Journal of Radiation Industry 11(4) : 209~218(2017)

이동형 전자빔 시스템을 이용한 가축매몰지 침출수 오염 지하수 복원

김태훈[1,†] · 차석문[2,†] · 이 강[1] · 김정인[1] · 유승호[1,*]

[1]한국원자력연구원 첨단방사선연구소 공업환경연구부
[2]전라남도 환경산업진흥원 환경측정사업부

Remediation of Groundwater Contaminated with Leachate from Livestock Carcass Burial Sites by Using a Mobile Electron Beam System

Tae-Hun Kim[1,†], Seok Mun Cha[2,†], Kang Lee[1], Jeong In Kim[1] and Seungho Yu[1,*]

[1]*Industry and Environment Research Division, Korea Atomic Energy Research Institute, Jeongeup-si, Jeonbuk 56212, Republic of Korea*
[2]*Jeolla Environmental Industries Promotion Institute (JEIPI), Songgye-ro, Sungjeon-myeon, Gangjin-gun, Jeollanam-do 65094, Republic of Korea*

Abstract - Leachate released from animal carcass burial sites to subsurface is potentially harmful to the environment due to a high possibility of the soil and groundwater contamination by pathogenic microorganisms and various organic and inorganic matters associated with the decay of animal carcass. The objectives of this study were to study the treatment process for the removal of solids, ammonia, and recalcitrant trace organic chemicals and to develop the integrated continuous system with pre-treatment and a mobile electron beam systems. The results showed that the sequential combination of activated carbon and zeolite was more effective to remove organic and inorganic contaminants than zeolite and activated carbon in the pretreatment system. The average removal efficiency of TOC with activated carbon column was about 77%. The removal efficiency of 80% was obtained for both NH_3-N and ninhydrin-reactive nitrogen (NRN) with zeolite column system. Disinfection efficiencies for various microorganisms were over 99% after the treatment of electron beam process at absorbed dose 2 kGy. As a result, the sequential treatment system with a mobile electron beam was very effective for the remediation of groundwater contaminated with leachate from livestock carcass burial sites.

Key words : Leachate, Livestock carcass burial, Mobile electron beam, Remediation

서 론

구제역(Foot and Mouth Disease, FMD)은 전염성이 매우 강한 질병으로 소나 돼지와 같은 발굽이 갈라진 가축에게서 주로 발생하는 질병으로 국제수역사무국(Office International des Epizooties, OIE)에서는 A급 질병으로 분류하고 국내에서는 제1종 가축전염병으로 지정하여 관리하고 있다(Kim *et al*. 2010; Yoo 2011; Kim *et al*. 2014). 구제역은 국내에서 2010년 11월 경북 안동에서 최초로 발병되

† These authors contributed equally to this work.
* Corresponding author: Seungho Yu, Tel. +82-63-570-3341, Fax. +82-63-570-3352, E-mail. yuse@kaeri.re.kr

었으며, 초기 방역 실패 및 강한 전염성으로 인해 전국에 걸쳐 대규모로 확산되었다. 전국적으로 약 4,799개의 매몰지가 형성되었으며 약 350여 만 마리의 가축이 매몰 살처분되었다(Kim *et al*. 2010; Yoo 2011; Choi *et al*. 2013). 국내에 구제역 발생 시 감염된 가축의 처리는 매몰 방법이 가장 일반적이고, 이 방법은 신속하고 대규모로 처리가 가능하다는 장점이 있는 반면 침출수 유출 등 2차 환경오염이 발생할 수 있다(Kim *et al*. 2010; Kim *et al*. 2014). 매몰된 가축의 유기 사체는 수분을 함유한 부패성 유기물질로 구성되어 있으며 사후 즉시 분해가 시작되어 다량의 침출수가 유출되며, 주로 매몰 초반에 많이 배출되지만 그 이후에도 꾸준하게 발생하는 것으로 알려져 있다. 매몰 가축은 1) 자가 분해(autolysis), 2) 부패(putrefaction), 3) 액화 및 분해(liquefaction & disintegration)와 4) 해골화(skeletonisation)의 순서로 총 4단계에 걸쳐 분해가 진행된다(Dent *et al*. 2004). 사체가 분해되는 과정에서 병원성 미생물, 다양한 유 · 무기 복합 물질, 암모늄 등의 질소화합물이 포함된 다량의 침출수가 발생한다. 하지만 침출수에 대한 정확한 국내 정보는 전무하기 때문에 2012년부터 한국원자력연구원 첨단방사선연구소에서는 가축 매몰지에서 발생하는 침출수의 양과 오염물질의 종류 및 농도를 파악하기 위해 연구용 lysimeter를 건설하여 실험을 진행하였다(Cha 2015). 실제 국내 가축 매몰지 조성 지침과 동일하게 생석회가 투입되어 건설된 lysimeter에서 1,462일 동안 평균 2주마다 샘플링한 침출수의 발생량은 최소 0.48 *l*에서 최대 12.48 *l*까지 유출되었고, 매립 후 300일까지는 매번 많은 양의 침출수가 유출되었다. 또한 침출수 내 오염물질의 농도는 총 유기탄소는 613.3~33752.5 mg · l^{-1}, 암모니아성 질소는 37.9~8587.3 mg · l^{-1}, ninhydrin-reactive nitrogen (NRN) 15.3~2453.5 mg · l^{-1}, 마지막으로 단백질의 경우 17.4~3359.5 mg · l^{-1}의 농도를 나타냈다. 이러한 고농도의 오염물질들이 포함된 침출수가 적절한 처리 없이 유출되면 토양 및 지하수에 심각한 환경피해를 야기시킨다(Kang *et al*. 2012). 실제로 가축매몰지 주변 지하수를 모니터링한 연구에서는 고농도의 오염물질들이 유출되고 있으며(Pratt 2009), 국내의 경우에는 매립지 후 초기 단계에 국립환경과학원이 지정한 침출수 유출 기준으로도 침출수 유출이 의심되는 지역이 약 23.6% 확인되었다(허 등 2014). 특히 침출수 내 암모니아성 질소의 경우 가축 사체 단백질의 분해과정에서 발생하는 최종 분해 산물이며 많은 양이 발생되고 있다. 국내 환경부의 암모니아성 질소의 음용수 수질 기준은 0.5 mg · l^{-1} 이하로 지정되어 있다(환경부 2009). 암모니아성 질소는 수계 내에서 질산화 과정에 의해 질산성 질소로 전환되면 청색증을 야기시키거나 암을 유발할 수 있는 잠재적인 오염원으로 처리가 필수적인 물질이다. 그러므로, 질소화합물이 다량 포함된 산업폐수, 축산폐수 및 가정 하수 등의 오 · 폐수 처리를 위해 물리 · 화학적, 생물학적 방법을 이용하여 처리하고 있다. 이 중 물리 · 화학적 방법 중 하나인 제올라이트를 이용한 이온교환법은 폐수 내 암모니아성 질소를 선택적으로 치환하여 효과적으로 제거할 수 있다(Jorgensen and Weatherley 2003). 제올라이트는 천연 광물의 일종으로 흡착 특성과 이온 교환능으로 인해 흡습제, 이온 교환제 및 촉매제 등 응용범위가 높은 물질이다. 또한 제올라이트의 기본구조는 다공성 알루미노 실리케이트 결정이며 표면에 전하를 갖는 금속 양이온이 존재하여 구조적으로 안정하다. 표면에 존재하는 금속 양이온은 제올라이트의 고유한 특성인 이온교환능을 가지고 있기 때문에 필요에 따라 적절한 양이온으로 쉽게 치환될 수 있다. 따라서, 제올라이트는 양이온 교환능이 매우 높기 때문에 암모니아성 질소를 제거하기 위한 공정으로 많이 활용되었다(Booker *et al*. 1996; Lee *et al*. 2001; Lee *et al*. 2008).

