

## 소화슬러지를 이용한 토양 내 석유계 탄화수소의 혐기성 분해

이태호<sup>†</sup> · 변임규\* · 박정진 · 박현철 · 박태주

부산대학교 환경공학과 · \*부산대학교 환경기술산업개발연구소

(2007년 7월 4일 접수, 2007년 8월 2일 채택)

### Anaerobic Degradation of Petroleum Hydrocarbons in Soil by Application of a Digestion Sludge

Tae-Ho Lee<sup>†</sup> · Im-Gyu Byun\* · Jeung-Jin Park · Hyun-Chul Park · Tae-Joo Park

Department of Environmental Engineering, Pusan National University

\*Institute for Environmental Technology and Industry, Pusan National University

**ABSTRACT** : Anaerobic degradation of petroleum hydrocarbons in a soil artificially contaminated with 10,000 mg/kg soil of diesel fuel was tested by adding an anaerobic sludge taken from a sludge digestion tank. Treatments of soil(50 g) with 15 mL/kg soil and 30 mL/kg soil of the digestion sludge(2,000 mg/L of vss(volatil suspended solids)) showed 37.2% and 58.0% of total petroleum hydrocarbons(TPH) removal during 90 days incubation, respectively. In evaluation of several anaerobic conditions including nitrate reducing, sulfate reducing, methanogenic, and mixed electron accepters condition, treatments with the digested sludge showed significant degradation of diesel fuel under all anaerobic conditions compare to a control treatment of soil without the sludge and a treatment of autoclaved soil treatment with autoclaved digestion sludge. The rate of diesel fuel degradation was the highest in the treatment with the sludge and mixed electron accepters (75% removal of TPH) for 120 days incubation followed in order by sulfate reducing, nitrate reducing, methanogenic condition as 67%, 53%, 43%, respectively. However, the removal rate of non-biodegradable isoprenoid was the highest in the sulfate reducing condition. These results suggest that anaerobic degradation of diesel fuel in soil with digested sludge is effective for practical remediation of soil contaminated with petroleum hydrocarbons.

**Key Words** : Soil Contamination, Diesel Fuel, Bioaugmentation, Anaerobic Digestion Sludge, Electron Accepters

**요약** : 혐기성 소화조 슬러지 주입에 의한 디젤오염(10,000 mg/kg soil) 토양 내 석유계 탄화수소의 혐기성 분해에 관하여 조사하였다. 오염된 토양 50 g에 총휘발성 고형물 농도 2,000 mg/L인 소화조 슬러지를 15 mL/kg soil와 30 mL/kg soil 농도로 주입하고 90일간 배양한 결과, 각각 37.2%와 58.0%의 총석유계 탄화수소(TPH)의 분해율을 나타내었다. 슬러지를 주입하지 않은 오염토양 대조군과 멸균된 토양에 멸균된 슬러지를 주입한 대조군에서는 120일간의 배양에서 초기 첨가한 디젤의 17%와 4%가 각각 제거된 것에 비하여, 전자수용체의 종류를 달리한 여러 혐기성 조건, 즉, 질산염 환원 조건, 황산염 환원 조건, 메탄생성 조건, 혼합 전자수용체 조건 모두에서 소화조 슬러지 주입에 의해 토양 내 디젤의 40% 이상이 분해됨을 확인할 수 있었다. 배양 120일 동안의 오염토양 내 TPH의 분해율은 혼합 전자수용체 조건에서 75%로 가장 높았으며, 황산염 환원 조건(67%), 질산염 환원 조건(53%), 메탄생성 조건(43%) 순으로 나타났다. 그러나 난분해성 물질로 알려진 isoprenoid의 분해율은 황산염 환원 조건이 다른 전자수용체 조건에 비해 가장 높은 분해율을 나타내었다. 본 연구 결과를 통하여, 소화조 슬러지를 이용하여 혐기성 상태에서 오염토양 내 디젤을 분해하는 기술은 석유계 탄화수소로 오염된 토양의 실질적인 복원에 유용한 것으로 판단되었다.

**주제어** : 토양오염, 디젤오염, 생물학적 복원, 혐기성 소화조 슬러지, 전자수용체 조건

## 1. 서론

최근 들어 토양오염에 대한 사회적 관심이 고조되고 있으며, 그 가운데에서도 유류저장 탱크의 누출에 의한 토양 및 지하수의 유류오염은 심각한 것으로 보고되고 있다. 유류저장 시설로부터 유류의 누출은 국내외의 자료를 볼 때 10~29%에 이르는 것으로 알려져 있으며, 석유류 저장 및 이송 시설은 차량의 증가나 석유류 수요의 증가로 인해 지속적으

로 증가될 것으로 예상된다. 또한 이들 물질을 저장하는 시설의 재질이 대부분 강철로 되어 있고, 강철탱크의 부식에 대한 내구연한이 10년에서 20년 사이임을 감안할 때 지하 저장시설에서 유류의 누출에 의한 토양오염은 이들 시설의 수나 면적에서 막대할 것으로 예상된다.

