

유기성 폐기물 장기시용 후 토양에서 무 (*Raphanus sativus* cv. sodamaltari)의 중금속 흡수

권순익* · 장연아 · 김계훈¹ · 정구복 · 김민경 · 황 해 · 채미진 · 김권래²

농촌진흥청 국립농업과학원, ¹서울시립대학교, ²경남과학기술대학교

Uptake of Heavy Metals by Radish (*Raphanus sativus* cv. sodamaltari) from the Soils after Long-Term Application of Organic Wastes

Soon-Ik Kwon*, Yeon-Ah Jang, Kye-Hoon Kim¹, Goo-Bok Jung, Min-Kyeong Kim, Hae Hwang, Mi-Jin Chae, and Kwon-Rae Kim²

National Academy of Agricultural Science (NAAS), RDA, Suwon, 441-707, Korea

¹The University of Seoul, Seoul, 130-743, Korea

²Gyeongnam National University of Science and Technology, Jinju, 660-758, Korea

This study was carried out to understand the long-term effects of organic waste treatments on the fate of heavy metals in soils originated from the organic wastes and consequent uptake of heavy metals by plant, together with examination of changes in soil properties and plant growth performance. In this study, the soils treated with three different organic wastes (municipal sewage sludge, alcohol fermentation processing sludge, pig manure compost) at three different rates (12.5, 25.0, 50.0 ton ha⁻¹ yr⁻¹) for 7 years (1994 - 2000) were used. To see the long-term effect, plant growth study and soil examination were conducted twice in 2000 and 2010, respectively. There was no additional treatments of organic wastes for 10 years after the organic waste treatment for 7 years. Compared to plant growth examination conducted in 2000 using radish (*Raphanus sativus* cv. sodamaltari), it appeared that height, root length and diameter, fresh weight of radish grown in 2010 decreased in the plots treated with municipal sewage sludge and alcohol fermentation processing sludge and that the extent of decrease was higher with increase of sludge application rates. On the other hand, pig compost treatment increased plant height, root length and diameter, fresh weight with increasing application rates. Cu and Pb concentrations in radish root and leaves increased in 2010 compared to those in 2000 while Ni concentrations in root and leaves decreased. Zn concentration was increased only in the soils treated with pig manure compost. Multiple regression analysis among heavy metal species fractions in soils, soil pH, and metal concentrations in radish root and leaves indicated that the metal uptake by radish was governed mainly by the soil pH and subsequent increase of available heavy metal fractions in soils with organic waste treatments.

Key words: Organic wastes, Heavy metal, Plant uptake, Radish

서 언

유기성 폐기물의 발생량은 해마다 증가하는 추세에 있으며, 폐기물로서 발생되는 주된 형태에는 분뇨, 음식물쓰레기, 하수슬러지 등이 포함되며 육상매립, 소각, 해양투기, 자원화 등 다양한 방법으로 처리되어 왔다 (NIAST, 2003). 그러나 2012년 해양투기가 전면 금지되면서 해양투기에 의존해 왔던 유기성 폐기물들의 육상처리가 더욱 요구되고 있는 실정이다. 육상처리에 있어서 유기성 폐기물은 유기물을

다량 함유하고 있는 유용한 자원으로 적절한 농업활용은 환경 부담을 줄이고 화학비료에 의존한 시비관리로 유기물 함량이 낮아진 농경지 토양의 유기물 보충과 함께 작물에 필요한 양분 공급 및 토양환경을 개선할 수 있는 장점이 있다. Epstein et al. (1976)과 Smith (1996)는 유기물을 다량 함유하고 있는 유기성 폐기물을 토양에 적용하면 토양의 수분 보유력 및 공극률의 증가, 밀도 감소 등 물리성이 개선되며, 토양 pH, 양이온치환능력 등이 증가되면서 유익한 작용을 한다고 하였다. 그러나 유기성 폐기물이 유용한 자원으로 재활용될 수 있는 장점에도 불구하고 유기성 폐기물 내에 존재할 수 있는 유해물질로 인해 자원화 하는 데 많은 제약이 따르며, Nicholson et al. (1997)과 Zhao et al. (1997)은

접수 : 2013. 1. 16 수리 : 2013. 1. 31

*연락처 : Phone: +82312900227

E-mail: sikwon@korea.kr

유기성 폐기물내 중금속 함량이 높아 농경지에 사용하는 데 제약요인이 된다고 하였다. 또한 유기성 폐기물을 농업에 적극적으로 활용하기 위해 슬러지의 시용에 따른 작물의 생육반응, 적정 시용량 및 한계량을 추정하는 다양한 연구 등이 수행되어 왔다 (Chang et al., 1993; Chang et al., 1996; Lee et al., 2000; Choi et al., 2002). 토양 중금속의 식물체 흡수에 관여하는 요인으로는 토양 pH, 유기물 함량, 양이온 교환용량, 토성 (soil texture) 등이 있는데, 토양 pH의 영향이 가장 크다고 알려져 있다 (Alloway et al., 1991). Jung et al. (2001)은 토양 내 pH가 낮으면 Fe, Mn 등의 작물 유효도가 커져 작물에 독성을 일으킬 수 있다고 하였다. 또한, pH는 작물이 이용할 수 있는 유효한 형태로의 양분 변화에 영향을 미치는 중요한 인자이기 때문에, 석회물질의 시용으로 토양 산도를 중성부근으로 조절해야 한다고 하였다.

