

감압증발법을 이용한 매립장 침출수 처리에 관한 연구

문추연 · 은종극* · 이태호*

동아대학교 환경공학과 · 대구보건전문대학

A Study on Landfill Leachate Treatment by Reduced Pressure Evaporation.

Choo-Yeun Moon · Jong-Keug Eun* · Tae-Ho Lee*

Dept. of Environmental Engineering, Dong-A University, Pusan, Korea

*Taegu Health Junior College

Abstract

This research was intended as an investigation of applying Reduced Pressure Evaporation as efficient treatment method for landfill leachate. According to the variance of time, temperature, pressure and pH in experiments, the properties of leachate treatment are follows

The removal efficiencies of COD, NH₃-N, TOC, Conductivity and SS on the basis of reaction time was 96.4%~97.5%, -1.4%~53.7%, 81.7%~89.0%, 92.0%~95.3% and 99.86%~99.97%, respectively. When the pH of Influent was 7.5, the pH of effluent was increased to 10~11 with time elapse. It is concluded that the origin of pH increase may be ammonia.

When the properties of concentrate were investigated at the concentration ratio 90%(V/V), concentration efficiency represented in the ratio of experimental value/calculated value had following orders ; COD>TOC>NH₃-N>Conductivity>SS. Concentrate had good precipitation because of additive thermal treatment in the process. When evaporation experiments with pH adjustment of 4.0, 6.0, 7.5, 9.0 and 10.0 were performed ; Acidic evaporation experiments(pH 4.0, 6.0) showed low removal efficiency(81.6, 87.6%) of COD and high removal efficiency(97.5%, 84.6%) of NH₃-N at initial evaporation. Basic evaporation(pH 9.0, 10.0) showed high removal efficiency(97.2%, 98.9%) of COD and very low removal efficiency (-7.4%, -27.2%) of NH₃-N at initial evaporation.

I. 서론

급속한 경제발전과 더불어 생활수준의 향상에 따른 소비성향의 변화 및 인구의 도시 집중화로 인하여 도시폐기물의 배출량은 점차로 증가하고 있으나 이에 대응하는 처리시설의 부족과 기존 처리시설의 관리미흡 및 폐기물

매립시설의 포화등으로 도시폐기물에 의한 각종 환경문제가 발생되고 있는 실정이며 이에대한 처리는 심각한 국가적 문제가 되고 있다.^{1,2)}

'96년도 이후에 재활용의 비율이 증가하여 약 24%까지 그 처리실적을 나타내고 있으나 여전히 대부분의 폐기물

을 매립에 의존해 처리하고 있는 실정이다.³⁾ 이러한 매립에 의해서 생성되는 부가생성물중 하나인 침출수는 주변수계의 오염은 물론, 지하 침투시 지하수의 광범위한 오염을 야기하기 때문에 이에 대한 적절한 처리가 요망되고 있는 실정이다.

그러나 침출수 처리방식인 생물학적, 물리·화학적 처리방법의 어려움 및 수질기준의 강화로 인해 그 처리방식은 더욱더 복잡하고 운전이 어려운 처리공정을 요구하게 되었다.^{8,9)}

침출수의 감압증발방식은 용액에 열을 가하여 임의의 압력에서의 물의 포화온도 이상이 되면 용액중 일부분의 수분은 기화하여 증기로 되고 증발한 증기의 일부는 다시 액화하여 물이되는 간단한 물리적 조작으로 양호한 처리수질을 얻을 수 있을 뿐만 아니라 전체 수처리 공정상에 상당한 발전을 가져올 수 있을것이다.^{4,7)}

따라서 본 연구에서는 앞선 연구의 Bench-Scale의 실험을 Scale-up하여 보다 실질적인 침출수의 처리 Process를 고안하여 장래 침출수 처리에 응용될 수 있는 계기를 마련하고자 하였다.

II. 시료 및 실험방법

1. 실험장치 및 운전

본 연구에서는 회분식 증류장치를 Fig. 1과 같이 제작하였으며, 침출수 원수는 저류조로 유입되고 저류조내의 침출수는 감압에 의해 자동으로 반응기에 주입된다. 원수 주입량은 밸브를 이용하여 조절하였으며, 증발한 수증기는 응축기에서 냉각되어 응축수의 형태로 유출하게 된다.

