

추출방법에 따른 금속광산 주변의 토양오염 특성

양중석¹ · 이주영¹ · 박영태¹ · 백기태² · 최재영^{1*}

¹한국과학기술연구원 강릉분원, ²금오공과대학교 환경공학과

Soil Pollution Characteristics of Metallic Mine Area according to Extraction Methods

Jung-Seok Yang¹ · Ju Young Lee¹ · Young-Tae Park¹ · Kitae Baek² · Jaeyoung Choi^{1*}

¹KIST Gangneung Institute

²Department of Environmental Engineering, Kumoh National Institute of Technology

Abstract

This study investigated the change of metal contamination levels according to amendment of enforcement regulation of the Soil Environmental Conservation Act in Korea. As an analytical result of 87 samples in abandoned metallic mine area, the extracted amount of As, Pb and Cu with *aqua regia* was 4.3~29.6 times higher than that with hydrochloric acid extraction and the number of samples, which contamination levels were found to exceed soil contamination standards, was also increased. On the other hand, in case of Cd, Zn, and Ni, the number of samples, which contamination levels were found to exceed soil contamination standards, was decreased or similar. These results can be used as a preliminary material in comparison between the soil pollution data accumulated previously and the data obtained by the revised standard method for the examination of soil pollution.

Key words : Metal, *Aqua regia*, Acid extraction, Soil Environmental Conservation Act

1. 서 론

2009년도 한국광해공단의 조사에 따르면 국내에는 총 6,037개의 광산이 존재하며 이중에서 가행광산이 922개, 휴지광산이 59개, 그리고 폐광산이 5,056개 등이다(한국광해관리공단, 2009). 폐광산 중에서는 석탄광산이 383개 소이고 금속광산이 2,028개소, 비금속광산이 2,645개소로 조사되었다(Table 1).

매년 환경부와 한국광해관리공단에서 휴·폐광산에 대한 정밀조사가 이루어지고 있으며, 이를 바탕으로 하여 각 폐광산의 오염의 특성에 맞는 정화공법이 설계되어 정화되고 있다. 특히, 폐광산 주변 토양정밀조사는 복원설계에 매우 중요한 자료가 되고 있다. 그러나 토양환경보전법 시행규칙이 지난 2009년 6월 25일자로 개정되어 변경된 토양오염우려기준(Worrisome Level, WL)과 토양오염대책기

준(Countermeasure Standard, CS)이 2010년 1월 1일부터 시행되었다(환경부, 2009a). 토양환경보전법의 주된 변경내용은 토양오염기준이 17개에서 21개 항목으로 증가하였으며, 오염기준 적용 지역을 2개(가, 나지역)에서 3개(1, 2, 3지역) 지역으로 확대되었으며, 중금속 항목의 토양오염기준이 변경된 것이다. 특히 금속광산 주변의 주 오염원인 중금속 항목의 큰 변화는 기존 추출법에서 함량법으로 규제를 변경한 것이다. 즉, 기존방법에서는 카드뮴, 납, 구리는 0.1 N 염산으로 추출하고, 비소는 1.0 N 염산으로 추출, 니켈과 아연은 왕수추출을 이용하여 중금속 추출량을 측정한 후 이 결과를 바탕으로 규제를 하였으나, 변경된 법에서는 함량법인 왕수추출법을 이용하여 추출방법을 일원화하였다. 즉, 지금까지의 규제는 금속이 토양에서 용출되어 나올 수 있는 양에 대한 규제를 진행하였으나, 변경된 법에서는 금속의 용출되는 양에 상관없이 토양에

*Corresponding author : jchoi@kist.re.kr

원고접수일 : 2010. 1. 11 심사일 : 2010. 2. 16 개재승인일 : 2010. 4. 20

질의 및 토의 : 2010. 8. 31 까지

Table 1. The current state of mining in Korea (MIRECO, 2009)

Category	Active Mine				Abandoned/inactive Mine				Total	
	Coal mine	Non-Coal mine		Sub-Total	Coal mine	Non-Coal mine		Sub-Total		
		Metallic	Non-metallic			Metallic	Non-metallic			
No.	7	71	844	922	384	2,037	2,694	5,115	6,037	
(%)	0.1	1.2	14.0	15.3	6.4	33.7	44.6	84.7	100	

