

## 토착 미생물을 이용한 MTBE와 BTEX의 혐기성 생분해 연구

정우진<sup>1</sup> · 장순웅<sup>2\*</sup>

<sup>1</sup>경기대학교 일반대학원 환경에너지공학과

<sup>2</sup>경기대학교 환경에너지공학과

## A Study on Anaerobic Biodegradation of MTBE and BTEX by Indigenous Microorganisms

Woo-Jin Chung<sup>1</sup> · Soon-Woong Chang<sup>2\*</sup>

<sup>1</sup>Department of Environmental Energy Engineering Graduate School of Kyonggi University

<sup>2</sup>Department of Environmental Energy Engineering of Kyonggi University

### ABSTRACT

The simultaneous biodegradation between MTBE (Gasoline additives) and BTEX (Benzene, Toluene, Ethylbenzene, o-Xylene, m-Xylene, p-Xylene) was achieved within a competitive inter-relationship, with not only electron accepters such as nitrate, sulfate, and iron(III) without oxygen, but also with electron donors such as MTBE and BTEX. Preexisting indigenous microorganisms from a domestic sample of gasoline contaminated soil was used for a lab-scale batch test. The result of the test showed that the biodegradation rate of MTBE decreased when there was co-existing MTBE and BTEX, compared to having just MTBE present. The growth of indigenous microorganisms was not affected in the case of the MTBE treatment, whereas the growth of the microorganisms was decreased in combined MTBE and BTEX sample. This may indicate that an inhibitor related to biodegradation when BTEX and MTBE are mixed will be found. This inhibitor may be found to retard the anaerobic conditions needed for efficient breakdown of these complex carbon chain molecules in-situ. Moreover, it is also possible that an unknown competitive reaction is being imposed on the interactions between MTBE and BTEX dependent on conditions, ratios of mixture, etc.

**Key words :** Gasoline oxygenate additives, Natural attenuation, BTEX, Anaerobic degradation, Gasoline contaminated soil

### 1. 서 론

가솔린의 옥탄가 향상과 무연휘발유를 얻기 위한 목적으로 MTBE(methyl tertiary butyl ether)를 사용되고 있으나 MTBE의 위해성, 물에 소량으로 존재하더라도 유발할 수 있는 맛과 냄새, 지하수에서의 높은 확산성 및 낮은 생분해성으로 인하여 세계적으로 논란이 되고 있다(Park et al., 2002; An and Chang, 2004). 우리나라에는 1993년 환경보전법에 의하여 MTBE의 휘발유 배합이 의무화되었으며, 상당량이 휘발유에 첨가되어 현재까지도 계속 사용되고 있다. 국내에서 소비되는 휘발유 내 MTBE의 함량은 6.6~11.6% 정도로 휘발유에 혼합되고

있어 주유소 설치 자유화에 따른 유류저장탱크의 증가로 인하여 유류저장탱크 주변의 토양과 지하수가 BTEX와 MTBE로 오염될 가능성이 크고, 현재 상당량의 오염이 진행되었다고 예상할 수 있다(Park et al., 2002; An and Chang, 2004; An et al., 2010a, Black and Fine, 2001; Kolb and Puttmanna, 2006).

환경에 누출된 BTEX(Benzene, Toluene, Ethylbenzene, Xylene)는 대수층 내에 용존되거나 Non-Aqueous Phase Liquids(NAPLs) 상태로 토양에 흡착되어 오랜 시간 오염원으로 존재하게 된다. 하지만 MTBE는 BTEX에 비해 수용해도(5.2~5.4 g/L)가 높아 토양에 거의 흡착되지 않아 오염지역이 광범위한 것으로 알려져 있다(An et al.,

\*Corresponding author : swchang@kyonggi.ac.kr

Received : 2016. 5. 17 Reviewed : 2016. 5. 23 Accepted : 2016. 5. 31

Discussion until : 2016. 8. 31

2010b; Hutchins et al., 1992).

MTBE와 BTEX의 정화방법으로는 양수처리(Pump and Treatment)와 화학적 산화(Chemical Oxidation)과 같은 물리화학적 처리방법과 생물학적 처리방법이 있으나 오염 지역이 광범위한 경우에는 토양 및 지하수에 존재하는 토착미생물의 성장과 오염물질의 자연저감을 모니터링하여 생물학적 처리방법에 관한 전략을 도모하는 자연저감(Natural Attenuation)과 오염지역의 시급성을 고려하여 인위적으로 토착미생물의 성장을 가속화시켜 포화지역에 있는 유기성분의 생분해를 촉진시키는 Biostimulation을 적용하여 오염지역을 복원하게 된다(An et al., 2010b; Yeh and Novak, 1994). Biostimulation은 지중에 토착미생물의 성장을 위한 추가적인 영양물질(전자수용체 및 전자공여체)을 주입하여 미생물의 증식시킴으로써 유류오염물질을 생분해시킴으로써 정화비용이 저렴하고 2차 오염을 유발하지 않는 환경 친화적인 장점으로 많은 주목을 받고 있다(Kim et al., 2003; An et al., 2010b; Pruden and Suiden, 2004).

