오존용해탱크 구조 개선을 통한 효율적인 마이크로오존버블 생성 Efficient Micro-Ozone-Bubble Generation by Improving Ozone Dissolution Tank Structure

박용화 · 이광희* · 장암†
Yong-hwa Park · Gwang-hi Lee* · Am Jang†

성균관대학교 수자원전문대학원 · *해성엔지니어링(주) 기술연구소

Graduate School of water Resources, Sungkyunkwan University

*Research institute at Haesung Engineering Inc

(Received September 14, 2017; Revised September 25, 2017; Accepted October 16, 2017)

Abstract : The purpose of this study is to investigate how ozone-dissolution-tank structure affects micro-ozone-bubble distribution, energy consumption and water treatment efficiency. The partition walls inside the ozone-dissolution-tank generate pressure changes, shear forces, and swirling flows, which change the size of the bubble diameter. The size of the bubble diameter differs by 10.5% depending on the partition walls. Changes in ozone-bubble diameter are related to energy consumption. As the ozone-bubble becomes smaller, the bubble generation energy increases, but the ozone production energy decreases as the dissolution efficiency increases. Therefore, an ozone-dissolution-tank should be determined by means of an optimal condition producing a micro-ozone-bubble with a minimum sum of bubble generation energy and ozone production energy. The energy consumed to inject the same amount of ozone into the effluent differs by 2.5% depending on the partition walls. However, considering the water treatment efficiency, the conditions for selecting the ozone-dissolution-tank are variable. This is because the free radicals that increase as the ozone-bubble gets smaller are very efficient for water treatment. Even at the same ozone injection concentration, the water treatment efficiency differs by 10.4% according to the partition walls. Therefore, we have studied ozone-dissolution-tank structure which produces reasonable ozone-bubble considering water treatment efficiency and energy efficiency.

Key Words : Wastewater Reuse, Ozone, Ozone Dissolution Tank, Micro Bubble, Water Reuse

요약 : 본 연구는 오존용해탱크 구조에 따라 마이크로오존버블의 분포, 에너지 소비, 수처리 효율이 어떻게 변하는지를 알아보고자 하였다. 오존용해탱크 내부의 격판은 압력의 변화, 전단력, 선회유동을 발생시키고 이는 버블 직경의 크기에 변화를 준다. 버블 직경의 크기는 내부의 격판에 따라 10.5%까지 차이가 났다. 오존 버블 직경의 변화는 에너지 소비와 관련이 깊다. 오존 버블이 작아질수록 버블생성에너지는 높아지지만 용존 효율이 올라가면서 오존생산에너지는 줄어들게 된다. 따라서 버블생성에너지와 오존생산에너지의 합이 최소인 마이크로오존버블을 생성하는 오존용해탱크를 선정하여야 한다. 동일한 양의 오존가스를 방류수에 주입하기 위해 소비된 에너지는 내부의 격판에 따라 2.5%까지 차이가 났다. 하지만 수처리 효율까지 고려한다면 오존용해탱크 선정 조건이 달라진다. 오존 버블이 작아질수록 증가하는 자유라디칼이 수처리에 매우 효율적이기 때문이다. 동일한 오존주입농도에서도 내부의 격판에 따라 수처리 효율이 10.4%까지 차이가 났다. 따라서 수처리 효율과 에너지 효율을 고려하여 합리적인 마이크로오존버블을 생성하는 오존용해탱크 구조에 대하여 연구하였다.

주제어 : 하수처리수 재이용, 오존, 오존용해탱크, 마이크로버블, 물 재이용

1. 서론

자원 순환형 사회를 지향하는 경향과 범인류적인 물 부족 문제로 인하여 하수처리장 방류수에 대한 재이용의 관심이 점차 증가되고 있다. 일반적으로 오존처리공정은 하수처리장 방류수 재이용에 문제가 되는 총대장균군수, 색도, 냄새를 효과적으로 제거할 수 있기 때문에 하수처리수 재이용의 주요한 공정으로 주목받아 왔다. 하지만 오존가스 생성에 소모되는 전력량이 높고 수중에서 오존 용해율이 낮기 때문에 재이용수의 단가를 높이는 문제점으로 제시되어 왔다.¹⁾ 따라서 오존처리공정의 경제성을 높이려는 연구가 지속적으로 제안되어 왔다. 그 중 하나로써 마이크로버블 발생을 통한 오존의 용해율 향상은 오존가스 생성

에 들어가는 에너지와 배오존 파괴에 들어가는 에너지를 동시에 줄일 수 있는 장점이 있다.