Logan (1992)은 중금속의 식물체 흡수에 관한 문헌들을 정리하여 중금속을 세 가지 그룹으로 분류하였다. 즉, 중금속을 함유한 하수슬러지의 시용량 증가에 따라 식물체 흡수량이 가장 많이 증가하는 Cd, Mo, Zn, 식물체의 흡수량이 다소 증가하는 Hg, Ni, Se, 그리고 슬러지 시용량 증가에도 식물체 흡수량이 거의 증가하지 않는 Cu, Cr, Pb 그룹 등으로 분류하였다. 또한, Jung et al. (2002)은 토양에 존재하는 중금속들을 세 분류로 나누어 토양 내 불용성으로 존재하여 식물에 축적되지 않거나 뿌리에 흡수되어도 지상부로의 이행이 되지 않는 성분으로 Cr, Hg, Pb, Al, Fe 등이 있으며, 식물이 한계량 이상을 흡수할 때 식물체가 피해를 받게 되는 중금속은 As, B, Co, Cu, Mn, Zn 등이라 하였다. 그리고 흡수 방어가작을 통하지 않고 작물에 쉽게 흡수되어 인체에 영향을 미치는 성분으로 Cd, Se, Mo가 있다고 하였다. 그러나 Smith (1996)는 토양 중 중금속 존재형태와 작물로의 흡수 이행성이 토양 내 중금속 농도, 작물 자체 특성 및 토양의 이화학적 특성에 따라 매우 다르다고 보고하였다.

Lee et al. (1997)과 Jung et al. (2002)은 유기성 폐기물을 사용한다는 것은 자원 재순환 측면에서 바람직한 일이며, 유기물원으로 토양에 이용 시 토양 개량을 돕는 유익한 작용을 한다고 하였다. 하지만 중금속 및 유기성 독성물질 등 환경유해성 물질이 식물체 내로 흡수되어 먹이사슬을 통해 인간의 건강에도 영향을 미칠 수 있고, 토양 및 수질 등의 오염을 유발시킬 수 있기 때문에 유기성 폐기물을 신중하게 시용해야 한다고 하였다. 하수슬러지의 농업적 활용 및 영향에 관한 연구는 개별 성분에서 종합적인 검토 등 다양한 측면에서 계속되고 있다 (McBride, 1995; Smith, 2009; Koo et al., 2010; Ferreira-Dominguez et al., 2012; Luo et al., 2012; Rigueiro-Rodríguez et al., 2012).

따라서 본 연구는 1994년부터 2000년까지 유기성 폐기물을 장기시용 하였던 토양에서 유기성 폐기물 시용 중지 후, 10년이 경과한 노지상태의 토양을 대상으로 작물을 재배하

였을 때, 시간의 경과에 따른 작물의 생육 및 토양의 중금속에 따른 작물 내 중금속 흡수 특성을 살펴보고자 수행하였다.

재료 및 방법

시험작물 및 재배 1994년부터 2000년까지 재배한 작물은 봄에는 알타리 무 (진미알타리무, *Raphanus sativus* cv. jinmialtari), 가을에는 김장무 (백경무, *Raphanus sativus* cv. baekkyoung)였다. 10년이 경과한 2010년에는 2000년의 작물과 비교하기 위해 봄에 알타리무 (소담알타리무, *Raphanus sativus* cv. sodamaltari)를 재배하였다. 알타리무는 2010년 4월 19일에 12 × 15 cm 간격으로 파종하여 재배한 후 2010년 6월 17일에 수확하였다. 각 처리구에는 자연 강우 외에 무 생육을 위해 필요한 경우 관수를 하였다.

시료의 채취 및 분석방법 토양의 화학성 및 식물체 분석은 국립농업과학원 토양 및 식물체 분석법에 준하여 실시 하였다 (NIAST, 2000). 식물체의 분석은 각 처리구별로 무를 10개씩 채취하여 무의 길이 및 무게를 측정 후 뿌리와 잎을 분리하여 건조한 후 분쇄하여 분석에 이용하였다. 식물체의 총 질소 함량은 시료 1 g에 분해액 ($H_2SO_4 : HClO_4 = 1 : 9$) 10 mL을 넣고 Kjeldahl digestion법에 따라 분석하였다. 식물체의 중금속 함량은 Microwave 기기로 분해하는 방법에 따라 건조시료 0.5 g에 질산 10 mL을 넣고 압력 130 psi에서 분해한 분해액을 50 mL 볼륨 플라스크에 부피를 맞춘 후 ICP (GBC Integra XL, Australia)로 측정하였다. 토양 중금속의 화학적 존재형태 및 작물 흡수에 대한 유효도를 평가하기 위해서는 연속침출법으로 분석하였다 (Sposito et al., 1982; Sims and Kline, 1991; Yoo et al., 1995). 연속침출 시험방법은 2 mm 체를 통과시킨 풍건토양 5 g을 50 mL polyethylene 원심 분리관에 넣고 증류수 25 mL을 가하여 25°C에서 30분간 진탕한 후 원심분리하여 상정액을 분리하였다 (수용태). 연속하여 0.5 M KNO_3 (치환태) 16시간, 증류수로 3회 반복 세척, 0.5 M NaOH (유기태) 16시간, 0.05 M EDTA (탄산염태) 6시간, 80°C에서 4 M HNO_3 (황화물 및 잔류태) 16시간으로 연속침출하였다. 토양 중 중금속에 대한 형태별 침출조건은 Table 1과 같다. 연속 침출한 상정액 중 중금속은 ICP (GBC Integra XL, Australia)로 측정하였다.

통계처리 본 시험에서 분석된 모든 데이터를 SPSS 프로그램 (SPSS ver.18.0)을 이용하여 통계 분석하였다.

