

## 가스상 TCE 처리를 위한 추출막 생물반응기의 수학적 모사

김지석, 김관수, 장덕진

명지대학교 청정기술원 및 환경·생물공학과

전화 (0335) 330-6340, FAX (0335) 337-2902

### Abstract

In this work, an extractive membrane bioreactor containing culture broth of *Burkholderia cepacia* G4 PR1 constitutively expressing the TCE-degrading enzyme, tolune-ortho-monooxygenase(TOM), was used for the degradation of TCE. The membrane bioreactor operates by separating the TCE-containing waste gas from the aerated biomedium, by which the air-stripping of TCE without degradation was overcome that could occur in conventional aerobic biological treatments of TCE-contaminated waste gases. This was achieved by a silicone rubber membrane which was coiled around a perspex draft tube. TCE from the gas phase diffuses across the silicone rubber membrane into microbial culture broth that was continuously fed from a separate aerobic CSTR. Therefore, TCE degradation occurred without the TCE being directly exposed to the aerating gas stream. Of the TCE supplied to the membrane bioreactor, 72.6 % was biodegraded during the operation of this system. To construct a mathematical model for this system, parameters describing microbial growth kinetics on TCE were determined using a CSTR bioreactor. Else parameters used for numerical simulation were determined from either independent experiments or values reported in the literature. The model was compared with the experimental data, and there was a good agreement between the predicted and the measured TCE concentrations in the system. To achieve a higher treatment efficiency, various operating conditions were simulated as well.

### 서론

토양이나 지하수 등에 많이 분포하는 VOC화합물질을 처리하기 위해서 과거에는 화학적 처리가 많은 관심을 끌었으나, 최근에는 보다 경제적이며 오염물질의 광물화가 가능한 생물학적 처리가 많은 관심을 끌고 있다. 휘발성이 강한 오염물질의 초기적 처리를 위해서는, 오염물질이 미생물의 배양을 위해서 공급하는 공기에 의해 탈기되지 않아야 하며, 이것은 biofilter나 추출막생물반응기(extractive membrane bioreactor)를 사용함으로써 가능하다. 본 연구에서는 추출막 생물반응기를 이용하여 VOC의 일종으로서 환경적으로 매우 유해한 trichloroethylene(TCE)를 생물학적으로 처리하였으며 toluene과 같은 유해하고 휘발성이 강한 inducer의 사용을 피하기 위하여 toluene-ortho-monooxygenase(TOM)을 항시 발현하는 *Burkholderia cepacia* G4 PR1을 TCE의 분해 균주로 사용하였다. 이 system을 해석하기 위하여 수학적 model을 개발하였으며, 모사 결과를 실험결과와 비교하고, 또한 TCE의 처리 효율을 향상시키기 위하여 여러 가지 가동변수를 변화시켜 computer simulation 하였다.

## 이론 및 방법

추출막생물반응기. 본 연구에서 사용한 추출막 생물반응기의 형태는 Fig. 1과 같다. 추출막생물반응기의 모델링. 본 연구에서는 추출막생물반응기를 묘사하는 수학적 모델을 개발하기 위하여 다음과 같이 가정하였다.

- 1) 비정상상태의 등온공정이다.
- 2) 추출막 생물반응기내에서는 오염물질을 제외한 다른 제한적인 반응물은 없다.
- 3) 추출막 생물반응기는 연속교반탱크 반응기로 간주한다.
- 4) 추출막 생물반응기내에서 오염물의 분해에 Michaelis-Menten 동력학적 모델을 적용하고 분해 반응을 1차 반응으로 간주한다.
- 5) 일정한 동역학적인 상수를 적용하기 위하여 반응기내에서의 biomass의 증가는 없고 일정하게 유지된다.

전술된 가정을 이용하여 액상과 기상의 물질수지식을 세우면 다음과 같다.

$$V_g \frac{dC_g}{dt} = C_{g,in}U_g - \frac{dC_{g,trans}}{dt} V_g - C_{g,out}U_g \quad (1)$$

$$V_l \frac{dC_l}{dt} = \frac{dC_{l,trans}}{dt} V_l - \frac{V_{max}S}{K_m} C_l V_l - C_{l,out}U_l \quad (2)$$

여기서  $\frac{dC_{g,trans}}{dt}$  과  $\frac{dC_{l,trans}}{dt}$  는 물질전달되는 속도이므로 다음과 같은 관계가 성립한다.

$$\frac{dC_{g,trans}}{dt} = k_g a (C_g - C_l) \quad (3)$$

$$\frac{dC_{l,trans}}{dt} = k_l a (C_g - C_l) \quad (4)$$

또한 이 반응기는 연속교반탱크 반응기이므로 반응기 내부의 농도와 배출되는 농도는 같다.