일반적으로 마이크로버블의 구분은 직경 50 μm 를 기준으로 분류할 수 있다. 50 μm 이상의 매크로버블은 수표면으로 급속히 부상하여 터지는 반면 50 μm 미만의 마이크로버블은 수중에서 장시간 체류가 가능하며 점차적으로 버블의 직경이 감소하면서 용존되어 사라지는 특성을 가지고 있다.²⁾ 헨리법칙(Henry's law)에 의하면 버블 내부의 기체압력이 증가할수록 용해도는 증가한다. 또한 Young-Laplace 식에 의하면 기체의 내부압력은 버블의 직경이 작아질수록 증가한다.³⁾ 또한 스토크스 법칙(stokes' law)에 의하여 버블의 직경이 작아질수록 체류시간은 길어진다.⁴⁾ 따라서 이들 원리들에 의하여 버블의 직경이 작을수록 효율적인 용해율

† Corresponding author E-mail: amjang@skku.edu Tel: 031-290-7526 Fax: 031-290-7549

향상을 기대할 수 있다.

마이크로버블은 크게 기체와 액체를 가압시킨 후 감압하여 발생시키는 방법과 전단력 발생을 통해 버블을 분할하여 발생시키는 방법으로 구분할 수 있다.

본 연구에서는 오존용해탱크 내부에 다공성 격판을 수정하여 오리피스효과에 의한 압력 변화와 마찰에 의한 전단력 변화로 마이크로버블의 생성변화를 관찰하였으며 마이크로버블 변화에 따른 에너지 절감 효과와 수처리 효율성을 분석하여 가장 효율적인 마이크로버블 생성 방법을 찾고자 하였다.

2. 연구방법

본 연구는 용인시 하수처리장 방류수를 대상으로 시설용량이 100톤/일인 파일릿 플랜트를 설치하여 2017년 05월 01일부터 2017년 06월 30일까지 운영하였다.

2.1. 유동해석에 의한 오존용해탱크 타입별 마이크로버블 변화

Fig. 1과 같이 오존용해탱크를 3개의 케이스로 구성하고 격벽의 개수와 두께를 변화시켜 computational fluid dynamics (CFD)분석(ANSYS CFX, 미국)을 통하여 SST k- ω Model 모델을 적용, 물과 공기를 multiphase 방식을 사용하여 버블 분포의 변화를 모델링하였다. Fig. 2와 같이 방류수 71 L/min, 오존 2 L/min를 기액혼합펌프(Ew-150, 한국)에서 혼합시킨 뒤 오존용해탱크로 유입시켰다. 기액혼합펌프를 통해 발생하는 기포를 직경 0-49 μm 범위의 그룹과 직경 50 μm 이상 범위의 그룹으로 나눈 뒤 오존용해탱크 내부에서 변화되는 버블 분포의 증가량과 감소량을 각각 모델링하였다.

Fig. 1. The different types of pressure dissolve tank (case1, 6 mm thick plate, case2, 12 mm thick plate, case3, two 6 mm thick plates).

Fig. 3. Schematic diagram of water reuse system ((a) ozonation (15 min), (b) scum discharge (3 min), (c) reactor pressure control (2 min)).

Fig. 2. Schematic diagram of microbubble generator.

2.2. PILOT 운영을 통한 오존용해탱크 타입별 마이크로버블 변화

Fig. 3와 같이 마이크로오존버블 발생 시스템을 구성하였다. 마이크로필터로 처리된 하수처리수 방류수와 오존가스는 Fig. 2와 같이 기액혼합펌프를 통하여 혼합된 후 오존용해탱크를 통과하여 반응조로 토출되면서 마이크로오존버블이 발생된다.