MTBE의 생분해(biodegradation)는 BTEX 성분과는 달리 ether(C-O-C) 결합이 화학적으로 안정하기 때문에 난분해성 물질로 구분된다. MTBE 생분해에 관한 초기 연구에서는 호기성 상태에서 분해가 이루어지지 않는 것으로 알려져 있었으나 일차 성장기질(primary growth substrate)을 이용하는 미생물에 의해 MTBE의 생분해를 유도하는 공대사적 분해(cometabolic degradation)에 관한 연구가 이루어졌다(Steffan et al. 1997; Smith et al. 2004, An et al., 2010b). 하지만 일반적으로 유기오염물질로 오염된 지하층(토양 및 지하수)에서는 낮은 산소 농도(Dissolved Oxygen; DO)로 분포하여 혐기성 미생물에 의한 생분해 기작이 효과적인 것으로 알려져 있다. 혐기성 조건에서는 지하 토양층에서는 혐기성 대사산물인 ferrous ion이나 sulfide와 같은 환원상태 화합물이 존재하며, 환원성 조건에서 산소는 이들 환원상태 화합물과 우선적으로 반응하게 되므로 MTBE와 BTEX는 호기성 생분해가 불가능한 것으로 보고되었다(Bin et al., 2002; Robert et al., 1997; Hutchins, 1997).

최근 들어 저산소 조건(DO 2 mg/L 이하)의 지하대수층에서는  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{Fe}^{3+}$  등이 미생물의 성장을 위한 전자수용체로 이용될 수 있는 가능성과 더불어 혐기성 조건에서 생분해에 관한 연구 결과들이 보고되고 있다(Kim et al., 2005; Oh et al., 2014; Waul et al., 2009). 또한, 호기성 조건에 비하여 혐기성 조건에서의 상대적으로 장시간의 생분해가 이뤄지며 MTBE와 BTEX 간의 상호

**Table 1.** Characterization of gasoline contaminated soil

| Item              |                    | P soil     |
|-------------------|--------------------|------------|
| Soil type         |                    | Sandy loam |
| pH                |                    | 7.1        |
| Electron donor    | Benzene            | 3.2 mg/kg  |
|                   | Toluene            | 4.6 mg/kg  |
|                   | Ethylbenzene       | 2.7 mg/kg  |
|                   | Xylene             | 1.6 mg/kg  |
|                   | MTBE               | 0.7 mg/kg  |
| Electron acceptor | $\text{NO}_3^-$    | 10.2 mg/kg |
|                   | $\text{SO}_4^{2-}$ | 2.4 mg/kg  |
|                   | $\text{Fe}^{3+}$   | 1.2 mg/kg  |

작용으로 유류 오염지역에서 생분해에 영향을 미칠 수 있는 개연성이 존재한다(Kim et al., 2005; Oh et al., 2014). 따라서 본 연구에서는 유류오염지역의 토착미생물을 대상으로 MTBE와 BTEX를 혐기성 조건에서 생분해하는데 있어서 전자수용체의 변화에 따른 영향과 BTEX 혼합 존재 시에 MTBE 분해 경향을 비교하였다.

## 2. 연구방법

### 2.1. 시료 전처리

실험에 사용된 토양 시료는 P시 저유소 기술된 오염 지역에서 핸드 오거(Hand Auger)를 사용하여 심도 3m에서 시료를 채취하였으며, 유류오염토양에서 존재하는 토착 미생물을 이용하여 BTEX와 MTBE의 생분해 실험에 사용되었다. 채취된 토양시료는 실험실로 옮겨 풍건세토시켰으며, 실험의 편의상 표준망체(NO. 18)를 사용하여 1.0 mm 이상의 자갈을 제외한 토양만 사용하였다.

### 2.2. 미생물 배지 조성

탄소원이 없는 혐기성 배지인 nitrate-, sulfate-, iron-amended anaerobic medium을 제조하여 사용하였고, vitamin solution과 trace element는 stock solution으로 제조하여 4°C 암실에서 냉장 보관하여 필요시 적당량 취하여 main reagent와 혼합하여 사용하였다. 혐기성 실험용 배지는 trace element solution 5 mL와 vitamin solution 1 mL를 main reagent 1,000 mL에 첨가한 후 충분히 녹여서 사용하였으며, 배지의 pH는  $7 \pm 0.2$ 로 조정하였다. 실험에 사용된 모든 배지와 초자는 121°C에서 15분간 멸균하여 제조하였다.

