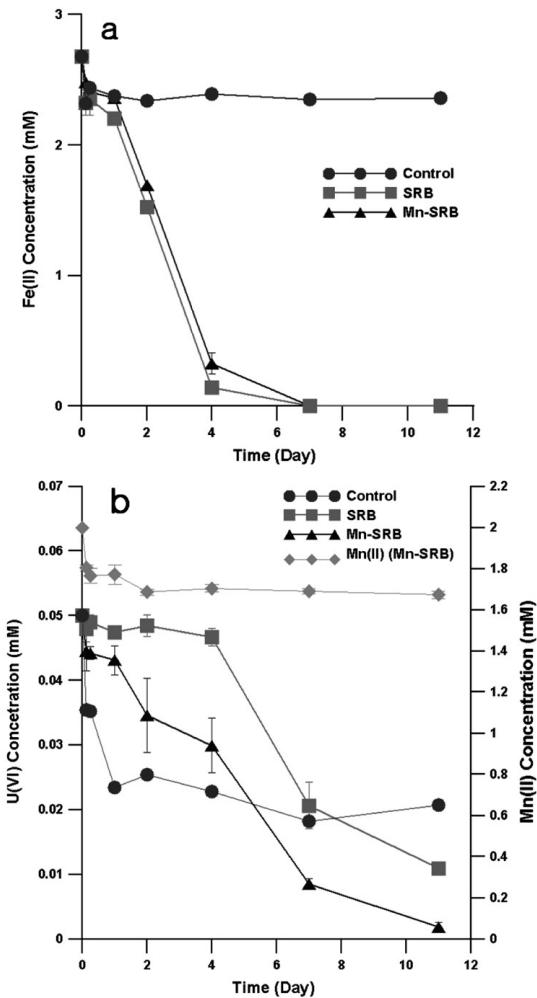


Fig. 5. (a) Variation of ferrous iron concentrations during SRB bioreduction. (b) Removal trends of uranium and manganese ions during SRB bioreduction.

를 지니고 있으며, 황철석(FeS_2)의 선구광물(precursor mineral)로 알려져 있는 광물(Ohfuji and Rickard, 2006)로 판명되었다. 그림에서처럼 낮은 강도(intensity)와 넓은 피크 폭의 X-선 회절패턴은 생성 광물의 낮은 결정성을 암시하고 있으며, 망간이 공존하는 용액에서 특별히 다른 형태의 광물(예: MnS)은 발견되지 않았다(그림 4b). 이러한 사실은 Fe(II) 와 함께 상당량 첨가(2 mM)된 Mn(II) 가 미생물에 의해 황산염과 반응하여 황화광물화 되기가 쉽지 않음을 암시한다. 즉, 용액상에서 철과 망간의 공존시 황산염환원미생물에 의해 망간보다는 철이 선택적

으로 황과 결합되며, 일차적으로 mackinawite라는 황화광물이 먼저 형성되는 것으로 보인다.

황산염환원박테리아에 의해 mackinawite가 형성되면서, 물속에 이온상으로 용존되어 존재하던 Fe(II) 의 농도가 급속히 감소하였다(그림 5a). 미생물에 의해 용존철의 농도가 계속 감소하여 약 일주일만에 대부분의 용존철이 광물화되어 제거되었다. 망간이 존재하는 조건에서도 용존철의 감소가 동일하게 나타났지만 용존철의 감소량은 약간 둔화되었다. 이는, 망간 존재에 의해 용존철의 광물화가 어느 정도 영향을 받고 있음을 알 수 있다. 그리고, 죽은 미생물이 들어있는 대조군 시료에서는 철의 농도가 초기에 약간 감소(~수 백 μM)한 것을 제외하고 거의 변화가 없었다. 이는 물 속에 이온상태로 존재하는 Fe(II) 원소들이 죽은 미생물의 표면에 초기 일부 흡착되었지만 광물화로 전혀 진행될 수 없었기 때문인 것으로 보인다.

