

Lab-Scale Biosparging Study to Remediate Diesel-Contaminated Soil and Groundwater : the effect of air injection rate and pattern

조수형, 이시진, 권순열*, 장순웅

경기대학교 환경공학과, 한국방송통신대학교 보건위생학과*
e-mail : chosuhung@hanmail.net

Abstract

This study was conducted to examine the potential of biosparging process in removing diesel contaminated soil and groundwater. The experiment was carried out lab-scale biosparging reactor and the biodegradation rate of diesel was evaluated as function of air injection rate and pattern. When reator was operated as air injection rate of 1000ml/min and pulsed air injection(15min pulse, 15min downtime), DO concentration in the reator was higher than another operating condition. The evidence for biodegradation of diesel was the O₂ utilization and CO₂ product following the cessation of sparging. Especially, air injection rate of 2000ml/min and pulsed air injection(15min pulse, 15min downtime) enhanced the diesel biodegradation during the operating. After 120day, the biodegradation rate of diesel was decreased as the lack of carbon source.

key word : Biosparging, Air injection rate, Continuous or Puled air injection

1. 서 론

디젤로 오염된 토양 지하수의 생물학적 처리를 위해 In Situ Air Sparging/Biosparging(토양공기주입법)을 이용한 실험실 연구를 수행하였다. Air Sparging은 포화 토양층에 상향류의 공기 주입으로 Air channel을 형성, 토양층의 투과성을 변화시켜 오염원의 휘발 및 생물학적 활성도를 증가시키는 방법으로 토양 증기추출법(Soil Vapor Extraction)과 함께 병행하여 주로 사용되며 시공비와 운전비가 비교적 저렴하고 설치가 용이한 처리기술이다. Air Sparging은 Diesel같이 휘발이 잘 되지 않으며 생분해도가 높은 오염원에 대하여 Biosparging 개념으로 많이 사용되고 있는데 In Situ Biosparging은 포화된 토양 내에 존재하는 토착미생물의 활성도를 증가시켜 생분해하는 원위치 복원기술로서 Stripping과 Volatilization보다 Biodegradation에 의한 제거가 용이한 오염원에 적합한 처리기술이다. 오염토양의 생물학적 처리에 있어 가장 중요한 것은 주어진 조건하에서 오염물질의 생분해를 제한하고 있는 요인이 무엇인가를 규명하고 이를 인위적으로 보완 또는 최적화하여 줌으로써 생분해 속도를 극대화 해주는 것이라고 할 수 있다. 본 연구에서는 디젤오염 토양 지하수의 생물학적 처리를 위해 Biosparging 공법 적용

시 air injection rate와 pattern(continuous or pulsed air injection)이 생분해도에 미치는 영향에 대한 실험을 수행하였다.

2. 본 론

2.1 실험장치 및 분석방법

실험을 위한 반응기는 높이 50cm, 너비 80cm, 폭 15cm로 반응기내의 부피는 약 60L이며 경기대학교 인근의 토양을 풍건후 NO. 10 mash를 이용하여 입경 2mm이하로 거른 토양과 용존산소를 제거한 증류수를 바닥에서 45cm 높이까지 채워 Saturated Zone을 구성하였다. 반응기 하부 5cm지점에 Sparging Point를 구성, Compressor를 이용하여 공기를 주입하였고 질소, 인의 지속적인 공급을 위해 Nutrient solution으로 제조하여 주입하였다. 외부산소의 유입을 막기 위해 반응기는 sealing하여 운전하였고, 광합성에 의한 조류번식을 억제하기 위하여 반응기 외부의 빛을 차단하였다. 반응기 내에는 DO와 TPH분석을 위해 상하 10cm, 좌우 20cm 간격으로 teflon sampling port를 총12개 구성하였다. DO는 10cm needle을 이용하여 sampling port에서 3ml를 채취, YSI model 58 DO meter로 분석하였고 TPH(총석유계탄화수소)는 sampling port에서 1ml를 채취, SPME(Solid Phase Microextraction)를 이용하여 GC-FID에서 분석하였다.

2.2 Air injection rate와 pattern에 따른 DO농도

영향반경안의 DO농도는 channel의 밀도와 크기, 용존산소의 체류시간, 토양의 입경과 조성, 공기주입량, 공기주입 pattern에 따라 결정된다. 공기주입량이 클수록 포화층의 용존산소는 증가하나 필요이상의 과도한 공기주입은 공극크기의 channel보다 큰 규모의 channel을 형성하여 용존산소전달에 효과적이지 못하다.²⁾ 또한 공기주입 pattern을 continuous 또는 pulsed air injection으로 운전하는 것에 따라 대수층 전체의 오염원과 물의 혼합양상이 달라 질 수 있다.⁶⁾ 따라서 본 실험에 앞서 실험토양 조성하에서 반응기 내 DO농도를 가장 효과적으로 증가시키는 운전조건(air sparging rate, pattern)을 도출하기 위한 실험을 수행하였다.

