

해바라기, 갯, 강낭콩을 이용한 수생법(Rhizofiltration)의 우라늄으로 오염된 지하수 정화 효율 규명

양민준 · 이민희*

부경대학교 환경해양대학 환경지질학과

Rhizofiltration Process with *Helianthus annuus* L., *Phaseolus vulgaris* var., and *Brassica juncea* (L.) Czern. to Remediate Uranium Contaminated Groundwater

Minjune Yang, Minhee Lee*

Department of Environmental Geosciences, Pukyong National University

ABSTRACT

The uranium removal efficiency of rhizofiltration was investigated in lab scale experiment. Three plants such as sunflower (*Helianthus annuus* L.), bean (*Phaseolus vulgaris* var.), and Indian mustard (*Brassica juncea* (L.) Czern.) were cultivated in artificially contaminated solution by uranium at 30 $\mu\text{g/L}$ and 80 $\mu\text{g/L}$ for 72 hours. The removal efficiencies of three cultivars were calculated from the ICP/MS analysis of uranium mass in solution and the plant. For *Helianthus annuus* L., more than 80% of initial uranium were removed from the solution and the uranium concentration of residual solution maintained lower than 10 $\mu\text{g/L}$. For *Phaseolus vulgaris* var. and *Brassica juncea* (L.) Czern., their uranium removal efficiencies ranged from 60 to 80%. Even the uranium concentration of solution was higher than 500 $\mu\text{g/L}$, these cultivars removed more than 70% of initial uranium by rhizofiltration, suggesting that the rhizofiltration has a great capability to remove uranium in the contaminated groundwater. The removal efficiency of rhizofiltration by using *Brassica juncea* (L.) Czern decreased from 83% to 42% with the increase of pH in solution. From the results of the analysis for the uranium accumulation in plants, 99% of uranium transferred into the plant from solution were accumulated in the root and only 1% of uranium existed in the shoot part (including leaves), suggesting that the cost and the time to treat massive grown plants after the rhizofiltration could be dramatically cut down because only their root parts needs to be treated. Finally, the genuine groundwater having high uranium concentration (81.4 $\mu\text{g/L}$), sampled from Daejoun area, was used in the experiment. The uranium removal efficiency of *Helianthus annuus* L. for the real groundwater was higher than 95%, investigating that the rhizofiltration is the very useful method to remediate uranium contaminated groundwater.

Key words : Rhizofiltration, Phytoremediation, Uranium, Groundwater contamination, Sunflower, Bean, Indian mustard

요 약 문

우라늄으로 오염된 지하수를 정화하기 위하여 해바라기(Sunflower; *Helianthus annuus* L.), 강낭콩(Beans; *Phaseolus vulgaris* var.), 그리고 갯(Indian mustard; *Brassica juncea* (L.) Czern.)을 이용한 수생법(Rhizofiltration)의 우라늄 제거 효율을 규명하기 위한 실내 실험을 실시하였다. 안정우라늄 표준 용액을 사용하여 초기 농도를 30 $\mu\text{g/L}$ 와 80 $\mu\text{g/L}$ 로 적정한 인공오염지하수를 대상으로 72시간 수생법을 실시하여 일정 시간 간격으로 오염지하수의 우라늄농도를 측정함으로써 시간에 따른 식물의 우라늄 제거 효율을 계산하였다. 해바라기의 경우 수생법 72시간 내에 인공오염수 내 우라늄의 81%와 89%가 제거되었으며, 강낭콩은 72%와 80% 제거율을 나타내었고, 갯의 경우에는 80%와 60%가 제거되어 수생법의 우라늄 제거 효율이 매우 높은 것으로 나타났다. 초기 우라늄 농도가 500 $\mu\text{g/L}$ 이상(미국 EPA

*Corresponding author : heelee@pknu.ac.kr

원고접수일 : 2008. 3. 4 심사일 : 2008. 3. 5 게재승인일 : 2008. 7. 9

질의 및 토의 : 2008. 10. 31 까지

수질허용한계농도인 $30 \mu\text{g/L}$ 보다 18배 이상)되는 인공오염수를 대상으로 수생법을 실시한 결과 해바라기, 강낭콩, 갯의 경우 각각 97%, 70%, 77%의 높은 제거 효율을 나타내어 우라늄으로 심각하게 오염된 지하수의 경우에도 수생법을 적용할 수 있는 것으로 나타났다. 인공 오염수의 pH에 따른 수생법의 우라늄 제거 효율 변화 실험 결과, 오염수의 pH가 증가할 수 록 우라늄 제거 효율은 감소하였으며, 갯의 경우 pH 3에서 pH 9로 증기함에 따라 제거 효율은 83%에서 42%로 감소하였다. 실험 후 식물에 농축된 우라늄량을 습식분해법을 이용하여 부위별로 측정한 결과, 식물로 이동한 우라늄의 99%가 뿌리에 농축되어 있는 것으로 나타나, 수생법을 적용한 후 성장한 오염식물을 처리하는 경우 농축이 심한 뿌리 부분만을 후처리함으로써 복원 비용과 시간을 절감할 수 있는 것으로 나타났다. 마지막으로 우라늄 농도가 $81.4 \mu\text{g/L}$ 인 대전지역에 위치한 천정 지하수를 대상으로 수생법을 실시한 결과, 해바라기의 경우 인공오염지하수 실험 결과와 비슷한 제거 효율이 95.2%인 것으로 나타나, 친환경 정화방법인 수생법에 의한 우라늄 오염지하수 처리 방법이 실제 오염 현장에서 효과적으로 적용될 수 있을 것으로 판단되었다.