미생물에 의해 황화광물이 형성되면서 우라늄의 농도가 점차 감소되었다(그림 5b). 대조군 시료에서는 초기에 상당량의 우라늄 제거가 일어났지만, 그 이후에는 큰 변화(감소)가 없었다. 하지만, 미생물이 활동하는 시료에서는 우라늄의 감소가 초기에는 미약하였지만 실험기간 동안 꾸준히 감소되는 경향을 보여주었다. 이러한 특성은 단순히 우라늄의 미생물에 대한 흡착 뿐만 아니라(이승엽 외, 2009), 우라늄의 환원 및 광물로의 포획(incorporation)과 흡착에 의한 제거 기작이 동시에 작용되었기 때문인 것으로 여겨진다. 살아있는 미생물의 경우, 초기 우라늄의 농도 감소가 두드러지지 못하였는데, 이는 미생물에 대한 우라늄의 흡착이 다른 이온들 때문에 상대적으로 미미했기 때문인 것으로 보인다. 미생물의 활동이 왕성할 때, 용액상의 원소들 중에서 철(부분적으로 망간)이 선택적으로 먼저 미생물과 반응하거나 표면에 흡착된다. 따라서, 초기에는 이러한 원소별 선택성 때문에 상대적으로 우라늄의 흡착 및 제거가 두드러지지 못한 반면, 죽은 미생물은 용액상의 철과의 선택적 반응이 불가능하기 때문에 주변에 존재하는 우라늄도 죽은 미생물 표면에 상당량 흡착될 수 있다. 하지만, 시간에 따른 우라늄의 농도 변화는 거의 일어나지 않는다(그림 5b). 그리고, 망간이 포함된 경우, 미생물에 의한 우라늄의 제거가 훨씬 효과적으로 진행되었다. 앞서 철환원박테리아에서 살펴본 것과 비슷하게, 여기서도 망간이 두 가지의 역할을 감당하였을 것으로 사료된다. 즉, 망간에 의해 철 원소의 미

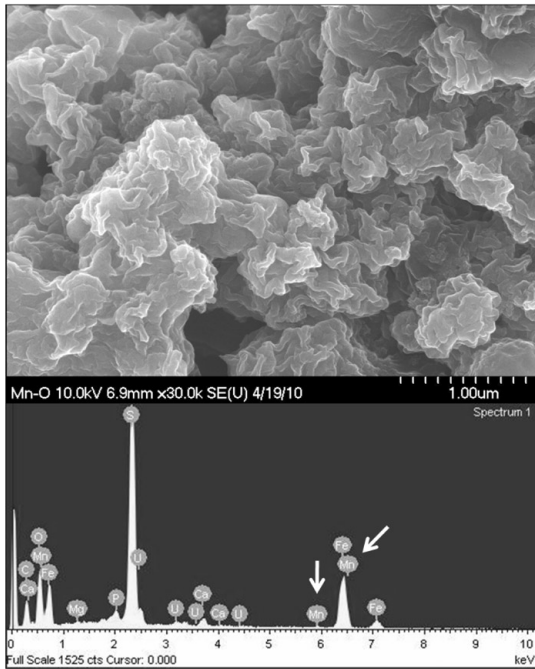


Fig. 6. SEM photomicrograph image and EDS diagram for the mackinawite precipitated from Mn-SRB bioreduction. Arrows indicate Mn component.

생물 흡착 및 광물화가 방해받는 경우와 망간에 의한 우라늄 결정성장 및 황화광물로의 포획이 활성화되는 과정이다. 그림 5b에서 용존망간의 농도가 반응 초기에 감소되는 것은 망간의 일부가 미생물 표면에 상당부분 흡착되기 때문인 것으로 보이며, 철의 흡착은 상대적으로 감소될 수 있다. 그리고, 망간이 공존하는 시료에서 지속적인 우라늄의 감소가 효과적으로 진행되는 것으로 보아, 황화광물이 형성되는 과정에서 불순물로 자리잡은 망간이 우라늄의 황화광물 구조 내의 포획 및 흡착을 활성화시키는 것으로 보인다. 그림 6은 mackinawite의 주사전자현미경 이미지이며, 약간 비정질 판상구조의 굴곡있는 결정형태를 보여준다. 이러한 황화광물에서 EDS 분석결과 소량이지만 망간원소들이 포함된 것으로 확인되고 있으며, 망간을 함유한 mackinawite (FeS)는 순수한 mackinawite에 비해 우라늄의 포획 및 흡착을 보다 효과적으로 수행하는 것으로 나타났다.

위의 결과를 통해, 지하심부 조건에서 철과 함께 소량의 망간원소가 공존할 때, 미생물 활동에 의한 우라늄의 환원 및 제거 과정에서 망간의 영향이 때

우 중요하게 작용될 것으로 판단된다. 망간은 토양 및 지각에 적지 않은 양으로 존재하고 있으며, 금속환원미생물들의 호흡 및 대사 과정에서 전이금속 원소의 일부로 철과 함께 참여하여 핵종 거동에 큰 영향을 끼칠 것으로 사료된다.

결 론

한국원자력연구원 지하심부에서 채취한 지하수에는 철환원박테리아와 황산염환원박테리아가 생존하고 있으며, 우라늄을 환원하여 제거하는 공통점을 가지고 있지만, 제거 기작 및 생성광물의 차이점도 나타나고 있다. 먼저, 철환원박테리아의 경우, 주변에 Fe(III)이 이온상태로 존재할 때 우라늄의 제거가 거의 이루어지지 않았으며, 이는 철과 우라늄이 이온상태로 존재할 때 철이온이 우선적으로 환원된다는 사실을 의미한다. 또한, 망간이 공존할 때 우라늄의 제거량도 같이 늘어나는 것으로 보아, 망간이 우라늄 제거에 촉매역할을 담당하고 있는 것으로 사료된다.

