

## Artificial Weathering of Biotite and Uranium Sorption Characteristics

### 흑운모의 인위적 풍화와 우라늄 수착 특성

Seung-Yeop Lee<sup>1)</sup>, Min-Hoon Baik and Jae-Kwang Lee

Korea Atomic Energy Research Institute, 1045 Daedeokdaero, Yuseong-gu, Daejeon

이승엽<sup>1)</sup>, 백민훈, 이재광

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

(Received August 29, 2008 / Revised September 26, 2008 / Approved November 19, 2008)

#### Abstract

An experiment for uranium sorption onto fresh and weathered biotites was performed. After centrifugation, concentrations of uranium in the supernatants were analyzed using ICP-MS, and biotite samples were investigated using XRD and SEM. With powdered biotites (<3 mm in size), we have conducted uranium sorption experiments about fresh and weathered biotites to obtain uranium sorption amounts in various pH conditions. The uranium sorption was not high at a low pH (e.g., pH 3), but increased with increasing pH. There were lower uranium sorption by the weathered biotites than by the fresh ones, and the difference was much larger at higher pH (e.g., pH 11). The lower sorption values of uranium by the weathered biotites may be caused by a change of mineral surfaces and a chemical behavior of surrounding dissolved elements. It seems that the uranium-mineral interaction has been diminished, especially, in the weathered biotite by a destruction and dissolution of preferential sorption sites on the mineral surfaces and by the colloidal formation from dissolved elements.

**Key words** : Biotite, Weathering, Uranium, Sorption, Colloid.

#### 요약

신선한 흑운모 및 인위적으로 풍화시킨 흑운모에 대한 우라늄 수착 실험을 실시하였다. 실험 이후, 원심분리하여 상등액은 유도결합플라즈마분광분석(ICP-MS)으로 우라늄 농도를 분석하였고, 고체시료는 X-선 회절분석(XRD) 및 주사전자현미경(SEM) 분석을 실시하였다. 3 mm 이하의 흑운모 시료를 7개월간 실험실에서 풍화시킨 후, 신선한 흑운모와 동일한 조건으로 pH 변화에 따른 우라늄 수착량을 구하였다. 낮은 pH(pH 3)에서는 흑운모에 대한 우라늄의 수착이 크지 않았지만, pH가 증가함에 따라 점차 우라늄 수착이 증가하는 경향을 보였다. 풍화된 흑운모의 우라늄 수착량은 신선한 흑운모에 비해 작았고 높은 pH(pH 11)에서는 그 차이가 더 심하였다. 풍화된 흑운모의 낮은 우라늄 수착특성은 광물 표면의 변화 및 주위 용존이온들의 화학적 거동에 의한 것으로 보인다. 풍화된 흑운모 시료에는 광물 표면에서 선호되는 흡착자리가 파괴되거나 용해되고 더불어 용존 이온들의 콜로이드화에 의해 우라늄-광물 표면 수착반응이

1) Corresponding Author. E-mail : seungylee@kaeri.re.kr

감소되는 것으로 보인다.

중심단어 : 흑운모, 풍화, 우라늄, 수착, 콜로이드

## I. 서론

원자력발전의 부산물로 나오는 고준위폐기물을 지하심부 암반에 처분할 때 고려되고 있는 암종은 대표적으로 화강암질 암석이다. 스웨덴, 핀란드, 캐나다 등 전 세계적으로 화강암반을 고준위폐기물 처분장으로 생각하는 나라가 많고[1], 그 이유로서 오랜 세월동안 지각 변화에 안정하고 풍화에 강하며 지상과 지표면 아래에 풍부히 존재한다는 사실 때문일 것이다. 우리나라도 화강암 지반이 상당히 넓게 분포하고 있으며, 중생대의 대보화강암 및 불국사화강암의 발달과 일부 조산운동에 의한 변성작용을 받아왔다[2]. 우리나라 고준위폐기물이 화강암질 심부 암반에 처분되는 것을 고려한다면, 화강암과 방사성핵종원소와의 상호 화학반응이 면밀히 연구될 필요가 있다[1].