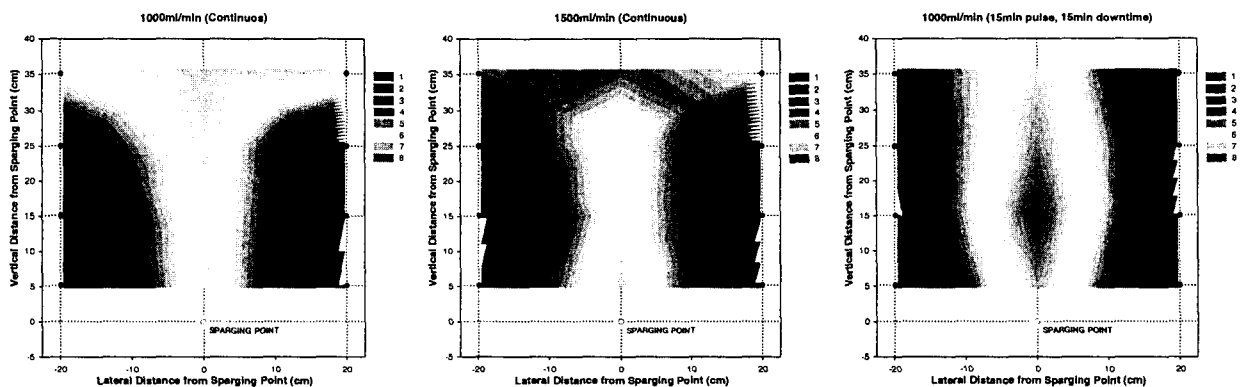


fig. 1. DO concentration by air injection rate and pattern

<fig. 1>은 air sparging rate and pattern에 따른 DO농도를 contour map으로 표현한 것이다. 유효영향 반경을 1ppm이상으로 보았을때¹⁾ 각각의 조건에서 Sparging Point 좌우측 port에서의 DO농도는 1~

2ppm으로 측정되어 반응기내 sampling port는 모두 영향반경안에 포함되는 것으로 나타났으며, Sparging 조건에 따른 뚜렷한 변화는 Sparging Point에서 수직으로 5, 15, 25, 35cm에 위치한 C5, C15, C25, C35 port에서 주로 나타났다. 1000ml/min, continuous air injection에서 Center port의 DO농도는 6.3~6.8ppm으로 가장 높게 측정되었고, 1500ml/min 이상으로 공기주입량을 증가시켰을 때는 1000ml/min 보다 DO농도가 감소하는 것으로 나타났다. 이는 과도한 공기주입으로 인해 반응기내 직경이 큰 규모의 channel이 형성되어 산소전달 효율이 감소되어 나타난 현상으로 보여진다. 1000ml/min의 공기주입량에서 pulsed air injection조건을 변화해 실험한 결과 15min pulse, 15min downtime에서 Center port의 DO농도가 6.8~8ppm으로 측정되어 pulsed air injection이 continuous air injection보다 반응기내 DO농도를 증가시키는데 더 효과적으로 나타났다. 이는 pulsed air injection조건에서 channel을 통과하는 공기입자가 기액 평형을 이루기에 충분한 체류시간으로 channel 내에 정체, 산소전달원으로 작용하기 때문으로 사료되며 Air Sparging 현장적용시 pulsed air injection로 인한 전력비절감의 효과를 기대할 수 있을 것이다.⁸⁾

2.3 Air injection rate와 pattern에 따른 디젤 생분해

반응기내 Sparging Point에서 수직으로 15cm에 위치한 C15 port에 디젤 100ml를 주입하고 각각의 port에 실험실에서 배양한 디젤분해 미생물을 주입한 후 143일간 운전조건에 따른 실험을 실시하였다. 디젤 생분도를 증명하기 위한 DO감소 및 CO₂발생량 분석을 위해 1주일 주기로 5일간 해당 운전조건으로 sparging 후 2일(48hr) 동안 Non-Sparging 기간을 가졌다. TPH 분석은 1주에 한번, DO 및 CO₂ 분석은 Non-Sparging 기간 2일(48hr)간 3회(0hr, 24hr, 48hr)실시하였다.

