

방사성 원소로 오염된 토양에 대한 미생물학적 및 화학적 용출 효율 연구

박현성, 윤정한, 이종운*

1. 서론

세계 각국은 증가하는 에너지 수요에 따른 안정적인 에너지원 공급체계 수립에 부심하고 있다. 이에 따라 그간 몇 회의 대규모 원전사고에도 불구하고 원자력 발전의 계속적 유지가 불가피할 것으로 예측된다. 원자력 발전의 가장 큰 부작용 중의 하나는 다양한 유해 방사성 물질이 생태계에 누출될 수 있는 가능성이다. 생태계의 근간이 되는 지표환경이 방사성 원소로 오염되었을 경우, 그 반감기가 길기 때문에 일반 중금속으로 오염된 토양이나 퇴적물과는 달리 흡착이나 이온교환 등의 고정화를 통한 처리는 근본적이고 완전한 방법이 될 수 없다. 이러한 경우 토양매질에서 오염 방사성 원소를 완전히 용출시킨 후 수거하여 적절한 처리를 하는 것이 가장 효과적이고 완전한 처리방법이 될 것이다. 오염 토양이나 퇴적물로부터 방사성 원소를 용출할 때 산이나 화학물질을 이용한 화학적 용출법 또는 최근 국제적으로 널리 연구되고 있는 박테리아 등의 미생물을 이용한 생물학적 용출법이 유용하게 적용될 수 있을 것이다.

미생물학적 용출법(bioleaching)에서 사용되는 대표적인 박테리아는 철산화(iron-oxidizing) 박테리아인 *Acidithiobacillus ferrooxidans*와 황산화(sulfur-oxidizing) 박테리아인 *A. thiooxidans*가 있다. 위의 두 호기성 박테리아는 독립영양균(lithoautotroph)으로서 별도의 유기물 대신에 공기 중의 이산화탄소를 탄소원으로 이용한다. 또한 이들은 강산성 환경(pH 2~3)에서 활동하며, *A. ferrooxidans*는 Fe^{2+} 를 Fe^{3+} 로 산화시키고 *A. thiooxidans*는 순수 황(elemental sulfur)을 산화, 황산(H_2SO_4)을 생성하며 에너지원을 얻는다. 이때 생성된 Fe^{3+} 는 강력한 산화제로 작용하여 주로 황화물을 산화, 용해시키고, 황산은 pH를 낮추어 주어진 매질에서 금속을 용출시키게 하는 주요한 요인이 된다.

이 연구에서는 방사성 물질로 오염된 토양을 대상으로 하여 미생물학적 용출법과 화학적 용출법을 이용하여 핵종을 효과적이고 경제적으로 용출하는 방법을 모색하고자 하였다. 이를 위해 다양한 조건을 조성한 후 미생물학적 및 화학적 용출실험을 수행하여 그 효율을 비교함으로써 오염토양으로부터 방사성원소의 용출효율을 최대한으로 증진시키는 기술을 수립하고자 하였다.

2. 실험방법

2.1 박테리아 배양

이 연구에 사용된 *A. ferrooxidans*(KCTC 2677)는 대전대학교 안재우 교수에게 분양받아 9K medium(solution A(무기영양분) + solution B(Fe^{2+}))에서 배양하였다. 또한 *A. thiooxidans*(ATCC 8085)는 American Type Culture Collection에서 분양받아 medium 125에서 배양하였다.

주요어: 철산화 박테리아, 황산화 박테리아, 생물학적 용출, 방사성원소, 토양
전남대학교 건설지구환경공학부 지구시스템공학전공

* jongun@chonnam.ac.kr

2.2 토양채취 및 인위적 오염

실험에 사용된 토양은 영광 원자력 발전소 인근에서 채취하였다. -80 mesh 입도의 토양을 취하여 비방사성원소인 ^{59}Co 및 ^{88}Sr 로 오염시켰는데 이는 각각 방사능을 갖는 ^{60}Co (반감기 5.3년)와 ^{90}Sr (반감기 29년)의 대용물로 선택한 것이다. 오염방법은 $\text{CoCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 와 $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ 를 증류순수에 용해하고 혼합하여 각각 1,000 mg/L 농도를 제조하였고, 1.5 L 혼합용액에 토양시료 300 g을 침지한 후 20 °C, 200 rpm 조건으로 24 시간 교반하며 오염시켰다. 오염 후 증류순수를 이용하여 20 °C, 200 rpm 조건에서 30분간 3회 세척하고 35 °C에서 건조하였다.