과거 여러 화강암과 핵종과의 반응실험을 통해 수착계수를 구하는 연구가 일부 수행되어 왔지만[3~5], 개별 구성광물과의 반응실험은 거의 이뤄지지 않았다[6~8]. 특히, 화강암을 구성하는 광물들이 동일하게 핵종과 반응하는 것이 아니라 특정 광물이 더 지배적으로 핵종과 반응할 수 있다[9]. 이에 우리는 화강암 주요 광물성분 중 흑운모를 실험 대상으로 선택하였다. 흑운모는 철 및 망간과 같은 산화/환원에 민감한 미량원소들을 함유하고 있기 때문에 다양한 산화수를 갖는 핵종 원소들과의 상호반응이 활발할 것으로 기대된다. 또한, 흑운모는 판상구조를 가지고 있어서 광물구조의 가장자리(edges) 뿐만아니라 이온교환 방식을 통해 층간구조내로 핵종들이 수착될 수 있다[1]. 또한, 흑운모 구조내의 Fe(II)의 산화에 의한 우라늄의 환원 및 흡착에 관한 실험이 Ilton et al.[8] 등에 의해 제시되고 있다.

본 실험에서는 신선한 흑운모와 풍화된 흑운모간의 핵종 수착 정도를 알아보고자 하였다. 자연계 지하심부에서는 일부 풍화된 흑운모가 지하수와 접촉 및 공존하고 있으며, 이러한 상황을 가정하여 실험실에서 풍화시킨 흑운모의 핵종수착 특성을 신선한 흑운모에 대한 측정값과 비교하였다. 이를 통하여 자연계에서 일어날 수 있는 흑운모와 핵종간의 상호반응을 좀 더 깊이 있게 이해하고자 하였다.

## II. 실험방법

본 실험을 위해 사용된 흑운모는 캐나다 온타리오주에서

산출된 흑운모로써, (주)대한과학을 통해 입수하였고 실내 회분식 실험을 목적으로 초기의 광물 원석을 잘게 부수어 사용하였다. 아게이트 모르타르에 의한 입자파쇄가 쉽지 않아 예리한 가위를 이용하여 3 mm 이하의 입자로 잘게 절단하여 사용하였다. 파쇄된 입자를 유리글라스의 양면테이프 위에 올려놓고 탄소로 얇게 코팅한 후, 전자현미분석(EPMA)으로 10개 정도의 분석 포인트를 분석하고 5% 미만의 오차율을 갖는 데이터를 모아 조성을 분석하였는데, 흑운모의 화학구조식은  $K_{1.92}Na_{0.13}(Mg_{3.57}Fe_{1.95}Ti_{0.24}Mn_{0.08})(Si_{5.92}Al_{1.94}Fe_{0.14})O_{20}(OH)_4$ 이다. 흑운모의 화학구조식으로 볼 때, 마그네슘의 함량이 높은편이나 국내의 화강암에 분포하는 다양한 흑운모의 화학조성범위를 크게 벗어나지 않는 것으로 판단되며, 본 실험 결과가 국내의 흑운모-화강암 관련연구에 적용 가능할 것으로 판단된다. 피스파우어 분광분석기로 분석한 Fe(II):Fe(III)의 비율은 70:30 (atomic %) 이었다.  $N_2(g)$ 에 의한 신선한 흑운모의 BET 비표면적은 0.266  $m^2/g$  값으로 측정되었다.

