

미생물 기원 맥키나와이트의 산화 및 용해 특성 연구

Study on the Oxidation and Dissolution Characteristics of Biogenic Mackinawite

이 승 엽(Seung Yeop Lee)* · 백 민 훈(Min Hoon Baik) · 정 종 태(Jongtae Jeong)

한국원자력연구원 방사성폐기물처분연구부

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

요약 : 토양 및 지하수 등의 혐기성환경에 서식하는 황산염환원박테리아의 활동으로 생성되는 맥키나와이트가 용존산소에 의해 산화 및 용해되는 특성을 관찰하였다. 오염지역에 산화지하수 유입에 의한 용존산소량 증가로 인해 안정화된 핵종들(예: 환원우라늄)이 산화 및 용해되는 상황에서 일반적으로 같이 공존하는 황화광물의 역할을 알아보려고 하였다. ‘디설퍼비브리오 디설프리칸스(*Desulfovibrio desulfuricans*)’라는 황산염환원박테리아가 만든 맥키나와이트를 ‘과산화수소수’와 ‘아질산나트륨’으로 산화시키면서 발생하는 광물 용해 현상을 약 2주 동안 관찰하였다. 산화제의 종류에 따라 시료의 광물학적 산화 및 용해 반응 특성은 달랐으나, μm 크기의 황화광물 입자들에 의한 용존산소의 소모와 그에 따른 황산염 농도의 증가로 인해 산화수가 초기에 안정화되었다. 이와 같은 결과로부터 알 수 있는 사실은, 황산염환원미생물에 의해 다량 만들어지는 황화광물이 지하수의 산소를 소모시켜 환원 환경의 교란을 예방할 뿐만 아니라 버려질 물질로써 환원/침전된 핵종들의 장기 안정화에 상당한 기여를 할 것으로 예상된다.

주요어 : 황산염환원박테리아, 맥키나와이트, 황화광물, 산화, 디설퍼비브리오 디설프리칸스

ABSTRACT: We observed characteristic oxidation and dissolution phenomena induced by dissolved oxygen for mackinawite that is produced via sulfate-reducing bacteria (SRB) living in anaerobic environments such as soils and groundwater. We tried to recognize the role of the sulfide minerals that usually coexist with some stabilized radionuclides (e.g., reduced uranium), which can be reoxidized and redissolved by an oxygen-rich groundwater invaded into a contaminated area. The mackinawite produced by ‘*Desulfovibrio desulfuricans*’, a sulfate-reducing bacterium, was conducted to be dissolved for 2 weeks by some oxidants such as ‘hydrogen peroxide’ and ‘sodium nitrite’. Although mineralogical oxidation and dissolution characteristics were different from each other according to the oxidants, the initially oxidized solution was early stabilized through the oxygen consumption by μm -sized sulfide particles and the resultant increase of sulfate in solution. From these results, we can anticipate that the large amount of sulfide minerals generated by SRB can not only repress the anoxic environment to be disturbed by the consumption of oxygen in groundwater, but also contribute to stabilize the reduced/precipitated radionuclides as a buffer material for a long time.

Key words : sulfate-reducing bacteria, mackinawite, sulfide minerals, oxidation, *Desulfovibrio desulfuricans*

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

서 론

황화철(Fe-sulfides)은 담수와 해수의 퇴적물에 풍부히 존재하고 생물학적 기원의 황화철은 미생물에 의해 용존 황산염(sulfate)이 환원되면서 만들어진다. 자연계에서 황화철이 풍부하다는 것은 황화물 생성시 철원소의 중요성을 반영하고 있으며, 또한 황화철에 의해 많은 종류의 금속 이온들이 포획(incorporation)되거나 수착(adsorption)될 수 있다(Raamamoorthy *et al.*, 2006). 그리고, 황산염을 환원시키는 박테리아가 만드는 생합성 황화광물들은 광산 폐수에 녹아 있는 중금속들을 제거하는 데 이용될 수 있다(Kaksonen *et al.*, 2003; Neculita *et al.*, 2007). 또한, 습식제련시 물로부터 특정 금속 이온들을 황화물 형태로 침전시키는 방법도 흥미로운 응용미생물 기술이 될 수 있다(Cao *et al.*, 2009). 이와 같이 미생물을 이용한 다양한 응용 생화학기술은 전자공여체인 유기탄소를 소모하고 용존 황산염을 환원시키면서 효율적으로 금속이온들을 황화물 형태로 바꾸는 과정을 이용하는 것이다.