Table 1. Chemical extraction scheme for fractionation of metals in soils.

Fraction	Extractant	Shaking time	Metal species
F1	H ₂ O	30 min.	Water soluble
F2	0.5 M KNO ₃	16 hr.	Exchangeable
F3	0.5 M NaOH	16 hr.	Organically bound
F4	0.05 M EDTA	6 hr.	Carbonate
F5	4 M HNO ₃	16 hr. (at 80°C)	Sulfide & Residual

Table 2. Growth characteristics of radish (*Raphanus sativus* cv. *sodamaltari*) with various organic waste treatments in 2010.

Treatment †	Plant height	Root length	Root diameter	Fresh weight	Dry weight
	cm			g	
NPK	40.9±2.8	8.0±0.6	39.2±2.4	1208±160	111±11
MSS 12.5‡	37.6±0.4	7.9±0.3	26.8±15.5	1016±77	97±3
MSS 25	36.0±0.5	8.2±0.5	37.1±0.9	1008±83	99±5
MSS 50	34.2±0.6	7.0±0.2	35.0±1.3	866±30	88±1
FS 12.5	39.5±2.4	7.6±0.3	36.2±2.0	1062±232	97±12
FS 25	34.5±1.8	6.9±0.6	38.0±0.6	969±43	102±5
FS 50	28.7±1.6	4.8±0.0	27.6±3.3	581±127	74±11
PMC 12.5	44.1±2.7	8.5±0.3	39.8±0.6	1341±133	111±5
PMC 25	46.8±2.2	9.0±0.3	41.4±2.5	1449±146	117±7
PMC 50	65.2±22.0	13.2±3.9	44.7±0.5	1713±99	138±5

†: NPK: Chemical fertilizer.

MSS: Municipal sewage sludge.

FS: Alcohol fermentation processing sludge.

PMC: Pig manure compost.

‡: ton ha⁻¹ yr⁻¹.

결과 및 고찰

식물체 생육반응 유기물 사용중지 10년 후 시험포장에 알타리 무를 재배한 생육조사 결과는 Table 2와 같다. 돈분퇴비 처리구에서 초장, 무의 길이와 직경은 사용량의 증가에 따라 증가하였고, 생중량 또한 다른 처리구보다 높았다. 반대로 생활하수슬러지와 주정슬러지 처리구에서는 사용량이 증가함에 따라 초장, 무의 길이와 직경, 생중량이 감소하였다. 재배기간 동안 식물체의 생육반응은 생활하수슬러지 처리구에서 사용량의 증가에 따라 작물 잎 끝이 갈변하였고, 사용량이 50 ton ha⁻¹yr⁻¹일 때 피해증상이 더욱 심하였다. 주정슬러지 처리구에서는 사용량의 증가에 따라 식물체의 생육반응이 저조하였으며, 사용량의 증가와 함께 수량도 줄어들었다. 반면, 돈분퇴비 처리구에서는 사용량의 증가와 관계없이 모두 생육반응이 좋았다. 이와 같은 결과는 유기물 사용을 중지한 후 10년이 경과했음에도 불구하고 유기성 폐기물의 종류뿐만 아니라 사용량을 초과하여 유기물을 사용하였을 경우 오랜 시간이 지난 후에도 토양 및 식물체의 생육에 영향을 미칠 수 있다는 것을 시사한다. Kwon (2003)은 재료의 성분 함량에 따른 토양 내 집적량 및

식물의 이용 정도가 상이하기 때문에 유기성 폐기물을 토양에 처리할 때 식물 양분으로서의 역할을 위해서는 토양 및 폐기물의 성분 분석을 통하여 먼저 함량이 높은 성분을 기준으로 적정 사용량을 산정하고 부족한 성분에 대하여 화학비료로 보충하는 것이 토양의 적정 양분을 유지하고 식물을 안정적으로 생산할 수 있는 방법이라고 보고하였다. 한편, Kim et al. (2000)도 퇴비의 사용량 증가에 따라 토양 내 질소와 유효인산 함량이 증가하였고, 따라서 퇴비 사용시에는 토양 내 인산의 과량 집적에 대한 관리가 필요하다고 하였다.

식물체 중금속 흡수 이행 유기성 폐기물이 처리되었던 첫해(1994년)와 7년간 계속적으로 유기성 폐기물이 처리되었을 때 및 유기물의 사용중지 10년 후 식물체 내의 중금속 함량의 결과는 Table 3과 같다. 1994년과 2000년은 진미알타리무를, 2010년에는 소담알타리무를 재배하였으나 본 시험에서는 품종간의 차이는 고려하지 않았다. Kwon (2003)은 식물체에 의한 토양 중 중금속 흡수에 영향을 미치는 인자에는 pH, 유기물, 교환성양이온함량, 점토함량, 토성, 수분 등이 있으며, 토양 조건과 폐기물의 종류 및 성상, 중금속의 종류, 농도, 길항 및 상승작용, 작물의 종류

Table 3. Some heavy metal contents in roots and leaves of radish (*Raphanus sativus*) grown in the soils treated with various organic wastes (Dry weight basis).