얼마나 존재하느냐에 중점을 두고 있다. 일례로 금속이 토양성분과 단단히 결합하여 단기적으로 용출이 되지 않고 생태계에 큰 영향이 없는 형태로 존재한다고 할 경우, 지금까지는 법에 저촉을 받지 않았으나 개정된 법에서 오염기준을 초과할 수 있다. 추출방법의 변화에 따라서 기존의 토양우려기준 및 대책기준 또한 일부 조정되었다(Table 2). 이로 인하여 기존의 토양정밀조사에서 사용하였던 추출법에 의한 정밀조사결과가 함량법으로 변경된 새로운 오염기준과 상충되는 현상이 발생한다. 토양오염 정밀조사를 기반으로 정화설계 후 정화를 하게 되나, 정밀조사와 정화설계 및 정화시행 사이에 시차가 존재한다. 따라서 기존의 정밀조사결과와 새로운 토양오염공정시험기준에 의한 오염도의 차이를 확인할 필요성이 있다.

본 연구에서는 이러한 국내 토양환경기준변화에서 발생하는 오염기준 변화에 따른 추출방법에 따른 오염도의 변화를 금속광산을 한 곳 선정하여 평가함으로써 각각의 추출방법에 따른 오염기준 비교의 기초자료를 제공하고자 하였다.

2. 실험재료 및 방법

2.1. 대상광산 및 시료채취

대상 광산은 강원도 태백에 소재하는 원동광산(WD) 주변지역으로 주요 채광금속으로 철 27,821톤, 구리 302톤,

아연 102톤을 생산하였으며 1999년에 폐광하였다. 2003년에는 폐석 유실을 방지하기 위하여 용벽을 설치하였으며, 폐석장은 2개소가 있으나 광미장의 흔적이 없어 과거에 농경지에 매립하였거나 강우로 인한 침식이 일어났을 가능성 있다. 주변의 토지는 대부분 밭으로 사용되고 있었다.

대상 지역은 태백산맥 서쪽에 인접하여 고원성 산지로 지형이 높고 비교적 험준한 산계를 형성하고 있다. 대상 광산지역의 지질은 선캄프리아기의 화절층, 고생대의 막골석화암, 동점규암, 홍점층, 중생대의 석영반암 및 제4기 충적층이 분포되어 있다. 또한 대상 지역에 분포하는 화절층과 홍점층의 경계를 기준으로 남동쪽에서 동동측으로 가로지르는 비교적 큰 규모의 단층이 분포한다(광해방지 사업단, 2007).

시료채취는 토양오염공정기준에 의거하여 각 필지에서 대상지역을 대표할 수 있는 토양시료를 채취하기 위해, 대상지역 내에서 지그재그 형으로 5~10개 지점을 선정한 후 표토시료를 채취 및 혼합하여 한 개의 시료로 만들었다. 폐석장 주변 토양의 경우 대상지역의 중심이 되는 1개 지점과 주변 4방위의 5~10 m 거리에 있는 1개 지점 씩 총 5개 지점을 선정한 후 표토시료를 채취 및 혼합하여 한 개의 시료로 만들었다. 총 87개의 시료(폐석장 토양 8개 포함)를 채취하였으며, 금속분석을 위하여 채취한 시료를 상온에서 건조한 후 10 폐수(2 mm) 또는 100 폐수(149 µm) 이하로 체질하였다.

Table 2. Soil Contamination Worrisome Levels and Countermeasure Standards regulated by enforcement regulation of the Soil Environmental Conservation Act in Korea (MOE, 2009b)

Contaminant	“Ga” Zone ^{a)}			Region “1” ^{b)}		
	Worrisome Level	Countermeasure Standard		Worrisome Level	Countermeasure Standard	
Cd	1.5	4		4	12	
Cu	50	125		150	450	
As	6	15		25	75	
Hg	4	10		4	12	
Pb	100	300		200	600	
Cr ⁶⁺	4	10		5	15	
Zn	300	700		300	900	
Ni	40	100		100	300	

^{a)} Until Dec. 31, 2009.

^{b)} From Jan. 1, 2010.