유류는 가솔린을 제외하면 휘발성이나 용해도가 낮아, 단기적인 위해성이 다른 오염물질에 비하여 상대적으로 낮기 때문에, 처리기간이 길더라도 비용이 적게 드는 방법이 오염 복원에 유리한 것으로 알려져 있다. 따라서 유류오염토양의 복원 방법으로 비용이 많이 들고 2차 오염의 우려가 있는 물리/화학적 방법보다는 미생물의 대사과정을 이용하는 생물학

<sup>†</sup> Corresponding author  
E-mail: leeth55@pusan.ac.kr  
Tel: 051-510-2465

Fax: 051-518-2462

적 방법이 선호되고 있다.

생물학적 토양오염 복원기술로서 산소와 영양염류를 오염 토양에 공급하여 호기성 미생물의 대사 작용을 자극함으로써 유류를 생분해하는 방법이 널리 사용되고 있다. 그러나 유류에 오염된 토양은 혐기성 상태인 경우가 대부분이기 때문에, 호기성 미생물을 이용하기 위해서는 충분한 산소를 공급하여야 하므로 경제적인 비용이 수반된다. 혐기성 조건하에서 미생물은 산소를 대신하여 질산염, 황산염, 탄산염, 철염 등을 전자수용체로 사용하고 탄화수소를 탄소원 및 에너지원으로 이용하여 성장하게 된다. 최근에는 혐기성 미생물을 이용하여 유류오염 토양을 정화하는 방법이 보고되고 있다. 이러한 혐기성 생분해 방법은 다소 분해 속도는 느리지만 산소를 공급하지 않기 때문에 경제적인 유류오염토양 복원 방법으로 주목받고 있다. 혐기성 미생물을 이용한 오염된 지하수 내의 벤젠, 톨루엔, 에틸벤젠, 크실렌(이하 BTEX) 등의 분해가 보고되어 있으며,<sup>1,2)</sup> 다수의 연구자에 의해 황산염 환원, 질산염 환원, 철 환원 조건하에서의 석유계 탄화수소의 분해가 보고되어 왔다.<sup>3~6)</sup>

한편, 하수처리장에서 발생하는 폐슬러지의 처리는 또 하나의 심각한 환경문제이다. 런던협약의 시행으로 해양투기가 금지되고, 다이옥신 등의 문제로 소각처리 또한 제약 받음에 따라 다양한 폐슬러지 재활용 방안이 모색되고 있다. 폐슬러지 재활용 방안 가운데 토양개량제로 활용하는 방안이 널리 사용되어 왔으며, 미국 등 선진국에서는 슬러지를 토양에 적용하는 기술이 보편화되고 있는 실정이다. 본 연구에서는 하수처리장의 혐기성 소화조에서 발생하는 슬러지를 디젤에 오염된 토양의 정화에 활용하는 방안을 검토하였다.

본 연구의 목적은 1) 하수처리장의 혐기성 소화조 슬러지를 이용한 토양 내 디젤의 혐기성 분해 가능성을 확인하고, 2) 다양한 전자수용체 조건 가운데서 혐기성 소화조 슬러지를 적용한 토양 내 디젤의 분해 효율이 가장 좋은 조건을 결정하는데 있다.

## 2. 실험재료 및 방법

### 2.1. 토양의 특성

실험에 사용된 토양은 부산대학교 인근 야산에서 채취하였다. 토양표면의 유기물을 제거한 후 30 cm의 깊이에서 토양 샘플을 채취하였으며, 2 mm 체를 통과한 토양만을 실험에 이용하였다. 토양의 물리·화학적 성질은 다음과 같다. 토양의 토성은 사질토이었으며, 입경분포는 0.05~2.0 mm, 유기물함량은 2.1~2.38%, pH는 약산성(6.5~7), 입자밀도는 2.22 g/mL, 겉보기밀도는 1.2 g/mL, 그리고 공극률은 47.0~50.2%이었다.

### 2.2. 혐기성 소화조 슬러지의 특성

오염토양 내 디젤성분의 혐기성 분해를 위해 부산 수영 하수처리장의 혐기성 소화조의 슬러지를 사용하였다. 슬러지의 물리·화학적 특성은 Table 1과 같다.