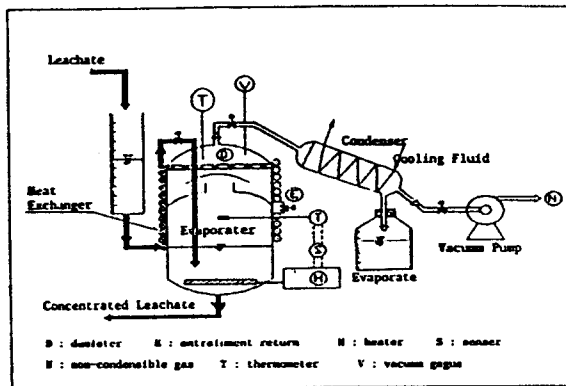


Fig. 1. Experiment Appartus

Table 1. Characteristics of landfill leachate

Constituents	Unit	Experiment sample	
		Range	Average
pH	-	7.2~8.02	7.63
CODCr	mg/l	31,260~56,400	35,800
NH ₃ -N	mg/l	2,111~2,705	2,754
TOC	mg/l	6,640~14,280	7,395
Conductivity	μS/cm	20,000~50,000	42,750
SS	mg/l	2,660~6,100	4,380

실험중 반응기 바닥에 농축된 침출수는 펌프를 이용하여 배출하였으며 일부분을 분취하여 분석시료로 하였다.

실험장치의 모든 연결부는 감압상태를 유지할 수 있도록 고무마개와 실리콘으로 기밀을 유지했다. 실험과정 동안 증발시간과 pH를 변화시켜 변수들에 대한 증류수와 농축수의 수량과 수질을 조사하였다. 냉각수는 수도물을 이용하였으며 펌프를 보호하기위해 2단으로 응축하였다.

수질조사항목은 pH, 암모니아성 질소(NH₃-N), 화학적 산소요구량(COD), 총유기탄소(TOC), 그리고 전기전도도(Conductivity)였다. 또한 운전조건은 Bench Scale에서 나타난 조건중 최적운전조건을 채택하여 온도 80℃, 압력 360mmHg로 운전하였다.

2. 시료 및 분석방법

본 실험에서는 부산광역시 E매립장 침출수를 시료로 이용했으며 매립년수가 3년으로서 현재 매립중에 있어 고농도의 침출수를 약 400/d 발생시키고 있다.

실험시료로 사용한 침출수의 농도범위와 평균특성은 Table 1과 같다.

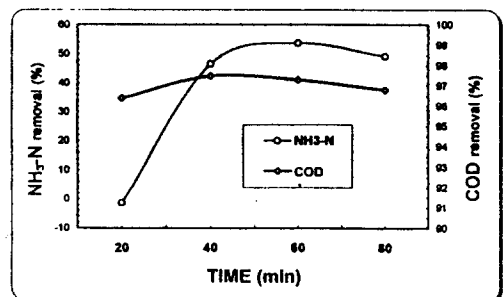


Fig. 2. COD and NH₃-N removal efficiency(%) as a function of time

III. 결과 및 고찰

1. 증발시간에 따른 침출수의 처리특성

침출수 원수를 반응기에 주입 후 온도와 압력을 일정하게 유지한(80°C, 360mmHg)상태에서 80분동안 증류하면서 20분간격으로 처리수의 수질을 분석한 결과, 제거효율과 제거특성은 다음과 같다.