풍화 흑운모 시료를 만들기 위해 파쇄된 신선한 흑운모(0.4 g)를 50 mL 원심튜브에 넣고 증류수 40 mL로 채운 후 pH를 각각 3, 7, 11로 조절하여 실내온도에서 7개월간 보관하였다. 이 기간 동안 수시로 pH를 점검하여 HCl 혹은 NaOH로 보정하여 주었고 가끔씩 손으로 흔들어 주었다. 7개월이 지난 후 풍화된 흑운모와 신선한 흑운모 시료에 우라늄( $2 \times 10^{-4} M$ )을 첨가하였고, 두 시료 모두 0.4 g/40 mL 조건에서 pH 3, 7, 그리고 11 환경에서 대기(aerobic) 조건으로 실험하였다. 사용된 우라늄은  $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$  (Merck)시약을 증류수에 녹여 사용하였고 전기저항은 25°C에서  $>18.2 M\Omega/cm$ 으로 측정되었다. 우라늄과 흑운모가 들어있는 원심튜브를 교반기로 흔들어 주었으며 7일간 반응시켰다. 반응이 끝난 후 최종 pH를 측정하고 8,000 rpm으로 10분간 원심분리한 후 상등액은 ICP-MS로 분석하였고 남은 고체시료는 X-선 회절분석(XRD) 및 주사전자현미경(SEM) 분석을 실시하였다. 실험은 2번 반복실험 하였다. 그리고, 시료를 원심분리한 이유는 흑운모 시료의 입자크기가 수 백  $\mu m$  이상이기 때문에 원심분리로도 충분히 분리가 가능하며, 일반적인 필터처리 수행시 일부 우라늄의 2차 흡착의 가능성과 0.45  $\mu$  이상의 우라늄 결정체 존재에 의한 수착 해석의 어려움을 방지하는

효과가 있다.

XRD 분석은 Bruker D8 Advance (Germany) 모델을 사용하였으며, 대기중에서 건조된 분말시료를 정방위 조건으로 홀더에 채우고  $2\theta$  40°까지 CuK $\alpha$ 로 분석하였다. 풍화된 시료의 용해구조 및 이차광물 생성 확인을 위해 SEM(LEO 1455VP, Germany)을 이용하였으며, 수분이 제거된 건조한 시료에 Au 코팅(coating)을 실시하고 수천에서 수만 배까지 확대하여 관찰하였다. 부분적으로 EDS(Energy Dispersive Spectroscopy)를 실시하여 표면의 화학성분을 정성적으로 분석하였다.

우라늄의 pH에 따른 화학종들을 Fig. 1에 나타내었다. 화학종 계산은 MINTEQA2 Ver. 2.0을 사용하였으며, 수용액 조건으로 이온강도 0.01 M과 대기조건  $pCO_2=10^{-3.5}atm$ 으로 설정하였다.

### III. 결과 및 토의

우라늄은 pH에 따라 다양한 화학종을 형성하며 산성쪽에서는  $UO_2^{2+}$ 와 같은 화학종이 우세하지만, 염기쪽으로 갈수록  $CO_3^{2-}$ 와 결합하면서 다양한 음이온 복합체(complexes)를 형성한다(Fig. 1 참조). 대기조건에서 산성영역의 우라늄은 대부분 우라닐 이온(uranyl ion) 또는 우라늄 가수화물(uranyl hydroxide)의 형태로 존재하지만, 알칼리 영역의 pH에서는 우라닐탄산 화학종(uranyl carbonate species)을 형성한다(Fig. 1 참조). 우라늄은 광물과의 반응에서 산성조건일 때에는 양이온교환 방식에 의한 결합이 우세하지만, 염기 조건에서는 대부분 광물 가장자리에서의 표면복합(surface complexation) 방식으로 결합한다[10,11].

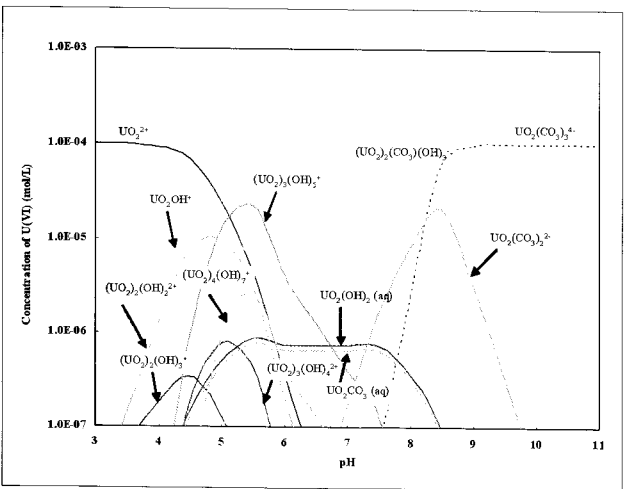


Fig. 1. Uranium species distribution over pH in a condition of 0.01 M ionic strength and  $pCO_2=10^{-3.5}atm$  calculated using MINTEQA2 Ver. 2.0.