Sludge	Heavy metal	Year	Root				Leaves			
			NPK [†]	Tr.1 [‡]	Tr.2	Tr.3	NPK	Tr.1	Tr.2	Tr.3
			mg kg ⁻¹				mg kg ⁻¹			
NPK	Cu	1994	1.94				2.45			
		2000	2.83				4.74			
		2010	2.33				5.34			
	Ni	1994	-				-			
		2000	4.86				4.40			
		2010	1.84				1.47			
	Pb	1994	0.41				0.61			
		2000	0.00				1.34			
		2010	0.81				1.73			
	Zn	1994	36.6				68.5			
		2000	38.9				39.9			
		2010	28.2				59.8			
Municipal sewage sludge (MSS)	Cu	1994		1.47	2.41	4.65		2.85	2.25	2.88
		2000		3.40	5.82	6.34		4.37	6.19	8.61
		2010		2.57	4.05	4.49		5.47	7.36	9.19
	Ni	1994		-	-	-		-	-	-
		2000		3.08	4.86	7.43		2.75	5.35	4.30
		2010		1.38	1.91	1.67		0.94	0.81	1.02
	Pb	1994		0.31	0.66	1.85		0.54	0.51	0.61
		2000		0.12	0.00	0.03		1.39	1.42	1.83
		2010		0.84	0.56	1.37		2.49	2.26	2.32
	Zn	1994		45.3	48.4	67.8		89.8	81.0	96.0
		2000		146.8	323.3	300.3		216.2	498.6	468.5
		2010		58.6	78.3	68.3		109.4	156.1	102.0
Alcohol fermentation processing sludge (FS)	Cu	1994		2.53	2.97	2.68		2.30	2.90	2.75
		2000		2.76	3.50	4.56		5.00	5.12	6.42
		2010		2.04	4.06	6.07		5.79	6.60	8.34
	Ni	1994		-	-	-		-	-	-
		2000		1.97	4.20	2.88		2.35	1.98	2.45
		2010		1.66	1.82	2.70		2.38	1.49	1.75
	Pb	1994		0.61	1.93	0.78		0.61	0.81	0.67
		2000		0.00	0.00	0.48		0.89	1.51	1.10
		2010		1.36	1.82	2.70		1.82	1.84	2.34
	Zn	1994		42.2	42.8	45.9		73.5	75.4	81.0
		2000		60.4	54.4	72.8		101.3	64.2	62.3
		2010		42.6	29.8	42.7		98.7	46.8	51.3
Pig manure compost (PMC)	Cu	1994		2.95	2.55	2.23		2.32	2.58	2.02
		2000		2.74	2.57	4.40		4.48	4.14	4.89
		2010		3.08	4.30	5.75		4.72	7.12	8.08
	Ni	1994		-	-	-		-	-	-
		2000		2.00	0.91	0.43		1.26	1.07	2.60
		2010		1.31	0.98	0.76		0.89	0.67	0.67
	Pb	1994		0.83	0.70	0.70		0.74	0.74	0.40
		2000		0.08	0.00	0.00		1.50	1.47	1.33
		2010		0.58	0.84	0.88		1.67	1.72	1.93
	Zn	1994		33.4	30.3	34.1		66.0	66.0	62.3
		2000		32.3	21.0	25.1		38.7	21.5	20.9
		2010		70.1	108.1	99.0		119.7	203.6	219.6

Radish varieties grown in the soils were jinmialtari at 1994 and 2000, sodamaltari at 2010.

[†]: NPK: Chemical fertilizer.

[‡]: Tr.1, Tr.2, and Tr.3 were treatment of organic waste at 12.5, 25.0, and 50.0 ton ha⁻¹ yr⁻¹, respectively.

등 복잡한 상호작용이 연관되어 있다고 보고 하였다. Smith (1996)는 토양 중금속의 식물체 흡수에 영향을 주는 인자는 토양 pH, CEC (Cation Exchange Capacity), 유기물, 중금속 화학종, 시간 및 투입되는 폐기물의 성상 등이 관여하는데 그 중 토양 pH가 가장 중요한 인자이며, 일반적으로 토양의 pH가 낮아지면 중금속의 이동성이 높아진다고 하였다. 또한, Bolton (1975)과 Dijkshoorn et al. (1981)은 Zn, Ni, Cd은 pH에 민감하며, Cu, Pb, Cr은 pH의 영향을 적게 받는다고 하였다. 토양 pH, 토양 중 중금속의 총합량 및 무식물체 부위별 중금속 축적 농도와와의 관계를 살펴본 다중회귀식 분석 결과는 Table 4와 같다.

10년 후 Cu 함량은 2000년과 비교했을 때 모든 처리구에서 사용량의 증가에 따라 식물체 부위별 Cu 함량은 증가하였고, 뿌리보다 잎에서 높은 농도를 보였는데, 이는 Cu가 뿌리에서 잎으로 이행되었기 때문인 것으로 판단되었다. 식물체 부위별 중금속 흡수에 따른 토양 중 중금속 총합량과 토양 pH와의 관계 (Table 4)에서 뿌리 ($r=0.786^{***}$)와 잎 ($r=0.818^{***}$)은 모두 높은 유의성이 있었고, 식물체 부위별 Cu 함량 증가에는 pH의 감소가 영향을 미친 것으로 판단되었다. 10년 후 Ni의 함량은 2000년과 비교했을 때 처리구간의 차이는 있었지만 대부분 함량이 감소하였고, 사용량의 증가에 따라 대부분 잎보다 뿌리에서 함량이 높았는데, 이러한 결과는 Ni의 식물체 부위별 함량에 따른 토양 중 중금속 총합량과 토양 pH 관계에서 잎보다 뿌리 ($r=0.675^{***}$)에서 유의성이 높은 결과와 일치하였다 (Table 4). Pb의 함량은 2000년과 비교하였을 때 10년 후 모든 처리구에서 뿌리와 잎 모두 축적량이 증가하였는데, 식물체 부위별 함량에 따른 토양 중 중금속 총합량과 토양 pH 관계에서 Pb의 함량은 뿌리 ($r=0.697^{***}$)와 잎 ($r=0.456^*$)에서 모두 유의성이 있었고, 뿌리에서 유의성이 더 높았다 (Table 4). 식물체의 중금속 함량이 증가한 것은 토양 pH가 감소하면서 식물체로

의 중금속 흡수를 도운 것으로 판단되었다. 또한, 식물체 부위별 함량에서 Cu, Ni은 잎에서 유의성이 높았으나, Pb은 뿌리에서 유의성이 높았다. 따라서 중금속의 종류, 토양 중 중금속 함량, pH 등에 따라 식물체의 부위별 흡수이행이 다르다고 판단되었다.