**Table 2.** The composition of the anaerobic medium (per 1 L)

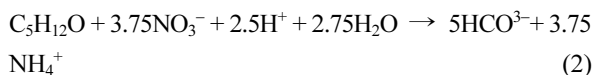
| Main reagent                           | Trace element solution                  | Vitamin solution                |
|--|---|---------------------------------|
| KH <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> 1.5 g  | Yeast 0.01 g                            | Biotin 0.02 g                   |
| Na <sub>2</sub> HPO <sub>4</sub> 7.9 g | EDTA 50 g                               | Folic acid 0.02 g               |
| MgSO <sub>4</sub> 0.05 g               | ZnCl <sub>2</sub> 22 g                  | Pyridoxine Hydrochloride 0.10 g |
| KNO <sub>3</sub> 2.02 g                | CaCl <sub>2</sub> 5.44 g                | Ribo flavin 0.05 g              |
|  | MnCl <sub>2</sub> 5.06 g                | Thiamin 0.05 g                  |
|  | CuCl <sub>2</sub> 1.57 g                | Nicotinic acid 0.05 g           |
|  | CoCl <sub>2</sub> 2.95 g                | Pantothenic acid 0.05 g         |
|  | FeSO <sub>4</sub> 4.99 g                | Vitamin B12 0.01 g              |
|  | Na <sub>2</sub> MoO <sub>4</sub> 0.10 g | p-aminobenzoic acid 0.05 g      |
|  |   | Tiotoxic acid 0.05 g            |

### 2.3. MTBE 및 BTEX의 생분해 실험

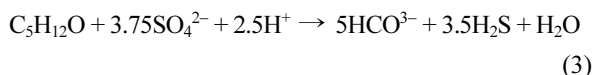
실험에 사용된 모든 초자류 및 기기는 고압증기 멸균기를 이용하여 121°C, 15분간 멸균하여 사용하였으며, 광합성에 의한 미생물 성장을 최소화하기 위해 amber serum bottle(120 mL)를 이용하였다. 유류오염토양 5 g을 amber serum bottle(120 mL)에 넣고 각각 BSM 배지 50 mL를 첨가하고 teflon-silicon septa와 aluminum crimp cap으로 막은 후, head space에 N<sub>2</sub>를 주입하였다.

환원조건을 조성하기 위하여 전자수용체로 nitrate 환원 조건에는 KNO<sub>3</sub>, sulfate 환원조건에는 Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, iron 환원 조건에는 Fe(OH)<sub>3</sub>을 각각 첨가하고 nitrate-, sulfate-, iron-amended anaerobic medium 50 mL를 첨가하였다. 전자수용체인 nitrate, sulfate, iron의 주입량은 화학양론을 근거하여 MTBE 산화에 필요한 이론적 요구량 보다 20% 과잉으로 농도를 조절하여 주입하였다(식 (1)~(4)). 초기 주입량은 MTBE 50, 100 mg/L이며 shaking incubator에서 25°C, 150 rpm으로 배양하였다.

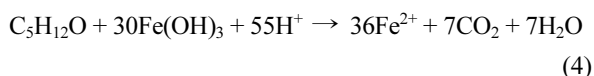
#### Nitrate reduction



#### Sulfate reduction



#### Iron reduction



### 2.4. 분석방법

MTBE 및 BTEX의 동시 분석을 위하여 HS-SPME (head space-solid phase micro extraction) 기법을 이용하였으며, CAR/PDMS 75 µm fiber를 사용하여 bottle의 head space에서 10분 흡착, 5분 탈착하여 GC-FID에서 분석하였다. 실험에 사용된 시약은 가능한 분석용 고순도의 시약을 구입하여 사용하였다. 분석에 사용된 MTBE (99%, Methyl tert-Butyl ether), BTEX(99% Benzene, 99% Toluene, Ethylbenzene, 99% *o*-Xylene, 99% *m*-Xylene, 99% *p*-Xylene)는 ACROS ORGANICS(New Jersey, U.S.A.)에서 구입했다. TBA(99%, tert-Butyl alcohol)는 Sigma Chemical Co.(St. Louis, MO, U.S.A.)에서 구입했고 TBF(99%, tert-Butyl formate)와 TAA (tert-amyl alcohol)는 Aldrich Chemical Co.(Milwaukee, U.S.A.)에서 구입하였다.

