

## Single Well Push-Pull Test를 이용한 TCE 오염 지하수의 In-Situ Bioremediation 타당성조사

김 영, Jonnathan Istok\*, Lewis Semprini\*

고려대학교, 환경시스템공학과, kimyo@korea.ac.kr

\*\* Oregon State University, Department of Civil, Construction, & Environmental Engineering

### 요약문

Single-well-push-pull tests were developed for use in assessing the feasibility of in-situ aerobic cometabolism of chlorinated aliphatic hydrocarbons (CAHs). The series includes Transport tests, Biostimulation tests, and Activity tests. Transport tests are conducted to evaluate the mobility of solutes used in subsequent tests. These included bromide or chloride (conservative tracers), propane (growth substrate), ethylene, propylene (CAH surrogates), dissolved oxygen (electron acceptor) and nitrate (a minor nutrient). Tests were conducted at an experimental well field of Oregon State University. At this site, extraction phase breakthrough curves for all solutes were similar, indicating apparent conservative transport of the dissolved gases and nitrate prior to biostimulation. Biostimulation tests were conducted to stimulate propane-utilizing activity of indigenous microorganisms and consisted of sequential injections of site groundwater containing dissolved propane and oxygen. Biostimulation was detected by the increase in rates of propane and oxygen utilization after each injection. Activity tests were conducted to quantify rates of substrate utilization and to confirm that CAH-transforming activity had been stimulated. In particular, the transformation of injected CAH surrogates ethylene and propylene to the cometabolic byproducts ethylene oxide and propylene oxide provided evidence that activity of the monooxygenase enzyme system, responsible for aerobic cometabolic transformations of CAHs had been stimulated. Estimated zero-order transformation rates decreased in the order propane > ethylene > propylene. The series of push-pull tests developed and field tested in this study should prove useful for conducting rapid, low-cost feasibility assessments for in situ aerobic cometabolism of CAHs.

**Key word:** trichloroethylene (TCE), single well push-pull test, chlorinated aliphatic hydrocarbons (CAHs), propane-oxidizing microorganisms, TCE surrogates

### 1. 서론

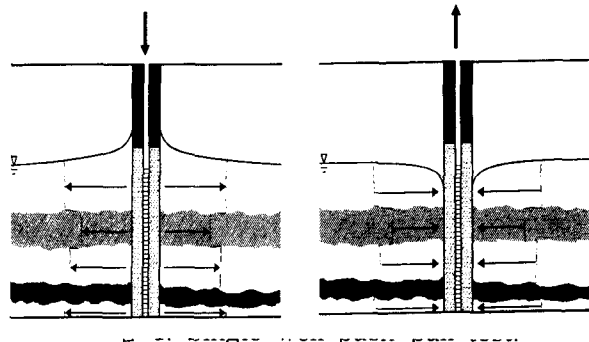
토양 및 지하수 오염을 유발하는 유기화합물 중 trichloroethylene (TCE), 1,1,1-trichloroethane(1,1,1-TCA) 등으로 대표되는 염소계 탄수화물들(Chlorinated Aliphatic Hydrocarbons; CAHs)이 지하수의 주 오염물질로 나타나고 있다 (환경부, 1993). CAHs는 활성슬러지법과 같은 일반적인 생물학적처리로는 제거가 어렵기 때문에 aerobic cometabolism (AC)과 anaerobic reductive dechlorination (ARD)을 이용하여 처리하는 것으로 보고되고 있다 (Semprini, 1995, 1997; Perry McCarty와 Semprini, 1993). CAHs로 오염된 지하수를 생물학적으로 복원하기 위해서는 타당성 조사가 선행되어야한다. 현재까지의 타당성 조사는

오염 지역에서 채취한 미량의 토양과 지하수를 이용한 실험실 microcosm test와 현장 well-to-well pilot test에 의해 이루어졌다 (Semprini 와 McCarty, 1992). 이 방법은 제한된 수의 오염지역에서 성공적으로 수행되었으나, 미량의 토양시료를 이용한 microcosm test 결과의 대표성 문제와 well-to-well test 결과해석의 어려움 등의 문제가 있다. 따라서, 본 연구에서는 오염지역의 생물학적, 수리학적 특성을 조사하는 방법으로 개발된 single well push-pull test (Istok 등, 1997)를 propane 산화 미생물을 이용한 AC의 생물학적복원 타당성 조사방법으로 개발하는데 있다.

## 2. 본론

single-well push pull 실험은 Oregon State University의 실험현장에 설치되어 있는 모니터링 정을 이용하여 수행하였다. 그림 1은 single well push-pull test를 도식화 한 것이다. 현장 single well push-pull 실험은 미생물 성장기질(propane), 용존산소, 미생물 영양소 (질산성 질소), tracer (bromide)등이 녹아 있는 test solution을 지하수로 준비하여 정 내로 주입(push phase) 한 후, 미생물 반응이 일어나도록 일정 시간동안 지하수내에 체류하게 한 후(rest phase) 양수(pull phase)의 단계로 구성된다. 주입과 양수 시 시료를 채취하여, 기질, bromide, 미생물 반응부산물 등의 농도를 측정하고, 양수시의 breakthrough curve를 작성하여 기질의 분해속도, 부산물의 생성속도를 결정하였다.