2.2. 추출 및 분석방법

광산토양의 금속오염도를 평가하기 위하여 금속추출방법을 토양오염공정시험기준 변경 전후의 방법인 3가지 방법(0.1 N 염산추출, 1.0 N 염산추출, 왕수추출)으로 진행하였다. 0.1 N 염산추출방법은 10메쉬 이하의 토양시료 10 g을 정밀히 취하여 100 mL 삼각플라스크에 넣고 염산용액(0.1 N) 50 mL 넣은 후 항온수평진탕기를 사용하여 30°C를 유지하면서 1시간 진탕한 다음 거름종이 5B를 사용하여 여과하였다. 1.0 N 염산추출방법은 10메쉬 이하의 토양시료 10 g을 정밀히 취하여 100 mL 삼각플라스크에 넣고 염산용액(1.0 N) 50 mL 넣은 후 항온수평진탕기를 사용하여 30°C를 유지하면서 1시간 진탕한 다음 거름종이 5B를 사용하여 여과하였다. 왕수추출법은 공정시험기준에 준하여 변형하여 진행하였다. 먼저 100 메쉬로 체걸음한 토양시료 1.5 g을 자체 제작한 90 mL 유리튜브에 넣고 농염산 10.5 mL과 농질산 3.5 mL을 넣은 다음 상온에서 2시간 이상 정치하여 토양의 유기물이 천천히 산화되도록 하였다. 정치 후 반응혼합물의 온도를 heating block에서 70°C로 올려 2시간 동안 그 상태를 유지하였다. 용액을 정치시켜 불용성 잔류물을 침전되도록 한 다음 상청액을 Whatman No. 40 여지로 50 mL 용량 플라스크에 여과하고 물로 표선까지 채워 분석용 시료로 사용하였다. 변형된 왕수추출방법은 토양오염공정시험기준에서 제시한 토양과 추출액의 사용량을 절반으로 줄였으며, 전용 추출용기를 자체제작하여 사용한 점이 차이가 존재한다. 본 연구에서 사용한 변형된 왕수추출방법과 토양오염공정시험기준에 의한 왕수추출방법의 오차는 5%미만이었다. 토양에 금속의 존재형태를 분석하기 위하여 변형된 BCR 연속추출법(Rauret et al., 1999)을 이용하였다. 추출방법을 요약하면, 1단계 추출(Fraction 1)에서는 토양 1g에 0.11 M 아세트산을 40 mL 넣고 상온에서 16시간 교반한 후 원심분리하여 상동액을 취하였다. 2단계 추출(Fraction 2)에서는 1단계에서 남은 잔류물에 0.5 M hydroxylammonium chloride 40 mL을 넣고 상온에서 16시간 교반 후 원심분리하여 상동액을 취하였다. 3단계 추출(Fraction 3)에서는 2단계 추출 후 잔류물에 8.8 M 과산화수소 10 mL 주입 후 85°C에서 유기물을 분해시키는 것을 2번 반복한 후 pH 2로 조절된 1 M 초산암모늄 50 mL을 넣고 16시간 교반 후 원심 분리하여 상동액을 취하였다. 3단계 추출의 잔류물을 앞서 언급한 왕수추출방법을 이용하여 잔류 금속을 추출하여(Fraction 4) 공정시험기준으로 추출한 금속의 양과 비교하였다. 각 단계의 중간에 추출액에 의한 영향을 최소화하기 위하여 중류수로 세척을 진행하였다.

추출액에 존재하는 금속(As, Cd, Cu, Pb, Ni, Zn)의 농도는 유도결합플라즈마분광광도계(ICP-OES, Varian 730-ES)를 이용하여 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

대상지역의 토양시료 총 87개의 샘플의 금속(Cd, Cu, As, Pb, Zn, Ni) 오염농도는 기존 토양오염공정시험기준과 2010년에 적용되는 새로운 토양오염공정시험기준으로 측정하였다. 기존 및 변경된 토양오염공정시험기준에 의한 우려기준과 대책기준을 Fig. 1과 같이 9개의 범주로 나누었으며, 기존 토양오염공정시험기준에 의한 “가”지역의 우려기준 이하는 I, IV, VII, 우려기준 초과 대책기준 이하는 II, V, VIII, 대책기준 초과는 III, VI, IX 범주에 속하며, 변경된 토양오염공정시험기준에 의한 “1”지역의 우려기준 이하는 I, II, III, 우려기준 초과 대책기준 이하는 IV, V, VI, 대책기준 초과는 VII, VIII, IX 범주에 속한다. 이를 각 금속 항목별로 Table 3에 나타내었다.