분석에는 Agilent 6890N gas chromatograph system을 사용하였으며, HP-5 column(5% phenyl methyl siloxane, capillary, 50.0 m × 200 µm × 0.33 µm film)과 불꽃이온화 검출기(flame ionization detector, FID)를 사용했다. GC의 운전 조건은 주입부(injector), 검출기(detector)의 온도가 각각 270°C이며, MTBE, TBA, TBF와 BTEX 분석 시 오븐 (oven) 온도는 40°C 등온 (isothermal mode)으로 7 min을 유지하였다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1. MTBE의 혐기성 생분해 특성

본 연구에서는 유류오염토양을 대상으로 다양한 환원 조건에서 MTBE의 생분해 경향을 관찰하고 자연정화 가능성을 평가하고자 하였다. 일반적으로 MTBE를 포함한 유류오염물질을 대상으로 한 자연정화(Natural attenuation)는 현장 조건(Soil texture, pH, humic substance, 수리지 질학적 특성 등)에 따라 다양하게 나타나는 것으로 알려져 있다.

토양 내 humic substance의 영향을 살펴보기 위하여 유류오염토양에서 추출한 토착미생물로만 조성된 혐기성 배지 1 mL와 humic substance가 포함된 유류오염토양 5 g을 첨가한 회분식 반응기에서 실험을 실시한 결과, 초기 분해 경향에서 약간의 차이가 있지만 모든 환원 조건에서 MTBE 농도가 1 mg/L 이하로 분해됨을 확인할 수 있었다.

Humic substance가 포함된 유류오염토양을 첨가한 회분식 반응기의 nitrate 환원 조건에서는 분해 지체기 (lag

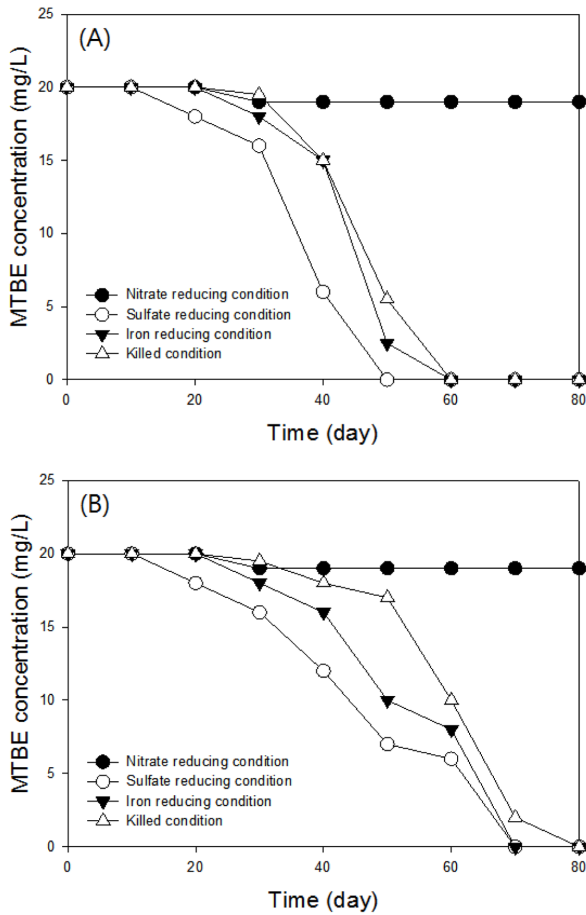


Fig. 1. Effect of humic substances in soil microcosm on anaerobic biodegradation of MTBE under various reducing conditions. Time course of anaerobic biodegradation of MTBE in gasolin contaminant soil (A) and in synthetic medium (B). The initial conc. of MTBE and BTEX was 20 mg/L, respectively. Data represents the means of duplicate analyses.

phase)가 약 10일로 나타났으며, 30일 이후부터 급격하게 분해가 이루어졌다. sulfate 환원 조건과 Fe(III) 환원 조건에서는 분해 지체기가 약 20일로 나타났으며, 30일부터 분해속도가 증가하여 40일 이후부터 급격하게 분해되었다. MTBE 단일 존재 조건에서는 모든 환원 조건에서 60일 이후에는 MTBE 농도가 1 mg/L 이하로 감소되었다 (Fig. 1(A)).

Humic substance가 포함되지 않는 혐기성 배지 1 mL를 첨가한 회분식 반응기에서는 nitrate 환원 조건에서는 lag phase가 약 10일로 나타났으며, 30일 이후부터 점진적으로 분해가 이루어졌다. sulfate 환원 조건과 Fe(III) 환원 조건에서는 lag phase가 Humic substance가 포함된 회분식 반응기와 비슷하였으나 분해속도는 상대적으로 느린 것으로 나타났으며, 모든 환원 조건에서 70일 이후에