전 세계적으로 가축이 매몰된 후 발생되는 오염물질에 대한 기본적인 정보 및 복원 사례가 매우 부족한 상황이고, 또한 국내에서는 가축매몰지의 침출수로 오염된 지하수를 현장에서 복원하는 기술은 연구가 진행되지 않고 있는 실정이다. 현재 가축 매몰지 침출수의 경우 공공처리장으로 연계처리하여 침출수를 처리하거나(Nam *et al*. 2012; Choi *et al*. 2013), 응집(정 등 2012)과 소각(김 등 2011)을 이용하여 처리하고자 사전 연구가 진행되었다. 따라서 본 연구에서는 가축매몰지로부터 발생하는 침출수로 오염된 지하수를 처리하기 위하여 활성탄과 제올라이트 공정으로 구성된 전처리 시스템과 이동형 전자선 가속기가 결합된 복원 공정을 개발하여 침출수로 오염된 지하수의 현장 복원을 위한 사전 연구를 수행하였다.

재료 및 방법

1. 지하수 시료 샘플링

본 연구를 위한 지하수 시료는 침출수 유출 가능성이 매우 높은 A시 매몰지에 설치된 모니터링 지하수 관측정을 통해 샘플링 하였으며, 이 매몰지는 2011년 1월 21일 구제역으로 인해 젖소 186마리를 살처분하여 조성되었다. 이 관측정은 지하수의 흐름을 고려하여 국내 매몰지 관리 지침서를 근거로 설치된 관측정으로 매몰지로부터 약 20 m 이내에 설치되어 있는 지하수 관측정으로, 현장을 복원 사전 연구를 위한 지하수 시료 채취는 펌프(한일, PA-930)와 1.5 inch 관을 이용하여 이동형 전자선 시스템과 결합된 지하수 복원 실험을 위해서 매번 2톤의 지하수를 채취하여 운반하였고 총 4번 샘플링을 진행하였다. 또한 일반 지하수의 농도 특성을 확인하고자 주변 매몰지로부터 약 2 km 떨어진 농가의 지하수를 채취하여 배경 농도로 사용하였다. 1차 샘플링은

Table 1. Analysis method of ammonia nitrogen and Ninhydrin-reactive nitrogen

Ammonia nitrogen analysis procedure
A. Prepare a series of ammonia nitrogen standards diluted with deionized water to final concentrations of 0 (blank = deionized water only), 2, 5, 8, 10 mg · l^{-1}. Also prepare serial dilutions of the sample to be measured.
B. Add 1 drops of mineral stabilizer to each conical tube.
C. Add 2 drops of polyvinyl alcohol dispersing agent to each conical tube.
D. Use a pipet to add 0.5 ml of Nessler reagent to each conical tube.
E. Reacted for 1 minute at room temperature.
F. Adjust the spectrophotometer to a wavelength of 425 nm and measure each of the standards and each of the samples at 425 nm wavelength
Ninhydrin-reactive nitrogen (NRN) analysis procedure
A. Prepare a series of NRN standards diluted with deionized water to final concentrations of 0 (blank = deionized water only), 2, 4, 6, 8 and 10 mg · l^{-1}. Also prepare serial dilutions of the sample to be measured (18.784 mg DL-leucine in 40 ml D.W. / 50 μg N ml^{-1})
B. Add 1.0 ml of each of the samples or standard to a separate conical tube
C. Add 0.5 ml of prepared NRN reagent to each tube and mix by vortex.
D. Placed in a heating block of 80°C for 10 min
E. Tubes were removed and cooled at room temperature during 15 min
F. After cooling, 10 ml of 50% ethanol was added and mix by vortex
G. Adjust the spectrophotometer to a wavelength of 570 nm and measure each of the standards and each of the samples at 570 nm wavelength

’15년 7월에 진행하였고, 2차와 3차 샘플링은 ’15년 8월에 진행하였다. 마지막으로 4차 샘플링은 ’15년 10월에 진행하였다.

2. 지하수 분석

채취된 지하수는 암모니아성 질소, 총 유기탄소(Total organic carbon), 닌하이드린(Ninhydrin reactive nitrogen), 단백질(Protein)을 분석하였다. 암모니아성 질소는 네슬러(Nessler) 분석방법을 이용하였다. 네슬러 시약은 요오드화 수은의 착기로, 암모늄 이온과 작용하여 등황색의 화합물을 만든다. 이 정색 반응은 민감하게 작용하므로, 이것에 의하여 미량의 암모니아를 검출하여 비색 정량을 할 수 있다. HACH사의 Nessler reagent, mineral stabilizer, polyvinyl alcohol dispersing agent 시약을 사용하였고, 흡광도 파장 분석은 바이오크롬(Biochrom)사의 LibraS35PC UV-vis spectrophotometer를 이용하여 425 nm 파장에서 발색 강도를 측정하였다(Table 1). 총 유기탄소(TOC)는 Shimadzu사의 TOC-V 분석기와 ASI-V 자동 시료 주입기기를 이용하여 분석하였으며, 화학적 산소요구량(COD)은 closed reflux-colorimetric 방법을 이용하였고, 총 질소(T-N)는 Hach 시약을 이용하여 DR/5000 spectrometer를 이용하여 분석하였다.

