# Relationships between Biodegradation and Sorption of Phenanthrene in Slurry Bioremediation

우승한<sup>1,2</sup>, 박종문<sup>1</sup>, Bruce E. Rittmann<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 포항공과대학교 화학공학과/환경공학부 <sup>2</sup> Department of Civil Engineering, Northwestern University

## **ABSTRACT**

Bioremediation of hazardous hydrophobic organic compounds, such as polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs), is a major environmental concern due to their toxic and carcinogenic properties. Due to their hydrophobicity, the hydrophobic organic compounds are mainly associated with the soil organic matter or nonaqueous-phase liquids. A major question concerns the relationships between biodegradation and sorption. This work develops and utilizes a non-steady state model for evaluating the interactions between sorption and biodegradation of phenanthrene, a 3-ring PAH compound, in soil-slurry systems. The model includes sorption/desorption of a target compound, its utilization by microorganisms as a primary substrate existing in the dissolved phase and/or the sorbed phase in biomass and soil, oxygen transfer, and oxygen utilization as an electron acceptor. Biodegradation tests with phenanthrene were conducted in liquid and soil-slurry systems. The soil-slurry tests were performed with very different mass transfer rate: fast mass transfer in a flask test at 150 rpm, and slow mass transfer in a roller-bottle test at 2 rpm. In the slurry tests, phenanthrene was degraded more rapidly than in liquid tests, but with a similar rate in both slurry systems. Modeling analyses with several hypotheses indicate that a model without biodegradation of compound sorbed to the soil was not able to account for the rapid degradation of phenanthrene, particularly in the roller bottle slurry test. Reduced mass-transfer resistance to bacteria attached to the soil is the most likely phenomenon accounting for rapid sorbed-phase biodegradation.

**Key words:** phenanthrene, biodegradation, soil slurry, sorbed-phase

#### I. 서 론

다환방향족 탄화수소 (Polycyclic Aromatic Hydrocarbons, PAHs)와 같은 유해성 유기물질은 발암성과 유독성으로 인해 주요 환경문제의 원인중 하나로 인식되어 왔다. 이러한 물질들은 화석연료의 불완전 연소나, 석유류의 수송, 사용, 처분시의 환경사고 등으로 인해 자연계에 방출된다. 이 물질의 소수성 때문에 주로 토양 유기물질이나 NAPL 층에 존재하게 된다. 따라서, 이들 물질의 생분해와 흡착의 상호 관계는 생물학적 복원기술의 적용 및 해석에 있어 중요한 문제가 된다. 본연구는 미생물 또는 토양에 흡착된 소수성 유기물질이 직접적으로 생분해될 수 있는가에 대한 실험 및 모델링 연구에 관해 보고하고자 한다.

현재까지의 연구에 의하면 수용액에 존재하는 유기물질만이 미생물에 의해 분해된다는 보고가 있는 반면 흡착된 유기물질도 분해되는 것으로 보고한 경우도 있다. 후자의 경우 미생물이 존재하지 않은 경우의 탈착속도보다 미생물이 존재할 경우 제거속도가 더 빠르게 나타나고 있다<sup>1</sup>. 이 때, 사용된 대상물질은 phenanthrene naphthalene, phenol 등이 있으며, 흡착제로는 glass bead, 활성탄, 폴리머, 점토류 및 일반 토양등이 사용되었다. 이와 같은 현상은 미생물에 의해 탈착을 향상시키는 어떤 기작이 필요하게 되고 그것으로서 계면활성제의 분비, 화학물질과 미생물표면과의 직접적 접촉에 의한 섭취 등이 제시되고 있다. 본 연구에서는 세 번째 기작으로서 미생물에 의한 물질전달 저항의 감소를 제안하고자 한다.