2.3 용출실험

아래와 같은 각 실험조건을 구성하여, 30 °C, 200 rpm 조건 하 shaking incubator에서 용출실험을 수행하였다. 반응 기간 동안 일정한 간격으로 반응액 시료를 채취하여 0.2 μm 필터를 통과시킨 후, pH, 용존 Co 및 Sr, 용존 총 Fe 및 Fe^{2+} 함량을 측정하였다.

(1) 철산화 박테리아의 용출과 무생물적 용출 (초기 pH 2.0)

- ① 멸균 토양 25 g + solution A 350 mL + solution B 150 mL
- ② 비멸균 토양 25 g + solution A 350 mL + solution B 150 mL
- ③ 멸균 토양 25 g + solution A 350 mL + solution B 150 mL + *A. ferrooxidans* 50 mL
- ④ 토양 25 g + solution A 350 mL + solution B 150 mL + *A. ferrooxidans* 50 mL

(2) 철산화 박테리아의 방사성원소 용출과 다양한 운전조건의 영향 파악 (초기 pH 2.0)

- ① 토양 25 g + 증류수 350 mL + solution B 150 mL + *A. ferrooxidans* 50 mL
- ② 토양 25 g + solution A 500 mL + *A. ferrooxidans* 50 mL
- ③ 토양 25 g + 증류수 500 mL + *A. ferrooxidans* 50 mL

(3) 황산화 박테리아와 혼합균주의 방사성원소 용출 (초기 pH 5.0)

- ① 토양 25 g + solution A 500 mL + 황 5 g + *A. thiooxidans* 50 mL
- ② 토양 25 g + solution A 350 mL + solution B 150 mL + 황 5 g + *A. ferrooxidans* 25 mL + *A. thiooxidans* 25 mL
- ③ 토양 25 g + solution A 500 mL + 황 5 g + 증류수 50 mL

(4) 화학적 용출 (초기 pH 조정 안함)

- ① 토양 25 g + 황산 0.55 mL + 증류수
- ② 토양 25 g + 초산 130 mL + 증류수
- ③ 토양 25 g + EDTA 93 g + 증류수
- ④ 토양 25 g + 증류수

2.4 분석방법

용존 Fe^{2+} 는 ferrozine을 이용, 착색한 후 562 nm 파장에서 UV-vis spectrometer로 측정하였다. 용존된 총 Co, Sr, Fe 함량은 ICP-AES를 이용하여 분석하였다. 실험에 사용되기 전 오염토양과 실험 후 잔류토양은 왕수분해법을 통해 분석하였다.

3. 실험결과 및 토의

철산화 박테리아가 투입된 경우, 무생물적 용출에 비하여 향상된 제거효율을 보일 것으로 기대하였으나 Co와 Sr의 용출을 증가시키지 못 했으며 도리어 무생물적 비교시료에 비하여 상대적으로 적은 양의 용출을 나타내었다. (Fig. 1)

다양한 운전 조건에서 철산화 박테리아의 용출량을 비교한 결과(Fig. 2) 별도로 무기영

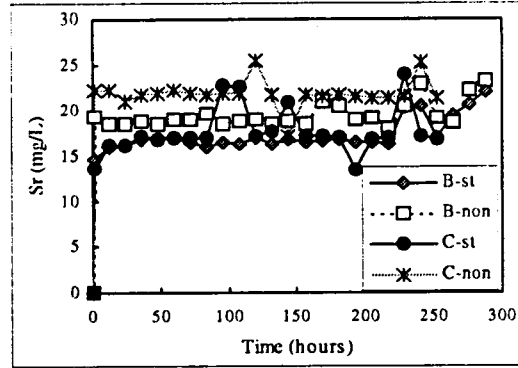
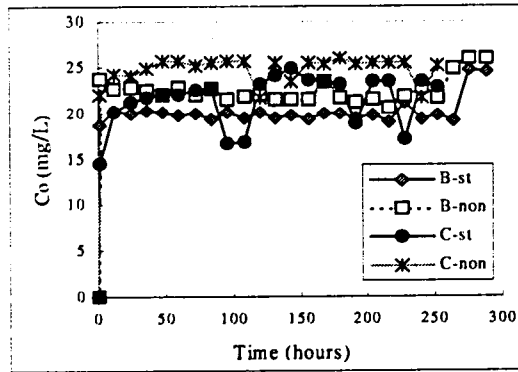


Fig 1. Variation in concentrations of Co and Sr in leaching experiments with *A. ferrooxidans* with time. B: biotic, C: abiotic, st: sterile soil, and non: nonsterile.