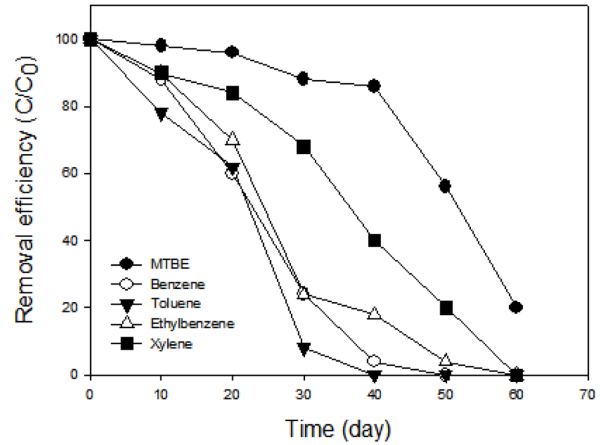


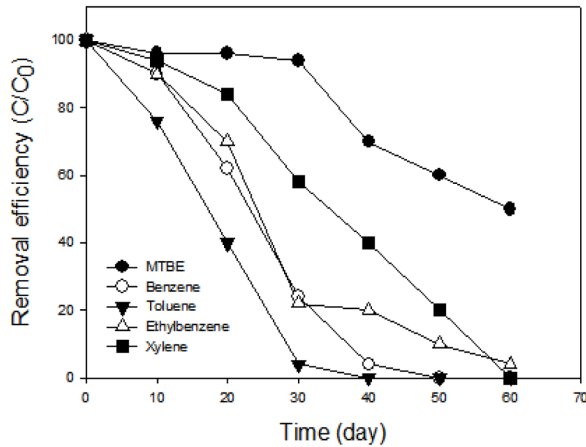
Fig. 2. Time course of anaerobic biodegradation of a mixture of MTBE and BTEX in soil sediments under nitrate reducing condition. The initial conc. of MTBE and BTEX was 20 mg/L, respectively. Data represents the means of duplicate analyses.

는 MTBE 농도가 1 mg/L 이하로 감소되었다(Fig. 1(B)). 이는 Humic substance가 존재하는 경우 humic substance는 전자의 이동을 도와주어 MTBE 생분해의 증진시킬 수 있는 것으로 판단되며, 이러한 실험 결과는 Finneran et al.(2001)가 수행한 연구결과와 유사하였다. 따라서 산소가 희박한 지하환경에서 nitrate, sulfate, iron 등 대안적인 전자수용체가 존재한다면 MTBE의 direct anaerobic oxidation이 가능할 것으로 판단되며 humic substance가 풍부한 조건에서는 MTBE의 생분해가 증진될 것으로 사료된다. 그러나 대부분의 현장에서는 낮은 분해 미생물의 숫자와 토양의 불균질성으로 인하여 오염원의 생분해를 제한되므로 사전에 MTBE의 자연정화능을 판별하여야 할 것이다.

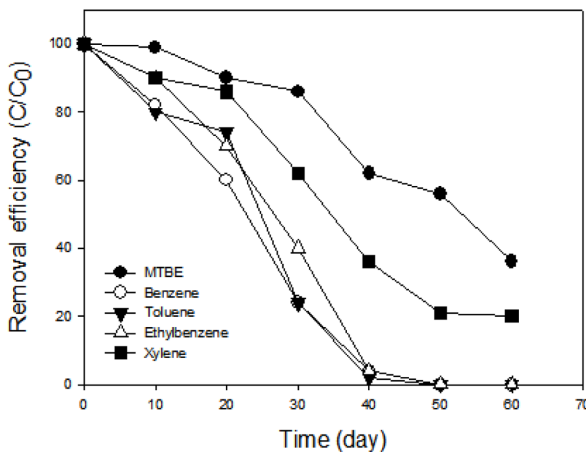
### 3.2. MTBE 및 BTEX의 혐기성 생분해 특성

본 실험에서는 다양한 환원조건에서 MTBE와 BTEX의 혼합조건 실험을 위하여 MTBE의 분해 경향을 비교하여 평가하였다. 각각 20 mg/L(액상농도)를 혼합조건으로 조정하여 주입하였다. 실험 결과, 모든 환원 조건에서 MTBE 단일 존재 조건의 MTBE 생분해 속도보다 느려져 MTBE의 생분해가 60일 이후에도 진행되었다. 각각의 환원 조건에서는 MTBE 단일조건과 비교하여 초기 지체기의 분해 경향이 BTEX의 분해정도에 따라 변화를 보였으나 뚜렷한 상관성은 나타나지 않았다(Fig. 2, Fig. 3, Fig. 4).

