http://dx.doi.org/10.15433/ksmb.2017.9.1.008

ISSN 2383-5400 (Online)

중력 여과장치 이용 미세조류 수확을 위한 여과막의 효율성 비교

Comparison of Filtration Efficiency of Membranes for Harvesting Microalgae using a Gravity—Filtration Device

신동우¹, 조용희¹, 김기현¹, 김한별¹, 박한울¹, 김지훈^{1,2}, 임상민¹, 이철균^{1*}

Dong-Woo Shin¹, Yonghee Cho¹, Ki-Hyun Kim¹, HanByeol Kim¹, Hanwool Park¹, Z-Hun Kim^{1,2}, Sang-Min Lim¹, Choul-Gyun Lee^{1*}

¹해양바이오에너지 생산기술개발연구센터 & 인하대학교 생물공학과, 인천광역시 남구 인하로 100, 22212, 대한민국

(Received 23 May 2017, Revised 19 June 2017, Accepted 27 June 2017)

Abstract Cost-effective microalgae harvesting methods are necessary for economical production of algal biodiesel. In this study, membranes with various pore sizes and materials were examined for their potentials in application to gravity-filtration of *Tetraselmis* sp. KCTC12432BP. For this test, 10 L of *Tetraselmis* sp. culture (2 g/L) was loaded on each membrane and filtration rates were measured. Among the tested materials, a woven cotton fabric showed the fastest water drain rate (0.73 L/hr) without serious cell leakage. Cell density of the concentrates after filtration was 6.8 g/L, indicating 3.4-fold concentration compared with the initial algal culture. The result suggests that the woven cotton fabric could serve as filtration membrane for harvesting *Tetraselmis* sp. among the tested ones.

Keywords: microalgae, Tetraselmis sp., filtration, harvest, membrane

서 론

현재 사용되는 에너지의 대부분은 화석연료에 의해 공급되고 있다. 이러한 연료는 매장량이 한정되어 있어 향후 산업동력을 이끌어갈 새로운에너지의 개발이 시급한 실정이다 [1, 11]. 이와동시에 화석연료의 사용은 대기오염의 주범인 이산화탄소를 발생시켜 대기오염을 초래하고 있다. 이런 문제들을 동시에 해결하고자 다양한 대

체 바이오에너지원들이 활발히 개발되고 있다 [3]. 그 중에서도 미세조류는 제 3세대 바이오에 너지원으로서 높은 광합성 속도를 기반으로 하여 생장속도가 빠르고, 지질함유량이 높아 기존의 육상 작물을 이용한 바이오에너지 생산보다 많은 장점을 지니고 있다 [4].

그럼에도 불구하고, 현재까지의 미세조류 바이 오매스 생산은 경제성을 갖추지 못하고 있다. 따라서 현재 미세조류 배양, 수확, 지질 추출 및 전

* Corresponding author

Phone: +82-32-872-7518 Fax: +82-32-873-7518

E-mail: <u>leecg@inha.ac.kr</u>

This is an open-access journal distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (http://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/)

²국립낙동강생물자원관 담수생물배양실 배양기술개발부, 경상북도 상주시 도남 2길 137, 37242, 대한민국

¹National Marine Bioenergy Research Consortium & Department of Biological Engineering, Inha University, Incheon-si 22212, Republic of Korea

²Culture Techniques Division, Freshwater Bioresources Culture Research Division, Nakdonggang National Institute of Biological Resources, Sangju-si, Gyeongsangbuk-do 37242, Republic of Korea

환 등의 각각의 공정 및 요소기술의 개발이 활발히 이루어지고 있다 [8, 13]. 그 중에서도 수확은 미세조류의 작은 크기와 낮은 미세조류 농도(<1~10 g/L)에 기인하여 큰 어려움이 있어 개발되어야할 요소 기술 중 하나이다 [14]. 실제로 미세조류 회수 비용은 바이오매스 생산 전체 비용의 20 - 30%를 차지하고 있다 [18]. 따라서 저비용의효율적인 미세조류 회수 방법의 개발은 경제성을 갖춘 미세조류 바이오매스 생산에 필수적이다.