Fig. 2는 흑운모 광물에 대한 우라늄의 수착 경향을 pH 변화에 따라 보여주고 있다. 신선한 흑운모와 풍화된 흑운모의 수착량에 차이가 있으며, pH에 따라 수착의 변화폭도 달라진다. 낮은 pH 조건에서는 흑운모의 수착량이 대체로 크지 않았다. 이는  $UO_2^{2+}$  양이온 형태로 존재하는 대부분의 우라늄이 흑운모 층간에 이온교환 방식으로 침투하여 들어가기가 매우 힘들기 때문인 것으로 사료된다. 또한 낮은 pH에서는 흑운모의 표면전하가 양으로 하전되어 양이온들에 대한 화학적 결합능이 떨어진다. 하지만, pH가 올라가면서 우라늄의 수착도 더불어 증가하였는데, 전반적으로 신선한 흑운모의 수착량이 조금 더 크게 나타났으며, pH 11 조건에서도 동일한 경향을 보여 주었다. pH 11에서는 풍화된 흑운모의 우라늄 수착량의 감소가 두드러졌다. 전반적으로 pH가 증가함에 따라 우라늄의 수착량이 증가하지만, 풍화된 시료의 경우에 있어서 높은 pH에서 다시 감소하는 경향을 보여 주고 있다.

우라늄-흑운모의 반응실험 이후 용액상에 용존상태로 존재하는 흑운모의 주요 구성성분들을 Table 1에 나타내었다. 신선한 흑운모에 비해 풍화된 흑운모에서 상대적으로 많은 양의 구성원소 성분들이 용존상태로 존재하였다. 특히, pH 3 조건에서 두드러졌으며, pH 7에서는 시료간에 큰 차이가 없었다.

Table 1. Released major elements (mg/L) from fresh and weathered (W) biotites at various pH conditions.

Released elements	pH 3	W pH 3	pH 7	W pH 7	pH 11	W pH 11
Si	2.81	17.71	0.83	2.19	3.01	3.62
Al	1.88	7.21	0.06	0.32	1.24	1.33
K	4.60	25.11	4.27	22.02	5.24	8.28
Fe	2.95	15.12	0.24	1.18	1.76	2.27
Mg	2.16	11.59	0.87	1.92	0.91	1.30

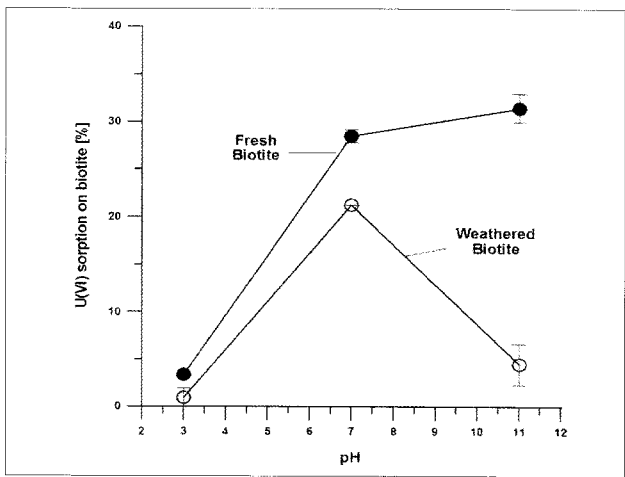


Fig. 2. Uranium sorption amounts (%) on fresh and weathered biotites under various pH conditions.

으나 K 이온에서는 큰 차이가 관찰되었다. 하지만, pH 11 조건에서는 풍화된 흑운모에서 K 이온의 용출이 상대적으로 크지 않았다. 하지만, Si의 용출은 상당하였고 알칼리 조건을 고려할 때, Si를 포함한 일부 원소들의 침전 및 미세 콜로이드 형성 과정이 수반되었을 것으로 사료된다.