주제어 : 수생법, 식생법, 우라늄, 방사능오염, 지하수오염, 해바라기, 강낭콩, 갯

1. 서 론

원자력 산업의 발전에 따라, 핵 처리 시설의 운영과 방사선을 이용한 의료행위로부터 대량 유출되는 방사능 폐기물에 의한 자연환경의 오염은 날로 심각해지고 있으며, 특히 토양과 지하수는 방사성폐기물의 저장/처리방법의 특성상 방사능핵종으로 가장 오염되기 쉬운 매체로 여겨져 왔다(Saling and Fentiman 2001; Dickin 1997). 방사성 폐기물의 처분방법으로 1980년대 이전에는 해양투기가 가능하여 상당한 양의 중/저준위 핵폐기물을 바다에 투하하여 왔으나, 1990년 이후에는 국제적인 규제가 이루어져, 대부분의 핵폐기물은 지질학적으로 안전하다고 여겨지는 지하에 저장하여 인간과 생물권으로부터 격리되어 왔다(Saling and Fentiman 2001). 그러나, 원자력발전소를 비롯한 핵폐기물처분장의 안정성을 지나치게 강조한 나머지, 최근까지 원자력발전소의 예기치 못한 사고나 핵폐기물 처분장에서 방사성물질의 유출에 의한 토양/지하수 오염 가능성은 거의 배제되어왔으며, 따라서 이에 대한 학문적 연구는 매우 저조하였다(Francis 1973; Raskin and Ensley 2000). 1979년 3월 미국 펜실베이니아주의 'Three Mile Island'에서 가동 중이던 TMI 원자력발전소의 방사능유출 사고를 시작으로, 1986년 4월 발생한 소련의 체르노빌 원자력발전소의 폭발사고로 인하여 원자력발전소의 사고에 의한 토양/지하수 오염가능성이 입증되었으며, 체르노빌 사고 지역 주변 오염 토양 및 지하수를 대상으로, 우라늄(uranium), 세슘(cesium), 플루토늄(plutonium), 스트론튬(strontium) 오염도 조사가 진행되어 상당히 넓은 부분의 토양 및 지하수가 방사성물질로 오염되어 있음이 밝혀졌다(Terry and Bañuelos 2000; Francis et al., 1993; Fuhrmann et al., 2002; Huang et al., 1998). 1990년대 후반에 미국 오하이오의 우라늄 재처리 시설이 있는

Ashtabula 지역의 우라늄오염 폐수를 대상으로 정화실험이 이루어짐으로써, 핵폐기물처분장을 포함한 방사능폐기물처분장 주변에서 발생할 수 있는 지하수 및 토양오염에 대한 연구가 시작되었으나, 전 세계에 분포하는 핵무기, 핵폐기물처분장, 원자력발전소, 방사능 제품 생산량을 고려할 때, 오염 지하수/토양에 대한 국외 연구조차 매우 초보적인 단계이고, 실험실 규모의 매우 제한적인 조건에서 연구가 이루어져왔다(Cornish 1995; Dushenkov et al., 1997; Huang et al., 1998).

방사능핵종 중에서도 우라늄은 농축하여 원자력 발전을 위한 핵연료로 사용되며, 사용 후에도 핵연료폐기물의 대부분을 차지하는 가장 심각한 방사능 오염물질 중 하나이지만 우라늄으로 오염된 토양과 지하수에 대한 국내외 연구는 매우 미비한 실정이다(Saling and Fentiman, 2001). 우리나라의 경우는 인위적인 우라늄 오염 가능성뿐 아니라 지질학적인 특성상 우라늄을 함유한 광상이 여러 지역에서 나타나고 있는데, 대표적 광상은 충청북도 옥동광상(페그마타이트 광상), 경기도 가평과 충청남도 공주지역 광상(변성광상), 김화-철원-화천일대 광상(화성광상), 옥천누층군 흑색 점판암이 분포하는 광상(퇴적광상)등이며, 광상들의 U_3O_8 평균품위는 0.03-0.04%에 이르고, 0.4%의 고품위를 나타낸 농집부위도 발견되었다(김종환 1982). 이러한 국내 우라늄광산 주변 지하수의 우라늄농도는 매우 높은 것으로 나타나, 대전 및 유성지역의 심성암대에 위치한 지하수 중에서 상당부분이 우라늄 농도가 $100 \mu\text{g/L}$ 를 초과한 것으로 나타났으며(국립환경연구원 2001), 특히 함유우라늄 흑색셰일이 분포하는 옥천대에 위치하고 있는 지역의 경우 온천수와 지하수에서 다른 지역보다 상당히 높은 농도의 우라늄이 검출되어 이 지역에서 생산되는 먹는 샘물의 안정성 여부가 문제시되고 있다(김도희 1993; 한정희 · 박계현 1996).

우라늄은 자연 상태에서 매우 안정적이어서 대부분이 고상으로 존재하지만, 강우나 지하수의 중탄산이온이나 탄산이온과 결합하는 경우, 또는 토양 유기물인 휴믹산과 결합하는 경우, 수용성의 킬레이트화합물로 변하게 되어 지하수에 용해되어 이동하게 된다(Raskin and Ensley, 2000). 수질 내 주로 존재하는 형태는 UO_2^{2+} 의 우라닐(uranyl) 양이온형태(Nishita et al., 1978; Schulz 1965)와 $\text{CO}_2[\text{UO}_2(\text{HCO}_3)_2]$, 혹은 $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ 등 이고(Shanbhag and Choppin, 1981), 화학적 독성과 방사능에 의한 건강상의 위해성을 가지고 있으며, 우라늄이 인체에 가장 큰 위해성을 미치는 부분은 신장이다(한국소비생활연구원 1998; EPA 1993).

우라늄을 비롯한, 기타 방사능 핵종들로 오염된 지하수에서 오염물질을 제거하고자 여러 가지 방법들이 연구되고 있지만 오염범위가 넓고, 처리비용이 너무 비싸 현장 적용이 매우 힘든 실정이다(Seaman et al., 2001; Choy et al., 2006; Kantar and Honeyman, 2006). 이러한 문제를 해결하고자 본 연구에서는 식생법(Phytoremediation)의 한 종류인 육상식물을 이용한 수생법(또는 뿌리여과법: Rhizofiltration)의 우라늄 제거 효율을 규명 하였다. 수생법은 주로 식물의 뿌리를 이용하여 토양 및 지하수 내의 중금속을 흡수, 흡착하여 유해물질을 제거하는 방법이다(Raskin and Ensley 2000; Dushenkov et al., 1997). 본 연구에서는 중금속 제거에 효율이 탁월하다고 알려진 해바라기(*Helianthus annuus* L.)를 포함하여 강낭콩(*Phaseolus vulgaris* var.) 그리고 갯(*Brassica juncea* (L.) Czern.)등을 이용하여 다양한 수생 조건하에서 오염지하수로부터 우라늄을 제거하는 수생법의 효율을 규명하고자 하였다.

2. 실험 방법

대표적인 방사능핵종인 우라늄에 의해 오염된 지하수를 수생법을 이용하여 효과적으로 정화할 수 있는지를 규명하기 위한 실내 배치실험을 실시하였다. 먼저 인위적으로 우라늄을 오염시킨 인공지하수를 대상으로 세 종류의 식물을 이용한 수생법의 우라늄 제거효율을 규명하였다. 두 종류의 우라늄 농도를 가지는 인공지하수를 사용하였으며, pH가 다른 오염지하수를 대상으로 실험을 반복함으로써 지하수의 pH 변화에 따른 수생법의 우라늄 제거효율 변화를 관찰하였다. 실험 후 사용한 식물의 뿌리와 줄기(잎 포함)에 축적되어있는 우라늄함량을 각각 측정하여 오염지하수와 식물사이의 우라늄 질량분배를 계산하였으며, 실제로 우라늄축적이 발생하는 식물 부위를 규명하였다. 마

지막으로 우라늄함량이 높은 대전광역시 대덕구 와동지역의 지하수를 대상으로 수생법을 실시하여 실제 오염지하수로부터의 우라늄 제거효율을 규명하였다.