토양 및 지하심부에 서식하는 황산염환원박테리아(sulfate-reducing bacteria, SRB)는 황산염 및 중금속뿐만 아니라 산화핵종들을 환원시킬 수 있음이 최근 밝혀졌다(Lloyd and Renshaw, 2005). SRB에 의해 산화핵종이 환원되는 기작이 많은 주목을 받고 있는데, 그 이유는 대부분의 산화핵종들은 용해도가 높기 때문에 이들을 환원상태로 바꾸게 되면 용해도가 수십 혹은 수백 배 이하로 떨어지기 때문이다(Lloyd and Renshaw, 2005). 이러한 용해도의 감소는 핵종들의 확산 및 이동성의 감소를 의미하며, 이는 환경오염물의 확산을 억제하는 관점에서 매우 중요한 사안이 된다.

맥키나와이트는 최근 많은 분야에서 다양한 목적으로 합성하여 사용하고 있다. 대부분은 무기화학적 방법으로 합성하고 있으며, 결정 구조 및 화학적 특성 등이 자세히 연구되었다(Ohfuji and Rickard, 2006; Kwon *et al.*, 2011). 하지만, 미생물을 이용하여 맥키나와이트를 합성하는 경우는 흔치 않다(Gramp *et al.*, 2010). 맥키나와이트는 결정성이 발달하면서 점차 그레자이트(greigite, Fe₃S₄) 혹은 황철석(pyrite, FeS₂) 등으로 전이된다고 알려져 있다(Kwon *et al.*, 2011).

국내에서는 본 연구자 등에 의해 SRB를 이용하여 맥키나와이트의 생합성에 성공한 바 있다(Lee *et al.*, 2011a,b). *Desulfovibrio vulgaris* 및 *D. desul-*

furicans SRB 박테리아를 이용하여 물속의 용존 철과 황을 결합하여 FeS (맥키나와이트)를 합성하였고 물의 산화/환원전위 변화 특성 등을 관찰하였다(Lee *et al.*, 2011a). 또한, 국내 지하수에 서식하는 SRB인 *Desulfomicrobium baculatum*을 이용하여 맥키나와이트의 생합성뿐만 아니라 용액상의 용존 우라늄을 동시에 제거하는 실험을 수행한 바 있다(Lee *et al.*, 2011b).

최근 오염된 토양에서 우라늄과 같은 방사성 핵종들의 이동을 억제시키고 고정화하기 위해 다양한 생물학적 방법 등을 활용하고 있다. 주요 기작은 토양 및 암반의 지하수를 따라 이동 가능한 방사성 핵종들을 미생물적으로 활성화(biostimulation)시켜 핵종들을 환원시키고 동시에 광물형태로 고정화시킨다. 이 과정에서 맥키나와이트와 같은 황화광물도 동시에 생합성되고 다량 침전하게 된다. 하지만, 산화지하수(oxygen-rich groundwater)가 침범하여 환원 및 고정화된 핵종들을 재산화(reoxidation) 및 재용해(redissolution)시킬 가능성이 있다(Abdelouas *et al.*, 1999; Bargar *et al.*, 2008). 이러한 경우, 주변에 다량 침전된 황화광물과 같은 환원광물들이 핵종 대신 우선 산화되면서 핵종들의 산화 진행을 상당히 억제시킬 수 있다. 이러한 측면에서 생합성된 황화광물들이 방사능으로 오염된 지역에서 중요한 의미를 가질 것이다.

본 연구에서는 SRB 박테리아에 의해 생합성된 맥키나와이트를 두 가지 산화제와 반응시켜 산화 및 용해 특성을 살펴보았다. 이러한 연구는 국내외적으로 많은 연구가 이뤄지지 않은 실험으로서, 관련 연구들의 중요한 기초 실험 자료가 될 수 있다. 지금까지는 미생물에 의해 환원되어 침전한 우라나이트(uraninite)에 대한 산화/용해 특성만이 연구되어 왔었다(Abdelouas *et al.*, 1999; Senko *et al.*, 2005, 2007). 본 연구에서는 산화된 맥키나와이트의 표면 변화뿐만 아니라 용존 철 및 황산염의 시간에 따른 변화를 관찰하여, 현장 조건에서 일어날 수 있는 지화학적 광물산화 현상을 간접적으로 이해하고자 하였다.