반응조 내에 체류되는 마이크로오존버블을 버블분석기(CANTY, 아일랜드)로 유입시켜 오존용해탱크가 없이 운전하였을 때와 Fig. 1과 같이 격벽의 개수와 두께가 다른 Case1, Case2, Case3의 오존용해탱크를 통과하는 경우로 나누어 직경별 버블 분포도를 측정하였다. 또한 Pilot 운전은 유동해석과 같은 조건으로 운전하였다.

2.3. PILOT 운영을 통한 오존용해탱크 타입별 오존 용해 효율 변화

Fig. 2를 참조하면 오존용해탱크 케이스별로 오존발생기에서 기액혼합펌프로 들어가는 오존 가스의 양을 공기유량계(RMA-26-SSV, 미국)와 오존가스농도측정기(MINI HICON, 미국)를 사용하여 측정한 후 반응조를 거쳐 오존파괴기로

방출되는 오존가스의 양을 같은 방법으로 측정하였다.

오존발생기(OGR-16 g, 한국)에서 생산되는 농도 7%의 오존가스는 2 L/min의 유량으로 하수처리장 방류수에 12 g/hr로 주입되며 하수처리장 방류수는 접촉조로 33 L/min의 유량으로 유입되어 15분 동안 오존과 접촉하였다.

2.4. PILOT 운전을 통한 오존용해탱크 타입별 에너지 효율

일반적으로 가압과 감압에서 발생하는 압력차는 버블의 크기와 숫자에 영향을 미친다.⁵⁾ 오존용해탱크의 격벽의 개수와 두께의 증가는 마이크로오존버블을 생성시켜 오존생산 에너지의 효율을 높이는 동시에 기액혼합펌프의 부하를 증가시켜 에너지 소모를 증가시킨다. 따라서 오존용해탱크 타입별로 동일한 오존량 주입을 위하여 필요한 에너지의 총합을 산정하였다. 에너지는 논리연산제어장치(PLC, 한국)에 나타나는 전력소모량을 사용하였다.

일반적으로 하수처리에서 오존처리 공정은 오존주입농도 5~10 mg/L 정도로 설계한다.⁶⁾ 따라서 접촉조에 오존주입농도 5 mg/L를 맞추는데 필요한 에너지를 기준으로 하였다. 오존 주입량은 주입오존량에 배오존량을 뺀 값으로 10 g/hr이 되도록 하였으며 접촉조로 들어오는 방류수의 유량은 2 m³/hr로 하였다.

2.5. PILOT 운전을 통한 오존용해탱크 타입별 수질 효율 변화

2.4와 같이 오존용해탱크 타입별로 오존주입농도를 5 mg/L로 하였을 때 수처리 효율의 변화를 측정하였다. Fig. 3과 같이 마이크로필터를 통해 들어온 하수처리장 방류수는 접촉

조에서 15분간 마이크로오존버블과 접촉하는 과정 후 3분 동안 접촉조의 스킴을 AV-105 밸브를 통해 배출되는 과정을 거쳤다. 마지막으로 2분 동안 반응조의 내압을 조정하는 과정 후에 처음 과정으로 돌아가며 반복하였다.

하수처리수 방류수와 마이크로오존버블 처리수는 각각 40회씩 분석하였다. TOC분석기(LFE TOC-810, 독일), 탁도계(MicroTOL, 미국)를 사용하였으며 분광광도계(DR6000, 독일)를 사용하여 COD_{Cr}, T-N, T-P, Color를 측정하였다. BOD₅, SS, 총대장균수는 수질오염공정시험법에 의하여 측정되었다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 유동해석에 의한 오존용해탱크 타입별 의한 마이크로버블 변화 결과

Fig. 4는 0-49 μ m 버블크기의 분포를 나타냈으며 Fig. 5에서는 50 μ m 이상 범위의 버블크기 분포를 나타냈다. 기액혼합펌프를 통해 발생된 버블들은 오존용해탱크의 격벽을 통과하면서 Fig. 6와 같이 압력의 변화와 전단력으로 인해 0-49 μ m 범위의 버블크기로 작아졌다. 또한 Fig. 7과 같이 격판에 의해 발생한 선회유동으로 격판을 통과하지 않은 50 μ m 이상의 범위의 버블들도 0-49 μ m 범위의 버블크기로 작아졌다.