이러한 연구는 실험적으로 명확하게 증명하기 곤란한데, 그 이유는 대부분의 유기물질이 흡착제에 흡착되어 있다 하더라도 그 일부는 여전히 수용액 상에 존재하기 때문이다. 따라서, 본 연구에서는 실험적으로 이러한 현상을 찾아내고, 모델링으로 여러 가지 가정에 대해 검정하는 방식으로 증명하고자 한다. 본 연구의 목적은 1) 토양-수용액 계에서 미생물과 유기물질 사이의 상호관계를 설명할 수 있는 모델의 확립, 2) 모델과 실험 데이터를 활용한 "sorbed-phase biodegradation" 현상의 평가, 3) 미생물 분해 현상을 설명할 수 있는 적절한 모델 파라미터의 확립이다. 본 논문에서는 실험 결과에 대해서 주로 논하고자 한다.

## II. 실험방법

실험에 사용된 미생물은 phenanthrene 분해 미생물로 분리된 혼합 미생물을 사용하였고, 미생물 분리, 배양방법, 토양의 특성, 분석방법은 참고문헌 3에 자세하게

기술하였다. 본 실험에서는 표 1과 같이 4 종류의 각각 다른 조건에 대해 미생물 분해를 조사하였다. Test LM은 배지용액에 soluble phenanthrene만 포함한 것을 사용하였고, Test LE는 토양의 유기물 성분이 생분해에 미치는 영향을 조사하기 위해 토양 추출물을 첨가한 것이다. Test SF는 토양이 첨가된 슬러리 용액이며 빠른 물질전달에 대해 조사하기 위해 150 rpm의 조건에서 삼각플라스크에서 실험한 것이며, Test SR은 같은 슬러리 용액을 사용하여 느린 물질전달 조건인 2 rpm에서 roller bottle 실험을 한 것이다. 각각의 조건에 대해 미생물 수와 수용액 상 및 토양내의 phenanthrene 농도를 측정하였다.

Table 2. Brief descriptions of experimental tests.

Description
Biodegradation test in liquid phase with pure salt medium <sup>a</sup>
Biodegradation test in liquid phase with soil extract salt medium b
Biodegradation test in soil slurry phase using a flask system
Biodegradation test in soil slurry phase using a roller bottle system

<sup>&</sup>lt;sup>a</sup> mineral salt medium + only dissolved phenanthrene.

#### III. 결과 및 고찰

그림 1에서 보는 바와 같이 미생물이 첨가되지 않은 조건에서는 수용액 또는 슬러리에서 실험기간동안 (2주) 거의 분해되지 않았다. 그러나, Test LM과 같이 미생물이 첨가될 경우 170 시간 경과 후 대부분의 phenanthrene이 (초기 0.7 mg/L) 생분해되었다. 토양추출물이 첨가된 Test LE의 경우 분해속도 및 적응시간에 있어 Test LM과 유사한 결과를 얻었다. 이것은 탄소원과 에너지원이 되는 토양유기물이 유해물질인 phenanthrene 분해에 큰 영향을 미치지 않았다는 것을 암시한다.

토양이 첨가된 Test SF의 경우, 모두 분해되는 데 소요된 시간은 72 시간이며 실제 분해 기간도 30 시간 정도로 Test LM이나 LE보다 빠른 분해속도를 보여주었다. 이것은 토양에 의해 분해속도가 증가되었음을 의미하며, Test LE에서 알수 있는 것과 같이 그 원인은 토양내 유기물이 아니라, 토양 입자의 물리적 존재라는 것을 알 수 있다. Test SR과 같이 느린 물질전달 속도에서도 Test SF와 유사한

<sup>&</sup>lt;sup>b</sup> soil extract + mineral salt medium + only dissolved phenanthrene.

분해속도를 보여주었다 (그림 2), 이것은 느린 물질전달 속도가 전체 분해속도를 감소시키는 요인으로 작용할 것이라는 예상과 다르며 이는 토양 입자의 표면이 분해속도를 향상시키는 요인으로 작용했음을 의미한다.

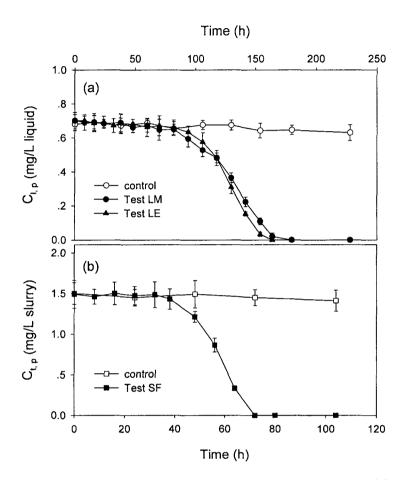


Figure 1. The degradation rate of phenanthrene in the flask tests. (a) liquid tests (b) slurry tests.