카드뮴의 경우 기존 0.1 N 염산으로 추출한 양에 비해 왕수로 추출한 양이 약 2.16배(폐석장 토양 미포함) 많았으나, 우려기준이 1.5 mg/kg에서 4 mg/kg(2.67배), 대책기준이 4 mg/kg에서 12 mg/kg(3배)으로 상향조정되었기 때문에 기존 기준에 의한 오염도와 변경된 오염도가 비슷한 양상을 보였다(Fig. 2(A)). 기존 기준에서 우려기준 이하는 67건, 우려기준 초과 대책기준 이하는 7건, 대책기준

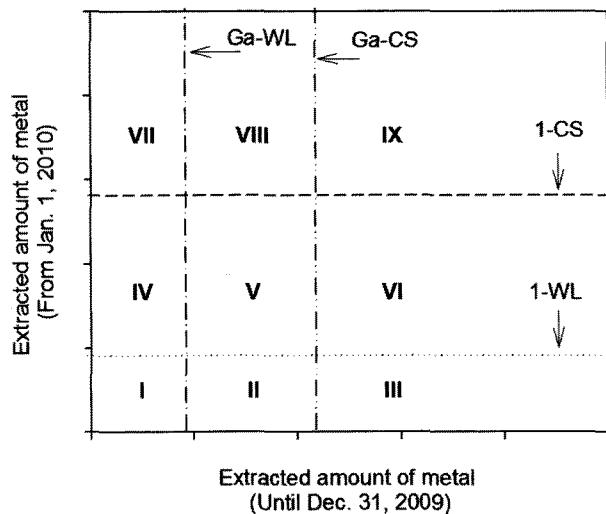


Fig. 1. Schematic diagram of soil contamination worrisome levels (WL) and countermeasure standards (CS) regulated by enforcement regulation of the Soil Environmental Conservation Act in Korea until Dec. 31, 2009 and from Jan 1. 2010.

Table 3. Summary of soil contamination around WD mining area categorized by worrisome levels (WL) and countermeasure standards (CS) regulated by enforcement regulation of the Soil Environmental Conservation Act in Korea until Dec. 31, 2009 and from Jan 1, 2010^{a)}.

Category	Regulation Level		Cd	Cu	As	Pb	Zn	Ni
	Until 2009	From 2010						
I	< Ga-WL	< 1-WL	66	77	17	57	61	87
II	> Ga-WL & < Ga-CS	< 1-WL	-	-	-	-	-	-
III	> Ga-CS	< 1-WL	-	-	-	-	-	-
IV	< Ga-WL	> 1-WL & < 1-CS	1	3	47	11	-	-
V	> Ga-WL & < Ga-CS	> 1-WL & < 1-CS	4	1	-	3	11	-
VI	> Ga-CS	> 1-WL & < 1-CS	3	-	1	-	2	-
VII	< Ga-WL	> 1-CS	-	2	5	5	-	-
VII	> Ga-WL & < Ga-CS	> 1-CS	3	1	-	2	-	-
IX	> Ga-CS	> 1-CS	10	3	17	9	13	-

^{a)} "Ga" and "I" in the Table indicate "Ga" Zone and Region "I", respectively, in the Soil Environmental Conservation Act.