2.1. 수생법 실험 재료 및 실험 조건

실내 배치실험에 사용 되어진 해바라기(*Helianthus annuus* L.), 강낭콩(*Phaseolus vulgaris* var.) 그리고 갯(*Brassica juncea* (L.) Czern.)의 씨앗들은 농업생명공학연구원(National Institute of Agricultural Biotechnology)으로부터 분양받아 실험에 이용되었다. 수생법에 이용하기 위하여 분양받은 씨앗을 식물 생장기(Growth chamber)에서 각 식물을 발아시켰다. 발아를 위한 식물생장기의 조건은 기존의 연구를 참고하여(Dushenkov et al., 1997; Dushenkov et al., 1995), 온도는 25°C, 습도는 75%, 광주기는 5000 Lux로 하루 16시간, CO_2 농도는 500 ppm으로 유지하였다. 식물이 뿌리를 내리고 발아할 수 있도록 직경이 1 mm 인 glass bead로 채워진 유리 배양조에 씨앗들을 저장하였고, 주기적으로 증류수를 첨가하여 발아 시켰으며, 발아하는 동안에는 다른 영양물질은 첨가하지 않았다. 모든 실험에 사용되어진 식물들은 유리 배양조에서 4주 동안 생장시킨 비교적 균일한 크기의 식물들을 사용하였다. 수생법에 사용한 식물의 씨앗과 배양조는 Fig. 1에 나타내었다.

수생법은 식물의 뿌리를 지지할 수 있도록 격자상의 지지판이 내부에 설치된 유리수경조(12 cm × 12 cm × 8 cm)를 사용하였으며, 인위적으로 우라늄으로 오염시킨 인공 오염지하수 400 mL를 유리수경조에 채우고, 발아시킨 각 식물 20 g을 유리수경조 내 뿌리지지판에 담근 후 식물생장기의 발아조건과 같은 조건에서 총 72시간 동안 성장시켰다. 유리수경조 내 오염지하수 샘플링은 12시간마다 약 2 mL 정도 채취하여 ICP/MS(Perkin elmer(U.S.A), Elan 6100)로 우라늄농도를 분석하여 시간별 수생법에 의해 오염지하수로부터 제거된 우라늄량을 계산하였다. 분석의 신뢰성을 위하여 모든 분석은 2회 반복하였으며, 분석값의 오차가 5% 이내인 경우에만 참값으로 인정하여 두 값의 평균을 최종 농도값으로 사용하였다. 실험에 사용된 인공 오염지하수는 SIGMA-ALDRICH에서 구입한 원자흡광분석용 안정우라늄동위원소 표준시약 (Uranium atomic absorption standard solution, 1000 µg/mL in 1 wt. % HNO_3)을 증류수에 희석하여 사용하였으며, 오염수의 우라늄농도를 미국 EPA의 우라늄 수질허용농도(Water quality standard limit)인 30 µg/L와 이보다 높은 80 µg/L로 적정하여 사용하였다.

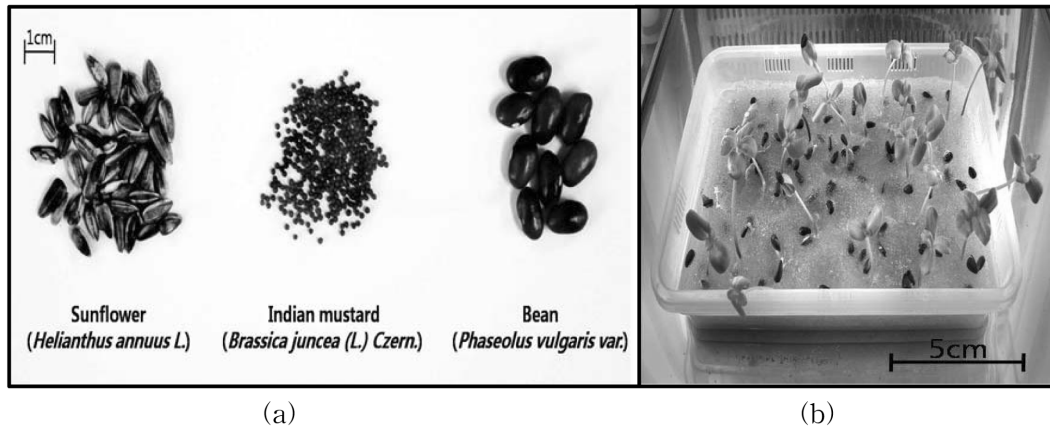


Fig. 1. Seeds of three different plant cultivars (a) and grown plants in glass beads (b) for the rhizofiltration.

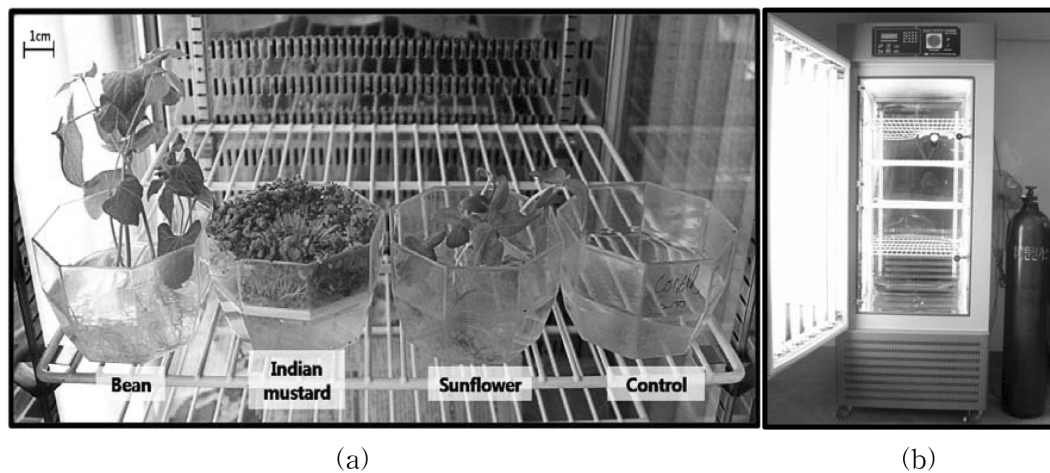


Fig. 2. Photographs of the rhizofiltration process (a) and the growth chamber (b).

