

생물학적 침출법을 이용한 우라늄 오염토양정화: 함우라늄 흑색세일을 대상으로 한 실험실적 연구

이중운 · 김성민 · 김인수* · 김경웅¹⁾

1. 서론

원자력발전소 운전 및 방사성폐기물 처리시 예기치 않게 발생할 수 있는 방사성원소의 누출은 토양 및 퇴적물의 광범위한 오염을 유발하며 이는 장기간에 걸쳐 주변 생물권에 심각한 피해를 끼친다. 따라서 방사성원소에 의한 토양 및 퇴적물 오염이 발생하였을 경우 신속하고도 철저한 처리가 요구된다. 이처럼 고체매질로부터의 방사성원소 제거 및 저감의 필요성이 대두되었을 경우, 일반적으로 침출법에 의한 토양세척(soil washing)기법이 효과적인 정화방식으로 제시되고 있다. 그러나 현재 널리 쓰이고 있는 화학적 침출법의 경우, 높은 비용 및 에너지가 소요되고 운전이 복잡하며 유독성 부산물이 생성되는 등의 단점이 제기되고 있다. 따라서 이들 단점을 보완한 방법으로서 생물학적 침출법의 효용이 주목받고 있다.

생물학적 침출법은 저등급 광석의 선광분야에서 주로 도입되고 있다 (Dew et al., 1998). 가장 널리 쓰이는 박테리아는 호산성(acidophilic)의 *Acidithiobacillus ferrooxidans*로서 이는 Fe^{2+} 를 Fe^{3+} 로 산화하며 성장에 필요한 에너지를 얻는 독립영양세균이며 특히 산성 광산배수의 주원인균으로 잘 알려져 있다. 이들은 강력한 산화제인 Fe^{3+} 을 생성함으로써 황화광물을 산화시키거나 (간접적 기제) 또는 직접 광물표면에 부착하여 용해를 촉진한다 (직접적 기제). 이들 박테리아는 Fe^{2+} 또는 환원된 상태의 황을 산화하여 에너지를 얻고 CO_2 를 탄소원으로 이용하므로 별도의 유기물을 첨가하지 않아도 되어 경제적이다.

이 연구에서는 우라늄으로 오염된 토양의 대용물질로 흑색세일을 선택하여, 다양한 실험조건하에서 *At. ferrooxidans*의 우라늄 침출 효율을 파악하고자 하였다.

2. 실험방법

함우라늄 흑색세일은 충북 덕평리 지역에서 채취하여 $212 \mu m$ 이하의 입도를 갖도록 미분쇄하였다. 우라늄의 산출상 -교환상, 탄산염상, Fe-Mn 산화물상, 유기물질/황화물상, 잔류상- 을 파악하기 위하여 연속추출법을 수행하였다. *At. ferrooxidans* 균주(KCTC 2677)는 9K 배양액(Silverman and Lundgren, 1959)에서 배양하였으며, 이때 9K 배양액은 무기영양물질인 solution A와 Fe^{2+} 를 포함한 solution B로 구성되었다. 500 mL의 플라스크에 300 mL의 9K 배양액과 5%(w/v)의 흑색세일을 넣은 후, 박테리아를 접종하여 $30^\circ C$, 200 rpm의 조건에서 배양하였다. 용액의 초기 pH는 황산을 이용하여 약 2.5로 조정하였다. 다양한 조건변화가 생물학적 침출의 효율에 미치는 영향을 검토하고자 아래와 같이 다양한 실험조건을 구성한 후 약 15일간 배양하며 시간에 따라 pH와 산화환원전위를 측정하고 Fe^{2+} , 총 Fe, 우라늄을 정량하였다.

주요어: *Acidithiobacillus ferrooxidans*, 생물학적 침출법, 우라늄, 토양정화, 흑색세일

1) 광주과학기술원 환경공학과(iskim@kjist.ac.kr)

- (1) 흑색셰일 + solution A + Fe^{2+} + *At. ferrooxidans*
- (2) 흑색셰일 + solution A + Fe^{2+}
- (3) 흑색셰일 + solution A + *At. ferrooxidans*
- (4) 흑색셰일 + 증류수 + Fe^{2+} + *At. ferrooxidans*
- (5) 흑색셰일 + solution A + 황철석(1% w/v) + *At. ferrooxidans*

또한 실험 (1)과 동일한 조건에서 컬럼을 이용한 연속침출실험을 약 18일에 걸쳐 수행하였다. Fe^{2+} 와 총 Fe는 ferrozine으로 착색하여 562 nm에서, 우라늄은 arsenazo III 방법으로 착색하여 652 nm에서 UV-vis로 분석하였다.