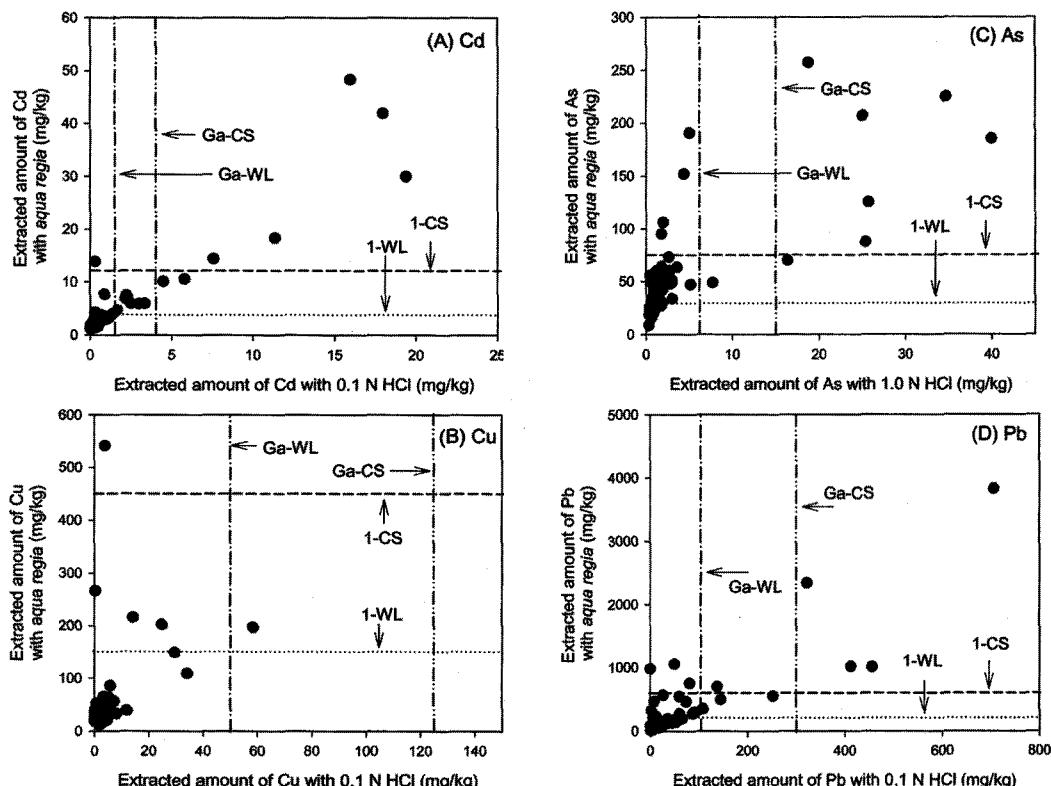


Fig. 2. Relationship between extracted amounts of metals from soils using old and new extraction methods according to enforcement regulation of the Soil Environmental Conservation Act.

이상의 13건에서 변경된 기준을 적용하였을 경우 우려기준 이하는 68건, 우려기준 초과 대책기준 이하는 8건, 대책기준 이상은 13건으로 나타났다. 즉, 기존의 우려기준 이하 시료 1건이 변경된 우려기준 이상 대책기준 이하로 상향된 것을 제외하고 오염기준의 변화가 없었다.

구리의 경우 기준 0.1 N 염산으로 추출한 양에 비해 왕수로 추출한 양이 약 5.2배(폐석장 토양 미포함) 많았으며,

우려기준이 50 mg/kg에서 150 mg/kg (3배), 대책기준이 125 mg/kg에서 450 mg/kg(3.6배)로 증가하여 기준의 증가비에 비해 실제 시료의 증가비가 커졌다(Fig. 2(B)). Fig. 2(B)에서 보면 기존 "가"지역 우려기준 이하 토양(I, IV, VII)이 새로운 기준으로 우려기준이하(I), 우려기준 초과 대책기준 이하(IV), 대책기준 초과(VII)로 변경된 것을 알 수 있다. 총 87개의 시료에서 대책기준 이상이 3건에서 6

건으로, 우려기준 초과 대책기준 이하의 시료가 2건에서 4건으로 증가하였으며, 우려기준 이하의 시료는 82건에서 77건으로 감소하였다.

비소의 경우 기준 1.0 N 염산으로 추출한 양에 비해 왕수로 추출한 양이 약 6.6배(폐석장 토양 미포함) 많았으며 기존 우려기준이하 토양만을 대상으로 하였을 경우 약 29.6배 증가하였다. 비소의 우려기준이 6 mg/kg에서 25 mg/kg(4.2배), 대책기준이 15 mg/kg에서 75 mg/kg(5배)로 증가하여 기준의 증가비에 비해 실제 시료의 증가비가 매우 커다(Fig. 2(C)). 비소의 경우 총 87개의 시료에서 대책기준 이상의 토양이 18건에서 22건으로 증가하였으며, 우려기준 초과 대책기준 이하의 토양이 1건에서 48건으로 증가하였으며, 우려기준 이하의 토양은 68건에서 17건으로 감소하였다. 즉, 비소의 경우 기준의 토양오염공정시험기준에 의한 오염도에 비하여 변경된 토양오염공정시험기준에 의한 오염도 기준이 강화되어 오염면적이 크게 늘어나게 되었다.