반응한 시료들의 XRD 패턴을 살펴보면 pH 3 조건에서 신선한 흑운모에 비해 풍화된 흑운모의 피크 위치는 변화가 없었지만 회절강도는 낮게 측정되었다(Fig. 3a 참조). 반면, pH 7에서는 두 시료 모두 회절 위치 및 강도의 차이가 거의 없었고, pH 11에서는 풍화된 시료의 (001) 피크가 약하게 두 개로 분리되어 나타났다(Fig. 3c 참조). 피크의 층간간격(*d-spacing*)은  $d=9.8\text{\AA}$ 과  $10.0\text{\AA}$  두 개로 약하게 분리되었는데, 이는 강한 염기 조건에서 풍화에 따른 광물 층간의 약한 팽창 및 일부 광물구조의 층간균질성의 상실에 따른 결과로 해석된다. 정기영과 김혜빈[12]에 따르면, 흑운모가 풍화되면서 산화될 때 층간의 양이온 용출 및 철의 산화가 동반되고 이는 버미큘라이트 층의 발달을 가져온다고 보고하고 있다. 즉, 흑운모가 풍화되면서 규칙적인 흑운모의 규산염층이 일부 다른 광물구조로 전이가 일어날 수 있음을 암시한다. 결과적으로 pH 7 조건에서는 흑운모의 광물학적 변화가 거의 없었지만, 산성 및 염기 조건에서는 광물 변화가 일부 수반되었고 광물의 지속적인 용해에 따른 구조 약화 및 표면조직의 변형이 일부 수반된 것으로 보인다.

7개월간의 풍화실험동안 흑운모로부터 용출된 양이온들은 수십 ppm 미만으로써, 투여된 흑운모량(0.4 g/ 40 mL)과 비교하면 매우 미량의 성분만이 용출된 것으로 광물의 표면변화를 일반기기를 이용하여 관찰 및 확인하는데 한계가 있다. 또한, 용출된 이온들이 이차광물을 형성하기보다 용존상태로 존재하는 경우가 우세(특히, pH 3 조건)하여 침전물 형성 등을 확인하는데 어려움이 많다. 그리고, 염기조건에서 용해된 이온들의 농도는 높지 않지만, 광물 표면에서 선호되는 흡착자리가 일부 파괴되거나 용해되어 풍화 흑운모의 우라늄의 수착량 감소로 이어졌을 가능성이 크다. 특히, 본 실험에서 신선한 흑운모의 우라늄에 대한 수착량이 많지 않고 (< 40%), 강한 산성(pH 3) 및 염기성(pH 11) 조건에서  $H^+$  및  $OH^-$  이온들의 공격에 의해 남아있는 흡착자리마저 계속적으로 감소하여 우라늄의 수착량이 상대적으로 떨어진 것으로 보인다. pH 7의 중성조건에서 떨어질수록 광물로부터 용출되는 이온들의 농도는 증가하지만, 새로운 흡착자리를 제공할 수 있는 이차광물의 형성은 쉽지 않은 것으로 보인다. 보다 장기적인 풍화환경 조건에서 이차광물의 생성 및 안정화가 진행될 수 있고, 이것들에 의한 핵종들의 수착량 증가 특성이 관찰될 것

으로 보인다.

또한, pH 11 환경에서 풍화흑운모에 대한 우라늄의 수착량 감소는 염기 조건에서 생성되는 미세 콜로이드의 영향에 의한 우라늄과 콜로이드와의 상호 반응 때문인 것으로 보인다 [13~15]. 이에 대한 자세한 우라늄 수착 메커니즘은 추후 연구를 통해 보다 심도있게 밝히고자 한다. pH가 올라가면서 용액상의 우라늄은 이온복합물(ion complexes)을 이루면서 다른 원소들과 함께 미약하게나마 일부 공침하는 경향이 나타났다. 그림 4는 pH 7 조건에서 일부 원소, 특히 철산화물이 흑운모 표면에 침전되면서 일부 소량의 우라늄 원소도 같이

