

혼합균주를 함유한 유동층 생물반응기를 이용한 벤젠의 제거

주 준 걸 · 김 연 재 · 조 성 기 · ¹오 광 중 · ²김 종 우 · † 김 동 육
인제대학교 제약공학과, ¹부산대학교 환경공학과, ²한국 United제약
(접수 : 2004. 2. 21., 게재승인 : 2004. 6. 24.)

Removal of Benzene by the Fluidized Bed Bioreactor including Microbial Consortium

Jun Goul Ju, Yeon Jae Kim, Sung Ki Cho, Kwang Joong Oh¹, Chong-Woo Kim², and Donguk Kim†
Department of Pharmaceutical Engineering, Inje University, Gimhae, Gyongnam 621-749, Korea
¹Department of Environmental Engineering, Pusan National University, Pusan 609-735, Korea
²Korea United Pharm, Nojang-Ri, Jeondong-Myeon, Yeongi-Kun, Chungnam 339-841, Korea
(Received : 2004. 2. 21., Accepted : 2004. 6. 24.)

MY microbial consortium were obtained from sludges of wastewater to degrade benzene effectively and *Rhodococcus ruber* DSM 43338T was identified as major microorganism. The fluidized bed biofilter including MY microbial consortium showed critical removal rate of benzene at 32 g/m³ h, and maintained stable removal efficiency for 17 days of continuous operation.

Key Words : Benzene, fluidized bed bioreactor, microbial consortium, removal efficiency, inlet loading rate

서 론

벤젠은 유기용매로서 페인트, 고분자 등의 제조에 널리 쓰이고 있으나 독성이 강하여 미국 EPA에서는 priority pollutant로 지정되어 있다(1). 조업중 액상 또는 기상의 벤젠이 처리되지 않고 외부로 방출될 경우 벤젠은 다른 유기물에 비해 물에 대한 용해도가 아주 높아서 지하수, 하천 등을 쉽게 오염시킬 수 있다(2).

기상의 벤젠 제거에는 biofilter가 널리 사용되고 있다(3). 그러나 biofilter의 사용시 벤젠의 임계부하량은 다른 VOC류보다 매우 낮은 것으로 알려져 있다(4). 그 원인 중에는 biofilter에서는 충분한 수분이 공급되지 않아 벤젠의 용해가 불충분한 것에도 기인한다. 이에 비해 유동층생물반응기는 수분의 공급이 충분하고, 담체가 유동화되므로 인해 용액의 혼합이 원활하며, 장기간 가동시 biofilter의 단점인 막힘현상을 근본적으로 해결할 수 있는 장점으로 인해 다양한 악취, VOC의 처리에 응용하기 위한 연구가 활발하다(5, 6).

벤젠을 제거하기 위한 균주로는 단일균주를 사용하는 방법과 활성슬러지와 같은 혼합균주를 이용하는 방법이 있다. 벤

젠을 분해하는 균주로는 *Pseudomonas putida*(7), *Alcaligenes xylosoxidans*(8) 등이 알려져 있다. 그러나 일반적으로 생물반응기는 장기간 가동시 다양한 외부환경에 노출되어야 하는 관계로 접종미생물이 반응기내에서 장기간 생존한다는 것은 불투명하다(9). 이에 대한 대안으로서 VOC가 배출되는 것으로 예상되는 지점에서 활성슬러지를 채취하여 실험실에서 VOC에 적응시킨 혼합균주가 활발히 사용되고 있다(10, 11).

따라서 본 연구에서는 벤젠에 장기간 적응시킨 혼합균주를 함유한 유동층생물반응기를 이용하여 반응기의 벤젠분해능을 측정하고, 연속조업에서의 안정성을 조사하고자 한다.

재료 및 방법

균주

벤젠을 분해하는 균주를 획득하기 위해 부산, 김해, 양산, 울산 등의 공장 및 도시하수에서 슬러지를 채취하여 Table 1의 기본배지에서 3개월간 배양하였다. 배양 후 silicon rubber septum이 부착된 medium bottle에 500 mg/L의 벤젠이 함유된 50 mL의 배지를 넣고 배양된 혼합균주 1 ml를 주입한 후 일정시간 동안 용액의 흡광도를 600 nm에서 측정하였다. 혼합균주는 pH 7.0, 30°C에서 가장 빠른 분해속도를 보여주었다.