이는 본 토양에서 우점종 되어있는 유류분해균주가 Flavobacterium, Pseudomonas, Stenotrophomonas와 Achromobacter로(An et al., 2010b) 이들 균주들은 난분해성으



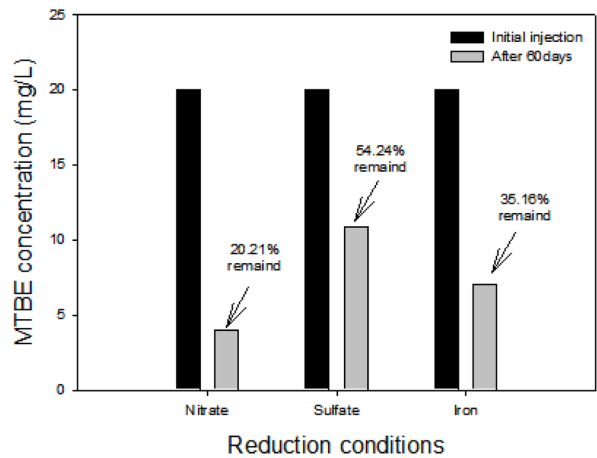
**Fig. 3.** Time course of anaerobic biodegradation of a mixture of MTBE and BTEX in soil sediments under sulfate reducing condition. The initial conc. of MTBE and BTEX was 20 mg/L, respectively. Data represents the means of duplicate analyses.



**Fig. 4.** Time course of anaerobic biodegradation of a mixture of MTBE and BTEX in soil sediments under iron(III) reducing condition. The initial conc. of MTBE and BTEX was 20 mg/L, respectively. Data represents the means of duplicate analyses.

로 알려진 BTEX, MTBE 및 PCBs(poly-chlorinated biphenyls)를 생분해 가능한 균주로(Mohd Adnan and Tan, 2007; Lee et al., 2002; Lin et al., 2007) 전자수용체에 변화에 따라 분해속도의 차이만 나타난 것으로 사료된다.

MTBE와 BTEX 혼합조건에서의 60일 후의 MTBE 잔존량을 비교하면, nitrate 환원 조건에서는 MTBE 초기 주입량의 20.2%, sulfate 환원 조건에서는 54.2%, Fe(III) 환원 조건에서는 35.2%가 잔존한 것으로 조사되었다. 동일한 기간(60일 후)에서 MTBE 생분해량은 nitrate 환원 조건, Fe(III) 환원 조건, sulfate 환원 조건의 순서로 나타났다으며, nitrate 환원 조건에서 가장 분해량이 많은 것



**Fig. 5.** Residual concentration of MTBE during 60 days in a mixture of MTBE and BTEX.

로 조사되었다(Fig. 5). 이는 탄화수소의 혐기성 대사는 산화단계로 시작되어야 하기 때문에 대체 전자수용체의 환원의 순서( $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{Fe}^{3+}$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{CO}_2$ )와 동일한 결과가 나타난 것으로 판단된다. 따라서 자연적인 조건 하에서 MTBE와 BTEX의 분해속도 및 산화능은 전자수용체의 친화도에 따라 결정되며, MTBE 생분해에 이용 가능한 대안적인 전자수용체가 존재한다면 자연정화에 필요한 긴 처리시간을 단축시킬 수 있을 것으로 사료된다.

본 실험에서 BTEX의 1차 반응속도는 benzene의 경우, nitrate( $0.106 \text{ day}^{-1}$ ), Fe(III)( $0.106 \text{ day}^{-1}$ ) > sulfate ( $0.103 \text{ day}^{-1}$ ) 환원 조건의 순서로 빠르게 나타났고, toluene은 sulfate( $0.133 \text{ day}^{-1}$ ) > nitrate( $0.128 \text{ day}^{-1}$ ) > Fe(III)( $0.11 \text{ day}^{-1}$ ) 환원 조건의 순서였으며, ethylbenzene은 Fe(III) ( $0.102 \text{ day}^{-1}$ ) > nitrate( $0.081 \text{ day}^{-1}$ ) > sulfate( $0.053 \text{ day}^{-1}$ ) 환원 조건의 순서를 보였고 마지막으로 p-xylene의 경우에는 nitrate( $0.056 \text{ day}^{-1}$ ) > sulfate( $0.037 \text{ day}^{-1}$ ) > Fe(III) ( $0.031 \text{ day}^{-1}$ ) 환원 조건의 순서를 나타냈다. MTBE와 BTEX 혼합 존재시의 BTEX의 생분해 순서는 모든 환원 조건에서 평균적으로 toluene, benzene, ethylbenzene, p-xylene의 순서로 생분해가 빠른 것으로 나타났다(Table 3).

60일 이후 BTEX의 농도 감소는 각각의 환원 조건에 따라 약간 다른 경향을 보였으며, benzene, toluene, ethylbenzene의 경우에는 모든 환원 조건에서 60일 정도에 상당히 감소했으나 p-xylene의 경우에는 nitrate 환원 조건에서만 60일 정도에 2 mg/L 이하로 감소되었을 뿐 나머지 sulfate, Fe(III) 환원 조건에서는 계속적으로 분해가 이루어져 1 mg/L 이하로 감소되는데 60일 이상의 분해 시간이 필요한 것으로 나타났다.