3. 결과 및 해석

연속추출법에 의한 분석 결과, 흑색셰일 내의 우라늄은 총 349 mg/kg의 함량을 보였으며 대부분은 탄산염(58%) 및 유기물질/황화물(42%)과 밀접하게 수반되어 나타나는 것으로 밝혀졌다. 이는 우라늄 침출 효율이 용액의 pH 및 황화광물의 생물학적 용해에 의해 크게 좌우된다는 것을 나타낸다.

무기영양물질 (solution A) 및 Fe^{2+} 가 모두 공급된 상태(실험 (1))에서 박테리아는 다른 실험에 비하여 가장 낮은 pH를 조성하였다. pH는 실험초기부터 감소하기 시작하여 최종적으로 약 1.7에서 안정화되었다. 이는 *At. ferrooxidans*의 활동에 의하여 장기간에 걸쳐 강한 산성용액이 형성됨을 의미하며 이러한 특성은 토양으로부터의 우라늄 침출에 큰 영향을 미칠 수 있다.

강력한 산화제인 Fe^{3+} 는 특히 황화물 내의 금속침출을 촉진하므로 박테리아에 의한 Fe^{2+} 산화는 흑색셰일 내 황화물과 결합한 우라늄의 침출에 큰 영향을 미친다. 시간에 따른 Fe 화학종의 변화를 통해 볼 때 (Fig. 1) 박테리아는 무생물적인 경우(실험 (2))에 비해 많은 양의 Fe^{3+} 를 생성한다. 박테리아를 접종한 경우 120시간 이후에는 거의 대부분의 용존 Fe가 Fe^{3+} 의 형태로 존재하는 반면, 무생물적 실험의 경우, 250시간까지 Fe^{2+} 가 여전히 존재한다. 초기에 투입한 Fe와 관찰된 용존 Fe 사이의 차이는 Fe 산화물 또는 수산화물을 형성한 후 침전한 것으로 여겨진다.

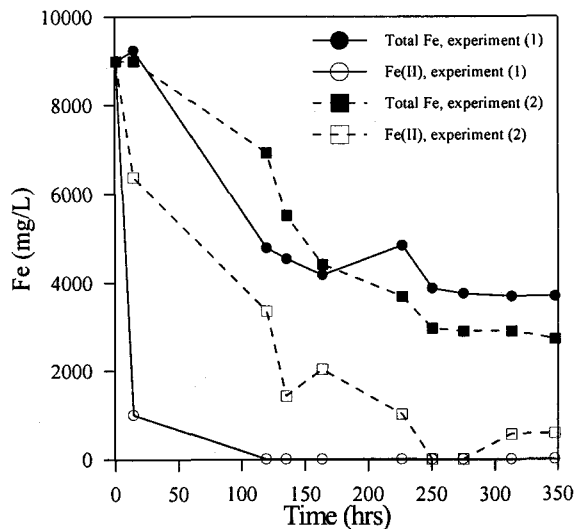


Fig. 1 Variation of total dissolved Fe and Fe(II) concentrations of biotic and abiotic leaching experiments.

우라늄은 실험 초기에 흑색셰일로부터 다량 침출되는 것이 관찰되었다 (Fig. 2). 이는 *At. ferrooxidans*의 대사작용에 가장 적합한 환경을 조성하기 위하여 초기에 pH를 2.5로 조절된 영향 때문인 것으로 파악된다. 약 120시간이 경과할 때까지 무기영양물질, Fe^{2+} , 박테리아가 모두 첨가된 경우(실험 (1))에서 가장 높은 우라늄 침출량을 보였다. 그러나 그 이후