배양액 중 벤젠의 농도변화는 동일농도의 플라스크를 여러 개 준비한 후 일정 시간 간격으로 배양액 10 ml를 채취하여

† Corresponding Author : Department of Pharmaceutical Engineering, Inje University, Gimhae 621-749, Korea
Tel : +82-55-320-3396, Fax : +82-55-327-4955
E-mail : pedkim@inje.ac.kr

0.45 μm 멤브레인 실린지 여과기 (Osmonics Inc.)를 통과시킨 액을 분석용액으로 사용하였으며 10 μl 액상 분석용 실린지를 이용, GC에 주입하여 분석하였다.

Table 1. Cell medium for benzene degrading microbial consortium

Composition	Amount (g/L)
MgSO ₄ 7H ₂ O	0.5
K ₂ HPO ₄	0.5
(NH ₄) ₂ SO ₄	0.5
CaCl ₂	0.01
FeCl ₃ 6H ₂ O	0.001
MnCl ₂	0.001
ZnSO ₄	0.0001
Benzene	0.5
Distilled water	1000 mL

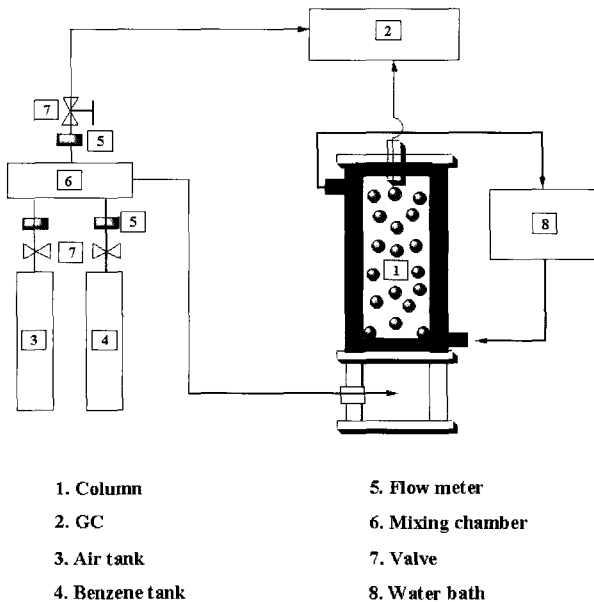


Figure 1. The schematic diagram of the fluidized bed bioreactor.

유동층생물반응기

본 연구에서 사용한 유동층생물반응기가 Fig. 1에 나타나 있다. 반응기는 내경 4 cm, 높이 150 cm로 제작되었으며 반응기내 액상의 높이는 86 cm, 용액의 부피는 1,000 ml, 담체의 질량은 64g이었다. 담체는 바이오샌드 (정우아트시스템)를 사용하였으며, 바이오샌드는 15% SiO₂ 와 85% H₂O로 구성되어 있고, 직경 2.0-3.0 mm, 밀도 1.27 g/cm³, 비표면적 539 m²/g인 다공성물질이다. MY혼합균주는 담체와 함께 플라스크 배양된 후 반응기에 주입되었다. 반응기는 내부를 관찰하기 위하여 투명한 아크릴 원통관으로 제작하였으며, 온도를 유지하기 위하여 반응기를 2중으로 하여 water jacket을 설치하고 물을 순환시켜 반응기의 온도를 30℃로 유지하였다.

벤젠은 가스탱크에서 나와 가스혼합조에서 공기와 희석

된 후 적절한 농도와 유량으로 반응기의 하단부로 주입된다. 벤젠가스는 반응기내 담체인 biosand를 유동화시키면서 액상에 녹아 미생물에 의해 분해된다. 반응기내 혼합균주의 건조균체농도는 2.4 mg dry cells/mL solution을 유지하였다.

벤젠의 농도분석을 위해 Quadrex 007-cw (0.25 mm) column과 pulse discharge detector (Valco Instrument Co., USA)가 장착된 gas chromatograph (DS 6200, 도남인스트루먼트)를 사용하였다. GC의 이동상으로 8 mL/min의 99.999 % He을 사용하였고, split ratio 1 : 20, oven의 초기 온도는 60℃에서 2.5분간 유지하고 20℃/min으로 150℃까지 상승시켜 측정하였으며, detector온도는 250℃, injector는 60℃를 유지하였다.