미세조류 수확은 현재 주로 물리적, 그리고 화 학적인 방법으로 이뤄지고 있다. 물리적인 방법 으로는 여과, 원심분리, 중력에 의한 침전, 미세 공기방울을 이용한 부유 방법(dissolved air flotation)이 대표적이고, 화학적인 방법으로는 응집제 를 이용한 회수 방법이 대표적이다 [2]. 이들 중 화학적 회수 방법은 화학적 처리제의 비용과 미 세조류 배양액의 재사용을 불가능하게 할 수 있 는 위험이 존재하고, 환경적 문제도 발생하게 된 다. 또한 물리적 방법인 여과, 원심분리, 미세 공 기방울을 이용한 부유 방법 역시 배양액을 이송 하거나 폭기를 위한 에너지 사용을 필요로 한다. 이에 반해, 중력을 이용한 침전 방법의 경우는 비 용이 들지 않지만, 많은 시간을 소요하고 미세조 류 회수 효율이 낮다 [2]. 그러나 별도의 에너지가 요구되지 않으며, 적절한 소재를 이용하여 세포 를 회수한다면 경제성이 우선시되어야 될 바이오 에너지 생산 공정에 적합할 수 있을 것이다.

따라서 본 연구에서는 에너지를 소모 하지 않는 중력 여과법에 적합한 거름막을 선정하고자하였다. 다양한 재질과 공극을 갖는 6 종의 거름막을 이용해 미세조류 회수 효율, 투수도 등을 시험 분석하여 미세조류 회수에 적절한 거름막을 선정하고자 하였다.

재료 및 방법

사용균주 및 균주 유지 방법

본 연구센터가 대한민국, 영흥도 연안에서 분리한 미세조류 *Tetraselmis* sp. KCTC12432BP를 f/2-Si 배지를 추가한 인공해수를 이용하여 배양하였다. 인공해수의 조성은 Table 1과 같다 [4].

Table 1. Composition of artifical seawater (1 L basis)

Component	Amount	
NaCl	24.7 g	
KC1	0.66 g	
$MgCl_26H_2O$	8.48 g	
CaCl ₂ 2H ₂ O	1.9 g	
${ m MgSO_4}$	3.07 g	
NaHCO ₃	0.18 g	

사용한 f/2-Si 배지의 1,000배 농축액 1 L 제조를 위한 함량을 Table 2에 표시하였다 [17].

Table 2. Composition of f/2-Si medium (1 L basis)

Component	Amount
NaNO ₃	0.075 g
$NaH_2PO_4H_2O$	0.005 g
Trace metal solution	1 mL

Trace metal solution			
Component	Amount		
FeCl ₃ 6H ₂ O	3.15 g		
$Na_2EDTA_2H_2O$	4.36 g		
CuSO ₄ 5H ₂ O	0.0098 g		
$Na_2MoO_42H_2O$	0.0063 g		
$ZnSO_47H_2O$	0.022 g		
CoCl ₂ 6H ₂ O	0.01 g		
MnCl ₂ 4H ₂ O	0.018 g		

실험에 이용한 균주의 유지는 100~L flat-plate photobioreactor (FP-PBR)에 형광등을 이용하여 광도 $100~\mu E/m^2/s$ 를 주사하고, $2\%~CO_2$ 를 0.1~vvm의속도로 폭기하여 이루어졌다.

젖은 세포 중량 분석

바이오매스 분석을 위해 젖은 세포 중량을 측정하였다. 미세조류 배양액 샘플을 Electrolyte solution, Isoton[®]II에 희석하여 Coulter Counter (Multisizer 4, Beckman Coulter, Inc., Fullerton, CA, USA)를 통해세포 크기와 세포 농도를 확인하였다.