(1) test solution 주입 (push)                      (2) test solution 양수 (pull)



Single well push-pull test는 push-pull transport, biostimulation, push-pull activity 실험 순으로 진행되었다. Push-pull transport test를 통하여 propane, 용존산소, bromide 등의 지하수 내의 거동을 조사하였으며, biostimulation test를 통하여 propane 산화 미생물들의 현장존재여부를 조사하였다. Push-pull activity test를 통하여 성장한 현장 미생물들의 CAH 분해능력을 조사하였다. 오염지역에서의 CAH 농도 분포는 균등하지 않아, 현장실험 시 CAH의 농도 감소가 미생물분해에 의한 결과인지, 혹은 지하수 흐름에 의한 희석 결과인지를 구별하기 어렵다. 따라서, CAH 분해능력 측정 시 CAH 대체물질이 필요하다. 본 연구에서는 TCE와 분자구조가 유사한 ethylene과 propylene을 CAH 대체물질로서의 가능성을 평가하였다.

push-pull transport 실험결과를 토대로 한 각 용질의 회수율 (recovery)은, 표 1에 나타난 바와 같이 용질들 (propane, ethylene, propylene, 용존산소, 질산성 질소)의 회수율은 Br<sup>-</sup>의 회수율 (~ 50%)과 비슷한 것으로 나타났다. 즉, 지하수나 토양입자와의 물리적 (sorption 등), 화학적 (토양입자 성분과의 화학적 산화/환원 반응 등) 반응에 의해 retardation 혹은 분해되지 않는 것으로 나타났다.

표 1. push-pull transport 실험에 사용된 용질의 종류, 양 및 제거속도

Test type	Quantities	Propane	Ethylene	Propylene	Oxygen	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> -N	Br <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>
Transport	Injected Mass (mmol)	4.7	0.43	46	37	6.4	54	
	Extracted mass (mmol)	2.4	0.24	28	23	3.4	27	
	% recovery	50	57	61	64	53	50	
	Zero-order rate (μmol/L/hr)	≈ 0	≈ 0	≈ 0	≈ 0	≈ 0	-	

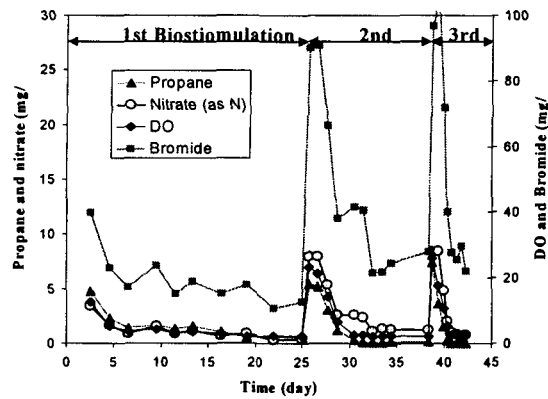


그림 2. Biostimulation 실험결과

그림 2는 propane, bromide, 용존산소, nitrate가 용해된 100 L의 test solution을 반복주입 후 각 용질농도의 시간에 따른 변화를 나타낸 것이다. 1차 주입후 propane은 지하수흐름에 의해 희석되거나 미생물에 의해 분해되는데 약 25 일이 소요되었다. 2차 주입후에는 약 7 일, 3차 주입후에는 약 3일 소요되어 propane 제거속도가 반복적인 주입으로 증가되는 것으로 나타났다. 이 결과로 propane 산화 미생물이 현장에 존재하여 성장했음을 알 수 있다.

Biostimulation 실험에서 성장한 propane 산화 미생물의 CAH 분해능력을 측정하기 위하여 push-pull activity 실험을 수행하였다. propane 산화 미생물에 의해 ethylene과 propylene이 cometabolism에 의해서 분해되어, 분해 부산물로 ethylene oxide와 propylene oxide가 검출되었다. 이 결과로 현장에서 성장한 propane 산화 미생물은 TCE 분해시 사용하는 monooxygenase 효소를 이용하여 ethylene 과 propylene을 분해했다는 것을 알 수 있다. Mass balance 결과에 의하면 propane, ethylene, propylene 의 영차 반응 분해속도는 각각 3.6, 2.6, 1.4 micromol/L/hr 로 나타났다.

### 3.결론

본 연구에서 제시된 single well push-pull test 방법으로 관심있는 미생물의 현장 존재여부, CAH 분해능력, 기질 분해속도를 효율적으로 도출할 수 있었다. 그러므로, TCE로 오염된 지하수의 생물학적복원 타당성을 평가하는데 경제적이고 효율적인 방법으로 사료된다. 이 방법은 또한 질산성 질소, BTEX 등의 다른 지하수 오염물질들의 복원 타당성 조사에도 효율적이라 사료된다.

#### 4. 참고문헌

- Istok, J.D., M.D. Humphrey, M.H. Schroth, M.R. Hyman, and K.T. O'Reilly. 1997. Single-well, push-pull test method for in situ determination of microbial metabolic activities. *Ground Water* 35, no.4: 619-631.
- McCarty, P. L. and L. Semprini. 1993. Ground-water treatment of chlorinated solvents. In *Handbook of Bioremediation*, Lewis Publisher Inc., Chelsea, MI, pp87-116.
- Semprini, L. 1995. In situ bioremediation of chlorinated solvents. *Environmental Health Perspectives*. 103: 10-105.
- Semprini, L. 1997. Strategies for the aerobic co-metabolism of chlorinated solvents. *Curr. Opin. Biotechnol.* 8: 296-308.
- Semprini, L. and P. L. McCarty. 1992. Comparison Between Model Simulations and Field Results for In-Situ Bioremediation of Chlorinated Aliphatics: Part2. Comatabolic Transformation. *Ground Water*. 30(1): 225-231.
- 환경부(1998) 지하수 수질기준 타당성 검토 및 조정방안 연구.