황산염환원박테리아의 경우, 철과 망간이 동시에 공존하는 조건에서 철이 우선적으로 황과 결합하여 mackinawite (FeS)라는 황화광물을 형성하였다. 이는 미생물의 환원작용에서 철이 다른 이온에 비해 선택성이 있다는 것을 보여준다. 하지만, 철과 우라늄만 존재하는 환경보다 망간이 공존하는 조건에서 우라늄의 제거가 훨씬 효과적이었는데, 이는 망간에 의해 우라늄의 흡착 및 광물포획이 훨씬 더 원활하게 이뤄지기 때문인 것으로 보인다.

사 사

본 논문을 검토하고 아낌없는 조언을 주신 이영재 교수님과 김순오 교수님께 감사의 뜻을 전합니다. 본 연구는 원자력연구개발사업의 일환으로 교육과학기술부의 지원을 받아 수행되었습니다.

참고문헌

- 이승엽, 백민훈, 송준규 (2009) 스와넬라균(*Shewanella p.*)에 의한 용존우라늄 제거 특성 및 방사성폐기물 처분에의 응용. *자원환경지질*, 42, 471-477.
- 이중운, 전효택 (2000) 원소의 지구화학적 거동에 미치는 박테리아의 영향: 지구 미생물학의 최근 연구 동향. *자원환경지질*, 33, 353-365.
- Baik, M.H., Lee, S.Y., Lee, J.K., Kim, S.S., Park, C.K.,

- and Choi, J.W. (2008) Review and complication of data on radionuclide migration and retardation for the performance assessment of HLW repository in Korea. *Nucl. Eng. Technol.*, 40, 593-606.
- Beveridge, T.J. and Murray, R.G.E. (1980) Sites of metal deposition in the cell wall of bacillus subtilis. *J. Bacteriol.*, 141, 876-887.
- 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 (alpha-FeOOH) suspensions by a dissimilatory metal-reducing bacterium. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 64, 3085-3098.
- Gorman-Lewis, D., Elias, P.E., and Fein, J.B. (2005) Adsorption of aqueous uranyl complexes onto Bacillus subtilis cells. *Environ. Sci. Technol.*, 39, 4906-4912.
- Haas, J.R., Dichristina, T.J., and Wade, R. (2001) Thermodynamics of U(VI) sorption onto Shewanella putrefaciens. *Chem. Geol.*, 180, 33-54.
- Koppi, A.J., Edis, R., Field, D.J., Geering, H.R., Klessa, D.A., and Cockayne, J.H. (1996) Rare earth element trends and cerium-uranium-manganese associations in weathered rock from Koongarra, Northern Territory, Australia. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 60, 1695-1707.
- Lee, J.U. and Beveridge, T.J. (2001) Interaction between iron and Pseudomonas aeruginosa biofilms attached to Sepharose surfaces. *Chem. Geol.*, 180, 67-80.
- Liu, C., Zachara, J.M., Gorby, Y.A., Szecsody, J.E., and Brown, C.F. (2001) Microbial reduction of Fe(III) and sorption/precipitation of Fe(II) on Shewanella putrefaciens strain CN32. *Environ. Sci. Technol.*, 35, 1385-1393.
- Lovely, D.R. (1991) Dissimilatory Fe(III) and Mn(IV) Reduction. *Microbiol. reviews*, 55, 259-287.
- Murakami, T., Sato, T., Ohnuki, T., and Isobe, H. (2005) Field evidence for uranium nanocrystallization and its implications for uranium transport. *Chem. Geol.*, 221, 117-126.
- Ohfuji, H. and Rickard, D. (2006) High resolution transmission electron microscopic study of synthetic nanocrystalline mackinawite. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 241, 227-233.
- Roh, Y., Moon, H.S., and Song, Y. (2002) Metal reduction and mineral formation by Fe(III)-reducing bacteria isolated from extreme environment. *J. Miner. Soc. Korea*, 15, 231-240.
- Sato, T., Murakami, T., Yanase, N., Isobe, H., Payne, T.E., and Airey, P.L. (1997) Iron nodules scavenging uranium from groundwater. *Environ. Sci. Technol.*, 31, 2854-2858.
- Suzuki, Y., Kelly, S.D., Kemner, K.M., and Banfield, J.F. (2002) Nanometre-size products of uranium bioreduction. *Nature*, 419, 134.

접수일(2010년 5월 12일), 수정일(1차 : 2010년 6월 9일),
게재확정일(2010년 6월 18일)