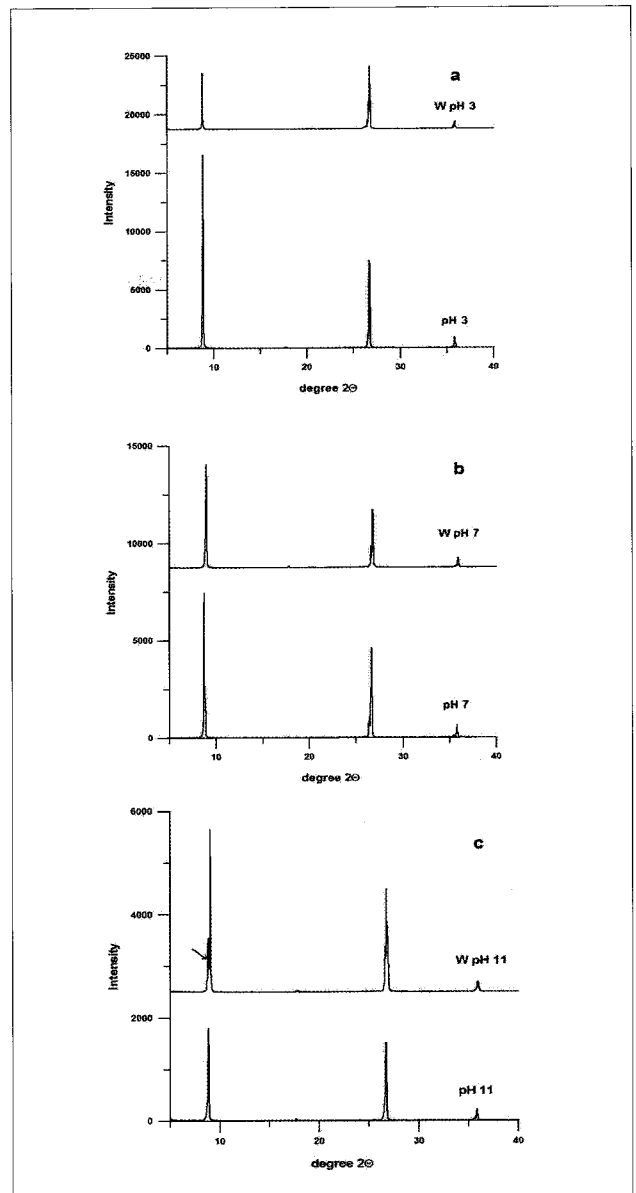
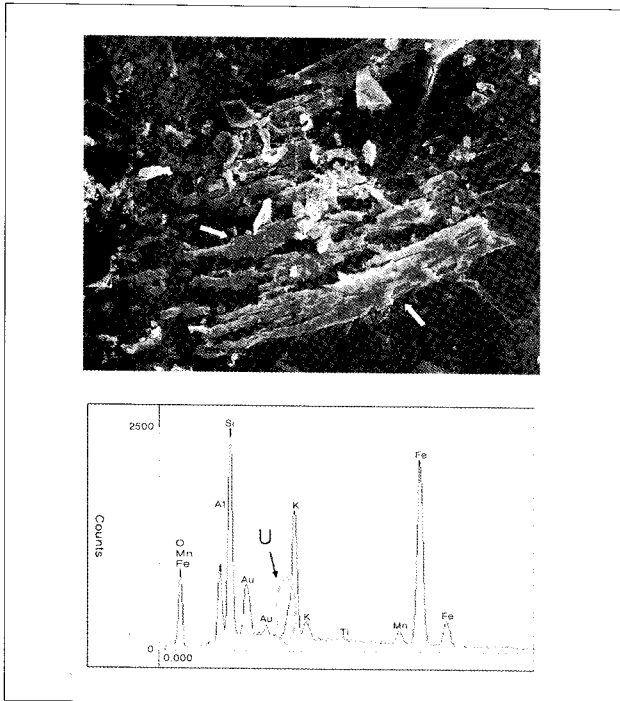


Fig. 3. X-ray diffraction patterns for fresh and weathered (W) biotites interacted with uranium at different pH conditions. The arrow indicates the split (001) peak of weathered biotite at pH 11.