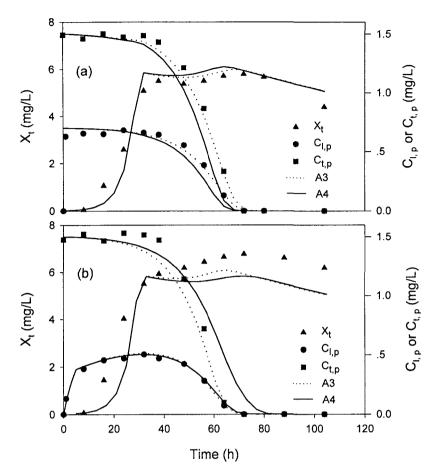


Figure 2. Experimental results for slurry tests and model-predicted values using hypothesis A3 and A4. (a) flask test (Test SF), (b) roller bottle test (Test SR). Symbols and lines are experimental and model data, respectively. Xt is cell density, Cl,p is phenanthrene concentration in liquid phase, and Ct,p is phenanthrene concentration in total.

그림 2의 모델링 그래프는 본 시스템에 대해 "sorbed-phase biodegradation"을 고려하여 세운 모델의 결과이다<sup>4,5</sup>. 모델링에서 여러 가지 가정에 대해 조사하였는데, sorbed-phase biodegradation을 고려하지 않은 경우 Test SR의 빠른 분해속도를 예측할 수 없었다. 반면, 이러한 영향을 고려한 경우 모든 실험 결과를 같은 분해 파라미터를 사용하여 모델로 예측할 수 있었다.

# IV. 결 론

본 실험을 통하여 토양 슬러리에서의 소수성 유기물질의 분해속도가 순수 수용액

상에서의 분해속도보다 더 빠른 경우를 발견할 수 있었으며, 또한 물질 전달 속도가 느려 유기물질의 탈착을 저해하는 경우에도 빠른 분해속도를 얻을 수 있었다. 이와 같은 빠른 분해 속도는 토양 입자의 표면에서 유기물질의 탈착과 동시에 미생물이 제거하여 물질전달 저항을 감소시키는 기작으로 설명되어 질 수 있다. 이러한 기작은 본 연구에서 수행한 모델링 작업에 의해 설명되어 질 수 있었다. 본 연구에서 얻은 결과는 흡착된 어떤 물질이 생분해되는 현상을 이해하는 데 도움을 줄 수 있으며, 토양 슬러리 계뿐만 아니라, 자연계 토양에서의 생분해 현상, 수처리, 바이오필터시스템 등에도 적용될 수 있을 것이다. 한편, 생물학적 복원 문제에 있어서도물질전달 속도가 항상 저해요소가 되는 것은 아니며, 계면 활성제의 첨가나 혼합이오히려 에너지와 비용만 증가시키고 실제 분해속도가 크게 향상되지 않는 경우도있음을 예상할 수 있다.

#### 참 고 문 헌

- 1. Guerin WF, Boyd SA. 1992. Differential bioavailability of soil-sorbed naphthalene to two bacterial species. *Appl Environ Microbiol* 58(4):1142-1152.
- 2. VanBriesen JM, Rittmann BE. 2000. Mathematical description of microbiological reactions involving intermediates. *Biotechnol Bioeng* 67(1):35-52.
- 3. Woo SH, Park JM. 1999. Evaluation of drum bioreactor performance used for decontamination of soil polluted with polycyclic aromatic hydrocarbons. *J Chem Technol Biotechnol*, 74(10):937-944.
- 4. Woo SH, Park JM, Rittmann BE. 2000. Evaluation of the Interaction between Biodegradation and Sorption of Phenanthrene in Soil-Slurry Systems, *Biotechnol Bioeng*, in print.
- 5. Woo SH, Rittmann BE. 2000. Microbial energetics and stoichiometry for biodegradation of aromatic compounds involving oxygenation reactions, *Biodegradation*, in print.