1.1 증발시간에 따른 COD제거특성

COD는 초기 20분동안에 가장 낮은 제거율을 나타내었고, 20분이후부터는 점차 증가하였으며 전체적인 제거율은 Fig. 2에서와 같이 96.4%~97.5%로 매우 높은 처리율을 나타내었다. 증발초기에 높은 COD값을 나타낸 것은 거품형성과 침출수내에 존재하는 휘발성 유기탄소(VOC) 물질의 비말동반(Entrainment)에 영향을 받은 것으로 판단되며 비말동반현상의 빈도와 양은 수중에 함유된 SS와 VOCs의 양에 비례하여 나타나는 것으로 보고되고 있다. 이와 더불어 초기주입 침출수는 높은 SS농도와 다양한 성분의 휘발성물질을 다량 함유하고 있기 때문에 운전초기에 나타나는 불안정한 요소들(splash-over, foaming, entrainment)을 반영한 것으로 운전초기에 나타나는 갈색의 색도문제와도 관련성이 있는 것 같다. 증발시간 20분 이후에 처리수의 COD농도가 낮은 것은 반응기내에 존재 하던 휘발성이 강한 물질은 대부분 증발하였고, 반응기내의 침출수는 안정된 상태에서 증발,농축되기 때문인 것으로 사료된다. 그러나 증발시간이 지속됨에 따라 반응기내의 침출수는 점점 농축되어 증발시간 60분과 80분에서 처리수의 COD농도는 다소 증가하는 경향을 보였다. 이상의 결과를 종합해 볼때 일단 주입된 침출수는 초기 20분동안 휘발성 유기물의 증발율이 대단히 높은 반면 20분이후에는 오축이 이루어진다 할지라도 휘발성 유기물의 증발율이 점차 낮아짐으로 인해 COD의 처리율은 양호함을 확인할 수 있었다.

1.2 증발시간에 따른 NH₃-N제거특성

NH₃-N는 증발초기 20분에 원수보다 높은 농도를 보여 제거율이 -1.4%로 최악의 상태를 나타내었지만, 20분 이후 부터는 처리율이 46.6%~53.7%로 안정화되었다. 증발온도를 낮추어 실험했을 때에도 증발초기의 암모니아의 농도는 높게 나타나 침출수내의 암모니아는 반응초기에 대부분 증발하는 것으로 추정된다.

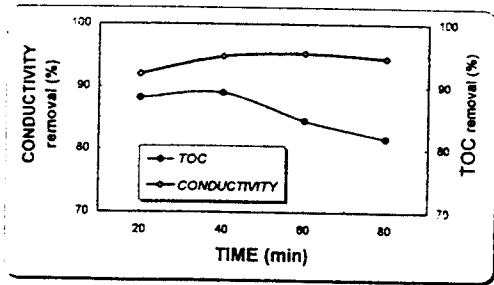


Fig. 3. TOC removal efficiency(%) and conductivity variation as a function of time

1.3 증발시간에 따른 TOC 제거특성

침출수원수의 TOC농도가 8,472mg/l 일 때, 시간변화에 따른 처리효율은 Fig. 3에서 보는 바와 같이 81.7%~89%로 나타났으며 농축이 진행됨에 따라 처리율은 점차 낮아짐을 알 수 있었다. COD제거율과 TOC의 제거율을 비교했을 때, TOC는 휘발성 유기물질에 크게 영향을 받으므로 제거율이 낮게 나타났다.

1.4 증발시간에 따른 전기전도도 변화특성

침출수원수의 전기전도도가 44,000 μS/cm일때, 시간 변화에 따른 처리효율은 Fig. 3에서 보는 바와 같이 92%~95.3%로 높게 나타났으며 농축이 진행되어도 처리율은 양호하게 지속됨을 알 수 있었다.

1.5 증발시간에 따른 SS 제거특성

Fig. 4에서 보는 바와 같이 SS의 제거율은 증발초기 20분에 99.86%를 나타내어 최저 효율을 보였으며 증발시간이 40분, 60분으로 지속됨에 따라 처리율은 99.96%, 99.97%로 점차 높아지며, 증발시간 80분에 이르러서는 농축으로 인해 처리율이 다소 낮아 졌다.