실험방법

맥키나와이트의 생합성

맥키나와이트 생합성을 위해 SRB 미생물인 *D. desulfuricans* (ATCC 29577)를 이용하였다. 배지

조성은 Oh *et al.* (2010)에 기술된 방법으로 준비하였고, 모든 실험 과정 및 시료 준비는 글로브박스(N₂:CO₂ = 80:20) 안에서 수행하였다. 황화광물을 합성하기 위해 세럼병(serum bottle) 배지에 *D. desulfuricans*를 약 1 mL 접종하고 교반없이 항온기에서 30°C를 유지하며 3일간 배양하였다. 미생물이 성장하면서 용액의 색이 투명 빛깔에서 점점 진한 검은색으로 변화하였으며, 육안으로 확인될 정도의 입자 크기(μm size)로 성장하면서 세럼병 바닥에 침전하였다. 맥키나와이트 침전용액을 50-ml 원심튜브에 옮겨 담고 원심분리기를 이용하여 4,000 rpm으로 5분간 원심분리한 후, 상등액을 버리고 무산소 증류수로 다시 채운 후 동일한 과정을 3번 반복하였다. 위의 과정을 통해 순수한 맥키나와이트 침전물을 얻고 혹시 생존할 수 있는 미생물을 멸균하기 위해 세럼병을 80°C에서 10분간 가열한 후 자외선에 약 20분간 노출하였다.

맥키나와이트 산화/용해 실험

앞서 준비된 순수 맥키나와이트를 무산소 증류수 100 ml당 10 mg의 양으로 세럼병에 주입하고 부틸마개 및 알루미늄 캡으로 봉하였다. 산화제로 사용될 시약으로는 과산화수소수(H₂O₂)와 아질산나트륨(NaNO₂)을 사용하였으며, 저장액(stock solution)으로 각각 350 ppm과 616 mM을 준비하였다. 과산화수소수의 경우 0.35 ppm 농도로 준비하였고 아질산나트륨의 경우 6 mM과 60 mM 두 가지 종류로 실험하였다. 실험은 2주 동안 수행하였으며 세럼병을 120 rpm으로 계속적으로 교반하였다. 7일째 되는 날에 동일한 산화제를 초기 농도 조건으로 한 번 더 주입하면서 맥키나와이트의 산화 특성 변화를 살펴보았다.

분석방법

실험기간 동안 세럼병으로부터 필요시마다 주사기를 이용하여 2 ml씩의 용액을 채취하였고 0.2- μm 필터로 여과한 후, 유도결합플라즈마분광분석기(ICP-MS)를 이용하여 Fe 농도 변화를 분석하였다. SO₄²⁻ 농도는 이온크로마토그래피(761 Compact IC, Metrohm)를 이용하여 분석하였으며, 사용된 컬럼은 Metrosep A Supp 5 150/4.0으로 다음과 같은 용리액(3.0 mM Na₂CO₃ + 1.0 mM NaHCO₃)과 유량(0.7 ml/min)으로 조절하였다. 실험이 끝난 후

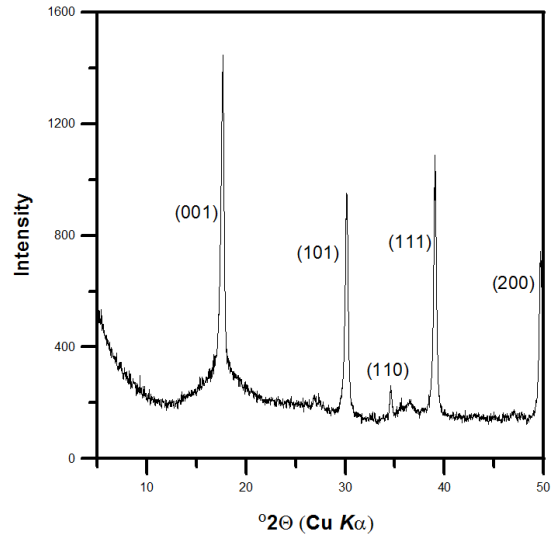


Fig. 1. X-ray diffraction pattern for the Fe-sulfide that was precipitated from the SRB-containing medium. The XRD peak positions and (hkl) reflections are identical with those of ‘mackinawite’.

남아있는 고체 침전물은 글로브박스 내에서 질소가스를 이용하여 충분히 건조하여 광물학적 분석을 실시하였다.