**Fig. 4.** A microphotograph of some precipitates deposited on the biotite surface at pH 7 condition. The arrows indicate the iron precipitates containing a trace uranium element detected by EDS analysis.

공침하는 것을 확인할 수 있다. 지금까지 보고된 바로는, 철산 화물이 핵종의 수착에 상당한 영향을 미친다고 알려져 있다 [16,17]. 하지만, 철산화물의 종류 및 결정성이 핵종 수착특성에 관여하며, 결정성이 약한 비정질의 초기 산화철에는 핵종 수착이 상대적으로 미미한 것으로 보고되고 있다[18-20]. 본 실험의 초기 우라늄 농도는 높지 않고( $2 \times 10^{-4}$  M) 침전 혹은 수착된 양이 소량이기 때문에, SEM에 의해 관찰된 침전된 우라늄의 피크가 강하지 못하고 K peak와 겹쳐서 나와 EDS 검출이 쉽지 않다(그림 4). 본 실험에서 확인된 침전물의 최대 크기는 수십  $\mu\text{m}$ 이며, 본 실험과 비슷한 농도 및 조건의 우라늄을 가지고 실험한 다른 연구자들의 실험결과에서는 소량의 쇼파이트(schoepite,  $(\text{UO}_2)_8\text{O}_2(\text{OH})_{12} \cdot 12(\text{H}_2\text{O})$ )와 같은 단일 우라늄광물이 쉽게 형성되는 것으로 보고되고 있다[21].

#### IV. 결론

우라늄은 용액상에 존재할 때 pH 및 Eh 조건에 따라 매우 다양한 화학종들의 분포를 보여주며, 본 실험에서는 pH 변화에 따른 다양한 화학종들과 흑운모와의 수착 관계를 살펴보았다. 낮은 pH 조건에서는 대부분의 우라늄이 우라닐( $\text{UO}_2^{2+}$ ) 이온으로 존재하고 층간구조가 단단한 흑운모와 이온교환 및 표면복합 반응이 약하게 일어나 많은 수착을 보여주지 못하

였다. 반면, pH가 증가하면서 다양한 우라늄 화학종들의 흑운모 광물 표면 및 가장자리에서의 화학결합(즉, 표면복합반응)이 일어나 수착량이 증가하였다. 한편, 풍화된 흑운모 시료에서는 광물 표면에서 선호되는 흡착자리가 파괴되거나 용해되고 더불어 콜로이드 생성 등에 의해 우라늄 수착이 상대적으로 약화되어 점차 우라늄 수착이 감소되는 것으로 보인다.

#### 감사의 글

논문을 검토하고 아낌없는 조언을 주신 노열 교수님과 익명의 두 분 심사자에게 감사의 뜻을 전합니다. 본 연구는 원자력중앙기연구개발연구의 일환으로 교육과학부의 지원을 받아 수행되었습니다.

#### 참고문헌

- [1] 백민훈, 박정균, 이재광, 최종원, "해의 지하시험시설을 이용한 핵종 및 콜로이드 이동에 대한 국제공동연구 현황 및 참여 타당성 분석", 기술보고서 KAERI/TR-3499/2007, 한국원자력연구원, 49p (2007).
- [2] 원종관, 이하영, 지정만, 박용안, 김정환, 김정식, "지질학원론", 도서출판 우성, 서울, 662p (1995).
- [3] Lee, C.P., Lan, P.L., Jan, Y.L., Wei, Y.Y., Teng, S.P. and Hsu, C.N. "Sorption of cesium on granite under aerobic and anaerobic conditions", *Radiochim. Acta*, 94, pp. 679-682 (2006).
- [4] 백민훈, 박정균, 조원진, "환원환경에서 암반 균열을 통한 우라늄 이동 및 지연 특성", 방사성폐기물학회지, 5, pp. 113-122 (2007).
- [5] 이재광, 백민훈, "Effect of carbonates on the sorption of U(VI) onto granite: correlation with aqueous sepciation", 2007 Goldschmidt Conference (2007).
- [6] E.A. Hudson, L.J. Terminello, B.E. Viani, M. Denecke, T. Reich, P.G. Allen, J.J. Bucher, D.K. Shuh and N.M. Edelstein, "The structure of  $\text{U6+}$  sorption complexes on vermiculite and hydrobiotite", *Clays Clay Minerals*, 47, pp. 439-457 (1999).
- [7] J.P. Mckinley, J.M. Zachara, S.M. Heald, M.G. Newville and S.R. Sutton, "Microscale distribution