거름막으로 사용된 소재 및 투수도 실험 방법

거름막으로 사용된 소재는 총 6종으로, 광목 (woven cotton fabric) 재질의 거름막 1종 (CF1; 워싱 광목, Wondansesang Co., Daegu, Korea), 폴리에스터 (polyester) 재질의 거름막 5종 (PE1, PE2, PE3;

Valon-33, UT-HBT, C1-CK, Nine Industries Co., Ltd., Seoul, Korea), (PE4, PE5; WTB25, WTB27, Wintex Co., Ltd., Gumi, Korea)이다. 각 소재들을 가로 90 cm, 세로 60 cm로 재단하여 플라스틱 격자 상자 (56 cm(*l*) x 36 cm(*w*) x 30 cm(*h*))에 끝부분을 집게로 고정하여 중력 여과 장치를 제작하였다 (Figure 1). 중력 여과 장치에 미세조류 젖은 세포농도 2 g/L의 배양액 10 L를 투입한 후 시간에 따른투수도와 수확된 세포의 양을 측정하였다.



Figure 1. Shape of gravity-filtration devices using various mem branes (1. CF1, 2. PE1, 3. PE2, 4. PE3, 5. PE4, 6. PE5).

결 과

소재에 따른 투수도 및 세포 유출 정도

각 소재의 거름막을 장착한 중력 여과 장치 안에 미세조류 젖은 세포농도 2 g/L의 배양액을 넣고시간에 따라 물이 통과되는 부피와 유출되는 세포의 양과 거름막에 농축된 세포의 농도를 관찰하였다. 실험 결과, Figure 2 에서와 같이 초기에 높은투수도를 기록하여 1시간 동안 CF1에서 4.91 L, PE1에서 1.09 L, PE2에서 5.65 L, PE3에서 4.39 L, PE4에서 1.68 L, PE5에서 1.85 L의 물이 배출되었음을 확인 할 수 있었다.

세포 또한 여과 후 20분에 전체 유출량의 93%이상

이 유출되어 1시간 동안 총 바이오매스 량 대비 CFI에서 22%, PE1에서 0.4%, PE2에서 43%, PE3에서 32%, PE4에서 10%, PE5에서 9%의 세포가 손실됨을확인할 수 있었다 (Figure 3). 초기 세포가 빠지고 난뒤, 공극이 막혀 더 이상 세포는 유출되지 않으며투수도는 점차 감소되었다. 투수도는 CF1과 PE2, PE3의 소재에서 다른 것들에 비해 월등히 빠름을확인할 수 있었고, 이들 중에는 CF1 소재에서 세포유출량이 가장 적은 것으로 나타났다.

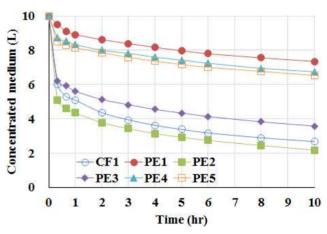


Figure 2. Remaining algal culture volume (L) on the filters with time.

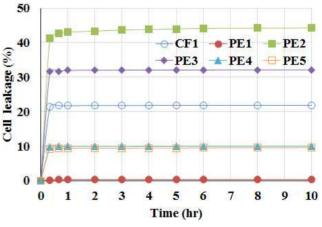


Figure 3. Cell leakage of filteration device with each membranes.