NRN 분석은 ninhydrin을 아미노산의 수용액에 가하면 청자색으로 변하는 발색반응을 이용하여 분석하는 방법이다. 현재 우리나라의 침출수 유출 판단근거로 선택된 항목은 염소이온, 암모니아성 질소, 질산성 질소, 총대장균 군으로 이들 항목들의 존재 여부만으로는 축산폐수 등 기타 오염원에 의한 오염인지 판단하기 어려운 실정이다. 따라서 현장에서 곧바로 판별할 수 있는 기술과 침출수의 성상 변화를 확실하게 반영한 오염원 구별 대안 기술로 제안된 항목이 NRN 분석방법이다. NRN 방법은 한국원자력연구원(유 2013) 및 Cha (2015)가 제시한 방법에 따라서 실험을 수행하였다. 시약 제조에 쓰인 ninhydrin은 시그마 알드리치에서 구입하였으며, hydrindantin hydrate와 dimethyl sulfoxide, sodium acetate 또한 시그마 알드리치에서 구입하여 사용하였다. Standard 시약으로 사용된 DL-leucines 또한 시그마 알드리치에서 구입하였다. 흡광도 측정에는 Biochrom사의 LibraS35PC UV-vis spectrometer를 사용하였고, 실험 순서는 Table 1과 같이 수행하였다. 단백질 측정은 bradford법을 이용하여 분석하였다(Bradford 1976). 분석을 위해 BIO-RAD사에서 Quick start™ Bradford Day Reagent를 구입하여 사용하였으며 시그마 알드리치에서 Protein Standard 2 mg BSA를 구입하여 standard 용액으로 사용하였다. 그리고 가축 매몰지 침출수에서 발생하는 병원성 미생물 중 총대장균군(Total coliforms), 살모넬라(Salmonella)의 분석방법은 먹는물 수질공정시험법과 식품공전법을 병행하여 분석하였다.

3. 침출수 오염 지하수 복원 시스템

가축매몰지 침출수로 오염된 지하수를 복원하기 위한 시스템은 Fig. 1과 같이 구성하였으며, 이 공정은 1) 전처리 시스템과 2) 이동형 전자선 가속기 시스템으로 구성되어 있다. 전처리 시스템은 고형물 형태의 오염 물질 및 암모니아성 질소를 처리하기 위해 활성탄 칼럼(입상활성탄, 8×30 mesh)과 제올라이트(0.5~1 mm) 칼럼으로 구성하였으며, 병원성 미생물 및 난분해성 오염물질들의 처리를 위해서 이동형 전자선 가속기 시스템 후단 공정으로 구성하였다. 활

Fig. 1. Remediation system with mobile electron beam for groundwater contaminated with leachate from animal carcass.

Table 2. Specification of pretreatment (activated carbon and zeolite column) and mobile electron beam

Process		Specification
Pretreatment	Activated carbon column Zeolite column	Granular activated carbon (8 × 30 mesh), 50 $l \cdot set^{-1}$ Zeolite (0.5~1 mm), 50 $l \cdot set^{-1}$
Mobile electron beam	Electron beam accelerator Flow thickness from reactor Flow velocity & Capacity	0.6 MeV, 20 kW 2 mm 150 $l \cdot min^{-1}$, 150 $m^3 \cdot day^{-1}$

성탄 칼럼과 제올라이트 칼럼의 경우 각각 50 *l* 칼럼(구경 250 mm × 높이 1,370 mm) 2개를 설치하였으며, 백석화학에서 구매된 제올라이트와 활성탄은 실험 전에 수돗물로 세척 후 마지막에 증류수로 세척하여 불순물을 제거하고 사용하였다. 각 칼럼에 사용된 활성탄과 제올라이트의 제원과 이동형 전자빔 가속기 관련 정보는 Table 2에 나타내었다.

결과 및 고찰

1. 매몰지 주변 현장 지하수 특성

가축매몰지 침출수 유출로 지하수 오염이 예상되는 지점은 A시의 협조로 선정하여 실험을 수행하였다. 샘플링한 가축 매몰지 주변 현장 지하수의 오염물질 농도를 분석하여 Table 3에 나타내었다. 단백질을 제외한 나머지 항목에서 높은 농도를 보여주고 있으며, 배경 농도와 비교해 볼 때 침출수에 의한 오염 가능성이 매우 높은 것으로 판단된다. 유(2013)는 가축매몰지 침출수 유출 판단 인자로 NRN, 암모니아성 질소, TOC 값을 제시하였고, 축산폐수와 가축매몰지 침출수를 비교 분석한 결과에서도 가축매몰지 침출수에서 NRN, 암모니아성 질소, TOC 값이 높게 측정되어 이 항목들이 높게 검출될 경우에 침출수 유출에 의한 오염으로 판단하였다. NRN 방법은 단백질뿐만 아니라 암모니아, 아미노산, 펩타이드, 아민류 등 단백질과 그 분해부산물을 측정할 수 있는 방법으로 사용되고(Van Belle *et al*. 2009), 가축매몰지 침출수에서는 NRN 값이 높으면 암모니아성 질소와 TOC 값이 높은 것으로 보고되었다. Table 3에서 현장 지하수는 주변 지하수의 농도보다 4회 모두 NRN 값이 매우 높게 측정되었고, TOC와 암모니아성 질소 또한 배경 지하수 농도보다 매우 높게 측정되었기 때문에 샘플링한 지하수는

Table 3. Chemical properties of field groundwater

Characteristics of groundwater ($mg \cdot l^{-1}$)					
Parameter	Control	1	2	3	4
Total organic carbon	1.36	52.19	52.37	43.55	34.79
Ammonia nitrogen	4.05	102.44	74.72	71.28	70.06
Ninhydrin reactive nitrogen	1.09	24.30	16.38	23.73	17.92
Protein	0.26	1.38	1.70	0.93	1.22