- of cesium sorbed to biotite and muscovite", *Environ. Sci. Technol.*, 38, pp. 1017-1023 (2004).
- [8] E.S. Ilton, A. Haiduc, C.O. Moses, S.M. Heald, D.C. Elbert and D.R. Veblen, "Heterogeneous reduction of uranyl by micas: Crystal chemical and solution controls", *Geochim. Cosmochim. Acta*, 68, pp. 2417-2435 (2004).
- [9] 한필수, 박정균, 금동권, 조영환, 강문자, 백민훈, 환경원, 박현수, "지하 핵종 거동 규명 연구 (고준위폐기물 처분 기술 개발)", KAERI/RR-2326/2002, 한국원자력연구원, 대전, 397p (2002).
- [10] T. Arnold, T. Zorn and B.H. Nitsche, "Sorption of uranium(VI) onto phyllite", *Chem. Geol.*, 151, pp. 129-141 (1998).
- [11] E.S. Ilton, A. Haiduc, C.L. Cahill and A.R. Felmy, "Mica surfaces stabilize pentavalent uranium", *Inorg. Chem.*, 44, pp. 2986-2988 (2005).
- [12] G.Y. Jeong and H.B. Kim, "Mineralogy, chemistry, and formation of oxidized biotite in the weathering profile of granitic rocks", *Amer. Miner.*, 88, pp. 352-364 (2003).
- [13] A. Móri, W.R. Alexander, H. Geckeis, W. Hauser, T. Schfer, J. Eikenberg, T. Fierz, C. Degueldre and T. Missana, "The colloid and radionuclide retardation experiment at the Grimsel Test Site: influence of bentonite colloids on radionuclide migration in a fractured rock", *Colloids Surfaces A*, 217, pp. 33-47 (2003).
- [14] T. Missana, U. Alonso and M.J. Turrero, "Generation and stability of bentonite colloids at the bentonite/granite interface of a deep geological radioactive waste repository", *J. Contam. Hydrol.*, 61, pp. 17-31 (2003).
- [15] 백민훈, 조원진, "벤토나이트 콜로이드로의 우라늄(VI) 수착에 대한 실험적 연구", 방사성폐기물학회지, 4, pp. 235-243 (2006).
- [16] T.E. Payne, J.A. Davis and T.D. Waite, "Uranium retention by weathered schists-The role of iron", *Radiochim. Acta*, 66/67, pp. 297-303 (1994).
- [17] M.C. Duff, J.U. Coughlin and D.B. Hunter, "Uranium co-precipitation with iron oxide minerals", *Geochim. Cosmochim. Acta*, 66, pp. 3533-3547 (2002).
- [18] T. Sato, T. Murakami, N. Yanase, H. Isobe, T.E. Payne and P.L. Airey, "Iron nodules scavenging uranium from groundwater", *Environ. Sci. Technol.*, 31, pp. 2854-2858 (1997).
- [19] T. Murakami, T. Sato, T. Ohnuki and H. Isobe, "Field evidence for uranium nanocrystallization and its implications for uranium transport", *Chem. Geol.*, 221, pp. 117-126 (2005).
- [20] S.Y. Lee and M.H. Baik, "Uranium and other trace elements' distribution in Korean granite: implications for the influence of iron oxides on uranium migration", *Environ. Geochem. Health*, In Press.
- [21] D.E. Giammar and J.G. Hering, "Time scales for sorption-desorption and surface precipitation of uranyl on goethite. *Environ. Sci. Technol.*, 35, pp. 3332-3337 (2001).