$$C_g = C_{g,out} \quad (5)$$

$$C_l = C_{l,out} \quad (6)$$

결과적으로 위 식들을 정리하면 다음과 같다.

$$V_g \frac{dC_g}{dt} = C_{g,in}U_g - (k_g a V_g + U_g)C_g + k_g a V_g C_l \quad (7)$$

$$V_l \frac{dC_l}{dt} = k_l a V_l C_g - (k_l a V_l + \frac{V_{max}S}{K_m} V_l + U_l)C_l \quad (8)$$

위 두 식을 4차 Runge-Kutta를 이용하여 simulation하였다. simulation에 필요한 parameter들은  $C_{g,in}$ ,  $U_g$ ,  $U_l$ ,  $k_g$ ,  $k_l$ ,  $K_m$ ,  $V_g$ ,  $V_l$ ,  $V_{max}$  및  $S$ 는 각각  $29400 \text{ mg/m}^3$ ,  $0.5 \times 10^{-4} \text{ m}^3/\text{min}$ ,  $4.33 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{min}$ ,  $2.337 \times 10^{-2} \text{ m/min}$ ,  $1.7876 \times 10^{-5} \text{ m/min}$ ,  $7.899 \times 10^{-2} \text{ mol/m}^3$ ,  $6.28 \times 10^{-5} \text{ m}^3$ ,  $1.29525 \times 10^{-3} \text{ m}^3$ ,  $9.63 \times 10^{-9} \text{ mol/min} \cdot \text{mg protein}$  및  $552 \text{ mg protein/m}^3$ 이다. 여기서  $k_g$ 과  $k_l$ 는 Chen-Othmer의 경험식에서  $D_g$ 와 Wilke-chang의 경험식에서  $D_l$ 을 구한 후, 그 각각의 값과  $k_g$ 와  $k_l$ 의 상관식을 이용하여 구하였고<sup>1-3)</sup>, 나머지 parameter들은 실험에 의해서 구하였다.

## 결과 및 고찰

Fig 1에서 보여준 추출막생물반응기에서 TCE가 처리된 결과는 Fig. 2와 같다. 이때의 *B. capacia* G4 PR1의 연속배양은 회석속도  $0.13\text{hr}^{-1}$ 에서 이루어 졌으며, 배양액이 추출막 생물반응기 모듈로 유입되는 속도는  $4.33\text{ mL/min}$ , membrane(silicone tubing)내로 유입되는 기상(공기)의 유속은  $50\text{mL/min}$ , 그리고 공기에 실려가는 TCE의 공급속도는  $1\text{ }\mu\text{L/min}$  이었다. 모델에 대한 simulation 결과는 Fig.3(400 min까지의 결과)과 Fig.4(3,000 min까지의 결과)에 나타나 있다. 실험에서는 액상과 기상의 배출농도가 지속적으로 증가하였으나 Fig. 4에서 보는 바와 같이 가동시간을 늘렸을 경우 정상상태에 도달하는 것을 알 수 있었고, 이때 소요되는 시간은 약 800분 정도이고 정상상태에서의 기상과 액상의 출구 농도는 약 5300과 4200  $\text{mg/m}^3$ 임을 알 수 있었다. Fig.2와 Fig.3 사이에는 6.67% 정도의 차이가 있는데 그 이유는 모델에서 물질전달에 관계되는 membrane에 대한 영향이 명확하게 표현되어 있지 않고 액상과 기상에 대한 물질전달 항이 그 부분을 포함하고 있기 때문이라 분석되나, 오차의 크기가 미미하므로 무시될 수 있는 것으로 판단하였다. 가동 효율을 증가시키기 위하여 분해가 일어나는 반응기의 부피, 즉 액상의 부피를 변화시킨 결과, membrane의 증가 없이 부피를 증가시키면 액상 및 기상의 배출농도가 오히려 증가하였고(Fig.5), 반대로 액상의 부피를 감소시키면 가동 효율이 개선되었다(Fig.6). 또한 액상과 기상 사이의 TCE 물질전달속도를 증가시키기 위하여 membrane의 비표면적의 변화를 주었을 때는 가동 효율에 큰 변화는 야기되지 않았으나, 비표면적의 증가(Fig.7)된 경우가 감소된 경우(Fig.8) 보다 우수함을 알 수 있었다. 이는 membrane의 비표면적을 증가시키고 동시에 액상 부피를 줄였을 때 처리 효율이 증가될 수 있음을 암시하는 것으로서, 이를 모사해본 결과(Fig. 9, 10), 예상과 일치하였다. 이 결과를 추출막생물 반응기의 설계에 응용한다면, 되도록 넓은 면적의 membrane을 설치하고 액상의 부피는 가능한 한 감소시키는 형태가 될 것으로 사료된다.

## 사사

본 연구는 학술진흥재단 과학기술기초중점연구사업(1998-020-E00044) 및 BK21 사업의 도움으로 수행되었기에 이에 감사드립니다.