10년 후 생활하수슬러지와 주정슬러지 처리구에서 Zn의 함량은 감소하였고, 반면에 돈분퇴비 처리구는 다량의 Zn이 흡수되었다. 이러한 결과는 2000년과 비교하였을 때 상반된 결과였다 (Table 3). 돈분퇴비 처리구에서 식물체 부위별 흡수된 Zn의 함량은 뿌리보다 잎에서 높았고, 식물체 부위별로 토양 중 중금속의 함량과 pH관계에서도 뿌리 ($r=0.467^*$)보다 잎 ($r=0.669^{***}$)에서 높은 유의성을 보인 결과와도 일치하였다 (Table 4). 돈분퇴비 처리구에서 Zn 함량의 증가는 유기물의 사용기간 (1994 ~ 2000년) 토양 pH가 6.5~6.7로 높았을 때는 흡수량이 낮았던 반면, 10년 후에는 pH가 4.6~4.9로 감소했을 때 식물체 내 흡수량이 증가한 결과에서 pH 감소가 Zn의 흡수에 영향을 준 것으로 판단되었다.

Kwon et al. (2012)은 유기성 폐기물의 장기연용 토양에서 사용 전, 7년 연속 사용 후, 그리고 사용을 중단한 후 10년 뒤의 토양에 대한 중금속의 존재형태에 대해 보고하였다. Pb에 대해서는 Jung et al. (2000)과 Yoo et al. (1995)의 결과와 마찬가지로 EDTA 침출태가 높았다. Zn의 경우에는 2000년과 2010년 모두 모든 처리구에서 HNO_3 침출태가 주된 존재형태였는데, Chang et al. (1984)은 하수슬러지를 사용한 토양은 HNO_3 와 EDTA의 침출태가 Zn의 주된 존재형태라고 하였다. 이를 바탕으로 연속침출에 의한 토양 중 중금속 존재형태 및 토양 pH와 무식물체 부위별 다중회귀식을 구한 결과는 Table 5와 같다. 연속침출에 의한 중금속의 존재형태와 식물체 부위별 중금속 흡수와의 관계에서 Cu, Zn은 뿌리와 잎에서 모두 높은 유의성을 보였다. 이는

Table 4. The predictive equations by multiple regression analysis among metal concentrations in radish (*Raphanus sativus* cv. sodamaltari), total concentrations of metals in soils, and soil pHs with various organic wastes treatments in 2010.

Equation	R
$\log(\text{root Cu})^\dagger = 0.315 + 0.561 \log(\text{soil Cu})^\ddagger - 0.127(\text{soil pH})^\S$	0.786 ^{***}
$\log(\text{leaves Cu}) = 0.686 + 0.301 \log(\text{soil Cu}) - 0.065(\text{soil pH})$	0.818 ^{***}
$\log(\text{root Ni}) = 0.750 + 0.618 \log(\text{soil Ni}) - 0.285(\text{soil pH})$	0.675 ^{***}
$\log(\text{leaves Ni}) = -0.105 + 0.951 \log(\text{soil Ni}) - 0.196(\text{soil pH})$	0.514 [*]
$\log(\text{root Pb}) = 3.142 - 0.977 \log(\text{soil Pb}) - 0.420(\text{soil pH})$	0.697 ^{***}
$\log(\text{leaves Pb}) = -0.381 + 0.597 \log(\text{soil Pb}) - 0.034(\text{soil pH})$	0.456 [*]
$\log(\text{root Zn}) = -1.016 + 1.183 \log(\text{soil Zn}) + 0.267(\text{soil pH})$	0.467 [*]
$\log(\text{leaves Zn}) = -1.703 + 1.354 \log(\text{soil Zn}) + 0.433(\text{soil pH})$	0.669 ^{***}

†: Logarithm (base 10) of the radish tissue metal concentrations (mg kg⁻¹ dry weight).

‡: Logarithm (base 10) of the total soil metal concentrations (mg kg⁻¹).

§: Soil : Water=1:5.

*, **, and ***: Significant at 0.05, 0.01, and 0.001 levels of probability respectively.

연속침출에 의한 중금속의 존재형태 및 토양 pH가 뿌리에
서의 흡수와 잎으로의 이행에 관련이 있음을 나타내는 것이

다. Ni의 함량은 뿌리 ($r=0.799^{***}$)와 잎 ($r=0.694^*$)에서 모
두 유의성을 보였고, 잎보다 뿌리에서 높은 유의성을 보였다.

Table 5. Multiple regression equations between plant concentrations of Cu, Ni, Pb, Zn together with soil pH and metal concentration in each soil fraction in 2010.