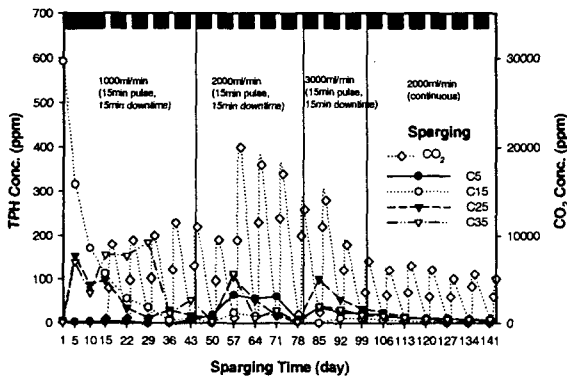


fig. 2. TPH Conc. and CO₂ Conc. at depth of 5cm, 15cm, 25cm, 35cm from the Sparging Point

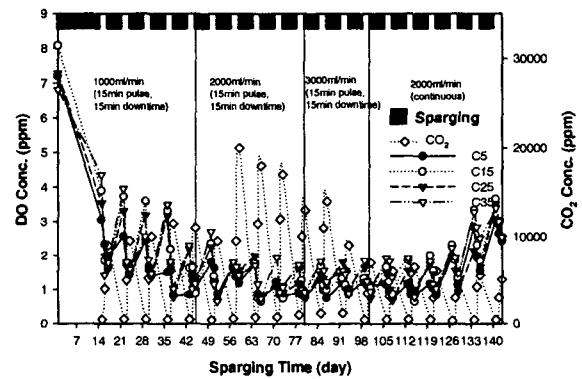


fig. 3. DO Conc. and CO₂ Conc. at depth of 5cm, 15cm, 25cm, 35cm from the Sparging Point

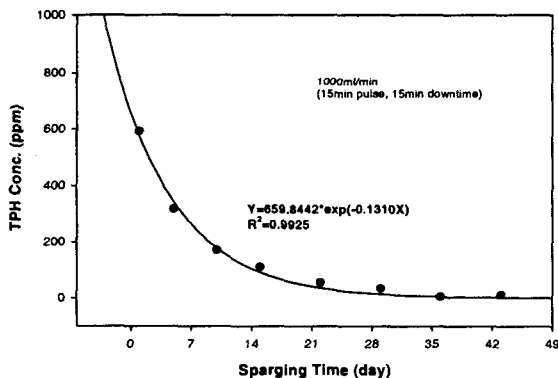


fig. 4. TPH Conc. in saturated zone during Air Sparging at C15

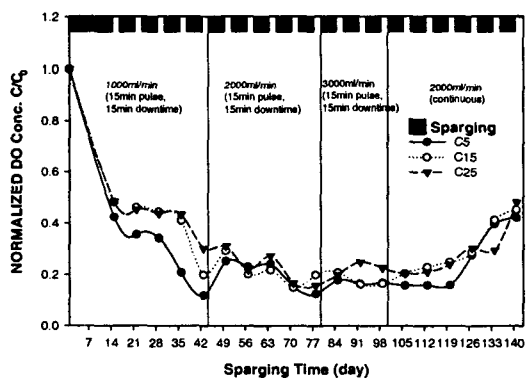


fig. 5. Normalized DO Conc. at depth of 5cm, 15cm, 25cm from the Sparging Point

1000ml/min (15min pulse, 15min downtime) 조건에서 반응기를 운전하였을 때 t=1에서 592ppm이었던 C15 port의 TPH농도는 시간이 지남에 따라 감소, t=43에서 11.9ppm으로 분석되었다. 초기 C15 port에서 TPH농도의 급격한 감소는 상향류의 공기이동에 의한 디젤의 확산효과로 볼수 있으며 t=43까지의 농도감소곡선으로 계산한 regression fitting 식은 다음과 같았다.