양분을 공급하지 않은 경우 향상된 용출효율을 보임으로써, 무기영양분, 즉 NH_4^+ , K^+ , HPO_4^{2-} , Mg^{2+} , Ca^{2+} , NO_3^- 등의 영양분이 이미 토양으로부터 충분히 공급되는 것으로 판단된다. 반면, 박테리아의 왕성한 활동을 보장할 만큼의 Fe^{2+} 는 토양 내에 충분히 존재하지 않음을 알 수 있다.

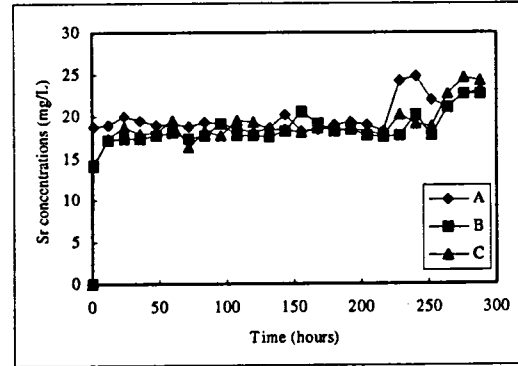
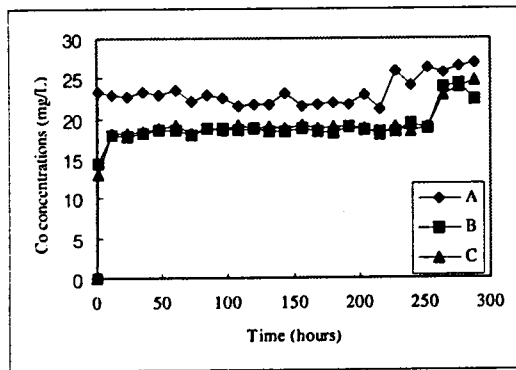


Fig 2. Variation in concentrations of Co and Sr in leaching experiments with *A. ferrooxidans* under various conditions with time. A: bioleaching with solution B, B: bioleaching with solution A, C: bioleaching with distilled water

*A. thiooxidans*와의 혼합균주를 이용한 용출 실험 결과, Co와 Sr의 시간에 따른 용출량을 살펴보면, 위에서 기술한 *A. ferrooxidans*를 단독으로 이용한 다른 실험 조건들과 비교했을 때 그 용출량이 적다는 것을 알 수 있었다(Fig. 3). 이러한 결과에 관한 가장 중요한 원인은 초기 pH에 있는 것으로 생각된다. 즉 *A. ferrooxidans*를 이용한 다른 실험 조건들은 모두 초기 용액의 pH가 2 정도로 낮았던 데 비해 *A. thiooxidans*를 이용한 실험의 pH는 5로서 상대적으로 높았으며, 이것이 관찰된 바와 같은 용출량 저하의 원인인 것으로 판단된다. 이는 토양에서의 방사성원소 용출에 있어 초기 pH가 매우 중요한 요인임을 나타내는 것이다.

화학적 용출법을 통한 Co와 Sr의 용출 효율을 보면, 두 원소 모두 초산, 묽은 황산, EDTA, 물의 순으로 효율이 높았다(Fig. 4). Co의 경우 특히 초산 및 묽은 황산을 투입했을 경우 미생물학적 용출과 매우 비슷한 용출효율을 보였으며, 특히 Sr의 경우에는 위에서 언급했던 어떠한 미생물학적 반응보다 높은 효율을 보였다. 이러한 결과의 주된 이유 중 하나