본 연구에서 사용한 처리효율 (removal efficiency)과 부하량 (inlet loading rate)은 다음과 같이 정의되었다;

$$\text{처리효율 (removal efficiency)} = \frac{C_{in} - C_{out}}{C_{in}} \times 100 [\%]$$

$$\text{부하량 (inlet loading rate)} = \frac{C_{in} \cdot Q}{V} [g/m^3h]$$

결과 및 고찰

벤젠에 3개월간 적응시킨 MA, MD, MH 및 MY 혼합균주를 1 ml씩 취하여 500 mg/L의 벤젠을 함유한 50 ml의 플라스크 배지에 주입하였을 때 시간에 대한 흡광도의 변화가 Fig. 2에 나타나 있다. MY혼합균주가 가장 빠른 균성장을 보여주었으며 MD, MH 혼합균주는 벤젠을 사용하여 거의 성장하지 못하였다. MY혼합균주의 우점 미생물은 (주)MicroID의 동정결과 *Rhodococcus ruber* DSM 43338T로 밝혀졌다. 벤젠의 농도변화에 대한 MY혼합균주의 분해도가 Fig. 3에 나타나 있다. 초기 주입농도가 높을수록 분해시간은 길었으나 530 mg/L의 고농도 벤젠도 50시간 동안에 완전히 제거되었다.

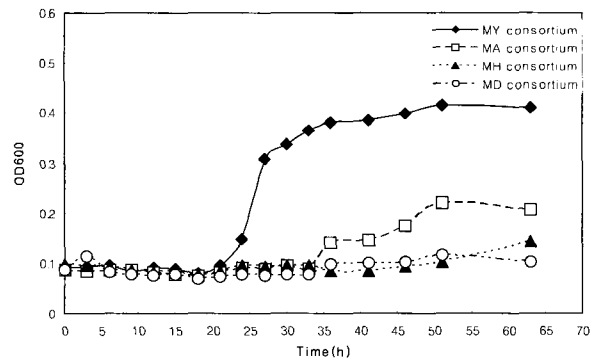


Figure 2. Absorbance of MA, MD, MH and MY microbial consortium in cell medium including 500 mg/L benzene.

MY혼합균주를 함유한 유동층생물반응기의 유입부하량에 대한 벤젠제거효율이 Fig. 4에 나타나 있다. 유입성분을

100% 제거하는 임계제거율 (critical removal rate)은 32 g/m³ h 으로 나타났다. 본 연구의 결과는 Johnson 등(4)에 의한 compost 함유 biofilter를 이용한 벤젠제거 시 얻어진 1 g benzene/m³ h의 임계제거효율, 8 g benzene/m³ h의 최대제거능 (maximum elimination capacity)과 Eitner 등(3, 12)에 의한 compost/perlite 함유 biofilter를 이용한 벤젠제거 시 얻어진 23 g benzene/m³ h의 최대 제거능에 비해서도 아주 우수함을 알 수 있다.

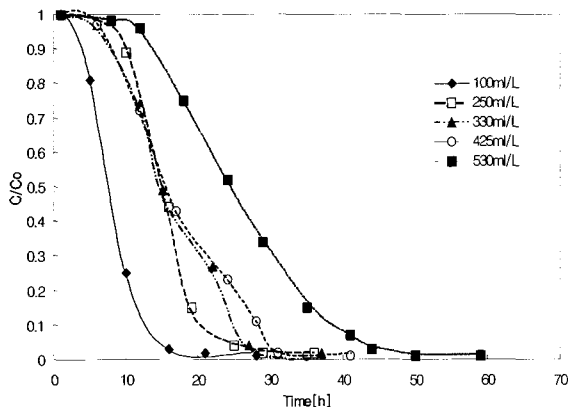


Figure 3. Biodegradation of the benzene by MY microbial consortium (1.8 mg dry cell weight/ml solution).

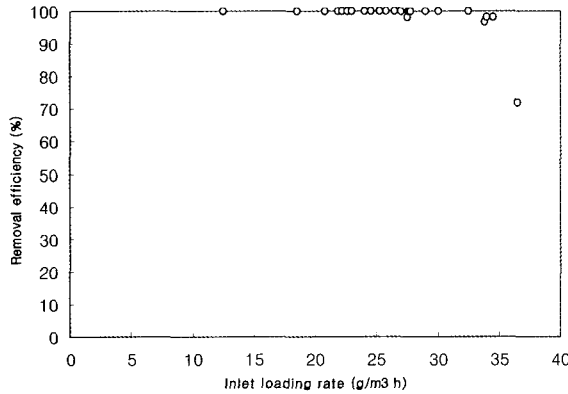


Figure 4. The removal efficiency of benzene for the inlet loading rate by the fluidized bed bioreactor.