버블의 직경의 변화 정도는 오존용해탱크 타입별로 차이가 있었는데 격판의 두께를 증가시키는 것보다 격판의 개수를 증가시킴으로써 격판의 간격을 좁혀 빠른 선회유동을 일으키는 것이 버블의 직경을 효율적으로 감소시킬 수 있었다.

Fig. 4. Bubble distribution modeling for 0-49 μ m size interval bubble (case1, 6 mm thick plate, case2, 12 mm thick plate, case3, two 6 mm thick plates).

Fig. 5. Bubble distribution modeling for larger than 50 μ m size bubble(case1, 6 mm thick plate, case2, 12 mm thick plate, case3, two 6 mm thick plates).

Fig. 6. Delta pressure distribution modeling (case1, 6 mm thick plate, case2, 12 mm thick plate, case3, two 6 mm thick plates).

Fig. 7. Water velocity distribution modeling (case1, 6 mm thick plate, case2, 12 mm thick plate, case3, two 6 mm thick plates).

3.2. PILOT 운전을 통한 오존용해탱크 타입별 마이크로 버블 변화 결과

PILOT 운전을 통한 오존용해탱크 타입별 마이크로오존버블 변화 결과는 유동해석 결과와 같은 경향을 보여 주었다.

Fig. 8의 버블 분포도를 살펴보면 압력의 변화와 전단력이 커질수록 작은 직경의 버블의 차지하는 개수와 부피의 비율이 커짐을 알 수 있었다. 결과적으로 Fig. 9와 같이 비율이 누적되어 50% 구간을 통과하는 버블의 직경이 작아진다는

Fig. 8. Bubble distributions based on volume and population obtained from pilot-scale reactor operation.

Fig. 9. Bubble percent passing based on volume and population obtained from pilot-scale reactor operation.

Fig. 10. Pictures of various size of micro-ozone-bubbles.

Table 1. Bubble generation distribution according to different case conditions

	Mean	Max.	Min.	Median	Mode	Stdev.	CV
None	63.2	276.5	10.3	61.1	66.0	30.9	52.0
Case1	57.1	252.7	9.2	53.5	42.5	28.9	50.6
Case2	53.5	235.7	9.2	49.9	42.3	27.3	50.3
Case3	50.9	207.6	9.2	47.9	36.0	25.5	50.1

것을 알 수 있었다.

Table 1은 오존용해탱크의 압력의 변화와 전단력이 클수록 직경이 작은 마이크로오존버블을 집중적으로 발생시킬 수 있다는 것을 보여준다.

3.3. PILOT 운전을 통한 오존용해탱크 타입별 의한 오존 용해 효율 변화 결과

오존산화 시 오존을 마이크로버블화 하여 주입할 경우 폐 오존 발생량을 최소화 하면서 오존 접촉효율을 극대화 할

Table 2. Comparison of ozone dissolution efficiency according to different case conditions

	Feed ozone rate (g/h)	Waste ozone rate (g/h)	Ozone use efficiency (%)
Case1	12	2.3	81
Case2	12	1.8	85
Case3	12	1.1	91

수 있다고 알려져 있다.⁷⁾ 같은 경향의 결과값으로, 본 실험의 Table 2와 같이 오존용해탱크의 압력의 변화와 전단력이 클수록 오존 용해 효율이 높다는 것을 알 수 있다.

3.4. PILOT 운전을 통한 오존용해탱크 타입별 에너지 효율 결과

Table 3과 같이 주입오존농도 5 mg/L를 맞추는데 필요한 에너지는 Case2, Case3, Case1 순으로 나타났다. 결과 3.1, 3.2, 3.3 과 달리 에너지 측면에서는 오존용해탱크의 압력의 변화와 전단력이 클수록 유리하진 않았다.