미생물 배양과정에서 생성된 맥키나와이트 침전물은 X-선 회절분석기(XRD)를 이용하여 결정질의 상태를 분석하였다. 침전물은 원심분리(10,000 rpm, 10분)하고 무산소 증류수로 여러 번 세척한 후, Glove box의 환원환경(N₂ gas로 충전) 하에서 충분히 건조하였다. 시료 분석 전까지 대기 중의 산소에 의한 산화 방지를 목적으로 진공 데시케이터에 질소가스를 충전하여 시료를 운반하였다. XRD 분석은 Rigaku D/MAX-2500 (Japan) 모델을 사용하였으며, 2 theta 5~55°까지 1°/min의 스캔속도와 0.01 step size로 CuK α (40 kV/300 mA) 조건에서 분석하였다.

산화된 맥키나와이트 광물의 형태 및 표면 변화를 관찰하기 위해 FE-SEM (Hitach, S-4700)을 이용하였다. FE-SEM 관찰을 위해서 시료를 질소 충전 진공 데시케이터로 운반하였으며, 운반된 시료를 홀더에 부착된 탄소 테이프(carbon tape) 위에 고루 분산시키고 진공 하에서 OsO₄를 시료에 고루 분사하여 얇게 코팅(~10 nm)한 후 관찰하였다. 화학분석을 위해서는 부착장비인 EDS (Horiba, EMAX)를 사용하였다.

연구결과 및 토의

맥키나와이트 생합성

본 실험에서는 SRB 미생물을 이용하여 철과 황산염을 환원하여 황화철 광물로 결정 및 침전시켰다. 처음에는 수 nm 크기의 비정질 형태로 생성되었고 무수히 많은 입자들은 쉽게 가라앉지 않고 장시간 부유하면서 짙은 검은색의 용액 빛깔을 띠었다. 그리고, 점차 황화철 입자가 성장하고 결정화되면서 세럼병 바닥과 벽면에 침전하기 시작하였다. 실험이 종결된 후 결정체로 성장한 맥키나와이트의 XRD 회절 패턴은 그림 1과 같이 관찰되었다. 뚜렷한 회절패턴과 날카로운 회절선은 생합된 맥키나와이트의 결정이 잘 성장되었음을 의미한다. 맥키나와이트는 c축 방향으로 0.5 nm의 두께를 갖는 판형구조이며 본 실험에서도 (001) 회절강도가 높게 나타나고 있다. 맥키나와이트는 c축보다는 a, b축 방향으로 결정이 성장하는 데 유리하며, 결정의 두께가 두껍지 않아 점토광물인 스멕타이트와 같은 특징을 보인다(Lee *et al.*, 2011a).

맥키나와이트의 산화/용해 특성

본 연구에서는 산화제로 과산화수소수와 아질산나트륨을 사용하였는데, 이러한 산화제는 지하 환경의 산화 현상을 모사하는 산화제로 많이 사용되고 있다(Senko *et al.*, 2005, 2007). 특히, 아질산나트륨은 오염 지하수 환경에서 흔히 관찰되는 성분의 한 종류로서, 본 실험의 결과가 자연계에서 일어나는 현상을 이해하는 데 많은 도움을 줄 것으로 여긴다. 과산화수소수와 아질산나트륨에 의해 산화되는 맥키나와이트는 산화제에 따라 용해되는 특성이 달랐다. 먼저, 맥키나와이트로부터 용출되는 Fe의 거동을 살펴보면, 과산화수소수와 반응한 맥키나와이트에서는 Fe가 꾸준히 용출되면서 용액상의 농도도 같이 증가하였다(그림 2). 하지만, 아질산나트륨에 의해 산화되는 경우 높은 농도의 산화제보다 오히려 낮은 농도에서 Fe 용출량이 더 많았다. 초기에는 60 mM 농도의 아질산나트륨에서 Fe 용출량이 높았지만 시간이 지나면서 점차 감소하였다. 물론, 6 mM 산화 농도 조건에서도 후반기에는 Fe 농도 감소가 관찰되었다. 아질산나트륨에 의해 산화되는 맥키나와이트는 용해와 더불어 Fe도 산화되는 것으로 보인다. 즉, 광물구조에서 Fe(II)로

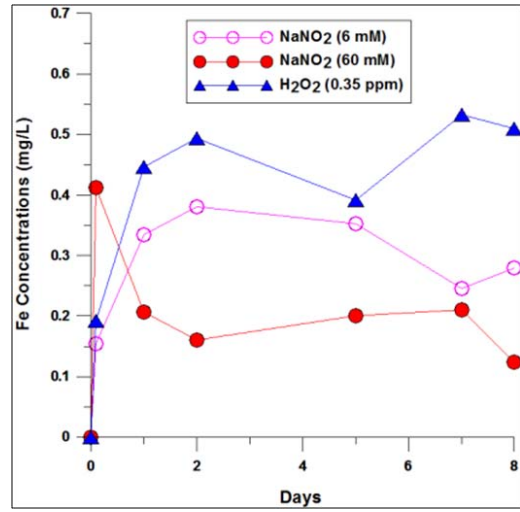


Fig. 2. Concentration curves of iron that was released from mackinawite with time as it contacted with H₂O₂ (0.35 ppm) and NaNO₂ (6 and 60 mM) oxidants.