## 참고문헌

1. W. L. McCabe, J. C. Smith, P. Harriott, (1993) "Unit Operations of Chemical Engineering", McGraw-Hill, pp655-662.
2. S.-F. Zhang, A. Splendiani, L. M. Freitas dos Santos, A. G. Livingston, (1998) "Determination of Pollutant Diffusion Coefficients in Naturally Formed Biofilms Using a Single Tube Extractive Membrane Bioreactor"(1998), Biotechnol. Bioeng., 59, 80-89.
3. M. G. Parvatiyar, R. Govind, and D. F. Bishop, (1996) "Treatment of Trichloroethylene (TCE) in a Membrane Bioreactor", Biotechnol. Bioeng., 50, 57-64.

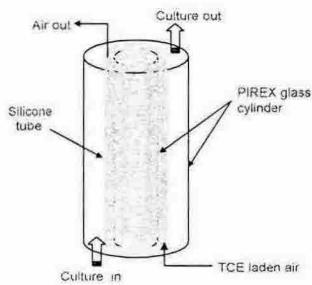


Fig. 1. Extractive membrane bioreactor.

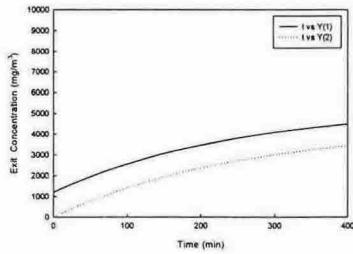


Fig. 2. Experimental results.

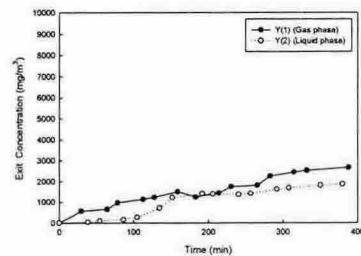


Fig. 3. Simulation results for 400min of operation.

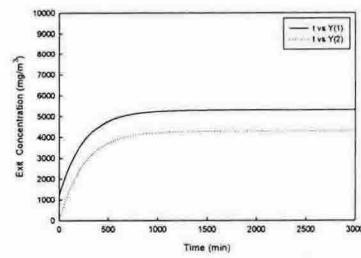


Fig. 4. Simulation results for 400min of operation.

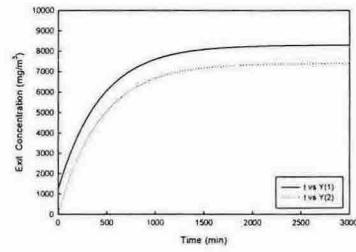


Fig. 5. Simulation for a bigger( $2\times$ ) liquid volume.

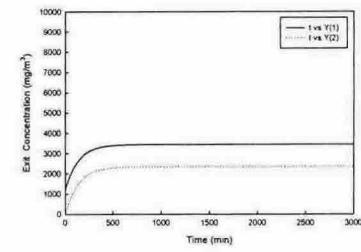


Fig. 6. Simulation for a reduced( $\frac{1}{2}\times$ ) liquid volume.

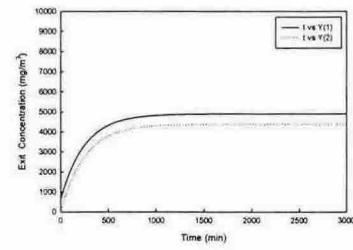


Fig. 7. Simulation for an increased( $2\times$ ) specific area of the membrane.

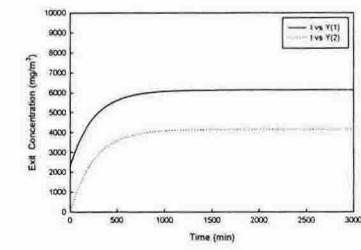


Fig. 8. Simulation for a reduced( $\frac{1}{2}\times$ ) specific area of the membrane.

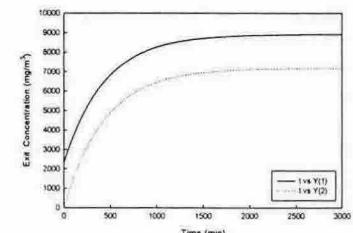


Fig. 9. Simulation for combined conditions.  
(liquid vol.: $2\times$ , specific area: $\frac{1}{2}\times$ )

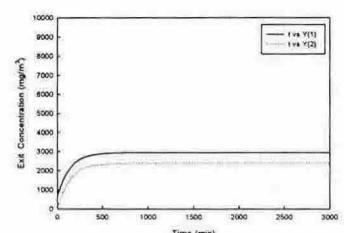


Fig. 10. Simulation for combined conditions.  
(liquid vol.: $\frac{1}{2}\times$ , specific area:2×)