가축매몰지 침출수 유출에 의한 오염이 높은 것으로 판단된다. 이중 암모니아성 질소의 경우에는 최대 102.44 $mg \cdot l^{-1}$에서 최소 70.06$mg \cdot l^{-1}$ 농도가 측정되었다. 일반적으로 암모니아성 질소 자체는 인간에게 직접적인 해가 없지만 질산성 질소로 산화될 경우 청색증을 일으키는 잠재적인 오염원으로 국내 지하수의 질산성 질소 수질기준은 20 $mg \cdot l^{-1}$이다. 암모니아성 질소의 경우 단백질의 최종 분해산물로서 아미노산의 탈 아미노반응(deamination)과 생물 사체의 유기물 분해과정 초기에 다량 생성된다. Lysimeter를 이용한 연구에서 유기사체가 부패되는 300일 이후에는 약 8,000 $mg \cdot l^{-1}$의 암모니아성 질소가 지속적으로 검출되는 것을 확인하였다(Cha 2015). 암모니아성 질소가 높게 검출되는 것은 유기 사체가 부패가 지속적으로 이루어지고 있는 것을 의미하고 또한 질산화 과정에 의해서 청색증을 유발할 수 있는 질산성 질소가 증가할 수 있을 것으로 판단된다. 또한 단백질 분석 결과에서 보듯이 배경 지하수 농도보다 약 5배 이상 높게 측정되었기 때문에, 현재 샘플링한 지역의 매몰지가 2011년에 생성되었지만 2015년 샘플링한 시점까지도 지속적으로 유기 사체가 부패되고 있는 것으로 판단된다. Table 3은 샘플링 시기에 따라 오염물질의 농도가 변화되는 것을 보여준다. 샘플링 회수가 1차에서 3차까지는 여름에 해당하는 7월, 8월이었고, 4차는 가을에 해당하는 10월에 실시하였는데, 1~3차까지의 오염물질의 농도가 4차에 비해 조금 더 높은 결과가 나타났다. 이는 온도가 상승하는 여름에 부패 및 분해가 활발하게 일어나는 것을 확인할 수 있었으며, 이전의 연구와도 비슷한 경향을 나타냈다(Cha 2015; 심 2016).

2. 전처리 시스템 최적화

이동형 전자선 가속기와 결합된 지하수 복원 시스템 개발을 위해 본 연구는 다양한 부유물질 처리를 위한 전처리 시스템의 공정 조합과 최적화 연구를 수행하였다. 본 연구에서 고려한 전처리 시스템은 활성탄 칼럼과 제올라이트 칼럼으로 구성하였다. 입자활성탄은 유기오염물질 제거에 매우 잘 알려져 있는 기술로, 흡착 칼럼에 제조하거나 역 세척에 편리하여 일반적으로 많은 혼합 공정에 사용된다(Groeber 1991). 제올라이트는 암모니아 이온을 포함하여 다양한 양이온(Ca, Mg)을 제거할 수 있고, 암모니아성 질소를 제거하는데 5~55°C 온도에서도 영향을 받지 않고 매우 안정적으로 처리 가능한 공정으로(Atkins Jr and Scherger 1977; 노 등 1990; 홍 등 2001), 우리나라의 계절적 온도와 가축매몰지의 침출수에 오염된 지하수 성상을 고려하여 선택하였다. 본 연구는 전처리 시스템 안정화와 최적화된 오염원 제거를 위해서 활성탄과 제올라이트 칼럼 순서에 따른 오염물질 제거 효율 변화에 대한 실험을 진행하였다. 이 실험 또한 동일하게 가축 매몰지 침출수에 오염된 지하수를 샘플링하여 실험을 진행하였고, 최적화된 전처리 시스템 구성을 위해서 활성탄(AC) → 제올라이트(zeolite) 공정과 제올라이트 → 활성탄 공정으로 칼럼의 순서를 바꿔서 7번의 반복 실험을 진행하였다. Fig. 2는 칼럼의 순서 변화에 따른 화학적 산소요구량(COD), 총 유기탄소(TOC), 총 질소(T-N) 제거 효율 결과를 보여주고 있다. 암모니아성 질소까지 포함된 T-N의 결과를 보면 활성탄 → 제올라이트 공정 조합에서는 평균 약 89.6%가 제거되었고, 제올라이트 → 활성탄 공정에서는 평균 80.4%가 처리되어 활성탄 → 제올라이트 공정 순서가 약 9.2% T-N 제거 효율을 향상시키는 결과를 확인하였고, TOC와 COD도 비슷한 경향을 보여주었다. 따라서 활성탄 → 제올라이트 순서에 의한 공정이 TOC, COD, TN의 처리 효율에 더 우수한 것을 확인하였다. 제올라이트를 이용한 암모늄 제거 능력은 증류수를 사용한 경우보다 수돗물을 사용했을 때 더 낮게 나타났다(Jorgensen *et al*. 1976). 즉 처리수 안에 다양한 유기오염물질들이 존재할수록 제올라이트 능력을 저하시키므로 활성탄 칼럼을 먼저 설치하여 제올라이트의 능력을 저하 시킬 수 있는 물질들을 사전에 제거하는 방법이, 전처리 공정의 효율성을 향상시키는 것으로 판단되다. 결과적으로, 전처리 공정의 최적 조합은 활성탄 → 제올라이트 공정으로 부유물질과 같은 유기오염물질을 먼저 제거하는 방법이 후단에 위치한 제올라이트의 흡착 성능에 영향을 주지 않는 것으로 판단된다.

3. 지하수 오염 복원 시스템을 이용한 오염물질 처리

3.1 총 유기탄소(Total organic carbon)

Fig. 1을 이용하여 침출수 오염 지하수를 처리하기 위한 실험을 연속식으로 수행하였다. TOC는 침출수 내 유기물 상태로 존재하는 탄소의 양으로서, 오염된 수질에서 많이 측정되며 샘플링한 지하수 원수의 TOC 값은 약 34.8~52.4