**Table 1.** Characteristics of the anaerobic digestion sludge

Composition	Value(mg/L)
VSS	2,200
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N	37
NO <sub>2</sub> <sup>-</sup> -N	24
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> -N	33
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	65

## 2.3. 오염토양 처리

### 2.3.1. 슬러지를 이용한 토양 내 디젤의 혐기성 분해 가능성 평가

혐기성 소화조 슬러지를 이용한 디젤 오염토양 내 총석유계 탄화수소(total petroleum hydrocarbon: TPH)의 분해 가능성을 평가하기 위한 실험을 수행하였다. 디젤을 이용하여 인위적으로 10,000 mg TPH/kg soil의 농도로 오염시킨 토양에 혐기성 소화조 슬러지를 15 mL/kg soil 및 30 mL/kg soil 농도로 첨가하고 완전 혼합하였다. 혐기성 소화 슬러지가 첨가된 디젤오염토양 50 g를 100 mL의 serum bottle에 주입한 후, 혐기성 상태를 조성하기 위하여 bottle의 기상부분을 헬륨가스(> 99.9%)로 치환하였으며, 테플론으로 코팅된 부틸 고무마개로 밀봉하고, 35 ± 2°C의 암실에서 90일간 배양하였다. 소화조 슬러지를 첨가하지 않은 디젤 오염토양을 제조하여 대조군으로 사용하였다. 각 조건에는 7개의 serum bottle를 제조하였으며, 15일 간격으로 한 bottle씩 기상의 바이오 가스 농도를 측정 후, 개봉하여 토양 내 잔류 TPH 농도를 관찰하였다.

### 2.3.2. 전자수용체 조건에 의한 디젤 혐기성 분해 영향 평가

다양한 전자수용체 조건에서의 소화조 슬러지 첨가에 의한 오염토양 내 디젤의 혐기성 분해속도를 비교하여, 최적의 전자수용체 조건을 도출하기 위한 실험을 수행하였다. 전자수용체로서 질산염, 황산염, 탄산염 및 혼합 전자수용체를 주입하였으며, 슬러지는 phosphate buffered saline(PBS) 용액으

**Table 2.** Description of soil treatments for electron acceptor condition test

Treatments	Sludge <sup>a</sup>	Nitrate <sup>b</sup>	Sulfate <sup>c</sup>	Carbonate <sup>d</sup>
Set 1 (Abiotic control) <sup>e</sup>	+	-	-	-
Set 2 (Natural attenuation control) <sup>f</sup>	-	-	-	-
Set 3 (Nitrate reducing condition)	+	+	-	-
Set 4 (Sulfate reducing condition)	+	-	+	-
Set 5 (Methanogenic condition)	+	-	-	+
Set 6 (Mixed condition)	+	+	+	+

<sup>a</sup> 30 mL of the anaerobic digested sludge was added; <sup>b</sup> 20 mM of nitrate was added as form of NaNO<sub>3</sub>; <sup>c</sup> 20 mM of sulfate was added as form of Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>; <sup>d</sup> 20 mM of carbonate was added as form of Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>; <sup>e</sup> Abiotic control, the soil was autoclaved and treated with the autoclaved digestion sludge; <sup>f</sup> Natural attenuation control, not treated with the digested sludge.

+, addition with the digested sludge or chemicals; -, no addition.

로 2회 세척한 뒤 30 mL/kg soil이 되도록 주입하였다. 구체적인 전자수용체의 첨가 및 처리 방법은 Table 2에 상세히 설명하였으며, 오염 토양의 양 및 배양 방법 등의 다른 조건은 상기 실험과 동일하게 수행되었다. 전자수용체 조건의 각 set은 18개의 serum bottle로 구성되었으며, 배양 120일 동안 15일 간격으로 기상의 바이오 가스를 측정하는 후, 각 조건에서 2개씩 bottle을 개봉하여 토양 및 전자수용체 농도변화를 관찰하였다.