2.2. 다양한 우리늄 농도를 가지는 인공오염지하수를 이용한 실험

오염지하수의 우리늄농도에 따른 제거 효율변화를 관찰하기 위하여 각 식물에 대하여 2종류의 우리늄 농도를 가지는 인공오염지하수를 이용하였다. 우리늄 농도가 30과 80 $\mu\text{g/L}$ 로 적정된 인공오염수 400 mL를 수경조 내에 각각 담그고 72시간 동안 식물배양기 내에서 식물을 성장시켜 수생법을 실시하였다. 인공오염수의 샘플링은 12시간마다 실시하였으며 ICP/MS로 우리늄 농도를 분석하였다. 뿌리여과에 의한 우리늄 제거 효과만을 고려하기 위하여 식물을 성장시키지 않은 오염지하수만을 첨가한 수경조를 이용하여 실험을 반복하여 다른 실험 결과와 비교하였다. 세 식물에 대한 우리늄 생장 한계 농도 범위를 규명하기 위하여 우리늄 농도가 약 500-700 $\mu\text{g/L}$ 인 인공오염지하수에 대하여 실험을 반복하였으며, 실험 결과를 낮은 우

라늄 농도를 가지는 인공오염지하수를 이용한 실험 결과와 비교하였다. 모든 실험에서 시료 채취와 시료의 우리늄 분석은 같은 방법으로 실시하였으며, 동일한 식물생장기 조건을 적용하였다. 실험의 신뢰성을 확보하기 위하여 모든 배치 실험은 반복 실시하였다. 세 식물을 이용한 수생법 실험은 Fig. 2에 나타내었다.

2.3. 다양한 pH를 가지는 인공오염지하수를 이용한 실험

다양한 pH를 가지는 지하수조건에서 식물들의 생장 한계와 우리늄 제거 효율 변화를 관찰하기위한 실험을 실시하였다. NaOH와 HCl 용액을 첨가하여 인공오염수의 pH를 조절하였으며, 4종류의 pH 조건에서 실험을 실시하였다(pH 3, pH 5, pH 7과 pH 9). 각 pH 조건에서 우리늄 농도를 200 $\mu\text{g/L}$ 로 일정하게 적정한 인공오염수 400 mL를 수경조 내에 채운 후, glass bead에서 약 4주

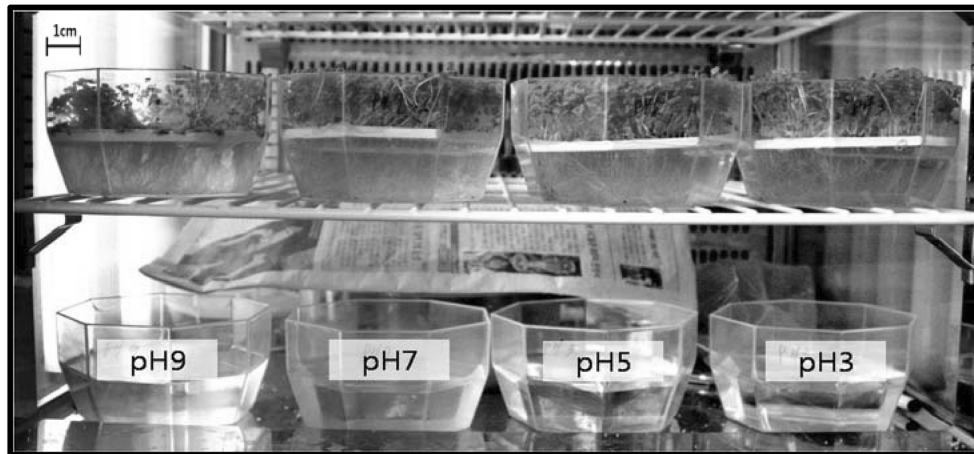


Fig. 3. Photograph showing the experimental method of different pH in solution for rhizofiltration system of Indian mustard.

동안 생장시킨 비교적 균일한 크기의 식물들을 20 g 씩 담그고 72시간 동안 수생법을 실시하였다. 오염수의 샘플링은 12시간 마다 실시하였으며 샘플링 한 시료는 ICP/MS로 분석하였다. 수생법에 의한 우라늄 제거 효과만을 고려하기 위하여 식물을 생장시키지 않은 오염지하수만을 첨가한 수경조를 이용하여 실험을 반복하여 다른 실험 결과와 비교하였다. 다양한 pH를 가지는 오염지하수를 이용한 실험은 Fig. 3에 나타내었다.

2.4. 수생법 실험 후 식물체 내 우라늄 축적량 규명 실험

수생법 실험 후 식물체 내 축적된 우라늄량을 측정하여, 인공오염수와 식물체 사이의 우라늄 질량분배를 계산하였으며, 식물의 우라늄 축적능력과 식물의 부위별 축적능력을 규명하는 실험을 실시하였다. 인공오염지하수의 초기 우라늄 농도를 200 µg/L로 적정한 후 72시간 동안 수생법을 실시한 후, 식물에 농축된 우라늄량과 잔여오염수의 우라늄 농도를 측정하였다. 72시간 동안 수생법에 사용한 식물을 뿌리와 줄기(잎 포함)로 분리하여 오븐에 80°C로 2일 동안 건조한 후, 건조된 식물의 부위별 무게를 측정하고 미세하게 분쇄하였다. 농질산(HNO₃) 10mL로 채운 분해용 플라스크에 분쇄된 시료를 첨가하여 12시간 방치한 후, 180~200°C까지 서서히 가열하여 1차 산분해를 실시하였으며, 최종 분해액인 Ternary solution(HNO₃: H₂SO₄: HClO₄ = 10: 1: 4) 20 mL를 첨가하여 플라스크 내 분해액의 색깔이 무색 또는 갈색으로 변할 때 까지 다시 가열한 후 상온에 방치하였다. 탈이온수를 이용하여 최종 분해액의 부피를 40 mL로 맞춘 후 5B 여과지로 여과하는 기존의 습식분해법을 사용하였으며(NIAST, 2000), 최종 여과액을 ICP/MS로 분석하였다. 식물 부위별 농축



Fig. 4. Photograph showing the roots and shoots of three different plant cultivars (from the left Indian mustard, Sunflower, and Bean).

된 우라늄량을 측정하여 부위별 우라늄 축적량을 결정하고, 질량분배율을 계산하였다. Fig. 4는 분석에 사용한 각 식물별 부위 사진이다.