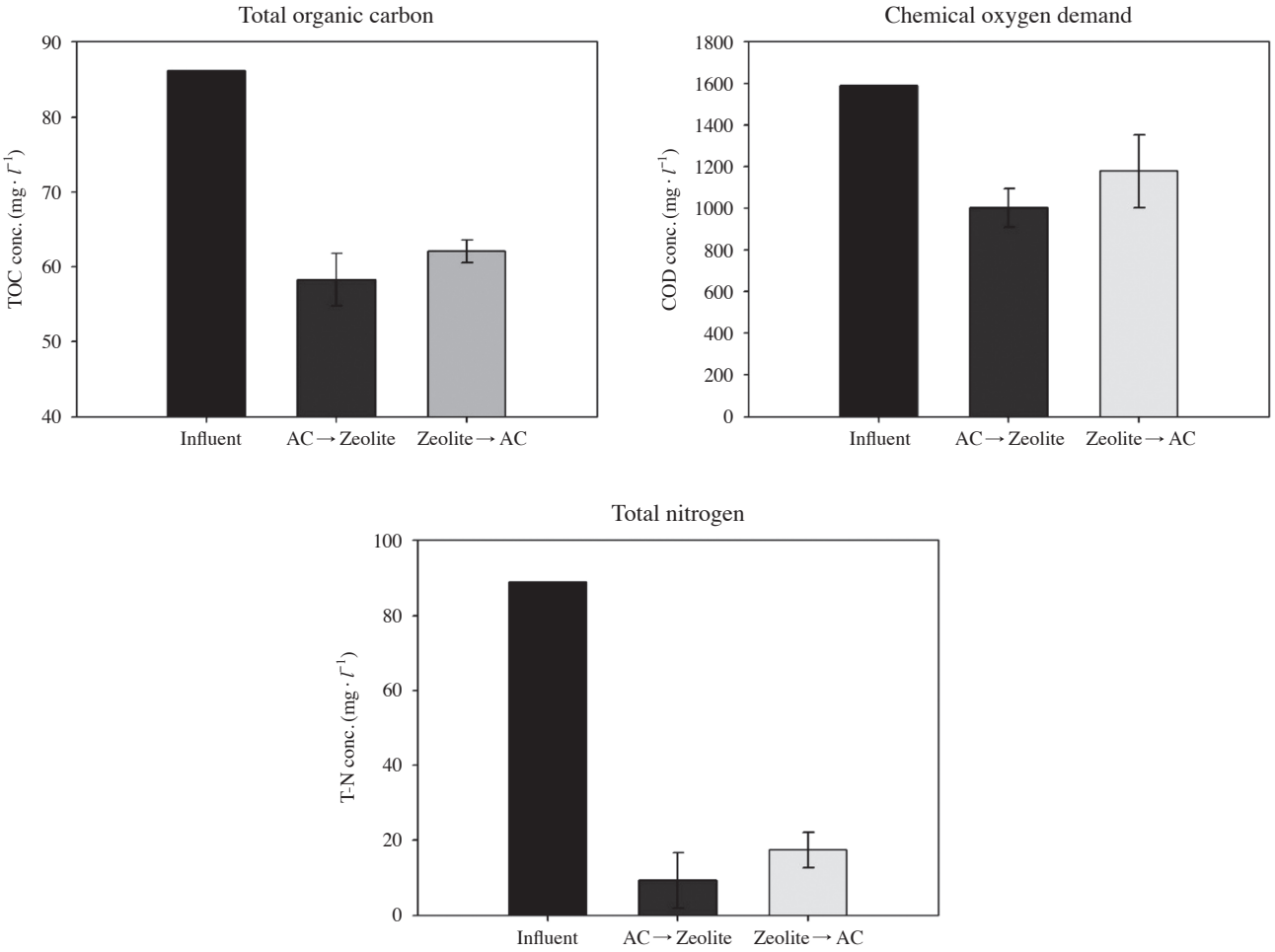

Fig. 2. Removal effect according to column order in pretreatment system.

$mg \cdot l^{-1}$의 범위를 나타냈다(Table 3). 이 농도는 주변 지하수의 TOC 농도보다 25배 이상 높은 결과였으며, 조영범 등(2014)이 보고한 하수처리시설 유입수의 TOC 농도인 40.5~64.7 $mg \cdot l^{-1}$의 농도와도 매우 유사한 농도를 보여주고 있다. 따라서 샘플링한 현장 지하수가 외부 오염원에 의해 오염이 되어 있을 가능성이 매우 높아 복원할 필요성이 있을 것으로 판단된다. 본 연구는 실험 전 하루 동안 침전을 실시하고 실험을 진행하였으며, Fig. 3은 지하수 복원 시스템에서 각 공정별로 TOC의 제거율을 보여주고 있다. 4번의 연속식 실험 결과 TOC의 경우 활성탄 칼럼에서 효과적으로 제거되는 것을 확인하였다. 1차 실험에서는 TOC 처리 효율이 약 72.1%였고, 2차 실험은 1차 실험 진행 후 활성탄을 역 세척 후 실험을 진행한 결과, 처리 효율은 약 71.9%를 나타내었다. 3차 실험은 새로 활성탄을 교체하여 실험을 진행하였고, 약 74.3%의 처리 효율을 나타냈다. 마지막으로 4차 실험에서도 활성탄을 새로 교체하였으며, 약 89.7%의 처리 효율을 나타냈다. 결과적으로 오염된 지하수 내 TOC는 활성탄 칼럼을 거치면서 평균 약 77%의 제거 효율을 나타냈다. 활성탄은 하수의 재이용을 위해 오염물질을 제거하는데 사용되는 대표적인 물질이며 일반적으로 오염 기체나 액체 내에 오염물질을 활성탄소 표면에 흡착시켜 제거하는 목적으로 많이 사용되며(Lee *et al*. 2007; Seon 2014), 따라서 TOC 또한 입자활성탄 표면에 흡착되어 제거되는 것으로 판단된다. Fig. 3에서 초기 농도가 낮게 측정된 것은 실험 진행 초반 지하수를 1차 처리수 저장조로 옮기는 과정에서 1차 저장조에 남아 있던 물과 섞여 희석됨에 따라 초기 농도가 낮게 측정되고 이후 점점 상승하는 경향을 보였다.

3.2 암모니아성 질소(Ammonia nitrogen)

암모니아성 질소는 가축 사체의 단백질이 분해가 진행됨에 따라 다량 발생한다. 현재 국내 지하수 음용수 기준에는 암모니아성 질소가 0.5 $mg \cdot l^{-1}$ 이하로 규정되어 있다(환경부 2009). 하지만 가축 매몰지 주변 지하수의 경우 침출수 유출로 인하여 암모니아성 질소의 농도가 증가하게 되고 실제 본 연구에서 샘플링한 지하수에서도 높은 농도의 암모니아성 질소가 검출되었다. 또한 한국농어촌공사 2011년 보고