납의 경우 기준 0.1 N 염산으로 추출한 양에 비해 왕수로 추출한 양이 약 4.3배(폐석장 토양 미포함) 많았으며(Fig. 2(D)), 오염기준은 우려기준이 100 mg/kg에서 200 mg/kg (2 배)으로 대책기준이 300 mg/kg에서 600 mg/kg(2배)으로 증가하였다. 납의 경우 또한 비소와 비슷한 경향을 보였으며, 총 87개의 시료 중 대책기준 초과가 9건에서 16건으로 증가하였으며, 우려기준 초과 대책기준 이하는 5건에서 14건으로 증가하였으며, 우려기준 이하는 73건에서 57건으로 감소하였다.

아연과 니켈의 경우 기준의 추출방법과 변경된 토양오염공정시험기준에서의 추출방법이 동일하나 아연의 경우 대책기준이 기준 700 mg/kg에서 900 mg/kg으로 니켈의 경우 우려기준이 40 mg/kg에서 100 mg/kg으로 대책기준이 100 mg/kg에서 300 mg/kg으로 상향조정되었다. 본 연구지역에서는 니켈의 경우 모두 우려기준 이하로 존재하였으며, 아연의 경우 상향조정된 대책기준의 변화로 인하여 대책기준 초과가 17건에서 15건으로 감소하고, 우려기준 초과 대책기준 이하가 12건에서 15건으로 증가하는 결과가 나왔다.

이러한 추출방법에 따른 금속의 함량은 토양내 금속의 존재형태에 기인한다. 토양 내 금속은 다양한 형태로 존재한다. 일반적으로 연속추출법(sequential extraction methods)을 이용하여 금속의 토양에서의 존재 형태를 알아보고 있다. 대표적인 연속추출법은 Tessier et al.,(1978)의 5단계 추출법과 BCR 연속추출법(Rauret et al., 1999; Ure et al., 1993)이 사용되고 있다 (Hass and Fine, 2010).

이러한 추출법은 토양 내 중금속을 이온교환형태(exchangeable fraction)와 탄산염형태(carbonate fraction), 망간 및 철 산화물 형태(Fe/Mn oxides fraction), 유기물 및 황화물 형태(organic/sulfide fraction), 잔류형태(residual fraction)로 나누어서 존재형태를 구분하고 있다. 0.5 M 염산을 이용하여 토양 내 중금속을 추출하였을 경우 이온교환형태, 탄산염형태, 망간 및 철 산화물 형태는 일부 추출이 되나 망간 철 산화물 형태의 일부, 유기물 및 황화물 형태와 잔류형태는 추출이 되지 않는 것으로 보고되고 있다(Madrid et al., 2007). BCR 연속추출법을 이용하여 Table 3의 VI, IV에 해당하는 토양 8개를 추출한 결과, 평균값으로 비소의 경우 이온교환형태와 탄산염 형태(F1)가 1.1%, 망간 및 철 산화물 형태(F2)가 15.8%, 유기물 및 황화물 형태(F3)가 7.8%, 잔류형태(F4)가 75.3%였다. 카드뮴의 경우 F1이 20.3%, F2가 39.4%, F3가 8.3%, F4가 32.0%였으며, 구리의 경우 F1이 4.3%, F2가 16.2%, F3가 34.6%, F4가 45.0%였다. 납의 경우 F1이 3.8%, F2가 71.9%, F3가 15.2%, F4가 9.1%였다. 즉 기준의 토양오염공정시험기준에서 사용한 0.1 N 염산과 1.0 N 염산을 이용하여 추출하였을 경우 망간 및 철 산화물 형태의 일부, 유기물 및 황화물 형태와 잔류형태로 존재하는 금속은 추출이 되지 않으나 개정된 토양오염공정시험기준에 의하여 왕수에 의한 추출로 규산염 광물 결정형의 잔류상을 제외한 잔류형태까지 모두 추출이 되게 된다. 따라서 실제 토양의 금속의 존재형태에 따라서 기존 토양오염공정시험기준과 개정된 토양오염공정시험기준에 의한 금속의 오염도가 달라질 가능성이 존재한다. 토양 내 금속의 존재형태가 일정하기 않기 때문에 쉽게 추출되는 형태와 쉽게 추출되지 않는 형태의 비가 토양에 따라 달라진다. 본 연구에서는 금속은 잔류형태가 비교적 많은 부분을 차지하고 있기 때문에 염산추출에 의한 것보다 왕수로 추출하였을 경우 적게는 4.3배에서 많게는 29.6배까지 금속이 추출되는 것으로 보인다.