2.5. 실제 오염지하수를 이용한 우라늄 제거 실험

실제 오염 지하수는 인공오염수와 지구화학적으로 다르기 때문에 실제 오염지하수의 우라늄 제거 효율은 인공오염수를 이용하여 실시한 실험 결과와 다를 수 있다. 따라서 본 연구에서는 우라늄함량이 높은 것으로 보고된 대전 지역 10개의 지하수를 채수하여 우라늄 농도를 측정하였으며, 이 중 우라늄 농도가 80 µg/L 인 대덕구 와동지역의 천정 지하수를 이용하여 실험을 반복 실시함으로써 수생법에 의한 실제 오염지하수의 우라늄 제거 효율을 규명하였다. 뿌리여과에 의한 우라늄 제거 효과만을 고려하기 위하여 식물을 생장시키지 않은 오염지하수만을 첨가한 수경조를 이용하여 실험을 반복하여 다른 실험 결과와 비교하였다. 실험에 이용한 지하수의 지구화학적 특성 및 다른 중금속 농도를 정리하여 Table 1에 나타내었다.

Table 1. Properties and metal concentration of the genuine groundwater

Chemical properties of the groundwater	Temp. (°C)	11.1
	Ec (mS/m)	30.2
	NaCl (%)	0.01
	pH	7.38
Metal concentration (μg/L)	U	81.38
	Cs	1.08
	As	1.37
	Cd	0.03
	Cr	2.50
	Cu	1.39
	Ni	13.90
	Pb	0.33
	Zn	27.38
	Fe	ND

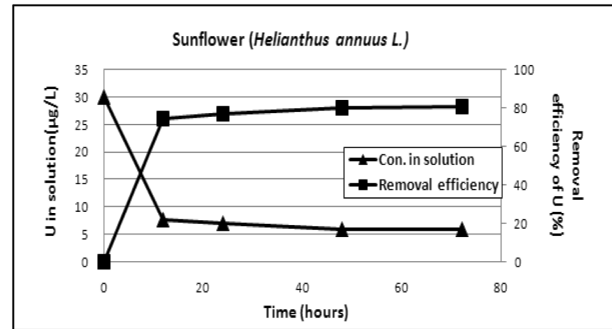
* ND : below 0.01 μg/L

3. 결과 및 토의

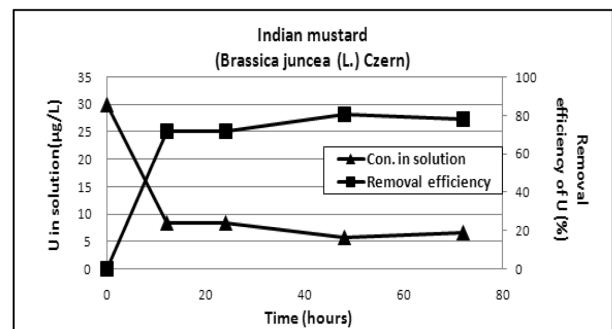
3.1. 다양한 우리늄 농도를 가지는 인공오염지하수를 이용한 실험 결과

세 종류의 식물들을 이용하여 우리늄 농도가 30 μg/L인 인공오염지하수 내에서 수경 재배한 실험 결과를 Fig. 5에 나타내었다. 해바라기의 경우, 수생법에 의한 우리늄 제거 효율은 81%로 가장 높은 제거 효율을 보였으며, 실험을 시작한 후 12시간 내에 우리늄 초기 농도의 70% 이상이 제거되었고, 48시간 후 수경조 내 인공오염수의 우리늄 농도는 5.8 μg/L로 감소하였다. 갯의 경우에는 약 80% 우리늄 제거 효율을 보였으며, 최종 인공오염수 내 우리늄의 농도는 6.5 μg/L이었다. 강낭콩의 경우는 다른 식물들 보다 제거 효율이 약간 적은 72%의 제거 효율을 보였다.

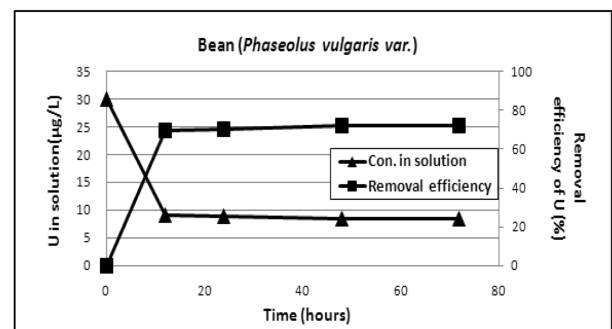
초기 우리늄 농도가 80 μg/L인 인공오염지하수를 이용한 실험 결과는 Fig. 6에 나타내었다. 해바라기의 경우 실험을 시작한 후 12시간 내에 수생법에 의해서 오염수 내 우리늄량의 85% 이상이 제거되었고, 48시간 후 오염수조 내의 우리늄 농도는 7 μg/L로 감소하여 약 89%의 제거 효율을 나타내었다. 강낭콩의 경우도 12시간 이후에 80% 이상의 제거 효율을 보였으며, 72시간 후 인공오염수의 우리늄 농도는 10 μg/L로 감소하였다. 갯의 경우에는 48시간 내에 약 60%의 제거율을 나타내어 다른 식물보다 우리늄 제거 효율이 낮게 나타났다. 실험 결과, 수생법이 오염지하수 내의 우리늄을 제거하는데 매우 효과적인 것



(a)



(b)

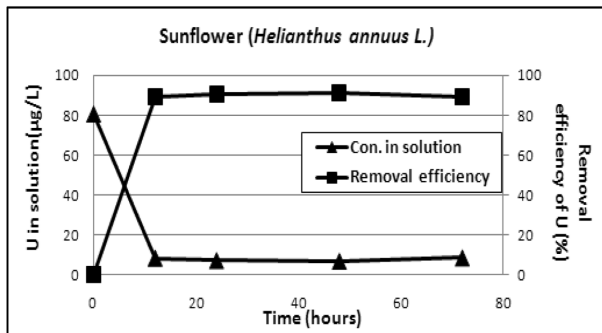


(c)

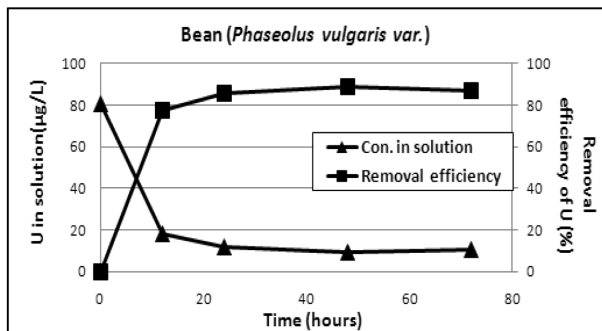
Fig. 5. Results of rhizofiltration for groundwater by using three different plant cultivars (initial concentration : 30 μg/L).