**Table 3.** The first order degradation rate constant of BTEX on the mixture MTBE and BTEX

| Electron acceptor | Sample                    | Degradation rate (day <sup>-1</sup> ) |       |
|-------------------|---------------------------|---------------------------------------|-------|
| Nitrate           |                           | B                                     | 0.106 |
|                   |                           | T                                     | 0.128 |
|                   |                           | E                                     | 0.082 |
|                   |                           | X                                     | 0.056 |
| Sulfate           | Gasoline contaminant soil | B                                     | 0.103 |
|                   |                           | T                                     | 0.133 |
|                   |                           | E                                     | 0.053 |
|                   |                           | X                                     | 0.037 |
| Iron              |                           | B                                     | 0.106 |
|                   |                           | T                                     | 0.110 |
|                   |                           | E                                     | 0.102 |
|                   |                           | X                                     | 0.031 |

#### 4. 결 론

본 실험에서는 MTBE가 단일로 존재시보다 MTBE와 BTEX 혼합시에 MTBE의 분해율이 저하되었다. Pruden 등<sup>2)</sup>은 MTBE 분해균주를 이용한 실험에서 MTBE와 BTEX의 상호작용에 대한 실험을 수행하였는데, MTBE 단일 조건과 MTBE, BTEX 혼합조건에서의 생분해 경향을 비교해보면, MTBE와 BTEX의 농도가 약 7 mg/L로서 농도가 낮을수록 MTBE의 생분해 속도에는 거의 영향을 미치지 않았지만, 그보다 높은 농도인 약 45 mg/L에서는 MTBE의 생분해가 저해되었으며, BTEX의 생분해 속도도 감소되었다.

혼합조건시 단일조건과 비교하면, 미생물 성장 또한 MTBE와 BTEX의 농도가 낮을수록 영향을 받지 않지만, 농도가 높아지면 미생물 성장 속도가 둔화되는 것으로 나타났다. 이는 본 실험과 유사한 결과로서, 혐기성 상태의 환원 조건에서 BTEX와 MTBE가 고농도로 존재 시에는 상호간에 생분해 억제제(inhibitor)로 작용하는 것으로 생각되며, MTBE와 BTEX 혼합조건에서 화학종간의 상호 경쟁관계(competitive interactions)에 있는 것으로 사료된다. 그러나 BTEX 중 toluene은 탄소원으로 쉽게 이용이 가능하며, 물질대사에 촉진작용이 발생되므로 본 실험에서 toluene의 생분해 속도가 BTEX 중 가장 빠른 것과 상관성이 있다고 판단된다.

따라서 유류오염토양의 토착미생물이 MTBE와 BTEX를 전자공여체로 이용할 경우, 산소 이외에 nitrate, sulfate, iron(III)을 전자수용체로 이용하여 상호 경쟁적으로 MTBE와 BTEX의 동시 생분해능력을 지닌 것으로

나타났다. Hutchins 등의 연구결과에서 보고된 것과 같이 생분해율(biodegradation rate)은 각각 다른 오염 농도와 solid/liquid 비율을 가지는 현장 미생물에 의존되므로 유류오염현장 토양의 성상과 특성에 따라 MTBE와 BTEX를 생분해 능력을 지닌 토착 혼합미생물의 활성정도가 상이하고 생분해 경향이 다양할 것으로 사료된다.

#### 감사의글

본 연구는 2013학년도 (2016년) 경기대학교 대학원 연구원장학생 장학금 지원에 의하여 수행되었음.