존재하던 철원소가 아질산나트륨에 의해 용해되면서 Fe(III)로 산화되고 산화된 철은 용해도가 감소하여 침전물을 형성하기 때문에 용존철의 농도는 계속 감소하는 것으로 보인다. 반면, 과산화수소수에 의해 산화되는 경우에는 용해되는 Fe(II)가 쉽게 Fe(III)로 바뀌지 않아 물 속의 용존 철의 농도가 감소하지 않고 조금씩 증가하는 것으로 보인다. 이러한 결과는 산화제의 종류에 따라 맥키나와이트의 용해 특성이 다름을 의미한다.

황산염의 농도 패턴을 관찰해보면(그림 3), 과산화수소수의 경우에 황산염의 농도가 감소하지 않고 꾸준히 증가하였다. 아질산나트륨의 경우에도 60 mM 산화제에서는 황산염의 농도 증가율이 높았고 6 mM에서는 황산염 농도가 시간에 따라 큰 변화가 없었다. 이러한 결과는 산화제의 농도가 높을수록 광물로부터 용출되는 황산염의 양이 증가할 가능성이 높다는 것을 의미한다. 하지만, 산화제의 초기 농도와 정비례하여 황산염의 용출 농도 규모가 결정되지 않았다.

실험 후 맥키나와이트 세럼병을 관찰해보면, 과산화수소수와 반응한 맥키나와이트의 경우 검은색의 작은 입자들이 부유해 있는 것을 볼 수 있는데, 입자들이 매우 작아서 쉽게 가라앉지 못하고 장기간 부유상태로 존재하였다(그림 4). 아질산나트륨의 경우 세럼병 용액 색깔이 옅은 갈색으로 변하였

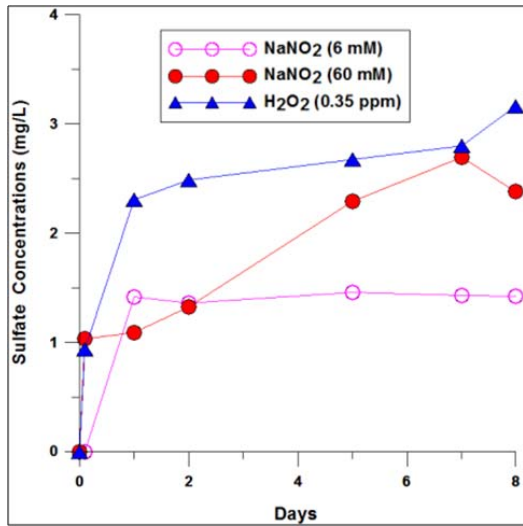


Fig. 3. Concentration curves of SO_4^{2-} that was released from mackinawite with time as it contacted with H_2O_2 (0.35 ppm) and NaNO_2 (6 and 60 mM) oxidants.

고 60 mM 조건에서는 색의 농도가 훨씬 진하였다. 이러한 사실은 맥키나와이트로부터 용출된 많은 양의 Fe(II) 성분이 Fe(III)로 산화되어 존재함을 의미한다. 또한, 용존 Fe(III)의 낮은 용해도 및

침전 등의 영향으로 인해 시간이 지남에 따라 용존 Fe 농도가 점차 감소하는 그림 2의 분석 데이터(아질산나트륨)와 잘 일치한다.

산화 맥키나와이트의 광물학적 특징

주사전자현미경(SEM)을 사용하여 최종적으로 반응이 끝난 맥키나와이트의 미세적인 표면 구조 및 형태 변화를 관찰하였다(그림 5). 과산화수소수와 반응한 시료의 경우 입자들이 서로 분리되어 있는 부분이 많았고, 특히 크고 작은 입자들(μm 크기 이하)이 많이 관찰되었다(그림 5a). 작은 입자들은 콜로이드성 특징을 보이며 맥키나와이트 표면과 접촉하고 있었다. 그림 4에서 관찰한 짙은 검은색의 부유물들이 전자현미경상에서 관찰되는 작은 콜로이드성 입자들과 연관성이 있어 보인다. 콜로이드성 크기의 작은 입자들은 쉽게 가라앉지 않고 용액상에서 안정적으로 부유하며 존재할 수 있다.