으로 나타났으며, 본 연구에서 사용된 세 종류의 식물들이 지하수 내의 우리늄 제거에 적합한 식물임을 알 수 있었고, 세 식물 중에서 해바라기가 가장 좋은 우리늄 제거 효율을 보여주었다.

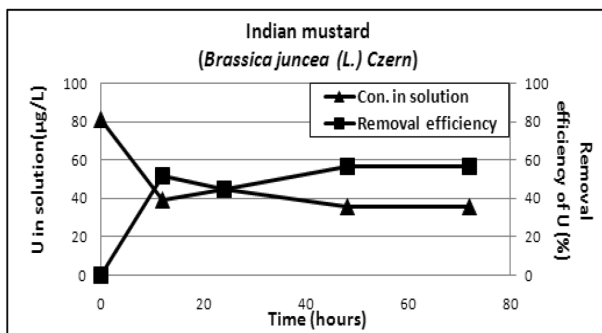
세 종류의 식물에 대하여 우리늄 성장 한계 범위를 파악하기 위하여 해바라기의 경우에는 인공오염지하수의 우리늄 농도를 543 μg/L로 적정하고, 강낭콩과 갯의 경우에는 각각 646 μg/L와 608 μg/L로 적정하여 수생실험을 반복 실시하였으며 그 실험 결과를 Fig. 7에 나타내었다. 초기 우리늄 농도가 543 μg/L인 오염지하수의 경우에서도 12시간 내에 97%의 제거 효율을 나타내었으며, 48시간 만에 오염수조 내의 우리늄 농도는 18 μg/L로 감소하여



(a)



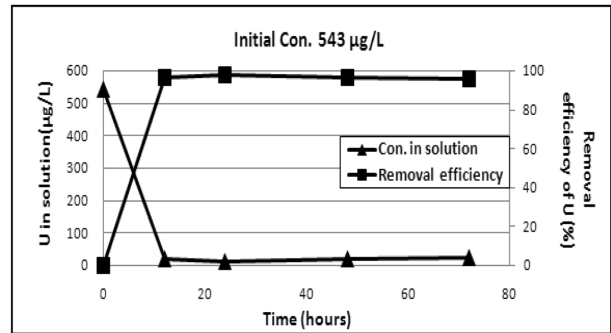
(b)



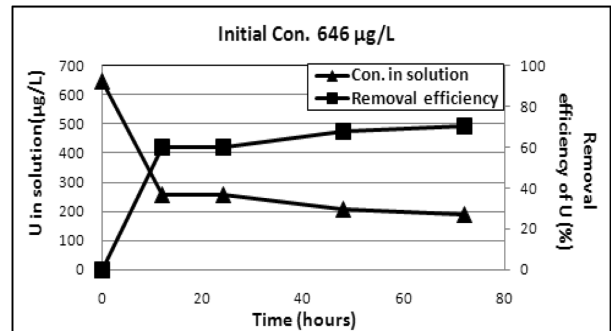
(c)

Fig. 6. Results of rhizofiltration for groundwater by using three different plant cultivars (initial concentration : 80 µg/L).

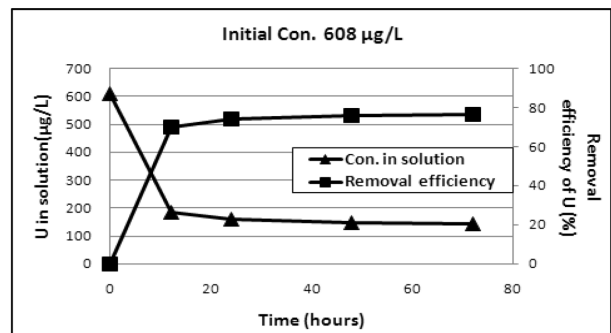
수생법 적용 후 지하수의 우라늄 농도가 미국 EPA 수질 허용한계농도인 30 µg/L 이하로 나타나 우라늄 제거능력이 매우 뛰어난 것으로 나타났다. 초기 우라늄 농도가 600 µg/L를 초과하는 인공오염수에 대하여 수생법 48시간 내에 강낭콩과 갯의 경우 각각 70%와 77%의 제거 효율을 나타내어 해바라기의 우라늄 제거 능력이 가장 높은 것으로 나타났다. 실험 결과 초기 우라늄 농도와 관계없이 세 식물 모두 수생법 실시 12시간 이내에 총 우라늄 제거율의 80% 이상을 제거하는 것으로 나타나 비교적 짧은 시간 동안에 오염이 심각한 오염수로부터 우라늄이 제거되는 것으로 나타났다.



(a)



(b)



(c)

Fig. 7. Results of rhizofiltration for groundwater by using three different plant cultivars at high uranium concentration (a : Sunflower, b : Bean, c : Indian mustard).

3.2. 다양한 pH를 가지는 인공오염지하수를 이용한 실험 결과

다양한 pH를 가지는 인공오염지하수로부터의 우라늄 제거 실험 결과는 세 식물의 경우 모두 비슷한 경향을 나타내었으며, Fig. 8과 9에 해바라기와 갯에 대한 우라늄 제거 결과를 나타내었다. 해바라기를 이용한 실험 결과는 인공오염수의 pH가 3 인 경우 99.4%의 정화 효율을 보였으며, 72시간 후 수경조 내 오염수의 우라늄 농도는 1.4 µg/L로 감소하였다. 오염수의 pH가 5 인 경우는 88%의 정화 효율을 보였으며, pH 7 인 경우에는 60%의 낮은 정화 효율을 나타내었다(Fig. 8). 갯을 이용한 경우,

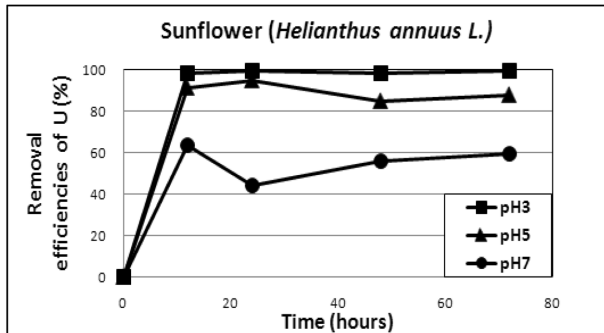


Fig. 8. Results of the rhizofiltration at different pH in solution by using sunflower.

