

우라늄을 포함하는 질산염 폐액의 미생물 분해

오종혁, 이나현, 황두성, 최윤동, 황성태, 박진호, 조병렬*

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

*충주대학교, 충북 충주시 이류면 검단리 123번지

keeper7key@naver.com

우라늄 변환시설 가동 중 발생하여 라군(lagoon)에 저장되어 있는 방사성 슬러지 폐기물에 대한 처리는 시설 해체과정에서 매우 중요한 업무 중 하나이다. 라군은 변환시설 가동 중에 발생한 모든 폐액을 수집하기 위한 인공연못으로, 두 개로 구성되어 있다. 현재 라군에 저장중인 슬러지는 약 250 m³의 양으로, 여러 단위공정에서 발생한 폐액 혼합물뿐만 아니라 공장 가동 초기 누출로 인한 시설 제염 폐액 및 조업 실패로 인하여 발생한 여러 가지 폐액 등으로 인하여 매우 복잡한 조성으로 이루어져 있으나, 이들 중 양이 많아서 전체 폐기물의 특성을 결정할 수 있는 것은 정제과정의 raffinate와 AUC(ammonium uranyl carbonate) 침전 여액의 처리 후 폐액이다. 두 개의 라군 모두 물리적으로는 최상층에 여러 질산염의 포화용액, 중간층에 결정형, 하층부에는 입자상 형태의 침적물로 이루어져 있다. 화학적으로는 NH₄NO₃, NaNO₃, Ca(NO₃)₂, CaCO₃ 및 U 등으로 구성되어 있다. 이들 성분 중 대부분을 차지하는 질산염은 분해를 통해 폐기물의 감용을 이룰 수 있으며, 이는 환경적 측면뿐만 아니라 폐기물 처분 비용 절감 차원에서 최선의 목표라 할 수 있다.

미생물을 이용한 생물학적 탈질은 폐수 내에 함유된 nitrate를 제거할 수 있는 효율적인 방법 중의 하나이지만, 대부분의 연구개발은 NO₃⁻-N의 농도가 50 g/m³ 이하의 하수나 농업용수 내에 함유된 nitrate 제거에 집중되어 왔었다. 1974년 ORNL에서 우라늄 정제공정에서 발생한 폐액에 함유된 고농도(1.0 kg NO₃⁻-N/m³)의 nitrate를 제거하기 위하여 생물학적 탈질공정을 선정하고 시험을 시작한 이래로 stirred bed reactor 형의 대규모 처리시설이 Y-12 plant에 설치 운영되고 있으나 110,000 ppm 정도의 고농도 질산염 폐액의 처리를 위해서 100 ppm 이하로 희석하여야 할 정도로, 고농도의 폐액을 처리할 수 있는 균주의 개발 및 공정의 최적화가 필요하다. 본 연구에서는 프랑스 Cadarache에서 분리 및 동정된 균주 *pseudomonas halodenitrificans*를 이용하여 라군 슬러지에 포함된 질산염 폐액의 탈질 가능성 평가 및 공정 최적화에 대하여 연구하였다.

탈질균 *P. halodenitrificans*는 0.2 M NH₄NO₃(12,400 ppm NO₃⁻) 액체배지에서 배양하였으며, Table 1에 배지 조성을 나타내었다. 전자 공여체로는 acetic acid를 사용하였고, pH 조절은 50% NaOH를 이용하였다. 실제 처리에 사용되는 질산염 폐액은 라군 슬러지를 2.5배의 물을 첨가하여 용해하고, 고-액 분리하여 여액을 필요 농도까지 희석하여 사용하였다. 희석하기 전 라군 슬러지 질산염 폐액에 존재하는 각 성분의 농도는 Table 2에 나타내었으며, 배양에 따른 잔류 nitrate의 분석은 HACH DR/4000 spectrophotometer를 사용하였다.

실제 배지에는 Na, Ca 등의 이온이 존재하며, 이들 이온의 존재 하에서 탈질균의 배양 가능성을 알아보기 위해 우선, 0.2 M-NO₃⁻의 농도를 갖는 NH₄NO₃, NaNO₃, Ca(NO₃)₂ 액체 배지에서 탈질균의 배양을 실시하였고, 이는 Fig. 1에 보인 바와 같다. NaNO₃ 배지에서 분해하여야 할 nitrate 농도는 초기에 급격히 감소하였으나, 분해 결과로 발생하는 OH⁻ 이온의 영향으로 급격히 증가한 pH의 영향에 의해 후반부 분해속도는 오히려 NH₄NO₃ 배지에서 기질의 분해보다 떨어져, 전체적으로 최종 분해까지 걸리는 시간은 NaNO₃ 배지 분해가 약간 더 오래 걸리는 것으로 나타났다. Ca 이온을 포함한 액체배지에서는 분해초기에 따른 Ca 이온의 침전, buffer 작용 등으로 인해 pH

가 감소하다가 균주 성장에 따라 중반이후부터 pH가 증가하는 것으로 나타났으며, 전체적으로 Ca 이온 존재는 nitrate 분해속도를 감소시키는 것으로 판단되었다.