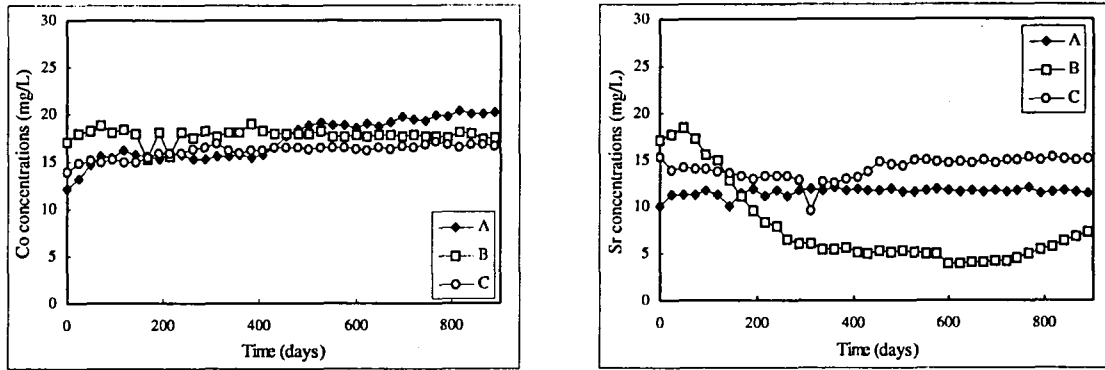


Fig. 3. Variation in concentrations of Co and Sr in leaching experiments with *A. thiooxidans* and *A. ferrooxidans* with time. A: leaching of *A. thiooxidans*, B: leaching of the mixed culture, C: abiotic control of A

는 Fe가 투입되지 않아 이미 용출된 Co 및 Sr을 흡착하는 Fe-침전물이 형성되지 않기 때문으로 생각된다.

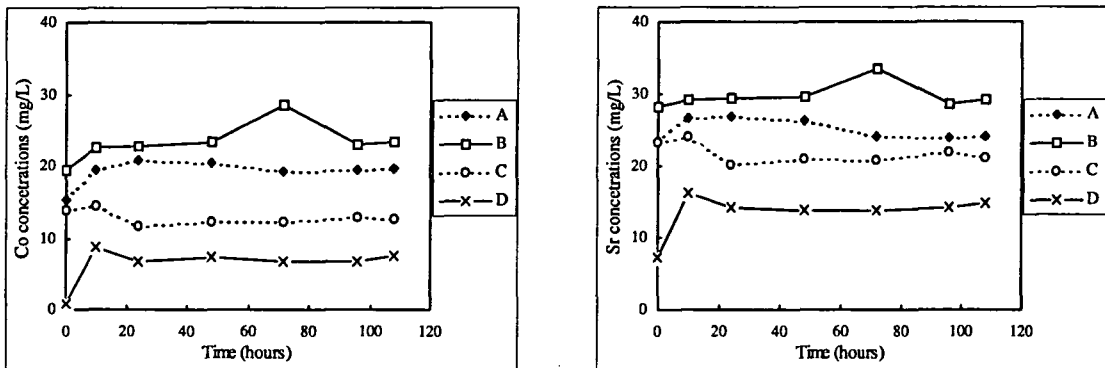


Fig. 4. Variation in concentrations of Co and Sr in chemical leaching experiments with time. A: H_2SO_4 , B: acetic acid, C: EDTA, D: distilled water

4. 결론

반응이 끝난 잔류토양에서 최종 제거효율을 비교하면 Co와 Sr을 동시에 토양으로부터 제거하기 위해서는 EDTA 또는 초산을 사용하는 것이 가장 효율적이며 높은 황산도 좋은 결과를 보이는 것으로 나타났다. 미생물학적 용출법 중에서는 물 또는 무기영양분만 공급한 *A. ferrooxidans*를 이용하는 것이 가장 효율적인 것으로 나타났다. 특히 Sr의 경우 풍부한 Fe^{2+} 와 무기영양분을 공급하면 틀림없이 제거효율이 낮아지는 모습을 보였다. 이를 통해 오염된 자연 토양으로부터 용출법을 이용하여 방사성원소를 처리할 때에는 사전에 화학적 및 미생물학적 용출법의 효율에 대한 충분한 검토가 이루어져야 함을 알 수 있다.

5. 사사

이 연구는 산업자원부의 지원에 의하여 기초전력연구원(R-2003-B-351)주관으로 수행되었다.