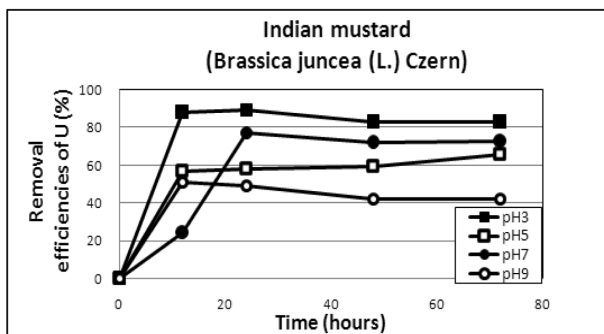


Fig. 9. Results of the rhizofiltration at different pH in solution by using Indian mustard.

인공오염수의 pH가 3 인 경우에는 83%의 정화 효율을 보였으며, 72시간 후 오염수조 내의 우라늄 농도는 $60 \mu\text{g/L}$ 로 감소하였다. 오염수의 pH가 5 인 경우의 우라늄 정화 효율은 65%이었으며, pH가 7과 9 인 경우 각각 73, 42%의 정화 효율을 나타내어 pH가 증가할수록 수생법에 의한 우라늄제거 효율은 낮아지는 경향을 나타내었다. pH 조건에 따라 제거 효율이 낮게 나타나는 이유는 pH 변화에 따라 수용액 내의 우라늄 존재 성상이 매우 민감하게 변하기 때문이며, 특히 수용액의 pH가 증가함에 따라 우라늄은 이온상으로 존재하기보다는 쉽게 고상의 침전물로 형성함으로써 수용액에 의한 식물 축적 능력은 상대적으로 감소하기 때문으로 판단된다. 이러한 가정은 Edds et al. (2001)가 주장한 수용액의 pH가 5

일 때 우라늄의 80%가 UO_2^{2+} 존재하고, pH 6에서는 90% 이상이 수산화물(Hydroxide complexes) 형태이며, pH 8일 때는 거의 모든 우라늄이 탄산염물(carbonate complexes)로 존재한다는 기존의 실험 결과와도 일치한다.

3.3. 수생법 실험 후 식물체 내 우라늄 축적량 규명 실험 결과

해바라기와 강낭콩을 대상으로 실시한 부위별 우라늄 농축 실험 결과는 Table 2에 나타내었다. 해바라기를 72 시간 동안 수생법으로 성장시킨 후 우라늄 제거율은 79.5%로 높게 나타났으며, 이 중 뿌리부분의 농축률은 99%로 대부분의 우라늄이 뿌리에 축적된 것으로 나타났다. 이러한 결과는 강낭콩의 경우에도 유사하게 나타나 총 제거율은 해바라기 보다 약간 낮은 75.1%이었고, 99%가 뿌리에 축적되어 있는 것으로 나타났다. 실험 결과 식물의 총 건조 질량에서 줄기(잎 포함)가 차지하는 비율이 해바라기의 경우 69.5%, 강낭콩은 69.1%로 전체 식물의 약 70%를 차지하지만, 오염수로부터 식물 줄기에 농축되는 우라늄 농축량은 해바라기의 경우 $0.67 \mu\text{g/g}$, 강낭콩은 $0.34 \mu\text{g/g}$ 로 뿌리에 농축되는 농축량인 $161.54 \mu\text{g/g}$ 와 $75.32 \mu\text{g/g}$ 보다 매우 낮은 것으로 나타났다(Table 2). 이러한 결과는 해바라기나 강낭콩을 이용하여 수생법을 적용하는 경우, 전체 식물 부위 중 우라늄 농축능이 매우 높으나 소량을 차지하는 뿌리만을 처리하고 식물의 대부분을 차지하는 줄기부분(잎 포함)은 특별한 후처리가 필요 없기 때문에, 수생법에 의해 성장한 오염식물을 후처리하는 비용과 시간을 현저하게 줄일 수 있다는 것을 의미한다. 따라서 기존의 식생법과 관련된 연구 결과에서 꾸준히 문제시되어왔던 식생법 실시 후 오염물질이 농축된 다량의 식물을 처리해야하는 식생법의 한계를 효과적으로 극복할 수 있을 것으로 판단되었다.

3.4. 실제 오염지하수를 이용한 우라늄 제거 실험

우라늄 농도가 $81.4 \mu\text{g/L}$ 인 대전광역시 대덕구 와동에 서 채취한 천정 지하수를 대상으로 해바라기를 이용한 수생법의 우라늄제거 결과를 Fig. 10에 나타내었다. 실험 결

Table 2. Removal efficiencies, accumulation rate, and removal capability of cultivars

	Total U removal efficiency (%)	Accumulation rate (%)		Removal capability per dry plant weight ($\mu\text{g/g}$)	
		Shoot	Root	Shoot	Root
<i>Helianthus annuus L.</i>	79.5	1.0	99.0	0.67	161.54
<i>Phaseolus vulgaris var.</i>	75.1	1.0	99.0	0.34	75.32

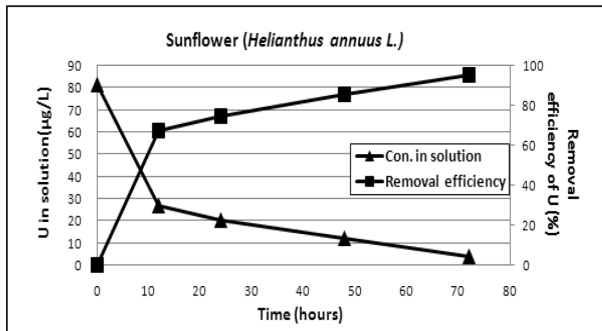


Fig. 10. Result of the rhizofiltration by using sunflower for a genuine groundwater.

과 수생법 12시간 내에 초기 우라늄의 67.2%가 제거되었으며, 48시간과 72시간 내에 각각 85.4%와 95.2%가 제거되었다. 수생법 적용 후 오염지하수의 우라늄 농도는 미국 EPA의 수질허용한계농도인 30 µg/L보다 매우 낮은 3.9 µg/L를 나타내어, 해바라기를 이용한 수생법에 의해 실제 우라늄 오염 지하수를 효과적으로 정화할 수 있음을 입증하였다.