$$Y = 659 \times \exp(-0.131X) \quad R^2 = 0.9925$$

t=1에서 6.8~8ppm를 나타낸 Center port에서 DO농도는 t=15에서 약 1/2로 감소하였고 t=43에서 0.8~2.3ppm으로 나타났다. 초기 Center port에서의 DO농도의 급격한 감소는 미생물이 디젤을 생분해하는 과정에서 산소를 electron acceptor로 사용하기 때문이며 일반적으로 석유계탄화수소 1g을 호기적 조건에서 미생물에 의해 분해시 산소 3.53g이 필요한 것으로 알려져 있다.³⁾ 또하나의 디젤의 생물학적 분해의 증거로 Non-Sparging 기간동안 DO농도의 감소와 CO₂ 발생량의 증가를 들수 있다.³⁾⁴⁾⁷⁾ 1000ml/min (15min pulse, 15min downtime) 운전조건에서 t=45의 CO₂농도는 약 1%(Non-Sparging기간 48hr기준)까지 증가되는 것으로 나타났으나 Sparging Time에 따른 뚜렷한 증가추세를 나타내지는 않았다. 이는, 미생물에 의한 디젤의 생분해가 Sparging Point위의 Center port에서 주로 일어나는 것으로 보았을 때 Center port의 TPH농도가 확산에 의해 20ppm이하로 감소됨에 따른 탄소원의 부족때문인 것으로 사료된다. 2000ml/min(15min pulse, 15min downtime)으로 운전시 Center port의 TPH농도는 공기 주입량증가에 의한 channel 형성의 변화와 이에 따른 반응기 좌우측의 디젤의 이동으로 t=57에서 30~100ppm까지 증가되었고, 이 시기의 CO₂발생량 또한 t=59에서 약2%(Non-Sparging기간 48hr기준)까지 크게 증가되었다. t=59에서 TPH농도와 CO₂발생량의 증가가 동시에 나타나는 것은 Center port의 TPH농도(탄소원) 증가로 미생물의 생분해도가 증가되었기 때문인 것으로 사료된다. 이후 CO₂발생량은 TPH농도가 줄어들어 따라 t=78까지 점차 감소되었다. 3000ml/min(15min pulse, 15min downtime)으로 운전조건을 변화한 후 Center port의 TPH농도는 다시 상승하였으며 이에 따른 CO₂발생량의 일시적인 증가가 관찰되었다. 공기주입 pattern이 반응기내 DO농도와 CO₂발생량에 미치는 영향을 알아보기 위해 99일 경과 후 2000ml/min(continuous air injection)으로 운전하였으나, 운전조건 변화에 따른 DO농도와 CO₂발생량의 변화경향은 나타나지 않았다. TPH농도는 계속해서 감소하여 t=141에서 Center port의 TPH농도는 0~8.4ppm으로 분석되었다. TPH농도가 감소함에 따라 Non-Sparging 기간(48hr)동안의 CO₂발생량은 감소하는 추세를 나타냈으며 t=143(Non-Sparging기간 48hr기준)에서 CO₂발생량은 0.6%였다. Center port의 DO농도는 t=120에서 1.1~1.8ppm로 측정되었고, t=141에서 3~3.6ppm까지 증가하였다. 85일 이후 TPH농도 저하에 따른 CO₂발생량의 감소경향과 120일 이후의 DO농도의 점진적인 증가 추세로 보아, 디젤의 생분해가 계속적으로 진행됨에 따른 탄소원의 부족으로 인해 미생물의 활성도와 용존산소의 이용이 줄어들고 있는 것으로 사료된다.

3. 결론

Biosparging에 필요한 운전비용은 대부분이 공기주입을 위한 Compressor를 운영하는 전력비이며, VOCs를 제거를 위한 Air sparging보다 적은 공기주입량을 필요로 한다. 때문에 생물학적 분해를 유도하기 위한 운전조건(공기량 및 주입방법)을 결정하는 것이 중요하다. 디젤을 주입하기전 반응기내부의 용존산소를 최대로 하기 위한 운전 조건은 1000ml/min (15min pulse, 15min downtime)이었다. 반응기 운전후 디젤은 상향류의 공기이동에 의해 확산되었으며, Center port에서 디젤의 생분해가 가장 활발한

것으로 나타났다. Non-Sparging기간동안 디젤의 생물학적 분해의 증거로 DO농도의 감소와 CO₂발생량의 증가를 볼수 있었다. Center port에서 TPH농도가 운전조건에 따라 일시적으로 증가함에 따라 CO₂발생량도 같이 증가하여 탄소원유입에 의해 디젤의 생분해도가 증가함을 확인할 수 있었다.

4. 참고문헌

- 1) 이진용 외 2인, 유류오염 지하수에 대한 공기주입정화법의 적용성 평가, 지질학회지 38, 2002년3월
- 2) Clayton, W. S., Brown, R. A., and Bass, D. H., Air sparging and bioremediation: The case for in situ mixing, Third International Symp. In situ and On site Bioremediation, San Diego, April 1995
- 3) Colin D. Johnston, John L. Rayer, Volatilization and biodegradation during air sparging of a petroleum hydrocarbon-contaminated sand aquifer, Groundwater Quality, 1998
- 4) Thierry Pierre-Alain Bregnard, Degradation of weathered diesel fuel by microorganisms from a contaminated aquifer in aerobic and anaerobic microcosms, Environmental Toxicology and Chemistry. vol 15, 1996
- 5) Krishna R. Reddy, Effects Of Soil Heterogeneous On Airflow Pattern And Hydrocarbon Removal During In Situ Air Sparging, Journal Of Geotechnical And Geoenvironmental Engineering, March 2001
- 6) Frederic C Payne, Contamination Removal Rates in Pulsed and Steady-Flow Aquifer Sparging, In Situ Aeration
- 7) John S. Gierke, Air sparging performance in NAPL-contaminated, sandy-gravel aquifer, Groundwater Quality, 1998
- 8) Gorm Heron, Pulsed Air Sparging in Aquifer Contaminated with Dense Nonaqueous Phase Liquids, Ground water Monitoring & Remediation 22, Fall 2002