### 2.4. 분석 방법

각 전자수용체 조건의 serum bottle 기상부분으로부터 gas tight syringe로 가스 샘플을 채취한 후, 열전도도 검출기가 장착된 가스 크로마토그래프(GC-TCD, HP 5890)을 이용하여 CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> 등의 바이오 가스를 분석하였다. 가스 분석 후에 bottle을 개봉하고, 토양시료 5 g를 채취하여 methylene chloride와 Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>를 이용한 속실텍 추출방법으로 토양 내 석유계 탄화수소를 추출하였다. 추출물을 진공원심 농축한 후, 염이온화 검출기가 장착된 가스 크로마토그래프(GC-FID, HP 5890)를 이용하여 TPH 농도를 측정하였으며, 측정된 값은 HP Chemstation과 MS Excel로 계산하였다. 또한, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, NO<sub>2</sub><sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 등의 전자수용체 농도는 이온 크로마토그래프(Ionization Chromatography, Waters series, U.S.A.)를 이용하여 분석하였다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1. 소화 슬러지 주입에 의한 토양 내 디젤의 혐기성 분해

#### 3.1.1. 소화 슬러지 첨가량에 따른 토양 내 TPH 변화

혐기성 소화조 슬러지의 첨가에 의한 혐기성 상태에서의 오염토양 내 디젤의 분해 가능성을 조사하였다. 디젤 오염토양에 혐기성 소화 슬러지를 각각 0, 15, 30 mL/kg soil 농도로 첨가한 후 90일 동안의 TPH 변화율을 Fig. 1에 나타내었다. 소화 슬러지를 15 mL/kg soil과 30 mL/kg soil 농도로 첨가한 시료의 TPH 분해율은 각각 37.2%와 58.0%로서, 슬러지를 첨가하지 않은 대조군의 TPH 분해율 17.8%에 비하여 2~3배 높은 분해율을 나타내었다. 이러한 결과로부터 혐기성 소화 슬러지를 디젤 오염토양에 주입함으로써, 혐기성 조건하에서 디젤을 분해할 수 있음을 확인하였다.

일반적으로 유류오염 토양의 복원에는 호기성 미생물을 이용한 복원기술이 적용되고 있으며, 호기성 미생물에 의한 유류의 분해속도가 혐기성 미생물에 의한 유류분해 속도에 비하여 월등히 빠른 것으로 알려져 있다.<sup>7)</sup> 그러나 혐기성 소화 슬러지에 의한 토양 내 디젤의 분해속도는 본 실험실에서 이전에 수행된 호기성 바이오벤딩 공정에 의한 토양 내 디젤의 분해속도와 대등한 수준이었다(비교한 호기성 바이오벤딩 공정에서는 외부미생물의 첨가 없이 오염 토양 내 토착미생물의 디젤분해 활성을 자극하기 위하여 산소와 영양원을 첨가하였다). 따라서 혐기성 소화 슬러지 첨가에 의한 디젤 오염토양 복원기술은 산소 또는 과산화수소와 같은 전자수

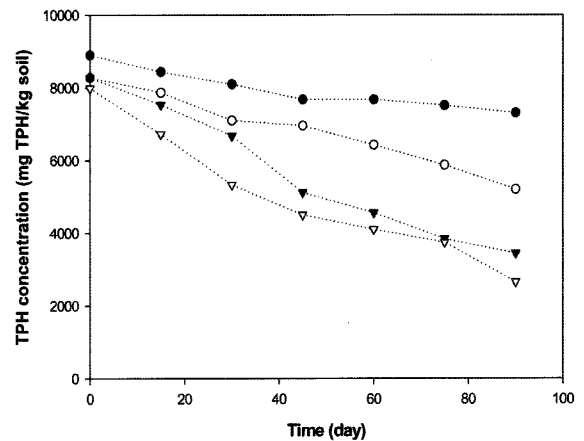


Fig. 1. Variation of residual TPH concentration in soil treatments with or without the digestion sludge and in an aerobic bioventing process. In the aerobic bioventing process, air and nutrient were added to stimulate indigenous microorganisms in the soil artificially contaminated with diesel fuel. Symbols: ●, treatment without the digestion sludge; ○, treatment with 15 mL of the sludge; ▼, treatment with 30 mL of the sludge; ▽, aerobic bioventing process.

용체의 공급을 필요로 하는 호기성 토양복원기술의 경제적인 대안이 될 수 있을 것으로 사료된다.

#### 3.1.2. 소화 슬러지 첨가량에 따른 바이오가스 농도 변화

디젤 오염토양에 혐기성 소화 슬러지를 각각 0, 15, 30 mL/kg soil 농도로 첨가한 후 90일 동안 발생하는 바이오가스의 농도변화를 측정하였다(Fig. 2(a), (b)). 소화 슬러지의 주입량이 증가함에 따라 이산화탄소(CO<sub>2</sub>) 농도 또한 비례하여 증가하였으나, 배양 30일 이후에는 농도 증가가 둔화되어 거의 안정적인 농도를 나타내었으며, 배양 90일 후 각 조건의 CO<sub>2</sub> 농도는 각각 0.6, 1.05, 1.27%이었다(Fig. 2(a)). 이러한 결과로부터 디젤의 분해 산물인 CO<sub>2</sub>의 발생량은 TPH 분해율에 비례함을 알 수 있었으며, 혐기성 미생물에 의한 석유계 탄화수소의 대사물질로 CO<sub>2</sub> 발생 농도를 보고한 다른 연구의 결과와 잘 상응하였다.<sup>8,9)</sup>