4. 결 론

우라늄으로 오염된 지하수를 정화하기 위하여 해바라기, 강낭콩, 갯을 이용한 수생법의 정화 효율을 규명하는 실험을 실시하여, 수생법으로 인공오염수 내 우라늄의 약 70% 이상을 72시간 이내에 제거함으로써, 수생법이 우라늄으로 오염된 지하수를 정화하는데 매우 효과적인 방법임을 입증하였다. 세 종류의 식물 중 해바라기의 우라늄 제거 효율이 가장 높았으며, 뿌리 축적량도 건조 뿌리 g당 161.54 µg을 나타내어 매우 높은 우라늄 농축률을 나타내었으며, 강낭콩은 이보다 낮은 g당 75.32 µg이었다. 인공오염수의 pH가 산성에서 염기성으로 증가함에 따라 식물로 이동되는 우라늄 제거량은 감소하여 pH9인 오염 지하수의 경우 우라늄제거율은 약 50-60%를 나타내었다. 72시간 수생법으로 해바라기와 강낭콩을 성장시킨 경우, 식물로 이동된 우라늄의 대부분(99% 이상)이 뿌리부분에 농축되어있는 것으로 나타나, 수생법 적용 후 현장에서 오염 식물을 후처리하는 경우에 뿌리 부분만을 분리하여 처리할 수 있을 것으로 판단되었다. 인공오염지하수 실험 결과 제거 효율이 가장 좋은 해바라기를 이용하여 실제 우라늄 오염지하수를 대상으로 수생법을 적용하였으며, 그 결과 제거 효율이 95% 이상으로 나타나 수생법에 의한 우라늄 오염 지하수 정화방법이 현장에서 효과적으로 적용될 수 있음을 입증하였다.

사 사

이 논문은 2007년도 정부재원(교육인적자원부 학술연구 조성사업비)으로 한국학술진흥재단의 지원을 받아 연구되었음(KRF-2007-313-C00768). 연구를 위해 씨앗을 제공한 여준 농업생명공학연구원(National Institute of Agricultural Biotechnology)과 논문을 세심하게 심사하여주신 익명의 심사자들에게 감사드립니다.

참 고 문 헌

- 국립환경연구원, 2001, 지하수중 방사성물질 함유실태에 관한 조사연구, 최종 보고서.
- 김도희, 1993, 우리나라 주요온천의 수질특성과 유형분류에 관한 연구, 건국대학교 교육대학원 석사 학위 논문.
- 김종환, 1982, 한국의 지질과 광물자원, 제 15장 우라늄, 연세대 김옥준교수 정년퇴임기념 논문집, 454-458.
- 한국소비생활연구원, 먹는물의 방사능물질 유해성여부에 관한 대토론회, 1998.
- 한정희, 박계현, 1996, 대전 지역 지하수에 함유된 우라늄 및 라돈의 함량, 자원환경지질, **29**, 589-595.
- Choy, C.C., Korfiatis, G.P., and Meng, X., 2006, Removal of depleted uranium from contaminated soils, *J. Hazard. Mater.*, **136**, 53-60.
- Cornish, J.E., 1995, Evaluation of in situ phytoremediation of uranium-contaminated soil in Ohio and Montana, *The Hazardous Management '95 Conf.*, Tucson, AZ.
- Dickin, A.P., 1997, Radiogenic Isotope Geology, Cambridge University Press, UK, p. 490.
- Dushenkov, S., Vasudev, D., Kapulnik, Y., Gleba, D., Fleisher, D., Ting, K.C., and Ensley, B., 1997, Removal of Uranium from Water Using Terrestrial Plants, *Environ. Sci. Technol.*, **31**, 3468-3474.
- Dushenkov, V., Kumar, P.B.A.N., Motto, H., and Raskin, I., 1995, Rhizofiltration : The use of plants to remove heavy metals from aqueous streams, *Environ. Sci. Technol.*, **29**, 1239-1245.
- Ebbs, S., Brady, D., Norvell, W., and Kochian, L., 2001, Uranium speciation, Plant uptakes, and Phytoremediation, *Practice periodical of hazardous, toxic, and radioactive waste management*, **5**, 130-135.
- EPA, 1993, Integrated Risk Information system (IRIS) on Uranium, Soluble Salt, Environmental Criteria and Assessment Office, Office of Health and Environmental Assessment, Office of research and development, Cincinnati, OH.
- Francis, C.W., 1973, Plutonium mobility in soil and uptake by

- plants : A review, *J. Environ. Qual.*, **2**(1), 67-70.
- Francis, C.W., Mattus, A.J., Elless, M.P., and Timpson, M.E., 1993, Carbonate-and citrate-based selective leaching of uranium from uranium-contaminated soils, in: Removal of Uranium from Uranium-Contaminated Soils, Phase I: Bench-Scale Testing, ORNL-6762, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN.
- Fuhrmann, M., Lasat, M.M., Ebbs, S.D., Kochian, L.V., and Cornish, J., 2002, Uptake of Cesium-137 and Strontium-90 from Contaminated Soil by Three Plant Species; Application to Phytoremediation, *J. Environ. Qual.*, **31**, 904-909.
- Huang, F.Y.C., Brady, P.V., Lindgren, E.R., and Guerra, P., 1998, Biodegradation of Uranium-Citrate Complexes: Implications for Extraction of Uranium from Soils, *Environ. Sci. Technol.*, **32**(3), 379-382.
- Huang, J.W., Blaylock, M.J., Kapulnik, Y., and Ensley, B.D., 1998, Phytoremediation of Uranium-Contaminated Soils: Role of Organic Acids in Triggering Uranium Hyperaccumulation in Plants, *Environ. Sci. Technol.*, **32**(13), 2004-2008.
- Kantar, C. and Honeyman, B.D., 2006, Citric acid enhanced remediation of soils contaminated with uranium by soil flushing and soil washing, *J. Environ. Eng.*, **132**(2), 247-255.
- NIAST, 2000, Methods of soil and plant analysis, *National Institute of Agricultural Science and Technology*, Suwon, Korea.
- Nishita, H., Wallace, A., and Romney, E.M., 1978, Radionuclide uptake by plants, *U.S. Nuclear Regulatory Commission*, NUREG/CR0336, UCLA 12-1158.
- Raskin, I. and Ensley, B.D., 2000, Phytoremediation of Toxic Metals, John Willey & Sons, Inc.
- Saling, J.H. and Fentiman, A.W., 2001, Radioactive Waste Management, Taylor & Francis Group, 2nd ed., NY, p. 352.
- Schulz, R.K., 1965, Soil chemistry of radionuclides, *Health Phys.*, **11**, 1317-1324.
- Seaman, J.C., Meehan, T., and Bertsch, P.M., 2001, Immobilization of cesium-137 and uranium in contaminated sediments using soil amendments, *J. Environ. Qual.*, **30**, 1206-1213.
- Shanbhag, P.M. and Choppin, G.R., 1981, Binding of Uranyl by humic acid, *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **43**, 3368-3372.
- Terry, N. and Bañuelos, G., 2000, Phytoremediation of Contaminated Soil and Water, Lewis Publishers.