소재에 따른 세포 회수율 및 회수액의 세포 농도

여과된 후 회수할 수 있는 세포의 양과, 그 때의 세포 농도를 확인하기 위하여, 시간에 따른 세포의

회수율과 세포 농도를 비교해 보았다. 세포 회수율 은 세포의 유출로 인해 시간이 지남에 따라 줄어들 게 되지만, 전술한 것처럼 초기 1시간 뒤 세포의 유 출은 급격하게 줄어들어 회수액의 세포는 시간에 따라 농축되게 된다 (Figure 4). 따라서 최종적으로 10 시간 뒤 회수할 수 있는 세포의 양은 CF1의 경우 78%, PE1의 경우 99.6%, PE2의 경우 56%, PE3의 경우 68%, PE4의 경우 90%, PE의 경우 90%가 된다 (Figure 5). 이처럼 PE1의 경우 가장 많은 양의 세포 를 수확할 수 있었지만, 세포 농도는 물이 빠지는 속도에 비례하고, 세포 유출 정도와 반비례하기 때 문에, 회수액의 농도가 3.1 g/L로 회수 효율이 낮았 다. 반면에 CF1 소재의 경우, 물 빠지는 속도가 빠름 에도 불구하고 세포유출량이 적어 회수액의 세포 농도가 가장 빠르게 농축되는 것을 확인하였다 (Figure 4).

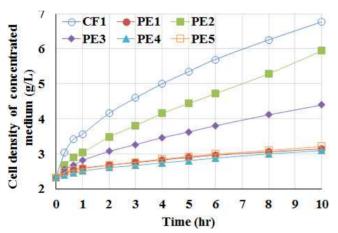


Figure 4. Biomass concentrations in the concentrated media.

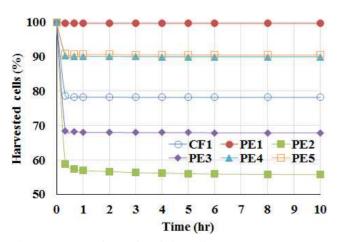


Figure 5. Harvesting ratio of the cells.

최종적으로 10시간의 중력 여과 후 회수할 수 있는 미세조류 바이오매스의 농도는 CF1의 경우 6.8 g/L, PE1의 경우 3.1 g/L, PE2의 경우 5.9 g/L, PE3의 경우 4.4 g/L, PE4의 경우 3.1 g/L, PE5의 경우 3.2 g/L로 나타났다 (Figure 6).

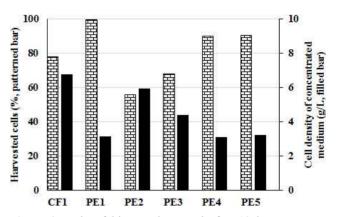


Figure 6. Ratio of biomass harvested after 10 hrs.

고 찰

현재, 미세조류 바이오매스는 다양한 방법에 의해 회수되고 있으나 미세조류의 작은 크기와 낮은 농도 의 미세조류 배양액은 미세조류 회수에 큰 걸림돌이 된다. 이를 해결하기 위해 에너지 사용 없이 효율적 인 미세조류 배양액 농축을 진행할 방법이 필요하 다. 따라서 기존 다양한 회수 방법 중 에너지가 소요 되지 않는 중력 여과 장치를 제작하여 6 종 거름막 소재에 대한 미세조류 회수 효율 시험분석을 진행하 였다. 중력 여과 장치는 10 L 규모로 제작되었으며, CF1과 PE2, PE3의 소재에서 높은 투수도를 기록하 여 다른 것들에 비해 높은 미세조류 배양액 처리가 가능 할 것으로 예상되었다. 하지만 PE2와 PE3의 소재에서는 세포 유출이 CF1 소재에 비해 세포 유출 이 높아(PE2에서 43%, PE3에서 32%), 이는 총 미세 조류 회수율에서는 CF1에 비해 불리한 것을 의미한 다. CF1 소재의 경우 또한 22%라는 상당한 세포 유 출을 보이지만, 경제성이 우선시 되어야 하는 미세 조류 바이오에너지 생산 공정에서 별도의 에너지 투 입 없이 CF1 거름막을 이용하여 미세조류 배양액을 3.4 배로 농축한 것에 의미가 있다. 세포 유출은 있었 지만, 여과 후 빠져나간 세포를 다시 미세조류 배양 의 균주로 이용할 수 있는 가능성이 존재한다 [6].