Regression equation	R
$Cu_{root} = 23.070 - 4.335 \times pH - 5.781 \times H_2O - 0.803 \times KNO_3 + 0.017 \times NaOH + 0.626 \times EDTA - 0.470 \times HNO_3$	0.802 ^{***}
$Cu_{leaves} = 6.982 - 0.480 \times pH - 4.540 \times H_2O + 0.546 \times KNO_3 + 0.141 \times NaOH - 0.177 \times EDTA - 0.274 \times HNO_3$	0.851 ^{***}
$Ni_{root} = 0.983 - 0.280 \times pH + 3.120 \times H_2O - 0.085 \times KNO_3 + 0.039 \times NaOH - 0.143 \times EDTA + 0.079 \times HNO_3$	0.799 ^{***}
$Ni_{leaves} = 0.100 - 0.047 \times pH + 7.481 \times H_2O - 0.158 \times KNO_3 - 0.055 \times NaOH + 0.043 \times EDTA + 0.010 \times HNO_3$	0.694 [*]
$Pb_{root} = 1.464 - 0.335 \times pH + 3.839 \times H_2O - 0.070 \times KNO_3 - 0.047 \times NaOH - 0.022 \times EDTA + 0.027 \times HNO_3$	0.753 ^{**}
$Pb_{leaves} = 0.046 - 0.016 \times pH - 1.096 \times H_2O + 0.056 \times KNO_3 - 0.006 \times NaOH + 0.018 \times EDTA + 0.017 \times HNO_3$	0.542 ^{ns}
$Zn_{root} = -39.889 - 10.496 \times pH + 19.530 \times H_2O + 0.403 \times KNO_3 - 0.825 \times NaOH - 0.338 \times EDTA + 2.888 \times HNO_3$	0.838 ^{***}
$Zn_{leaves} = -200.153 + 18.180 \times pH + 36.914 \times H_2O + 1.167 \times KNO_3 + 1.857 \times NaOH - 0.554 \times EDTA + 4.151 \times HNO_3$	0.865 ^{***}

Table 6. Standardized partial regression coefficients (X- μ /SD) in multiple linear regression between heavy metals fractions in soils and radish (*Raphanus sativus* cv. sodamaltari) cultivated in the soils amended with various organic wastes in 2010.

Treatment	Heavy metal	Fraction [†]					
		WAT	EXC	ORG	CAR	SUL/RES	
Chemical fertilizer	Root	Cu	0.780	-0.975	-0.675	-0.361	0.364
		Ni	0.996	-0.546	-0.845	0.508	0.416
		Pb	0.106	0.486	-0.434	-0.999	-0.435
		Zn	0.526	-0.218	-0.974	-0.474	-0.947
	Leaves	Cu	0.921	-0.657	0.329	0.650	-0.647
		Ni	0.994	-0.703	-0.720	0.324	0.225
		Pb	-0.901	0.485	-0.536	0.494	0.994
		Zn	0.589	-0.821	0.159	0.994	0.654
Municipal sewage sludge (MSS)	Root	Cu	-0.490	-3.662	-0.725	3.793	1.356
		Ni	1.092	-0.416	0.410	-0.705	-0.238
		Pb	1.347	1.127	-0.392	-0.801	0.096
		Zn	-2.289	-0.785	-0.237	1.683	-0.643
	Leaves	Cu	0.091	2.174	0.712	-2.296	0.332
		Ni	-0.048	0.017	-0.032	0.048	0.341
		Pb	0.890	0.649	-0.440	-0.599	-0.212
		Zn	-2.239	1.181	-0.523	1.415	-0.516
Alcohol fermentation processing sludge (FS)	Root	Cu	-1.290	-0.187	0.769	0.726	0.768
		Ni	-0.537	0.601	0.709	-0.299	0.704
		Pb	0.528	-0.015	0.253	0.334	0.439
		Zn	0.257	-0.640	-0.270	-0.693	-0.207
	Leaves	Cu	-0.139	0.591	4.366	-2.288	-0.341
		Ni	0.888	-0.175	-1.288	0.135	-0.115
		Pb	-0.176	0.046	0.481	0.365	0.442
		Zn	-0.660	-0.213	0.233	-0.460	0.520
Pig manure compost (PMC)	Root	Cu	-0.264	0.451	-1.121	2.869	-1.155
		Ni	0.013	0.676	-0.478	-0.273	0.854
		Pb	-0.031	0.761	-0.425	-0.109	0.913
		Zn	1.413	-0.156	-1.627	0.891	0.264
	Leaves	Cu	-1.067	0.618	1.544	-0.421	0.869
		Ni	-0.363	0.095	-0.352	-0.292	0.761
		Pb	-1.045	-1.063	0.876	2.150	-0.612
		Zn	0.662	0.167	-0.042	-0.232	0.490

[†]: WAT: Water soluble (H₂O extractable); EXC: Exchangeable (0.5 M KNO₃ extractable); ORG: Organically bound (0.5 M NaOH extractable); CAR: Carbonate (0.05 M EDTA extractable); SUL/RES: Sulfide and Residual (4 M HNO₃ extractable).

반면에 Pb는 뿌리 ($r=0.753^{**}$)에서는 유의성을 보였고, 잎에서는 유의성이 없는 것으로 나타났다. 따라서, Pb는 뿌리에서의 흡수가 많고 잎으로의 이행이 어렵다고 추정되었다.

식물체 부위별 흡수된 중금속 함량에 대한 다중회귀 분석 결과 토양 중 중금속의 총함량과 연속침출을 통한 중금속의 형태별 함량에서 유사한 상관을 나타냈다 (Table 5 and 6).