Table 3. Comparison of energy efficiency according to different case conditions

	Micro bubble generation energy (Kwh) (A)	Ozone gas generation energy (Kwh) (B)	Total energy (Kwh) (A+B)
Case1	1.13	0.82	1.95
Case2	1.15	0.77	1.92
Case3	1.25	0.72	1.97

Table 4. Water characterization used in this study

		Mean	Stdev.	Min.	Max.	Removal efficiency (%)
TOC (mg/L)	Treated sewage	8.30	1.99	5.10	11.70	-
	ozonation case1	7.70	1.82	4.70	11.20	7.1
	ozonation case2	7.65	1.79	4.90	11.20	7.7
	ozonation case3	7.56	1.73	4.70	10.40	8.9
BOD ₅ (mg/L)	Treated sewage	4.13	0.83	2.60	5.80	-
	ozonation case1	4.41	0.92	2.70	6.10	-6.7
	ozonation case2	4.41	1.00	2.60	6.70	-6.8
	ozonation case3	4.46	0.96	2.70	6.30	-7.9
COD _{Cr} (mg/L)	Treated sewage	16.76	4.49	10.40	26.50	-
	ozonation case1	14.70	3.88	9.40	23.20	12.3
	ozonation case2	14.29	3.67	8.80	21.70	14.8
	ozonation case3	13.53	3.31	8.70	20.90	19.3
SS (mg/L)	Treated sewage	3.98	0.90	2.50	6.70	-
	ozonation case1	3.11	0.77	1.90	5.40	22.0
	ozonation case2	2.95	0.68	1.80	4.80	25.9
	ozonation case3	2.69	0.67	1.70	5.00	32.4
T-N (mg/L)	Treated sewage	13.48	2.00	10.60	17.40	-
	ozonation case1	12.71	2.88	8.10	18.20	5.7
	ozonation case2	12.67	2.89	8.20	18.30	6.0
	ozonation case3	12.45	2.81	8.40	18.00	7.6
T-P (mg/L)	Treated sewage	0.59	0.28	0.20	1.00	-
	ozonation case1	0.57	0.32	0.10	1.10	3.0
	ozonation case2	0.57	0.32	0.10	1.10	3.0
	ozonation case3	0.56	0.31	0.10	1.00	3.8
Turbidity (NTU)	Treated sewage	5.46	0.99	4.00	7.20	-
	ozonation case1	1.20	0.23	0.80	1.60	78.1
	ozonation case2	1.09	0.22	0.70	1.50	80.1
	ozonation case3	0.89	0.17	0.60	1.20	83.7
Total coliforms (CFU/mL)	Treated sewage	1278.55	84.96	1100.00	1410.00	-
	ozonation case1	76.90	5.52	64.00	86.00	94.0
	ozonation case2	40.43	6.54	31.00	61.00	96.8
	ozonation case3	13.68	2.64	6.00	18.00	98.9
Color (CU)	Treated sewage	18.78	3.93	13.00	26.00	-
	ozonation case1	3.05	0.78	2.00	5.00	83.8
	ozonation case2	2.38	0.63	1.00	4.00	87.4
	ozonation case3	1.38	0.54	0.00	2.00	92.7

3.5. PILOT 운전을 통한 오존용해탱크 타입별 수질 효율 변화

Table 4와 같이 주입오존농도를 5 mg/L로 동일하게 주입 하여도 오존용해탱크 타입에 의해서 수질의 처리 효율이 다르게 나타났다. BOD₅를 제외한 모든 항목이 오존용해탱크의 압력의 변화와 전단력이 클수록 수질의 효율이 높게 나타나는 경향을 보였다. 처리 수질변화의 차이는 마이크로오존버블 크기 차이에 의한 자유 라디칼 발생량과 높은 상관관계가 있다고 판단된다. 일반적으로 마이크로버블은 수중에서 터질 때 충격과 발생이나 화학적반응 촉진 같은 물리화학적 인 효과가 발생하고 이 과정에서 자유 라디칼이 발생되며 자유 라디칼은 수처리 공정을 효율적으로 운영하는데 활용되고 있다.⁸⁻¹¹⁾ 자유라디칼은 오존과 비교하면 유기물과의 반응성이 풍부하고 또한 반응성의 선택성은 낮으며 다종다양한 유기물질의 산화분해에 유효하다.⁶⁾ BOD₅의 경우는 분해 효율이 높아 난분해성 물질 혹은 분해 가능한 SS 성분이 용존성 유기물질로 전환되면서 악화되었다고 판단된다.