메탄가스(CH<sub>4</sub>)는 CO<sub>2</sub>의 증가가 둔화되고 안정한 농도를 나타낸 배양 30일 이후에 검출되기 시작하였으며, 특히, 45일 이후에는 소화 슬러지를 첨가한 두 조건에서 급격하게 증가하는 것으로 나타났다(Fig. 2(b)). CH<sub>4</sub>의 농도 또한 슬러지 첨가량에 따라 증가하였으며, 90일 후의 CH<sub>4</sub> 발생농도는 각각 0.14, 0.63, 0.93%로 나타났다. 배양 30일 이후에도 TPH의 분해가 계속된 사실로 미루어 보아 CO<sub>2</sub>는 계속 발생하였으리라 추측된다. 그러나 30일 이후에는 메탄생성균의 성장으로 TPH 분해로부터 발생된 CO<sub>2</sub>가 메탄 생성에 소모되었기 때문에, CO<sub>2</sub> 농도의 증가는 나타나지 않고 CH<sub>4</sub> 농도가 급격하게 증가된 것으로 사료된다. 따라서 메탄생성균에 의해 직접적으로 석유계 탄화수소가 분해되었는지는 분명하지 않으나, 적어도 메탄균을 포함한 혐기성 미생물 consortium이 디젤의 분해에 관여한 것으로 사료되었다.

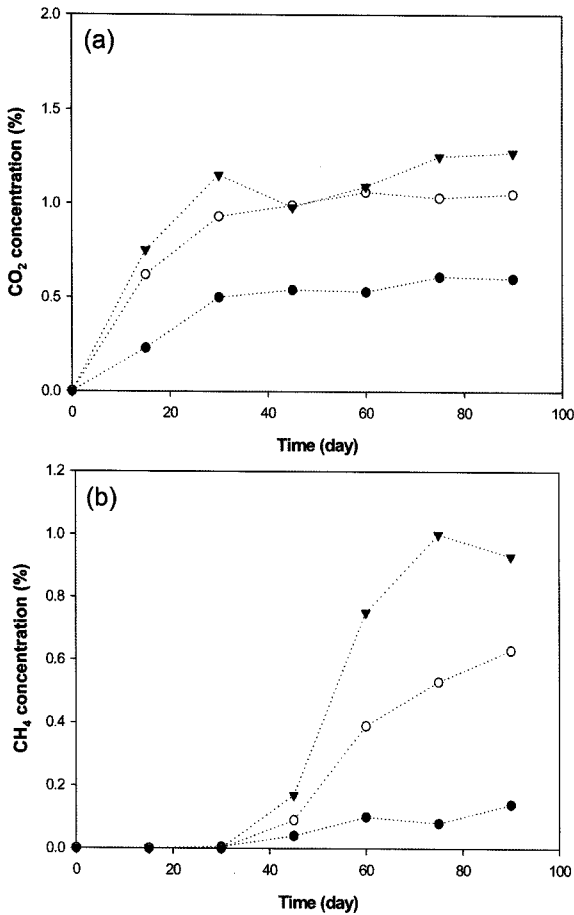


Fig. 2. Variation of produced CO<sub>2</sub> (a) and CH<sub>4</sub> (b) concentration in the headspace of soil treatments with or without the digestion sludge. Symbols: ●, treatment without the digestion sludge; ○, treatment with 15 mL of the sludge; ▼, treatment with 30 mL of the sludge.