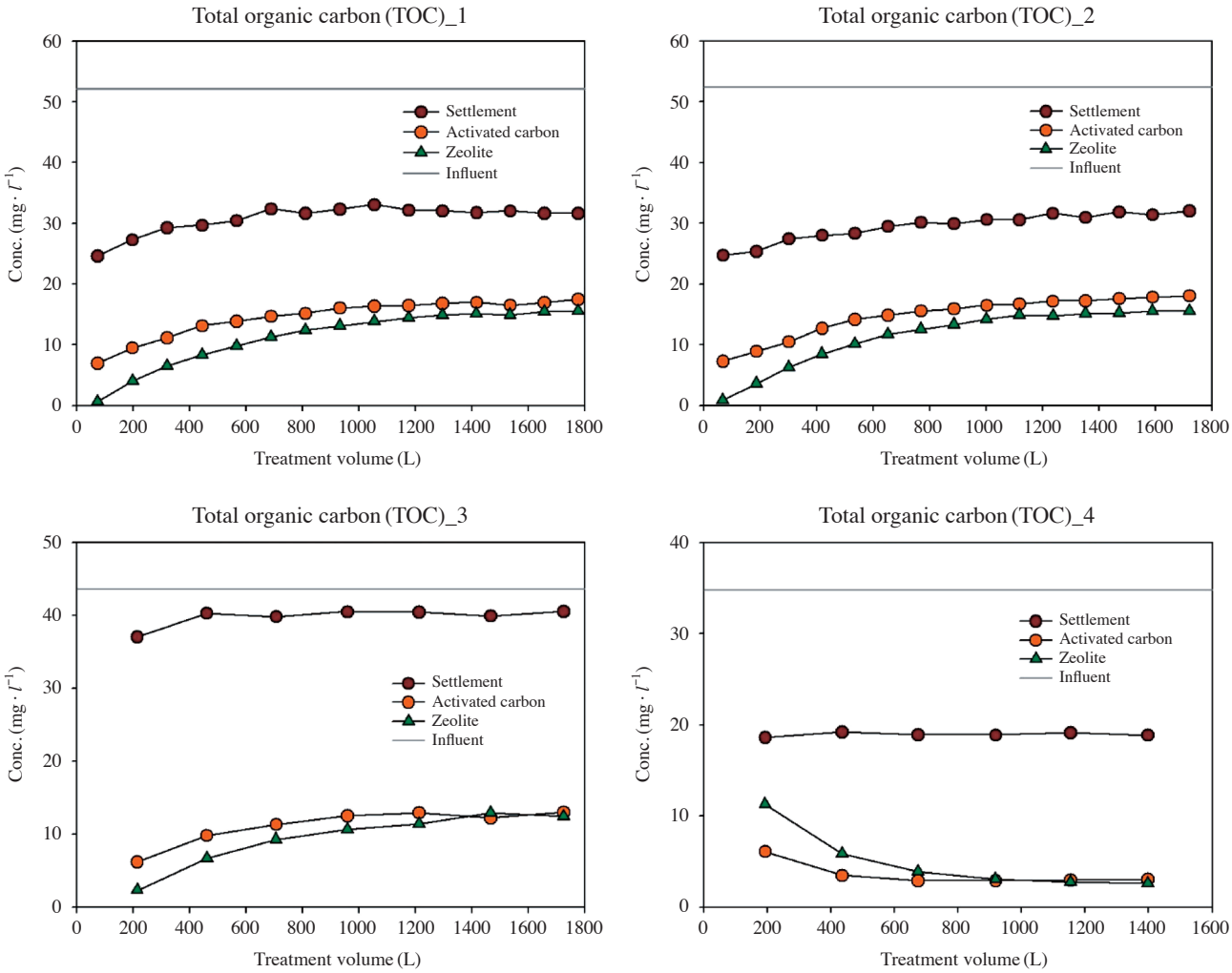

Fig. 3. Removal of total organic carbon (TOC).

서에 따르면 미국의 사례에서 가축매몰지 주변 지하수를 모니터링한 결과 암모니아성 질소의 농도가 기준을 초과하는 것을 보여주었는데, 이는 매몰지에서 유출된 침출수가 주변 지하수를 오염시킨 것으로 판단할 수 있다(최 등 2011). 따라서 암모니아성 질소를 제거하기 위하여 본 연구에서는 전처리 시스템 내 제올라이트 칼럼을 설치하여 암모니아성 질소 제거 효율 실험을 진행하였다(Fig. 4 참조). 실험 결과, 1차 실험에서는 처리 효율이 약 73.5%를 나타내었고, 2차 실험에서는 1차 실험 진행 후 제올라이트를 물로 세척한 후 실험을 진행한 결과 약 57.1%가 제거되었다. 이와 같이 효율이 낮아진 이유는 제올라이트를 세척하였으나 1차 실험으로 인해 흡착된 암모니아성 질소가 누적되어 제거 효율이 낮아진 것으로 판단된다. 따라서 3차 실험에서는 제올라이트를 새로 교체하여 실험을 진행하였고, 약 92.4%의 처리 효율을 나타냈다. 마지막으로 4차 실험 또한 제올라이트를 새로 교체하였으며, 약 99.3%의 제거가 되었다. 결과적으로 암모니아성 질소의 경우 제올라이트 칼럼에서 평균 약 80% 이상의 제거 효율을 나타냈다.

3.3 병원성 미생물

가축매몰지 침출수에는 대장균을 포함하여 살모넬라균, 캠필로박터균과 같은 많은 병원성 미생물이 존재하고 있다(Choi *et al*. 2013; 심 2016). 이러한 균들은 매몰지 주변 지하수로 유출되어 오염시키고, 사람이 섭취하였을 때 감염성 질환이 발생할 가능성이 크다고 알려져 있다. 본 연구에서는 지하수 내 병원성 미생물인 총대장균군과 살모넬라 등을 처리하기 위하여 이동형 전자선 가속기를 이용하였고, 제거 효율은 Table 4에 나타내었다. 결과적으로, 2 kGy의 흡수선량에서 모든 미생물이 검출되지 않았고 이는 전자선 가속기가 미생물의 살균 효과에 매우 우수한 성능을 보여주는 것을 확인하였다. 전자선 가속기는 물의 이온화 반응에 의해서 생성되는 hydroxyl-radicals (•OH), hydrogen peroxide (H_2O_2), superoxide radical (O_2^-), hydrated electrons (e^-_{eq}) 등과 같은 라디칼 등을 생성하고(Mezyk *et al*. 2007), 이러한