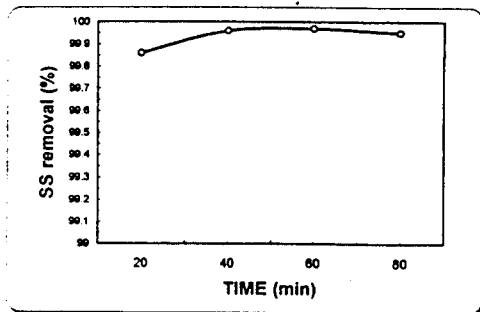


Fig. 4. SS removal efficiency(%) as a function of time

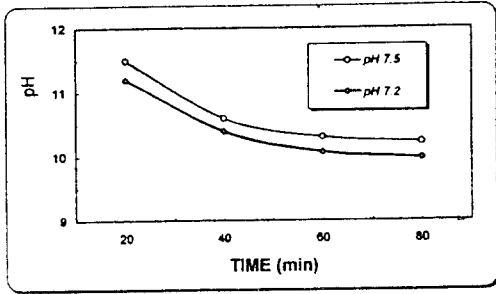


Fig. 5. pH variations as a function of time

1.6 증발시간에 따른 pH변화특성

같은 온도와 압력조건에서 증발시간에 따른 처리수의 pH변화를 살펴본결과, Fig. 5에서 보는 바와 같이 침출수 원수의 pH가 7.2, 7.5일때, 처리수의 pH는 9.98~11.5로 나타나 강알카리 상태를 나타내었다. 처리수의 pH는 증발초기 20분에 11이상으로 가장 높은 pH를 보였고, 증발시간이 40분, 60분으로 진행할 수록 처리수의 pH는 점차 낮아져 증발시간 80분에 9.98~10.23을 나타내었다.

2. 농축시간에 따른 농축수의 수질특성

회분식실험에서 원수를 8ℓ 주입하고 반응온도와 압력을 각각 80℃, 360mmHg로 조정하여 증발기내의 잔류농축수의 농축율이 30%, 60%, 90%일때, 각 농축단계에서의 농축수 수질을 조사하였다. 본 연구의 목적은 침출수의 증발과정 동안 농축수의 수질을 조사함으로써 침출수 원수에 존재하는 오염물의 변화과정을 이해하며 최종증발 농축수의 처분을 위한 평가지침으로 이용할 수 있을 것이다. 일반적으로 농축수는 SS, COD, 중금속, 기타 비휘발성물질을 고농도로 함유하고 있으며, 증발공정을 거치면서 침출수의 색깔은 증발전 검은색에서 흑갈색으로 변화했다. 침출수는 증발과정에서 열적인 변화를 받아 잔류침출수, 즉 농축수는 침강율과 탈수능이 향상되며 처리량이 초기 침출수보다 월등하게 줄어들어 전체적인 처분방법이 용이하게 된다.

Fig. 6에서 Fig. 11까지는 농축율에 따른 농축수의 농도를 나타낸 것으로 계산값과 실험값을 비교하여 나타내었다. 계산값은 침출수 원수중 수분만이 증발하며 반응기내의 수분이외의 다른 오염물은 증발하거나 소멸하지 않으며 수분증발에 의한 단순농축만이 일어난다고 가정한 값이다. 전체적으로 분해, 농축수의 수질은 수분이 점차 증발함에 따라 잔류하는 성분들의 농도는 높아졌다. 농축

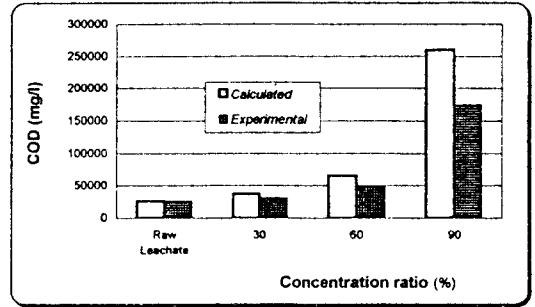


Fig. 6. COD concentration variations as a function of concentration efficiency (%)

수의 경험적 COD농도는 농축율 30%, 60%, 90%에서 각각 이론치의 83%, 74.7%, 67.1%를 나타내어 농축이 진행될 수록 이론치와 실험값과의 차이가 증가하는 것을 알 수 있었다. 이 차이는 증발에 의한 COD성분의 감소를 의미하는 것이다.