### 3.2. 전자수용체 조건에 의한 디젤 혐기성 분해 영향 평가

#### 3.2.1. 전자수용체 조건에 따른 토양 내 TPH 분해

다양한 전자수용체 조건에서의 소화조 슬러지 첨가에 의한 오염토양 내 디젤의 혐기성 분해속도를 비교하여, 최적의 전자수용체 조건을 도출하기 위한 실험을 수행하였다. Fig. 3은 120일 동안 측정된 여러 전자수용체 조건에서의 TPH 농도변화를 나타낸 것이다. 멸균된 토양에 멸균된 슬러지를 첨가한 대조군에서 120일 동안 약 4%의 TPH농도가 생물학적 요인 이외의 영향에 의해 감소되는 것으로 나타났다. 또한, 소화슬러지를 첨가하지 않은 대조군에서는 120일 동안 17%의 TPH농도 감소를 보여, 자연정화에 의해서도 일정 부분 TPH 제거가 일어남을 알 수 있었다. 혐기성 소화 슬러지를 첨가한 경우에는 질산염환원 조건, 황산염환원 조건, 메탄 생성 조건, 혼합 전자수용체 조건 모두에서 대조군에 비하여 빠른 속도로 TPH를 분해하였다. 배양 120일 후 각 조건의 TPH 분해율은 멸균 처리한 토양 및 슬러지 첨가 대조군 set 1(abiotic control, 4%) < 슬러지를 첨가하지 않은 대조군 set 2(natural attenuation control, 17%) < 메탄 생성 조건(43%) < 질산염 환원

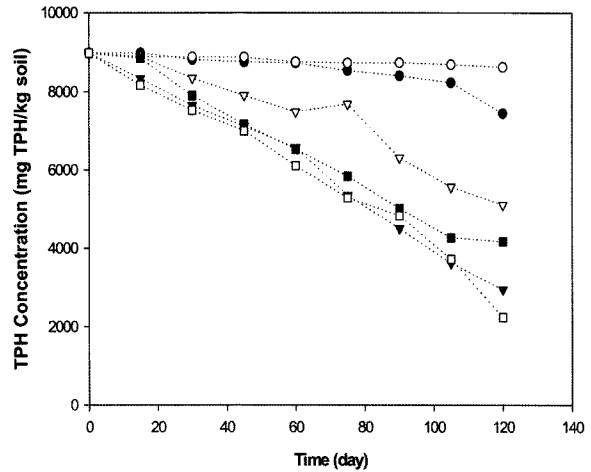


Fig. 3. Variation of residual TPH concentration in soil treatments with the digestion sludge under various electron acceptors conditions. Symbols: ●, treatment without the digestion sludge; ○, autoclaved soil was treated with the autoclaved sludge; ▼, treatment with the sludge and nitrate; ▽, treatment with the sludge and sulfate; ■, treatment with the sludge and carbonate; □, treatment with the sludge and mixed electron acceptors.

원 조건(53%) < 황산염환원 조건(67%) < 혼합 전자수용체 조건(75%) 순으로 나타났다. 따라서 소화 슬러지 내 다양한 전자수용체를 요구하는 미생물들이 디젤의 혐기성분해에 관여함을 알 수 있었으며, 여러 전자수용체를 혼합한 경우에 다양한 미생물들의 분해 능력이 발휘되어 가장 높은 TPH제거율을 나타낸 것으로 사료된다. 이러한 결과는 석유계 탄화수소 오염토양의 혐기성 분해를 조사한 선행 연구의 주장과 일치한다.<sup>10)</sup>

#### 3.2.2. 전자수용체 조건에 따른 난분해성 TPH 성분의 분해

디젤을 구성하고 있는 탄화수소 중 노말 알칸(n-alkane)족 탄화수소는 모든 전자수용체 조건에서 탄소의 수가 많아질수록 분해되기 어려운 것으로 나타났으며(date not shown), 난분해성 물질인 isoprenoid(pristane, phytane)성분은 황산염 환원조건에서 가장 잘 분해되는 것으로 나타났다. Table 3에는 TPH, pristane, phytane의 각 전자수용체 조건에서의 분해를 1차 반응으로 가정하여 비선형 회귀분석법으로 산출된 반응속도 상수와 반감기를 나타내었다. TPH의 분해에 대한 반응속도 상수는 혼합 전자수용체 조건 > 황산염환원 조건 > 질산염환원 조건 > 메탄 생성 조건의 순서였으나, 난분해성 물질인 pristane과 phytane의 경우에는 황산염환원 조건 > 혼합 전자수용체 조건 > 질산염환원 조건 > 메탄생성 조건의 순서였다. 일반적으로 황산염환원 조건하에서는 방향족 탄화수소, PAH, 알칸 등의 분해가 잘 일어나는 것으로 보고되어 있으나,<sup>11)</sup> 본 실험 결과로부터 황산염환원 조건에서는 isoprenoid와 같은 난분해성 화합물의 분해 또한 잘 일어남을 확인할 수 있었다. 따라서 오염토양에서의 TPH분해는 다양한 전자수용체를 필요로 하는 다양한 미생물들이 공존함으로써 가장 빠