#### References

- An, S.W. and Chang, S.W., 2004, Analysis of MTBE and TBA using SPME technique with GC/FID, *J. Korean Soc. Environ. Anal.*, **7**(2), 83-89 (in Korean with English abstract).
- An, S.W., Chun, S.Y., Lee, S.J., Park, J.W., and Chang, S.W., 2010a, Competitive extraction an BTEX and MTBE by d trace analysis of Solid-phase Microextraction (SPME), *J. Korean Soc. Water Environ.*, **26**(4), 622-628 (in Korean with English abstract).
- An, S.W., Lee, S.J., Park, J.W., and Chang, S.W., 2010b, Characterization of MTBE (Methyl Tertiary Butyl Ether) utilizing bacteria from the gasoline contaminated soils, *J. Korean Geo-environ. Soc.*, **11**(4), 43-50 (in Korean with English abstract).
- Black, L. and Fine, D. 2001, High levels of monoaromatic compounds limit the use of solid-phase mictoextraction of MTBE and TBA, *Environ. Sci. Technol.*, **35**(15), 3190-3192.
- Bin, L., Van Berseveld, H.W., and Gling, W.F.M., 2002, Microbial aspects of anaerobic TEX degradation, *Biomed. Environ. Sci.*, **15**, 130-144.
- Finneran, K.T. and lovley, D.R., 2001, Anaerobic degradation of MTBE and TBA, *Environ. Sci. Technol.*, **35**, 1785-1790.
- Hutchins, S.R., Moolenaar, S.W., and Rhodes, D.E., 1992, Batch and Column Studies on BTEX Biodegradation by Aquifer Microorganisms under Denitrifying Conditions, ESL TR-92-16, Engineering and Services Laboratory, Headquarters Air Force Engineering Services Center, Tyndall AFB, FL.
- Hutchins, S.R., 1997, Effect of microcosm preparation on rates of toluene biodegradation under denitrifying coditions, *J. Ind. Microbiol. Biotechnol.*, **18**, 170-176.
- Kim, M.G., Jung, R.K., Shin, J.N., and Baik, H.H., 2004, A study on the BTEX contamination in soil around gas station, *J. Korean Soc. Environ. Anal.*, **7**(3), 135-141 (in Korean with English abstract).
- Kim, W.S., Kim, J.E., Baek, J.H., and Sang, B.I., 2005, Effect of

- electron acceptors on the Anaerobic biodegradation of BTEX and MTBE at contaminated sites, *J. Korean Soc. Water Qual.*, **21**(4), 403-409 (in Korean with English abstract).
- Kolb, A. and Puttmanna, W., 2006, MTBE in snow samples in Germany, *Atmos. Environ.*, **40**(1), 76-86.
- Lee, E.Y., Jun, Y.S., Cho, K.S., and Ryu, H.W., 2002, Degradation characteristics of BTEX by *Stenotrophomonas maltophilia* T3-c, *J. Air Waste Manag. Assoc.*, **52**, 400-405.
- Lin, C.W., Cheng, Y.W., and Tsai, S.L., 2007, Multi-substrate biodegradation kinetics of MTBE and BTEX mixtures by *Pseudomonas aeruginosa*, *Process Biochem.*, **42**, 1211-1217.
- Mohd Adnan, A.F. and Tan, I.K., 2007, Isolation of lactic acid bacteria from Malaysian foods and assessment of the isolates for industrial potential, *Bioresource Technol.*, **98**, 1380-1385.
- Oh, I.S., Lee, C.Y., Lee, J.I., Kim, J.T., and Chyang, S.W., 2014, Microcosm study on BTEX and MTBE (Methyl Tert-Butyl Ether) biodegradation under aerobic-anaerobic conditions, *J. Korean Geo-environ. Soc.*, **15**(5), 39-46 (in Korean with English abstract).
- Park, Y.H., Cho, J.S., Kim, M.J., Kong, S.H., Park, J.K., and Juung, C.S., 2002, Study on risk management and the need for fuel additive MTBE, Korea Environ. Inst. (in Korean with English abstract).
- Pruden, A. and Suidan, M., 2004, Effect of Benzene, Toluene, Ethylbenzene, and p-Xylene Mixture on Biodegradation of Methyl tert-Butyl Ether (MTBE) and tert-Butyl Alcohol (TBA) by Pure Culture UC1, *Biodegradation*, **15**, 213-227.
- Robert, C.B., Robert, A.D., Louis, E.L.I.V., and Charles, W.D., 1997, Intrinsic biodegradation of MTBE and BTEX in gasoline-contaminated aquifer, *Water Resour. Res.*, **33**(5), 1105-1115.
- Smith, C.A., O'Reilly, K.T., and Hyman, M.R., 2003, Characterization of the initial reactions during the cometabolic oxidation of methyl tert-Butyl ether by propane-grown *Mycobacterium vaccae* JOB5, *Appl. Environ. Microb.*, **69**(2), 796-804.
- Steffan, R.J., McClay, K., Vainberg, S., Condee, C.W. and Zhang, D., 1997, Biodegradation of the Gasoline Oxygenates Methyl tert-Butyl Ether, Ethyl tert-Butyl Ether, and tert-Amyl Methyl Ether by Propane-Oxidizing Bacteria, *Appl. Environ. Microb.*, **63**, 4216-4222.
- Waul, C., Arvin, E., and Schmidt, J.E., 2009, Long term studies on the anaerobic biodegradability of MTBE other gasoline ethers, *J. Hazard. Mater.*, **163**(1), 427-432.
- Yeh, C.K. and Novak, J.T., 1994, Anaerobic biodegradation of gasoline oxygenates in soils, *Water Environ. Res.*, **66**, 744-752.