탈질균을 이용한 라군 슬러지 질산염 폐액에 포함된 nitrate를 분해하는 최적의 공정조건을 찾기 위해 Table 2에 나타낸 실제 질산염 폐액을 적정한 농도로 희석하고, 배양온도, 초기 nitrate 농도, C/N 비 등의 공정 변수에 따라 균주를 배양하면서 잔류 nitrate의 농도를 측정하였으며, 이 결과를 Fig. 2~4에 나타내었다. 배양온도 25, 30, 40℃에서 탈질균을 배양하면서 잔류 nitrate 농도를 분석한 결과 25℃에서는 후반부에서 nitrate 분해속도가 감소하면서 분해시간이 길어졌으며, 40℃에서는 거의 탈질균 배양이 이루어지지 않는 것으로 나타났다.(Fig. 2) 0.1 M, 0.2 M, 0.3 M-NO₃⁻에 해당하는 초기농도에서 nitrate의 분해에 있어서는 0.1 M의 배지에서 분해속도가 제일 빠르지만, 0.2 M 배지와 상대적으로 비교할 때 전체 분해시간의 면에서는 초기농도 0.2 M-NO₃⁻에서 배양하는 것이 효과적임을 알 수 있었다.(Fig. 3) 전자공여체로 사용된 탄소원(acetic acid)과 질산염과의 비율인 C/N 비는 0.5, 1.0, 1.5에서 실험하였으며, C/N 비 1.0에서 가장 우수한 nitrate 분해 결과를 얻을 수 있었다.(Fig. 4) 이들 연구결과는 향후 계속되는 공정변수의 영향에 대한 결과와 함께, 고농도 질산염 폐액의 미생물 분해 공정 설계에 사용될 것이다.

Table 1. 0.2 M NH₄NO₃ medium

NH ₄ NO ₃	16 g
MgSO ₄	0.967 g
KH ₂ PO ₄	0.853 g
FeSO ₄	2.667 mg
CuSO ₄	0.133 mg
CH ₃ COOH	12 ml
pH	6-7

Table 2. Chemical composition of the filtrate from the lagoon.

	concentration
NO ₃ ⁻	174 g/l
NH ₄ ⁺	34.4 g/l
Na	13 g/l
Ca	1.6 g/l
U	95 mg/l

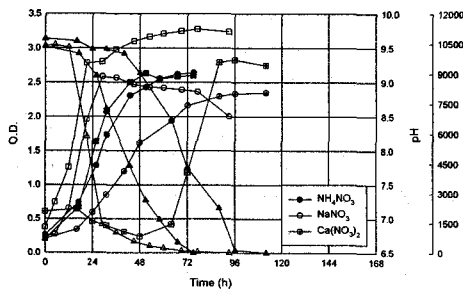


Fig. 1. Incubation at different substrate.(○; O.D., □; pH, and △; NO₃⁻)

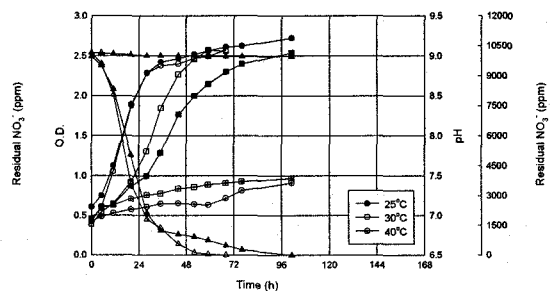


Fig. 2. Incubation at different temperature.(○; O.D., □; pH, and △; NO₃⁻)

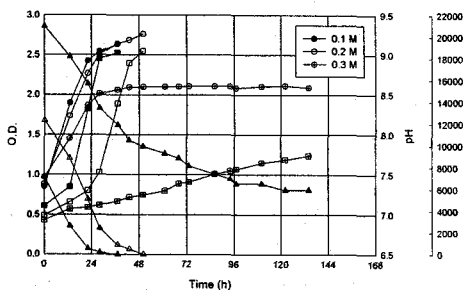


Fig. 3. Incubation at different initial NO₃⁻ concentration.(○; O.D., □; pH, and △; NO₃⁻)

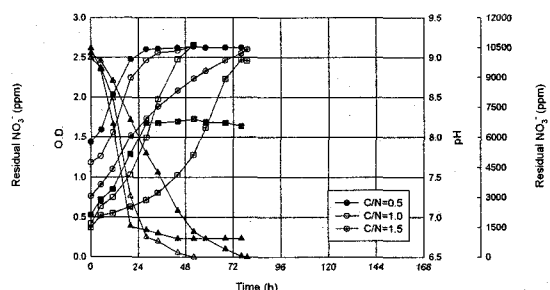


Fig. 4. Incubation at different C/N ratio.(○; O.D., □; pH, and △; NO₃⁻)