기여도는 무 뿌리 및 잎의 중금속과 독립변수인 각 중금속 형태별 함량들을 표준화 ($X-\mu/SD$)시킨 다음 다중회귀분석으로 얻은 표준화계수의 크기에 따라 결정하였다. 화학비료 처리구에서 Cu와 Zn은 뿌리와 잎으로의 흡수에 H₂O 침출태의 기여도가 높았다. Pb는 뿌리에서는 KNO₃ 침출태, 잎에서는 HNO₃ 침출태가 높았으며, Zn은 뿌리에서는 H₂O 침출태, 잎에서는 EDTA 침출태의 기여도가 높았다. 생활하수슬러지 처리구의 Cu와 Zn은 EDTA 침출태의 기여도가 높았고, Ni과 Pb은 H₂O 침출태의 기여도가 높았다. 잎으로의 중금속 이행에 대한 기여도는 각 중금속마다 달랐다. 주정슬러지 처리구에서 뿌리 흡수의 기여도는 Cu와 Ni은 NaOH 침출태, Pb과 Zn은 H₂O 침출태가 높았고, 잎에서는 다소 차이를 보였다. 돈분퇴비 처리구에서 Ni은 뿌리와 잎 모두 HNO₃ 침출태 기여도가 높았고, Zn은 뿌리와 잎에서 H₂O 침출태의 기여도가 높았다. 돈분퇴비 처리구에서 뿌리와 잎 모두 식물이 이용하기 쉬운 H₂O 침출태가 기여도가 높았던 결과는 돈분퇴비 처리구에서만 Zn의 함량이 높았던 결과 (Kwon et al, 2012)와 연관이 있었다.

결론

본 연구는 과거 유기성 폐기물 (생활하수슬러지, 주정슬러지, 돈분퇴비)을 장기간 (1994~2000년) 사용하였던 토양에서 작물재배를 통해 작물의 생육반응 및 작물체로의 중금속 흡수 이행 등을 살펴보고자 수행하였다. 식물체의 생육반응은 생활하수슬러지와 주정슬러지 처리에서 사용량의 증가에 따라 수량은 줄어들었고, 초장 및 뿌리의 직경 등 생육에 있어 저해를 받은 것으로 나타났다. 식물체 내 중금속 함량은 Cu와 Pb은 뿌리와 잎 모두 2000년에 비해 10년 후인 2010년에는 증가하였고, Ni의 함량은 뿌리와 잎에서 모두 감소하였다. Zn은 돈분퇴비 처리구에서만 뿌리와 잎에서 중금속 함량이 증가하였다. 식물체 내 중금속 함량의 증가를 토양 pH와 토양 중 중금속 총함량과의 관계, 토양 pH와 연속침출을 통한 형태별 함량과의 다중 회귀분석 결과, Cu는 뿌리와 잎 모두 유의성이 있었다. 또한, Ni과 Pb은 뿌리에서 유의성이 높았고, Zn은 잎에서의 유의성이 더 높았다. 이는 시간의 경과에 따라 토양 pH가 감소하면서 식물체로의 중금속 흡수를 도운 것으로 판단되었다. 무의 식물체 부위별로 중금속 흡수 이행성에 영향을 미치는 토양 중 중

금속 결합형태에 따른 기여도를 본 결과, 생활하수슬러지 처리구에서 뿌리로의 흡수에서는 Cu와 Zn은 침출태, Ni과 Pb은 H₂O 침출태의 기여도가 높았다. 잎으로의 기여도는 중금속마다 차이가 있었다. 주정슬러지 처리구에서는 뿌리 흡수의 기여도에는 Cu와 Ni은 NaOH 침출태, Pb과 Zn은 H₂O 침출태의 기여도가 높았고, 잎으로의 흡수 기여도는 Cu와 마찬가지로 중금속마다 다른 차이를 보였다. 돈분퇴비 처리구에서 Ni은 뿌리와 잎 모두 HNO₃ 침출태 기여도가 높았고, Zn은 뿌리와 잎에서 H₂O 침출태의 기여도가 높았다.

사 사

본 연구는 농촌진흥청 국립농업과학원 농업과학기술 연구개발사업(과제번호: PJ008566)의 지원에 의해 이루어진 것임.

인용문헌

- Alloway, B.J. and A.P. Jackson. 1991. The behaviour of heavy metals in sewage sludge-amended soils. *Sci. Total Environ.* 100:151-176.
- Bolton, J. 1975. Liming effects on the toxicity to perennial ryegrass of a sewage sludge contaminated with zinc, copper and chromium. *Environ. Pollut.* 9:295-304.
- Chang, A.C, A.L Page, J.E. Warneke, and E. Grgurevic. 1984. Sequential extraction of heavy metals following a sludge application. *J. Environ. Qual.* 13:33-38.
- Chang, K.W., I.B. Lee, J.S. Lim, Y.H. Kim, S.S. Lee, and H.T. Lim. 1996. Effect of application of water treatment sludge on the yields and chemical properties of Soybean (*Glycine max*) and Carrot(*Daucus carota*). *Korean J. Soil Sci. Fert.* 29:275-281.
- Chang, K.W., S.D. Kim, and Y.H. Kim. 1993. Effect of water treatment sludge application on the growth of Altari Radish(*Raphanus sativus* L.). *Korean J. Soil Sci. Fert.* 26:78-84.
- Choi, J., D.H. Lee, M. Park, C.R. Choi, and K.S. Kim. 2002. Effect of municipal sewage sludge on soil chemical properties and growth of rose (*Rosa hybrida* L.). *Korean J. Environ. Agric.* 21:117-121.
- Dijkshoorn, W., J.E.M. Lampe, and L.W. van Broekhoven. 1981. Influence of soil pH on heavy metals in ryegrass from sludge-amended soil. *Plant and Soil* 61:277-284.
- Epstein, E., J.M. Taylor, and R.L. Chaney. 1976. Effects of sewage sludge and sludge compost applied to soils on some physical and chemical properties. *J. Environ. Qual.* 5:422-426.
- Ferreiro-Dominguez, N., A. Rigueiro-Rodriguez, and M.R. Mosquera-Losada. 2012. Sewage sludge fertiliser use:

- Implication for soil and plant copper evolution in forest and agronomic soils. *Sci. Total Environ.* 424:39-47.
- Jung, B.G., J.W. Choi, E.S. Yun, J.H. Yoon, and Y.H. Kim. 2001. Monitoring on chemical properties of bench marked upland soils in Korea. *Korean J. Soil Sci. Fert.* 34:326-332.
- Jung, G.B., W.I. Kim, and I.S. Ryu. 2000. Fractionation and availability of heavy metals in paddy soils near abandoned mining areas. *Korean J. Environ. Agric.* 19:319-323.
- Jung, G.B., W.I. Kim, J.S. Lee, and S.G. Yun. 2002. Effects of liming on uptake to crops of heavy metals in soils amended with industrial sewage sludge. *Korean J. Environ. Agric.* 21:38-44.
- Kim, J.G., K.B. Lee, S.B. Lee, D.B. Lee, and S.J. Kim. 2000. The effect of long-term application of different organic material sources on chemical properties of upland soil. *Korean J. Soil Sci. Fert.* 33:416-431.
- Koo, B.J., W. Chen, A.C. Chang, A.L. Page, T.C. Granato, and R.H. Dowdy. 2010. A root exudates based approach to assess the long-term phytoavailability of metals in biosolids-amended soils. *Environ. Pollut.* 158:2582-2588.
- Kwon, S.I. 2003. Soil pollution assessment on heavy metals with long-term application of organic wastes. Ph. D. Thesis. The University of Seoul. Seoul. Korea.
- Kwon, S.I., Y.A. Jang, K.H. Kim, G.B. Jung, M.K. Kim, H. Hwang, M.J. Chae, S.C. Hong, K.H. So, S.G. Yun, and K.R. Kim. 2012. Heavy metal chemistry in soils received long-term application of organic wastes. *J. Agric. Chem. Environ.* 1(1):1-9. doi:10.4236/jacen.2012.11001
- Lee, H.J., J.S. Cho, W.K. Lee, and J.S. Heo. 1997. Effects of municipal sewage and industrial wastewater sludge composts on chemical properties of soil and growth of corn plant. *Korean J. Environ. Agric.* 16:220-226.
- Lee, S.H., M.H. Park, S.H. Yoo, and K.H. Kim. 2000. Effect of sewage sludge application on growth of corn and Chinese Cabbage and chemical properties of soil. *Korean J. Soil Sci. Fert.* 33:463-471.
- Logan T.J. 1992. Review and revision of the technical support document for beneficial reuse under the 40 CFR parts 257 and 503 comprehensive sludge rule.
- Luo, X.S., J. Ding, B. Xu, Y.J. Wang, H.B. Li, and S. Yu. 2012. Incorporating bioaccessibility into human health risk assessments of heavy metals in urban park soils. *Sci. Total Environ.* 424:88-96.
- McBride, M.B. 1995. Toxic metal accumulation from agricultural use of sludge : Are USEPA regulations protective? *J. Environ. Qual.* 24:5-18.
- NIAST. 2000. Methods of soil and plant analysis. National Institute of Agricultural Science and Technology, RDA, Suwon, Korea. pp.67-128 (In Korean).
- NIAST. 2003. Agricultural utilization of organic wastes and its environmental risk assessments. National Institute of Agricultural Science and Technology, RDA, Suwon, Korea. pp.49-103.
- Nicholson, F.A., B.J. Chambers, and B.J. Alloway. 1997. Effect of soil pH on heavy metal bioavailability. Proceeding of fourth international conference on the biogeochemistry of trace elements. University of California. Berkeley. California. pp.499-500.
- Rigueiro-Rodriguez, A., M.R. Mosquera-Losada, and N. Ferreiro-Dominguez. 2012. Pasture and soil zinc evolution in forest and agriculture soils of Northwest Spain three years after fertilisation with sewage sludge. *Agric. Ecosyst. Environ.* 150:111-120.
- Sims, J.T. and J.S. Kline. 1991. Chemical fractionation and uptake of heavy metals in soils amended with co-composted sewage sludge. *J. Environ. Qual.* 20:387-395.
- Smith, S.R. 1996. Agricultural Recycling of Sewage Sludge and the Environment. CAB International. Wallingford, UK. pp.382.
- Smith, S.R. 2009. A critical review of the bioavailability and impacts of heavy metals in municipal solid waste composts compared to sewage sludge. *Environ. Int.* 35:142-156.
- Sposito, G., L.J. Lund, and A.C. Chang. 1982. Trace metal chemistry in arid zone field soils amended with sewage sludge: I . Fractionation of Ni, Cu, Zn, Cd and Pb in solid phases. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 46:260-264.
- Yoo, S.H., J.R. Lee, and K.H. Kim. 1995. Sequential extraction of Cd, Zn, Cu, and Pb from the polluted paddy soils and their behavior. *Korean J. Soil Sci. Fert.* 28:207-217.
- Zhao, F.J., S.J. Dunham, and S.P. McGrath. 1997. Lessons to be learned about soil-plant metal transfers from the 50-year swage sludge experiment at woburn, UK. Fourth International Conference on The Biogeochemistry of Trace Elements. University of California. Berkeley. California. pp.693-694.