4. 결론

오존용존탱크의 구조에 따라 마이크로버블의 분포, 에너지 소비, 수처리 효율이 달라지므로 하수처리장 방류수 재이용에 오존공정 도입 시 적극적인 검토가 필요하다.

1) 압력의 변화와 전단력이 크며 빠른 선회유동을 일으킬 수 있는 구조로 오존용해탱크를 만들면 효율적으로 마이크로오존버블을 생성시킬 수 있다.

2) 마이크로오존버블의 직경을 작게 할수록 오존생성에너지는 절감될 수 있지만, 반면에 버블생성에너지는 증가된다. 따라서 오존생성에너지와 버블생성에너지의 합이 최소가 되는 오존용해탱크 구조를 찾는 것이 중요하다.

3) 마이크로오존버블의 직경이 작을수록 자유라디칼이 생성되어 수처리 효율은 증가된다. 따라서 수처리 효율과 에너지 효율을 둘 다 최적으로 만족시킬 수 없으며 중요도가 높은 쪽으로 유리한 오존용해탱크 구조를 찾는 것이 중요하다.

Acknowledgement

본 연구는 환경부 “글로벌탈 환경기술개발사업”으로 지원 받은 과제임(과제번호:2016002210002).

KSEE

References

1. Khuntia, S., Majumder, S. K. and Ghosh, P., “Microbubble-aided water and wastewater purification: a review,” *Rev. Chem. Eng.*, **28**(4-6), 191~221(2012).

2. Takahashi, M., Chiba, K. and Li, P., "Free-radical generation from collapsing microbubbles in the absence of a dynamic stimulus," *J. Phys. Chem. B.*, **111**(6), 1343~1347(2007).
3. Carey, V. P., "Liquid-vapor Phase Change Phenomena,"(1992).
4. Takahashi, M., "ζ potential of microbubbles in aqueous solutions: electrical properties of the gas-water interface," *J. Phys. Chem. B.*, **109**(46), 21858~21864(2005).
5. Terasaka, K., Hirabayashi, A., Nishino, T., Fujioka, S. and Kobayashi, D., "Development of microbubble aerator for waste water treatment using aerobic activated sludge," *Chem. Eng. Sci.*, **66**(14), 3172~3179(2011).
6. Somiya, I., "Ozone handbook,"(2004).
7. Lee, S. H., Jung, K. J., Kwon, J. H. and Lee, S. H., "A study on the solubilisation of excess sludge using microbubble ozone," *Korean Soc. Environ. Eng.*, **32**(4), 325~332(2010).
8. Ambulgekar, G. V., Samant, S. D. and Pandit, A. B., "Oxidation of alkylarenes using aqueous potassium permanganate under cavitation: comparison of acoustic and hydrodynamic techniques," *Ultrasonics Sonochem.*, **12**(1), 85~90(2005).
9. Wang, X., Wang, J., Guo, P., Guo, W. and Li, G., "Chemical effect of swirling jet-induced cavitation: Degradation of rhodamine B in aqueous solution," *Ultrasonics Sonochem.*, **15**(4), 357~363(2008).
10. Wang, X. and Zhang, Y., "Degradation of alachlor in aqueous solution by using hydrodynamic cavitation," *J. Hazard. Mater.*, **161**(1), 202~207(2009).
11. Saharan, V. K., Pandit, A. B., Kumar, P. S. and Anandan, S., "Hydrodynamic cavitation as an advanced oxidation technique for the degradation of Acid Red 88 dye," *Ind. and Eng. Chem. Res.*, **51**(4), 1981~1989(2012).