TOC의 경우 이론치와 실험값과의 차이가 COD보다 크게 나타났으며 이는 TOC성분 중 휘발성 유기화합물이 차지하는 비율이 높음을 알 수 있다. 이론치와 비교시 실험값은 농축율에 따라 73.5%, 61.6%, 49.7%로 농축이 진행될 수록 증발되는 TOC성분이 증가함을 알 수 있었다. TOC, COD의 전체적인 변화를 살펴볼때 처리수내의 TOC는 COD의 약 1/3~1/2정도를 나타내면서 COD와 유사한 농도변화를 나타낸 반면, 농축수의 TOC/COD비는 1/3정도로 농축수내의 COD성분은 TOC성분이 많이 존재함을 알 수 있었다.

pH의 경우, 농축율에 따른 이론적인 계산이 불가능하므로 pH가 각각 7.53, 8.02인 침출수로 구분하여 농축율에 따른 pH를 검토하였다.

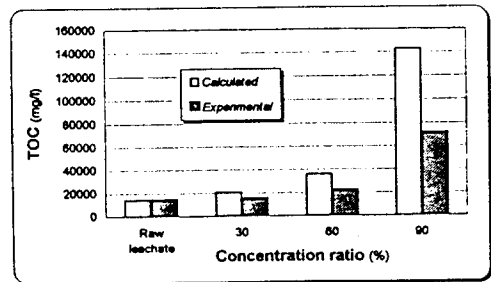


Fig. 7. TOC concentration variations as a function of concentration efficiency (%)

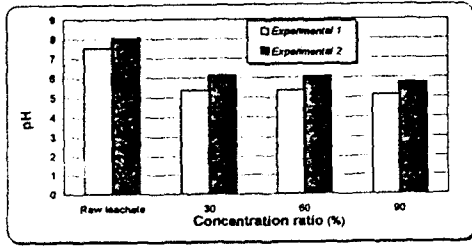


Fig. 8. pH variations as a function of concentration efficiency (%)

농축이 진행함에 따라 농축수의 pH는 침출원수보다 낮은 pH를 나타내어 약산성으로 변화하였다.

NH₃-N의 경우, 농축율이 30%에 도달했을 때, 대부분의 암모니아가 휘발하여 처리수의 농도는 높게 나타났고, 농축수의 NH₃-N농도는 이론치보다 56%가 감소한 수치를 나타내었으며 이는 침출수내에 존재하는 NH₃-N가 증발 과정에서 암모니아 가스로 전환되어 배출되었기 때문이다. 농축율 60%, 90%에서 농축수의 NH₃-N실현값은 이론값에 비해 42.5%, 43.6%로 나타났으며 농축수의 pH가 점점 낮아짐에 따라 더이상 암모니아로 증발하지 못하고 암모늄의 형태로 농축되어 존재하기 때문인것으로 사료된다.

농축율이 30%, 60%, 90%로 변화함에 따라 실제 농축수의 전기전도도는 이론값에 비해 94.8%, 62.2%, 31.9%를 나타내어 농축이 진행될 수록 전기전도도는 감소함을 알 수 있었다.

농축율 변화에 따른 농축수의 SS농도는 이론적인 농축율에 훨씬 못미치는 값을 나타내었다. 본 공정의 특성상

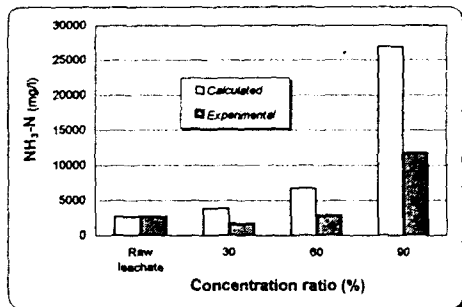


Fig. 9. NH₃-N concentration variations as a function of concentration efficiency (%)

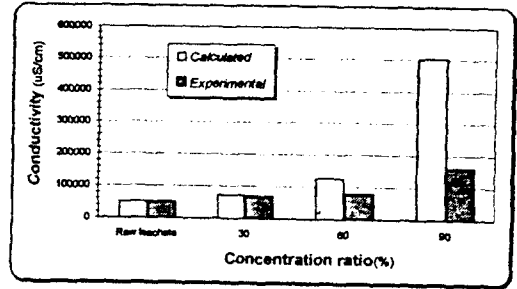


Fig. 10. Conductivity variations as a function of concentration efficiency (%)

SS가 증발하거나 인소되었다고 가정할수도 없으므로 농축수의 SS가 감소하는 원인을 알 수 없었으나, 반응기의 내부를 조사했을 때 반응기의 내벽에 2-5mm정도의 부유 물질이 응집되어 있음을 알았다. 농축수의 SS는 대부분 벽면에 부착되어 있었기 때문에 농축수의 SS농도가 낮게 나타났다.