현재까지 개발된 미세조류 회수 기술 중 바이오에너지 생산을 목적으로 상업적으로 완성된 기술은 아직 존재하지 않는다. 따라서 본 실험에서 사용된 중력여과 장치의 에너지 사용량과 배양액 처리 속도를다른 회수 기술과 비교하였다.

Table 3. Energy usage and processing rate of different algae harvesting techniques

Harvesting process	Energy usage (kWh/m³)	Processing rate	Ref.
Filtration	0.88	15 - 60 L/m ² /h	[7]
Centrifugation	8.00	18 L/min	[7]
Sedimentation	0.1	$4.2 \text{ L/m}^2/\text{h}$	[12, 15]
Polymer Flocculation	14.81	10 m/d	[5, 16]
Dissolved air flotation (DAF)	high operational cost (390 kPa compressor)	-	[10]
In this Exp.	0.1	5.0 L/m ² /h	

중력여과장치는 침전 방식과 같이 미세조류 배양 액을 이송하는 비용만이 발생하게 되어 가장 적은 에너지 사용량을 가지며, 이번 실험에서는 5.0 L/m²/h의 미세조류 배양액 처리속도를 보였다. 이는 일반적인 침전 방식에서의 처리 속도인 4.2 L/m²/d보 다 빠른 처리속도이며, 침전 속도의 경우 침전 탱크 의 모양에 따라 변하지 않지만, 중력여과장치를 좁 고 높은 방식으로 제작하게 되면 단위 면적당 더 높 은 중력이 작용하여 더욱 빠른 속도로 회수가 가능 할 것으로 사료된다. 본 실험에서 사용된 여과막을 통하여 완벽히 세포와 배양액을 분리하기는 어렵다. 그러나 대량을 배양되는 미세조류를 우선적으로 농 축하는 방법으로 사용한다면 적합할 것으로 판단된 다.따라서 이 실험에서 제작된 중력 여과 장치의 개 념은 에너지 사용 없는 미세조류 바이오매스의 회수 와 유출된 미세조류 세포의 연속적인 배양을 가능하 게 할 것이라고 판단된다.

결 론

이 실험을 통해 중력 여과 장치를 이용하여 에너

지 사용 없이 미세조류 바이오매스 회수를 가능하게 하고자 각 소재 별 (광목재질의 CF1, 폴리에스테르 재질의 PE1, PE2, PE3, PE4, PE5) 투수도를 비교하였다. 투수도의 경우 광목 재질의 CF1, 폴리에스테르 재질의 PE2, PE3 소재에서 다른 소재들에 비해 2배이상의 높은 투수도를 기록하였고, 그 중 광목 재질의 CF1 소재에서는 높은 투수도를 가진 여과막들 중에 가장 적은 세포 유출을 보여, 가장 빠른 속도로 세포를 농축할 수 있었다 (초기 2 g/L, 10 시간 중력여과 후 6.8 g/L). 개발된 중력여과 장치의 개념으로 규모 확대된 중력여과 장치를 통해에너지 사용 없이 미세조류의 고농도 회수가 가능하고, 미세조류회수 비용 저감에 크게 기여할 것이다.

감사의 글

본 연구는 해양수산부의 재원으로 해양생명공학 기술개발사업 (Project No.: 200255), 해양미세조류이 용 바이오디젤 생산기술 개발) 개발연구비 지원과 2017년 해양수산부 재원으로 한국해양과학기술진 흥원의 지원(해양에너지 융복합 인력양성)을 받아 수행되었습니다.