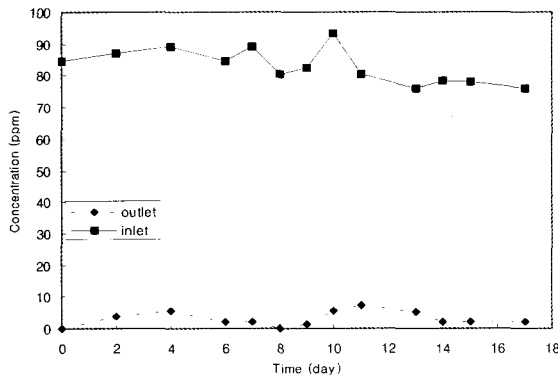


Figure 5. Inlet and outlet concentration of benzene in a continuous operation by the fluidized bed bioreactor.

유동층 생물반응기를 이용하여 벤젠을 17일간 연속처리할 경우 벤젠의 농도변화가 Fig. 5에 나타나 있다. 벤젠의 주입 농도는 76-93 ppmv, 유량은 78 L/h이었으며, pH 7, 온도 30℃의 조건에서 운전되었다. 유동층 반응기는 17일간의 연속 조업에서 평균제거율 95%의 안정적인 처리효율을 보여주었으며, 운전중 반응기내 배지 용액의 건조 균체농도는 2.44 mg dry cells/mL solution을 유지하였다. 따라서 MY혼합균주를 함유한 유동층생물반응기는 기상의 벤젠을 효과적으로 제거함을 알 수 있다.

요 약

벤젠의 제거에 효과적인 MY혼합균주를 획득하였으며, 이 중 우점종은 *Rhodococcus ruber* DSM 43338T로 밝혀졌다. MY혼합균주가 함유된 유동층생물반응기는 벤젠에 대한 임계 제거율 (critical removal rate)은 32 g/m³ h로 나타났으며, 17일간의 연속가동에서도 안정적인 처리효율을 보여주어서, 벤젠의 제거에 뛰어난 성능을 보여주었다.

사용기호

- C_{in}: Inlet concentration [ppmv]
- C_{out}: Outlet concentration [ppmv]
- Q: Volumetric flow rate of inlet gas [L/h]
- V: liquid volume in reactor [L]

감 사

본 논문은 2002년도 인제대학교 학술연구구조성비 보조에 의한 것입니다.

REFERENCES

1. Choi, E. S. and K. M. Cho (1994), Environmental Engineering, p600, Chungmoongak, Seoul.
2. Perry, R. H. and D. Green (1973), Perry's Chemical Engineers' Handbook, 50th Ed., pp3-27, McGraw-Hill, New York.
3. Deviny, J. S., M. A. Deshusses, and T. S. Webster (1999), Biofiltration for Air Pollution Control, p87, Lewis Publishers, Boca Raton.
4. Johnson, C. T. and M. A. Deshusses (1997), Quantitative structure-activity relationships for VOC biodegradation in biofilters, Proc. Fourth International In Situ and On-Site Bioreclamation Symposium, Columbus, OH p175.
5. Wright, P. C. and J. A. Raper (1999), Investigation into the viability of a liquid-film three-phase spouted bed biofilter, *J. Chem. Technol. Biotechnol.* **73**, 281-291.
6. Kim, K-R., K-J. Oh, K-Y. Park, and D. Kim (1999), Removal of hydrogen sulfide and methylmercaptan using *Thiobacillus* in a three phase fluidized bed bioreactor, *J. Microbiol. Biotechnol.* **9**, 265-270.
7. Gibson, D. T., J. R. Koch, and R. E. Kallio (1968), Oxidative degradation of aromatic hydrocarbons by microorganisms: I. Enzymatic formation of catechol from benzene, *Biochemistry* **7**, 2653-2662.

8. Yeom, S-H. and Y. -J. Yoo (2002), Analysis of microbial adaptation at enzyme level for enhancing biodegradation rate of BTX, *Korean J. Chem. Eng.* **19**, 780-782.
9. Bohn, H. L., Biofilter media, Proc. 89th Annual Meeting and Exhibition of the Air and Waste Management Association 1996, Pittsburgh, pp665-678.
10. Kim J. O. and W. B. Lee (2001), Removal of gaseous benzene by a biofilter, *J. Korean Soc. Environ. Eng.* **23**, 831-838.
11. Yoon, I.-K. and C.-H. Park (2000), Degradation of volatile organic compound mixture using a biofiltration system, *Korean J. Biotech. Bioeng.*, **15**, 501-506.
12. Eitner, D. (1990), Biofilter in der praxis, p55, Verlag, Germany.