아질산나트륨으로 산화된 시료의 경우, 낮은 농도(6 mM)에서는 맥키나와이트의 가장자리가 부분적으로 용해된 흔적들이 관찰되었다(그림 5b). 시료의 입자들이 대체로 덩어리 형태로 엉키거나 뭉쳐있는 형태를 보여주었다. 높은 농도(60 mM)의 경우에는 낮은 농도와는 다르게 입자들의 용해

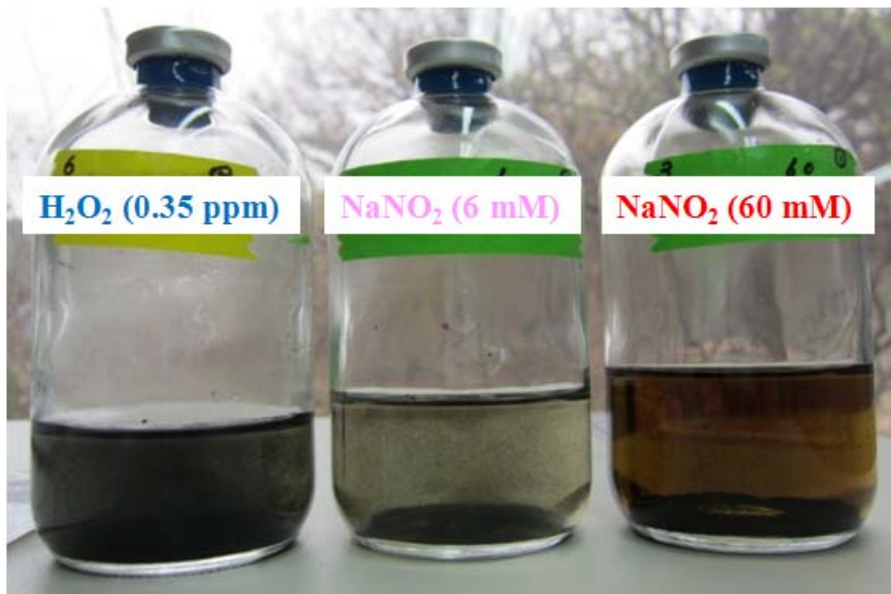


Fig. 4. Color changes of mackinawite suspension by H_2O_2 (0.35 ppm) and NaNO_2 (6 and 60 mM) oxidants. A black color (left) is seen at the serum bottle with H_2O_2 oxidant.

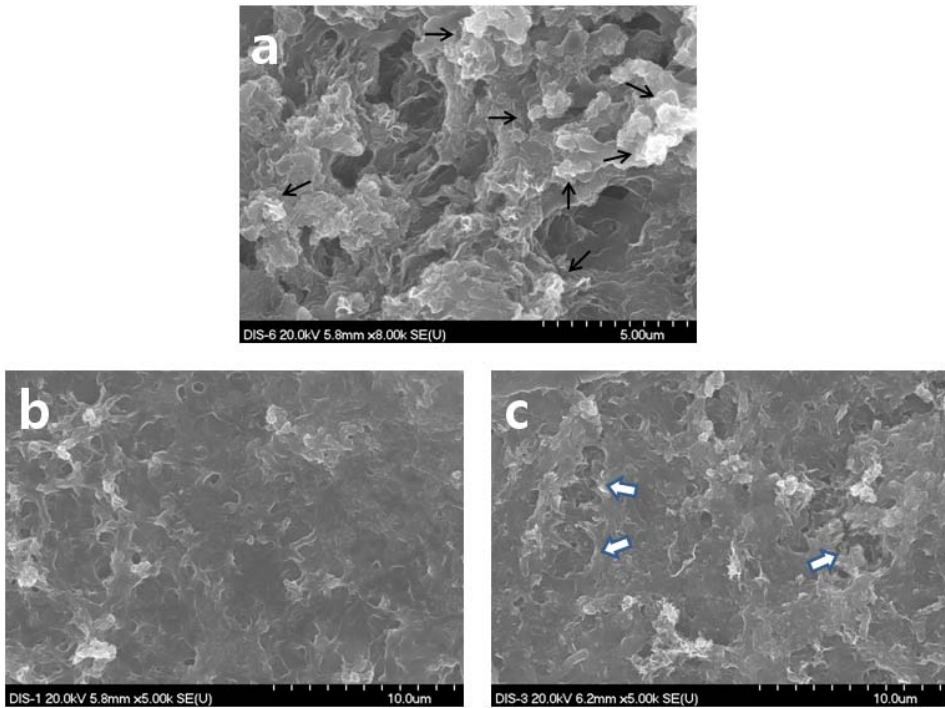


Fig. 5. SEM images of mackinawite that was oxidized with (a) H_2O_2 (0.35 ppm), (b) NaNO_2 (6 mM), and (c) NaNO_2 (60 mM). Thin arrows in (a) show very small colloidal particles of FeS, and thick arrows in (c) exhibit largely corroded-pits on mackinawite surface.