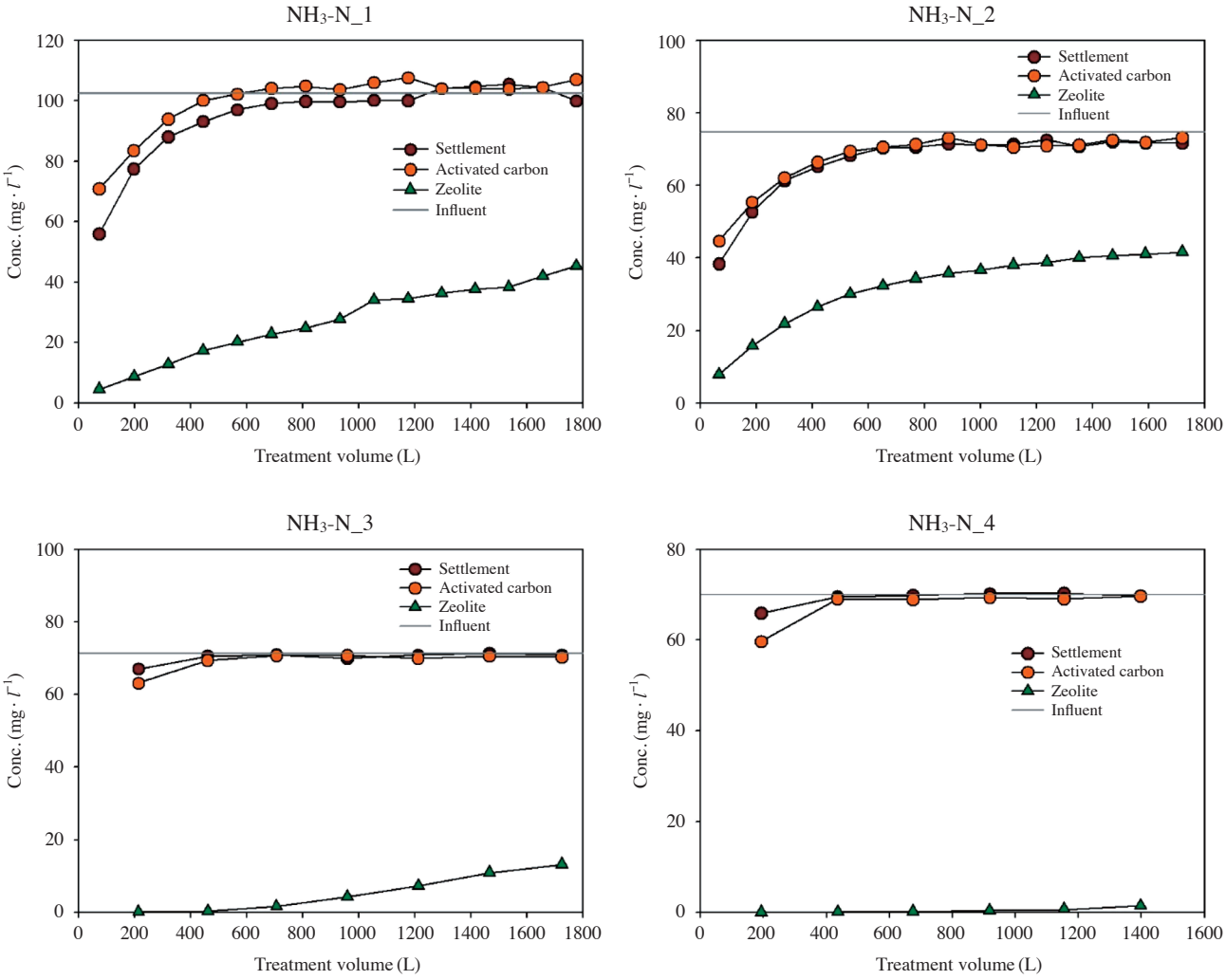

Fig. 4. Removal of ammonia nitrogen (NH_3-N).

Table 4. Sterilization of microorganisms using mobile electron beam process

($CFU \cdot ml^{-1}$)	Total coliforms	Salmonella
Influent (raw water)	12,000	163,000,000
Electron beam (2 kGy)	N.D	N.D

라디칼들은 미생물의 세포에 영향을 주어 미생물이 살균이 되고 UV보다 계절적인 영향을 덜 받는다(Lee *et al*. 2015). 따라서 이동형 전자선 가속기는 이러한 라디칼 생성에 매우 우수한 기술로 가축매몰지 침출수에 오염된 지하수의 현장 복원에 적합한 기술로 판단된다.

결 론

가축매몰지 침출수에 오염된 토양 지하수의 복원은 필수적으로 현장 복원 기술이 필요하지만 현재 국내에서는 기술 개발이 거의 연구가 진행되어 있지 않고, 2차 환경 오염을 방지하고 인간과 가축의 안전을 위해서는 복원 기술 연구가 필요한 상황이다. 따라서 가축매몰지 침출수로 오염된 지하수 복원을 위한 새로운 공정의 제시가 필요하여 본 연구에서는 전처리 시스템과 이동형 전자선 가속기로 구성된 시스템을 구축하였고, 개발된 공정의 처리 효율을 확인하고자 가축 매몰지에 오염된 현장 지하수를 이용하여 처리한 연구 결과는 다음과 같다.

- 샘플링한 현장 지하수의 NRN, 암모니아성 질소, TOC 농도는 주변 지하수보다 매우 높게 측정되어 침출수에 의해 오염이 된 것으로 판단된다.
- 전처리 공정의 최적 조합은 활성탄 → 제올라이트 공정으로 부유물질과 같은 유기오염물질을 먼저 제거하는 방법이 후단에 위치한 제올라이트의 흡착 성능에 영향을 주지 않는 것으로 판단된다.

– 전처리 공정과 이동형 전자선 가속기를 이용한 연속식 실험은 활성탄 칼럼 공정을 통해 총 유기탄소의 농도를 평균 약 77% 제거하는 효과를 확인하였고, 제올라이트 공정에서는 암모니아성 질소를 약 80% 이상 처리하였다. 하지만 암모니아성 질소의 누적 처리용량이 증가함에 따라 효율이 감소하는 것을 확인할 수 있었다. 이는 제올라이트의 재생 및 교체 주기를 판단할 수 있는 지표로 사용될 수 있을 것으로 판단된다.
– 이동형 전자선 가속기 2 kGy에서 지하수 내 병원성 미생물이 99% 살균이 되었고, 이는 전자선 가속기가 지하수 살균에 효과적인 것으로 판단된다.

결과적으로, 본 연구에서 개발된 이동형 전자빔 시스템을 이용한 지하수 복원 공정은 가축 매몰지 침출수로 오염된 지하수를 복원하는 데 매우 효과적임을 확인하였다.