References

- Abomohra A. E.-F., Jin W., Tu R., Han S.-F., and Eid M., Eladel H. 2016. Microalgal biomass production as a sustainable feedstock for biodiesel: Current status and Perspectives. *Renew. Sust. Energ. Rev.* 64, 596-606.
- Barros A. I., Goncalves A. L., Simoes M., and Pires J. C. M. 2015. Harvesting techniques applied to microalgae: A review. *Renew. Sust. Energ. Rev.* 41, 1489-1500.
- Cheah W. Y., Ling T. C., Juan J. C., Lee D.-J., Chang J.-S., and Show P. L. 2016. Biorefineries of carbon dioxid e: From carbon capture and storage (CCS) to bioenergies production. *Bioresour. Technol.* 215, 346-356.
- Cho Y., Shin D.-W., Lee S., Jeon H., Ryu Y.-J., Lee J.-C., Lim S.-M., and Lee C.-G. 2014. Investigation of microalgal growth, *Tetraselmis* sp. KCTC12432BP by su pplying bicarbonate on the ocean cultivation. *J. Mar. Bios ci. Biotechnol.* 6, 118-122.
- Danquah M. K., Ang L., Uduman N., Moheimani N., and Forde G. M. 2009. Dewatering of microalgal culture for

- biodiesel production: Exploring polymer flocculation and tangential flow filtration. *J. Chem. Technol. Biotechnol.*, **84** (7), 1078-1083.
- Das P., Thaher M. I., Abdul Hakim M. A. Q. M., Al-Jabri H. M. S. J., and Alghasal G. S. H. S. 2016. Microalgae harvesting by pH adjusted coagulation-flocculation, recycling of the coagulant and the growth media. *Bioresour. Technol.* 216, 824-829.
- Grima E., Belarbi E. H., Fernandez G. A. Medina A. R., and Chisti Y. 2003. Recovery of microalgal biomass and metabolites: process options and economics. *Biotechnol.* Adv., 20 (7-8), 491-515.
- Hoffman J., Pate R. C., Drennen T., and Quinn J. C. 2010. Techno-economic assessment of open microalgae product ion systems. *Algal Res.* 23, 51-57.
- Jones C. S., and Mayfield S. P. 2012. Algae biofuels: Versatility for the future of bioenergy. *Curr. Opin. Biotec hnol.* 23 (3), 346-351.
- Mariam A. H., Abdel G., and Amal H. 2015. Microalgae harvesting methods for industrial production of biodiese l: critical review and comparative analysis. *J. Fund. Ren* ew. Energ. Appl. 5 (2), 154-179.
- Michael H., Javier G., Miller T., Beth R., and Stephen M. 2010. Biofuels from algae: challenges and potential. *Biofuels* 1 (5), 763-784.
- Peperzak L. F., Koeman C. R., Gieskes W. C., and Joord ens J. C. A. 2003. Phytoplankton sinking rates in the Rhine region of freshwater influence. *J. Plankton Res.* 25 (4), 365-368.

- Ramos Tercero E. A., Domenicali G., and Bertucco A.
 Autotrophic production of biodiesel from microalg ae: An updated process and economic analysis. *Energy* 76, 807-815.
- Reyes J. F., and Labra C. 2016. Biomass harvesting and concentration of microalgae *Scenedesmus* sp. cultivated in a pilot photobioreactor. *Biomass Bioenergy* 87, 78-83.
- Semerjian L., and Ayoub G. M. 2003. High-pH magnes ium coagulation - flocculation in wastewater treatment. *Adv. Environ. Res.* 7 (2), 389-403.
- Sukenik A., and Shelef G. 1984. Algal autoflocculation
 -Verification and proposed mechanism. *Biotechnol. Bioeng.* 26 (2), 142-147.
- Shin D.-W., Bae J.-H., Cho Y., Ryu Y.-J., Kim Z-H., Lim S.-M., and Lee C.-G. 2016. Isolation of new microa lgae, *Tetraselmis* sp. KCTC12236BP and biodiesel prod uction using its biomass. *J. Mar. Biosci. Biotechnol.* 8, 39-44.
- Xin C., Addy M. M., Chao J., Cheng Y., Cheng S., Mu D., Liu Y., Ding R., Chen P., and Ruan R. 2016. Comprehensive techno-economic analysis of wastewater -based algal biofuel production: A case study. *Bioresour*. *Technol.* 211, 584-593.