현상이 두드러졌고 강하게 패인 특징적인 형태도 관찰되었다(그림 5c). 그리고, 맥키나와이트 표면에서 부분적으로 Fe가 용탈되어 결정이 파괴되거나 S 함량이 상대적으로 높은 곳들이 관찰되었다. 그림 4에서 아질산나트륨과 반응한 시료 용액의 색깔이 육안상으로 짙은 갈색으로 관찰된 것처럼, Fe 성분들이 선택적으로 더 쉽게 용출되어 산화되어 가는 것으로 보인다.

산화에 대한 버퍼광물로서의 역할

본 실험에서 수행된 생기원 맥키나와이트의 산화에 대한 광물학적 반응 특성을 종합해 보면, 광물 산화에 의해 용출된 이온(예: 황산염)의 농도는 산화제의 농도와 정비례하지는 않았다(그림 3). 아질산나트륨의 경우, 초기 산화제의 농도가 10배 이상 차이가 났지만 실제적으로 황산염의 용출 농도는 2배 정도 밖에 차이가 나지 않았다. 또한, 실험 시작 7일째에 산화제가 추가로 주입되었지만 용출

이온들의 농도 변화는 그리 크지 않았다(그림 2, 3). 이러한 결과는 광물 표면이 산화될 때 광물에서 산화되기 쉬운 위치와 자리(sites) 등이 한정되어 있고 초기에 빠르게 반응한 이후 시간이 지나면서 이차침전물 생성 등의 방해를 받는 것으로 보인다. 즉, 장시간 반응한 광물보다는 미생물에 의해 새롭게 생성되는 광물이 훨씬 산화의 영향을 최소화시키는데 중요한 역할을 하는 것으로 보인다.

자연계에서 산화지하수의 유입에 따른 혐기성 지화학계(anaerobic geochemical system)의 교란은 안정하게 존재하고 있던 핵종들의 거동에 큰 변화를 일으킬 수 있다(Ulrich *et al.*, 2008, 2009). 따라서 지하수, 토양 및 퇴적물 등에 생존하는 SRB 미생물들이 만드는 나노 혹은 마이크로 크기의 황화광물 입자들은 예기치 않게 발생하는 산화와 그에 따른 지화학적 교란을 최소화시키는데 중요한 역할을 할 것으로 예상된다.

결 론

토양, 암반, 그리고 지하수 등 혐기성 환경에서 일어나는 지하화학적 현상을 전부 이해하기는 매우 어렵다. 특히, 지하미생물이 관여하는 생지화학 반응은 매우 복잡하여 난해한 부분이 많다. 최근 세계적으로 방사능으로 오염된 토양 및 지하수를 현지(in-situ) 생존 지하미생물을 이용하여 조절하거나 핵종 확산을 방지하고자 하는 노력 등을 하고 있다. 대부분의 방사성 핵종들은 환원되면 용해도가 감소하고 침전하는 경향이 강하다. 이러한 화학적 특성을 고려하여 미생물을 이용한 방사성오염 부지의 핵종 고정화방법이 각광을 받고 있지만, 산화 지하수 유입 등과 같은 갑작스런 환경변화에 의한 교란 등은 충분히 고려되어야 한다.

본 연구에서는 지하미생물 중의 하나인 *D. desulfuricans*를 이용하여 맥키나와이트 광물을 합성하고 이 광물이 주변 환원 핵종들의 재산화를 예방하는 버퍼로서의 기능 및 특성이 있는지를 알아보고자 하였다. 산화지하수를 모사하기 위해 과산화수소수와 아질산나트륨을 사용하였고 산화제의 종류 및 농도차에 의한 맥키나와이트의 산화 특성을 관찰하였다. 산화제에 따라 맥키나와이트의 입자들이 작게 분리(예: 과산화수소수의 경우)되거나 광물 구성 성분들이 선택적으로 용탈 및 산화(아질산나트륨의 경우)되기도 하였다. 그리고, 광물과의 산화반응은 초기에 매우 빠르고 이후 점차 느려지는 경향을 보였다. 이것은 새롭게 생성되는 μm 크기의 황화물 입자들이 효과적으로 지하 산화수를 환원시킬 수 있다는 것을 의미한다. 즉, 지하에 생존하는 SRB 미생물들의 활동과 지속적인 황화물 생성 능력 등에 의해 지하 환경의 평형상태가 장기간 유지되고 조절되는 것으로 보인다.