3. pH변화에 따른 처리특성

3.1 침출수의 적정처리와 pH

침출수의 pH조정과 관련하여 처리수의 수질변화를 조사하였다. 주입원수의 pH는 4.0, 6.0, 7.5, 9.0, 10.0으로 조정하였으며, 산성증발시 pH 4.0, 6.0은 침출수 원수에 HCl을 첨가하여 pH를 조정하였고, pH 7.5는 침출수 원수를 그대로 사용하였으며, 염기성증발에서는 침출수 원수에 NaOH를 첨가하여 pH를 9, 10으로 조정한 다음 증발 시료로 사용하였다. 각각의 pH에서 처리수의 pH변화와 COD, NH₃-N농도를 분석하였다.

처리수의 pH는 다른 실험과 마찬가지로 원수의 pH보다 높게 나타냈으며, pH 4의 경우 처리수는 6이하를 나타내

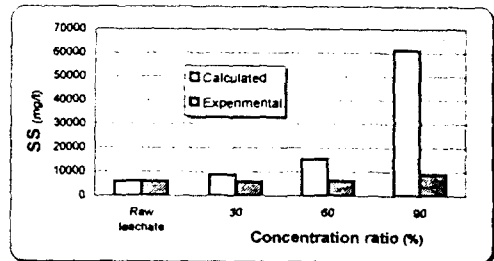


Fig. 11. SS concentration variations as a function of concentration efficiency (%)

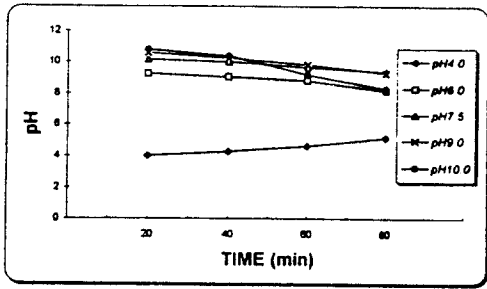


Fig. 12. pH variations of distillate as a function of pH

었다. pH를 4로 조정했을 때 처리수의 pH가 4-6의 범위를 보인 것은 낮은 pH에서는 암모니아가 휘발하지 못했기 때문인 것으로 판단된다. 한편 pH를 조정하지 않았을 경우와 반대로 pH 4에서는 농축수의 pH가 점점 증가하는 경향을 보였다.

pH를 4로 조정하였을 때(산성 증발시), 처리수의 COD 농도는 pH변화 중에서 가장 높은 수치를 나타내었으며 이는 pH 감소에 따라 침출수는 산성화되고 반응기내에 존재하는 COD성분중 휘발할 수 있는 부분이 증가하여 처리수의 농도가 높게 나타난 것으로 판단된다. 그러나 pH가 점점 증가함에 따라 처리수의 COD는 지속적으로 감소하여 pH 10에서 제일 양호한 수질을 나타내었으며 처리효율은 98.9%였다.

처리수내의 NH₃-N 농도는 원수의 pH를 증가시킴에 따라 지속적으로 증가하였다. 처리수의 NH₃-N 농도는 Fig. 14에서와 같이 pH를 4로 조정하였을 때(산성증발시) 가장 낮게 나타났으며, 이는 pH가 증가함에 따라 휘발할 수 있는 암모니아의 양과 밀접한 상관이 있는 것이다.