사 사

본 연구는 한국원자력연구원 주요사업의 지원을 받아 수행된 연구입니다.

참 고 문 헌

김기헌, 박재성, 류지연, 김삼권, 손준인, 정해영. 2011. 가축 매몰지 침출수 소각처리 방안 연구. 국립환경과학원.

노재성, 홍성수, 강 호. 1990. 국산 천연제올라이트에 의한 폐수중의 암모늄이온 제거를 위한 기초연구. 대한환경공학회지 **12**:1031-1038.

심보미. 2016. Monitoring of pathogenic microorganisms using quantitative real time PCR analysis in leachate from lysimeter and groundwater from livestock carcass burial sites. Master. 고려대학교.

유승호. 2013. Ninhydrin을 이용한 가축매몰지 침출수 유출 판별 기술 개발. 한국원자력연구원.

정영철, 안상우, 민지은, 박재우. 2012. 가축매몰지 침출수 처리를 위한 응집제 선정 및 최적조건 도출. 한국지반환경공학회 학술발표회논문집: 91-94.

조영범, 오용걸, 신동철, 박철휘. 2014. 하수처리시설 총 유기탄소 분포 및 유기물질간 상관관계 분석. 한국환경분석학회지 **17**:207-214.

최광준, 최종학, 송성호, 엄재연, 김영인, 양기창. 2011. 긴급 살처분 매몰지 침출수에 의한 오염지하수 확산방지 연구. 한국농어촌공사 농어촌연구원.

허인량, 김계월, 최금종, 이택수. 2014. 구제역 가축매몰지 인근 지하수 관측정 수질 모니터링. 한국환경보건학회지 **40**: 47-54.

홍지숙, 임헌성, 서정권, 노재성. 2001. 천연 제올라이트의 이온교환 특성을 이용한 NH_4(+)-N 이온 제거에 관한 연구. *J. Ind. Eng. Chem.* **12**:165-169.

환경부. 2009. 지하수 수질기준과 해설.

Atkins Jr P and Scherger D. 1977. Review of physical chemical methods for nitrogen removal from wastewaters. Progress in water technology.

Booker N, Cooney E and Priestley A. 1996. Ammonia removal from sewage using natural Australian zeolite. *Water Sci. Technol.* **34**:17-24.

Bradford MM. 1976. A rapid and sensitive method for the quantitation of microgram quantities of protein utilizing the principle of protein-dye binding. *Anal. Biochem.* **72**:248-254.

Cha SM. 2015. Physico-Chemical Changes of Leachate During the Decomposition of Livestock in Burial sites. Environmental Engineerging. Master. 전북대학교.

Choi N-C, Choi E-J, Kim B-J, Park J-A, Kim S-B and Park C-Y. 2013. Characterization of water quality and bacteria of leachate from animal carcass disposal on the disposal lapse time. *Econ. Environ. Geol.* **46**:345-350.

Dent BB, Forbes SL and Stuart BH. 2004. Review of human decomposition processes in soil. *Environ. Geol.* **45**:576-585.

Groeber MM. 1991. Granular Activated Carbon Treatment: US Environmental Protection Agency, Office of Emergency and Remedial Response.

Jorgensen S, Libor O, Graber KL and Barkacs K. 1976. Ammonia removal by use of clinoptilolite. *Water Res.* **10**:213-224.

Jorgensen T and Weatherley L. 2003. Ammonia removal from wastewater by ion exchange in the presence of organic contaminants. *Water Res.* **37**:1723-1728.

Kang M-A, Kim M-S, Choi B-W and Sohn H-Y. 2012. Organic matter analysis and physicochemical properties of leachate from a foot-and-mouth disease landfill site. *Microbiol. Biotechnol. Lett.* **40**:128-134.

Kim D, Yu S, Chang S and Lee J. 2014. Ecotoxicity assessment of leachate from disposal site for foot-and-mouth disease carcasses. *J. Korea Geo-Environ. Soc.* **15**:5-11.

Kim K-H, Kim K-R, Kim H-S, Lee G-T and Lee K-H. 2010. Assessment of soil and groundwater contamination at two animal carcass disposal sites. *Korean J. Soil Sci. Fertil.* **43**: 384-389.

Lee C-J, Kim D-Y and Kim B-S. 2007. Study of anti-bacterial properties for impregnated activated carbon by silver nanoparticles. *Appl. Chem. Eng.* **18**:396-399.

Lee HS, Yoon TI and Kim CG. 2001. The effect of clinoptilolite addition on nitrification in activated sludge process. *Korean J. Chem. Eng.* **39**:488-492.

Lee O-M, Kim HY, Park W, Kim T-H and Yu S. 2015. A comparative study of disinfection efficiency and regrowth con-

trol of microorganism in secondary wastewater effluent using UV, ozone, and ionizing irradiation process. *J. Hazard. Mater.* **295**:201-208.

Lee S-H, Lee J-H, Kim D-G, Lee C-S, Kang K-S and Kim I-H. 2008. Simultaneous removal of ammonium and nitrate by natural zeolite and bacteria. *Korean Chem. Eng. Res.* **46**: 971-976.

Mezyk SP, Neubauer TJ, Cooper WJ and Peller JR. 2007. Free-radical-induced oxidative and reductive degradation of sulfa drugs in water: absolute kinetics and efficiencies of hydroxyl radical and hydrated electron reactions. *J. Phys. Chem. A* **111**:9019-9024.

Nam Y-H, An S-W, Jung M-S and Park J-W. 2012. Nitrogen budgets of agriculture and livestock in South Korea at 2010. *J. Korean Soc. Environ. Eng.* **34**:204-213.

Pratt DL. 2009. Environmental impact of livestock mortalities burial.

Seon Y-H. 2014. A study on the characteristics of pollutant removal in secondary effluent from wastewater treatment plant using silver nanoparticles on activated carbon. *Korean Soc. Biotechnol. Bioeng. J.* **29**:353-360.

Van Belle LE, Carter DO and Forbes SL. 2009. Measurement of ninhydrin reactive nitrogen influx into gravesoil during aboveground and belowground carcass (Sus domesticus) decomposition. *Forensic Sci. Int.* **193**:37-41.

Yoo HS. 2011. Foot and mouth disease: etiology, epidemiology and control measures. *Infect. Chemother.* **43**:178-185.

Received: 1 September 2017
Revised: 13 October 2017
Revision accepted: 18 November 2017