**Table 3.** TPH and Isoprenoid biodegradation rate constants and half-lives at various electron accepters conditions

Treatments	TPH		Pristane		Phytane	
	k (day <sup>-1</sup> )	t <sub>1/2</sub> (day)	k (day <sup>-1</sup> )	t <sub>1/2</sub> (day)	k (day <sup>-1</sup> )	t <sub>1/2</sub> (day)
Set 1 (Abiotic control)	0.0016	445.4	0.0048	144.4	0.0034	144.4
Set 2 (Natural attenuation control)	0.0003	4838.0	0.0033	210.0	0.0007	990.2
Set 3 (Nitrate reducing condition)	0.0093	74.7	0.0127	54.6	0.0086	80.6
Set 4 (Sulfate reducing condition)	0.0047	147.6	0.0095	73.0	0.0055	126.0
Set 5 (Methanogenic condition)	0.0064	108.7	0.0095	73.0	0.0079	87.7
Set 6 (Mixed condition)	0.0116	59.9	0.0096	72.2	0.0081	85.6

른 속도로 진행될 수 있는 것으로 사료되며, 디젤의 분해, 특히, 난분해성 성분의 분해에는 황산염 환원 조건에서 성장하는 미생물들이 가장 큰 역할을 수행하는 것으로 추측되었다.

**3.2.3. 메탄발생 및 전자수용체 농도변화**

질산염환원 조건, 황산염환원 조건, 메탄생성 조건에서의 메탄발생 및 각 전자수용체 농도변화를 Fig. 4에 나타내었다. 메탄농도는 메탄생성 조건에서 30일 이후, 질산염환원 조건에서 45일 이후, 황산염환원 조건에서 60일 이후부터 검출되기 시작하였으며, 이후 계속적으로 증가하였다. 질산염 및 황산염환원 조건에서 메탄의 발생이 늦어진 것은 질산염 및 황산염환원 미생물과 메탄생성 미생물간의 수소이온 등에 대한 기질경합에 의한 것으로 사료된다(Fig. 4(a)). 또한, 첨가한 전자수용체 농도는 120일의 배양기간 동안 계속적으로 감소함이 확인되었으며, 질산염의 경우 최종농도 8.7 mM, 황산염의 경우에는 8.0 mM이었다(Fig. 4(b), (c)). 따라서 이들 전자수용체 조건에서는 질산염환원 미생물 또는 황산염환원 미생물이 디젤의 분해에 관여하는 것으로 사료되며, 일정기간 이후에는 모든 조건에서 메탄생성균 또한 디젤분해에 관여하는 것으로 사료되었다.

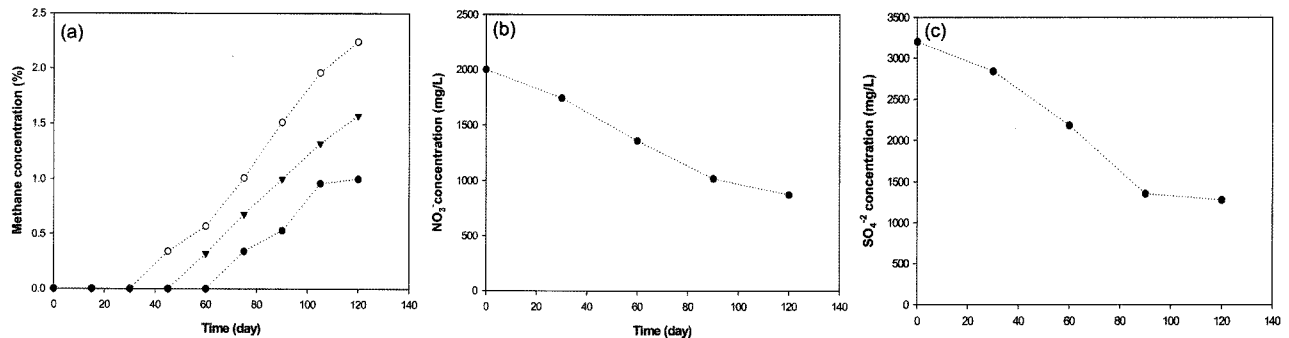
소화 슬러지 첨가량이 증가함에 따라 높은 TPH 제거율을 나타내었으며, 호기성 bioventing 공정에서의 TPH제거 속도와 대등한 수준이었다. 따라서 소화 슬러지의 첨가는 혐기성 조건하에서의 토양 내 디젤 분해에 유효함을 알 수 있었다. 또한, 다양한 전자수용체 조건에서 소화조 슬러지 첨가에 의한 오염토양 내 디젤의 혐기성 분해속도를 비교한 결과, 혼합 전자수용체 조건에서 가장 빠른 디젤의 분해를 나타내었다. 그러므로 소화 슬러지내의 다양한 전자수용체를 요구하는 미생물들이 디젤의 혐기성분해에 관여함을 알 수 있었으며, 여러 전자수용체를 혼합한 경우에 다양한 미생물들의 분해 능력이 발휘되어 가장 높은 TPH제거율을 나타낸 것으로 사료된다. 특히, 황산염을 전자수용체로 사용한 경우에는 n-alkane 뿐만 아니라 난분해성물질인 pristane과 phytane의 분해에 높은 분해율 및 반응속도를 나타내었으며, 혐기성 소화 슬러지에 존재하는 황산염 환원 미생물이 토양 내 석유계 탄화수소의 분해에 중요한 역할을 수행하는 것으로 추정되었다. 이러한 결과로부터, 소화조 슬러지를 이용한 오염토양 내 디젤의 혐기성 분해기술은 석유계 탄화수소로 오염된 토양의 실질적인 정화에 효율적이고 경제적인 생물학적 복원기술로 적용할 수 있을 것으로 기대된다.