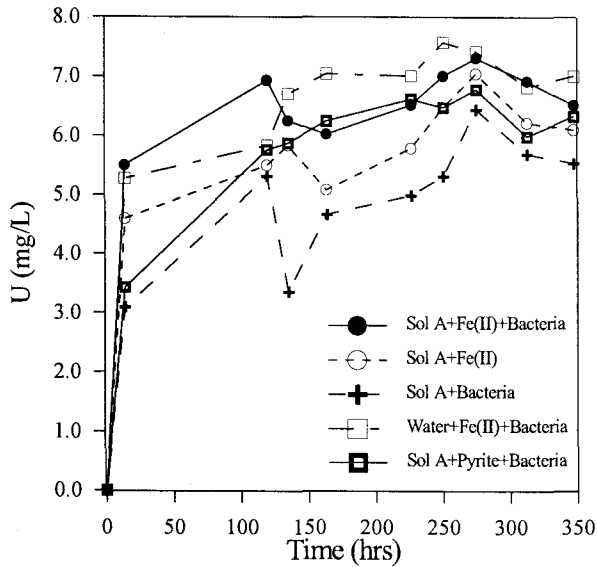


Fig. 2 Concentrations of uranium leached out of the soil sample in all 5 experimental sets over time.

에는 오직 Fe^{2+} 와 박테리아만 첨가된 경우(실험 (4))에서 더욱 많은 우라늄이 흑색세일로부터 침출되었다. 이는 흑색세일 내에 박테리아의 정상적인 성장을 뒷받침할 수 있는 무기 영양물질이 충분히 존재하기 때문으로 여겨진다. 이러한 결과는 오염토양 및 퇴적물을 생물학적으로 침출처리하기 전에 처리대상 매질의 화학적 조성에 대한 사전 조사를 통하여 보다 경제적인 처리가 가능함을 나타낸다. 용존 Fe^{2+} 의 대용 가능성을 파악하기 위하여 투입한 황철석의 경우 주어진 실험기간 내에 특별히 Fe^{2+} 를 공급하지는 못한 것으로 나타났으나(실험 (5)), 보다 장기간의 운전에서는 충분한 Fe^{2+} 공급원으로 작용할

수 있을 것이다. 가장 낮은 우라늄 침출은 Fe^{2+} 가 공급되지 않은 상태에서 나타났으며(실험 (3)) 이는 흑색세일 내에 충분한 Fe^{2+} 의 공급원이 존재하지 않기 때문으로 판단된다.

연속침출실험의 결과, 90시간이 경과한 후에 약 70%의 우라늄이 침출되어 나온 것으로 나타났다. 또한 400시간이 경과한 후에는 약 80%의 우라늄이 흑색세일로부터 침출되었다(Fig. 3). 이러한 결과는 *At. ferrooxidans*를 이용하여 우라늄으로부터 오염된 토양 및 퇴적물을 생물학적으로 침출하는 것이 토양세척기법과 연관되어 행해질 때 매우 유용한 복구기법이 될 수 있음을 나타낸다.

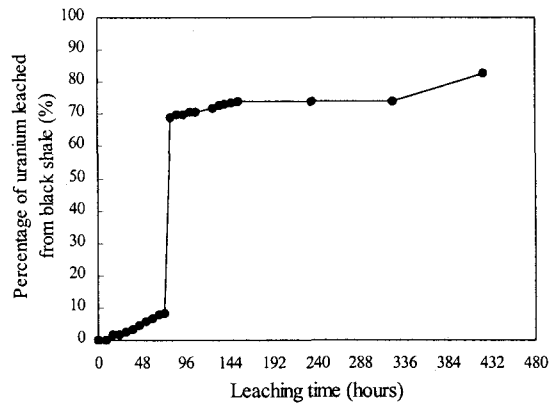


Fig. 3 Uranium removed from the soil during the continuous bioleaching experiment.

참고문헌

- Dew, D.W., Lawson, E.N., and Broadhurst, J.L., 1998, "The BIOX process for biooxidation of gold-bearing ore or concentrates," In D.E. Rawlings (Ed.), *Bio-mining: Theory, Microbes and Industrial Processes*. Springer-Verlag, Berlin. pp. 45-80.
- Silverman, M.P. and Lundgren, D.G., 1959, "Studies on the chemoautotrophic iron bacterium *Ferrobacillus ferrooxidans*. I. An improved medium and a harvesting procedure for securing high cell yields," *J. Bacteriol.* Vol. 77, pp. 642-647.