결과적으로, 금속광산 주변의 토양을 분석한 결과로만 살펴보면 기준의 오염기준에 비하여 변경된 오염기준은 구리, 비소, 납의 경우 상당히 엄격해졌으며, 카드뮴의 경우는 비슷하고, 아연과 니켈은 완화된 것으로 볼 수 있다.

4. 결 론

토양오염공정시험기준의 변경으로 인하여 금속에 의한 토양오염의 규제가 추출법에서 함량법으로 변화되었으며, 이러한 규제의 변화가 실제 오염도에 미치는 영향을 금속

광산주변을 한 곳을 선정하여 살펴보았다. 대상 광산의 결과로 볼 때 규제의 변화로 인한 오염도의 변화의 민감도는 각 금속에 따라 차이가 있었으며, 비소, 납, 구리의 경우 변경된 기준으로 인하여 보다 엄격한 규제가 이루어 질 것으로 판단되며, 카드뮴은 기존과 비슷하고 아연과 니켈은 완화될 것으로 판단된다. 본 연구결과는 한 곳의 금속광산 주변의 토양을 대상으로 진행한 결과이기 때문에 그 적용성이 한정되지만, 기존의 토양 오염도를 바탕으로 진행되는 폐광산 주변지역 복원공정 설계 및 시공 시 기초 자료로 이용될 수 있을 것으로 판단된다.

감사의 글

본 연구는 한국과학기술연구원의 기관고유사업(2Z03290)에 의해 수행되었으며 이에 감사드립니다.

참고문헌

- 광해방지사업단, 2007, 기학, 원동, 제2연화, 서점1광산 토양오염 복원 정밀조사 및 설계보고서, 광해방지사업단, 서울, p. 208.
 환경부, 2009a, 토양오염공정시험기준, 환경부, 서울, p. 296.
 환경부, 2009b, 토양환경보전법 시행규칙, 환경부, 서울, p. 12.

한국광해관리공단, 2009, 광해방지사업 기초자료 확보를 위한 연구용역, 한국광해관리공단, 서울, p. 179.

Madrid, F., Reinoso, R., Florido, M.C., Barrientos, E.D., Ajmone-Marsan, F., Davidson, C.M., and Madrid, L., 2007. Estimating the extractability of potentially toxic metals in urban soils: A comparison of several extracting solutions, *Environ. Pollut.*, **147**, 713-722.

Hass, A. and Fine, P., 2010, Sequential selective extraction procedures for the study of heavy metals in soils, sediments, and waste materials-A critical review, *Crit. Rev. Environ. Sci. Technol.*, **40**(5), 365-399.

Rauret, G., López-Sánchez, J., Sahuquillo, A., Rubio, R., Davidson, C., Ure, A., and Quevauviller, P., 1999, Improvement of the BCR three step sequential extraction procedure prior to the certification of new sediment and soil reference materials, *J. Environ. Monit.*, **1**, 57-61.

Tessier, A., Campbell, P., and Bisson, M., 1979, Sequential extraction procedure for the speciation of particulate trace metals, *Anal. Chem.*, **51**, 844-851.

Ure, A., Quevauviller, P., Muntau, H., and Griepink, B., 1993, Speciation of heavy metals in soils and sediments: an account of the improvement and harmonization of extraction techniques undertaken under the auspices of the BCR of the commission of the European communities, *Int. J. Environ. Anal. Chem.*, **51**, 135-151.