**4. 결론**

하수처리장의 혐기성 소화조 슬러지를 이용한 디젤 오염토양 내 석유계 탄화수소의 혐기성 분해 가능성을 평가한 결과,

**사 사**

본 연구는 2005학년도 안동대학교 학술연구 조성비에 의하여 지원되었으며 이에 감사드립니다.



**Fig. 4.** A comparison of the effects of three reducing conditions on methane production (a), nitrate concentration (b), and sulfate concentration (c) in the soil treatments. Symbols in (a): ○, methane producing conditions; ▼, nitrate reducing conditions; ●, sulfate reducing conditions.

## 참고문헌

1. Kuhn, E. P., Zeyer, J., Eicher, P., and Schwarzenbach, R.P., "Anaerobic degradation of alkylated benzenes in denitrifying laboratory aquifer column," *Appl. Environ. Microbiol.*, **54**, 490~496(1988).
2. Hutchius, S., Sewell, G. W., Kovacs, D. A., and Smith, G. B., "Biodegradation of aromatic hydrocarbons by aquifer microorganisms under denitrifying conditions," *Environ. Sci. Technol.*, **25**, 68~76(1991).
3. Coates, J. D., Robert T. Anderson, Joan C. Woodward, Elizabeth J. P. Phillips, and Derek R. Lovely. "Anaerobic hydrocarbon degradation in petroleum-contaminated harbor sediments under sulfate-reducing and artificially imposed iron-reducing conditions," *Environ. Sci. Technol.*, **30**, 2784~2789(1996).
4. Coates, J. D., Joan Woodward, Jon Allen, Paul Philp and Derek R. Lovley, "Anaerobic Degradation of polycyclic aromatic hydrocarbons and alkanes in petroleum-contaminated marine harbor sediments," *Appl. Environ. Microbiol.*, **63**, 3589~3593(1997).
5. Lovely, D. R. and Lonergan, D. K., "Anaerobic oxidation of toluene, phenol, and p-cresol by the dissimilatory iron-reducing organism, GS-15," *Appl. Environ. Microbiol.*, **56**, 1858~1864(1990).
6. Stetter, K. O., Huber, R., Blochl, E., and Kuur, M. "Hyperthermophilic archaea are thriving in deep north sea and Alaskan oil reservoirs," *Nature*, **365**, 743~745(1993).
7. Al-Awadhi, N., Al-Daher, R., Elnawawy, A., and Balba, M.T., "Bioremediation of oil-contaminated soil in Kuwait. I. Landfarming to remediate oil-contaminated soil," *J. Soil Contamination*, **5**(3), 243~260(1996).
8. Spormann, A. M. and Widdel, F., "Metabolism of alkylbenzenes, alkanes and other hydrocarbons in anaerobic bacteria," *Biodegradation*, **11**, 85~105(2000).
9. Zengler, K., Richnow, H. H., Rossello-Mora, R., Michaelis, W., and Widdel, F., "Methane Formation from long-chain alkane by anaerobic microorganisms," *Nature*, **401**, 266~269(1999).
10. Boopathy, R., "Anaerobic degradation of No. 2 diesel fuel in the wetland sediments of Barataria-Terrebonne estuary under various electron acceptor conditions," *Bioresour. Technol.*, **86**, 171~175(2003).
11. So, C. M. and Young, L. Y., "Isolation and characterization of a sulfate-reducing bacterium that anaerobically degrades alkanes," *Appl. Environ. Microbiol.*, **65**, 2969~2976(1999).