사 사

본 논문을 검토해 주시고 좋은 조언을 주신 익명의 심사자에게 감사드립니다. 이 연구는 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 연구비 지원을 통해 수행되었습니다.

참고문헌

Abdelouas, A., Lutze, W., and Nuttall, H.E. (1999) Oxidative dissolution of uraninite precipitated on Navajo Sandstone. *J. Contamin. Hydrol.*, 36, 353-375.

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.

Cao, J., Zhang, G., Mao, Z., Fang, Z., and Yang, C. (2009) Precipitation of valuable metals from bioleaching solution by biogenic sulfides. *Miner. Eng.*, 22, 289-295.

Gramp, J.P., Bigham, J.M., Jones, F.S., and Tuovinen, O.H. (2010) Formation of Fe-sulfides in cultures of sulfate-reducing bacteria. *J. Hazard. Mater.*, 175, 1062-1067.

Kaksonen, A.H., Riekkola-Vanhanen, M.L., and Puhakka, J.A. (2003) Optimization of metal sulphide precipitation in fluidized-bed treatment of acidic wastewater. *Water Res.*, 37, 255-266.

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. *Phys. Rev. B*, 83, 064402.

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. *J. Miner. Soc. Korea*, 24, 279-287.

Lee, S.Y., Oh, J.M., and Baik, M.H. (2011b) Uranium removal by *D. baculatum* and effects of trace metals. *J. Miner. Soc. Korea*, 24, 83-90.

Lloyd, J.R. and Renshaw, J.C. (2005) Bioremediation of radioactive waste: radionuclide-microbe interactions in laboratory and field-scale studies. *Current Opinion Biotech.*, 16, 254-260.

Neclulita, C.M., Zagury, G.J., and Bussiere, B. (2007) Passive treatment of acid mine drainage in bioreactors using sulfate-reducing bacteria: critical review and research needs. *J. Environ. Qual.*, 36, 1-16.

Ohfuji, H. and Rickard, D. (2006) High resolution transmission electron microscopic study of synthetic nanocrystalline mackinawite. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 241, 227-233.

Oh, J.M., Lee, S.Y., Baik, M.H., and Roh, Y. (2010) Characterization of uranium removal and mineralization by bacteria in deep underground, Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI). *J. Miner. Soc. Korea*, 23, 107-115.

Raamamoorthy, S., Piotrowski, J.S., Langner, H.W., Holben, W.E., Morra, M.J., and Rosenzweig, F.R. (2006) Ecology of sulfate-reducing bacteria in an iron-dominated, mining-impacted freshwater sediment. *J. Environ. Qual.*, 38, 675-684.

Senko, J.M., Mohamed, Y., Dewers, T.A., and Krumholz, L.R. (2005) Role for Fe(III) minerals in ni-

- trate-dependent microbial U(IV) oxidation. *Environ. Sci. Technol.*, 39, 2529-2536.
- Senko, J.M., Kelly, S.D., Dohnalkova, A.C., McDonough, J.T., Kemner, K.M., and Burgos, W.D. (2007) The effect of U(VI) bioreduction kinetics on subsequent reoxidation of biogenic U(IV). *Geochim. Cosmochim. Acta*, 71, 4644-4654.
- Ulrich, K.U., Singh, A., Schofield, E.J., Bargar, J.R., Veeramani, H., Sharp, J.O., Bernier-Latmani, R., and Giammar, D.E. (2008) Dissolution of biogenic and synthetic UO_2 under varied reducing conditions. *Environ. Sci. Technol.*, 42, 5600-5606.
- Ulrich, K.U., Ilton, E.S., Veeramani, H., Sharp, J.O., Bernier-Latmani, R., Schofield, E.J., Bargar, J.R., and Giammar, D.E. (2009) Comparative dissolution kinetics of biogenic and chemogenic uraninite under oxidizing conditions in the presence of carbonate. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 73, 6065-6083.

접수일(2012년 9월 11일), 수정일(1차 : 2012년 9월 25일),
게재확정일(2012년 9월 25일), 책임편집위원 : 이영재