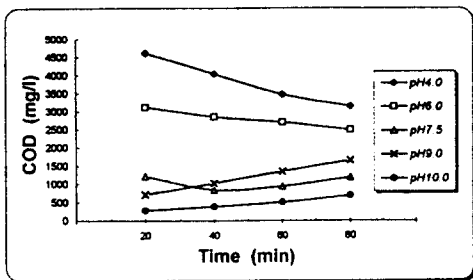


Fig. 13. COD concentration variations as a function of pH

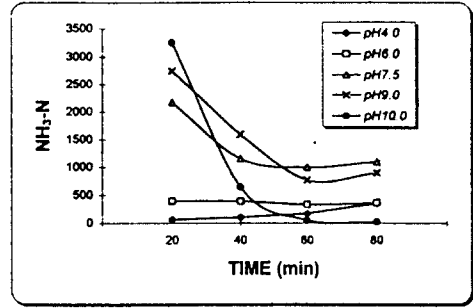


Fig. 14. NH₃-N concentration variations as a function of pH

pH 조정을 하지않은 상태에서 NH₃-N의 제거율이 -1.4~53.7%였으나, pH를 4로 조정하였을 때 NH₃-N의 제거율은 84.6~97.5%로 상승함을 알 수 있었다. 처리수의 NH₃-N농도는 pH 10에서 최고농도를 나타내었으나 pH가 감소함에 따라 NH₃-N의 처리율은 양호하게 나타났다. pH 4일때 NH₃-N의 처리효율이 상승하였으며 최고 97.5%를 나타내었다.

진저리 과정을 거치지 않은 침출수를 감압증발 처리한 결과, 수중의 질소성분은 일반적으로 낮은 pH에서 암모늄의 형태로 존재하기 때문에 휘발하지 못하고 농축수에 그대로 잔류하여 고농도를 나타내는 반면 처리수에서는 저농도를 나타내었다. 높은 pH(10이상)에서는 대부분의 암모니아가 휘발하여 응축단계에서 응축되므로 농축수에는 저농도를 나타내고, 처리수내에서는 매우 높은 암모니아 농도를 나타내었다.

따라서 암모니아와 COD물질은 증발과정에서 pH변화에 상당히 많은 영향을 받는 것으로 조사되었으며 암모니아를 제어하기 위해서는 시료의 pH를 산성으로 조작하고, COD물질을 제어하기 위해서는 알칼리상태에서 조작하면 유리함을 알았으며, COD물질은 암모니아보다 pH의 영향을 적게 받는다는 사실도 알았다. 실험결과, 암모니아와 COD물질을 동시에 제어하기 위한 최적의 pH는 5~6임을 알았다.

IV. 결론

감압증발을 이용하여 온도, 압력변수를 80°C, 360mmHg로 고정한 상태에서 Scale-up실험결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. COD의 제거효율은 96.4%~97.5%, NH₃-N 제거율은

- 1.4~53.7%. TOC는 81.7~89.0%, 전기전도도는 92.0~95.3%, SS는 99.86~99.97%를 나타내었다.
- 2. 원수의 pH가 7.5일때 증발시간에 따른 처리수의 pH는 10~11로 증가하였으며, pH증가의 원인은 암모니아로 판단되었다.
- 3. 농축수의 변화특성을 검토한 결과, 90% (V/V)로 농축했을때, 실험값/계산값의 비로 나타낸 농축효율은 COD>TOC>NH₃-N>전기전도도>SS의 순으로 나타났으며 농축수는 공정상의 열처리효과로 침전성이 향상되었다.
- 4. 산성증발(pH 4.0, 6.0)의 경우, 증발시간 20분에 COD의 제거율은 낮게(81.6%, 87.6%), 암모니아의 제거율은 높게(97.5%, 84.6%) 나타났다.
- 5. 염기성증발(pH 9.0, 10.0)의 경우 증발시간 20분에 COD는 높은 처리효율(97.2%, 98.9%)을 나타내었고, 암모니아는 낮은 처리효율(-7.4%, -27.2%)을 나타내었다.

참 고 문 헌

- 1. 강호, 이진홍, 김명란, 홍지숙 : 단위가정 조사방법에 의한 도시고형폐기물의 원단위 배출량 및 성상에 관한 연구, 한국폐기물 학회지, Vol. 11, No 2, 247-254 1994.
- 2. 구자공, 윤석표, 최지용 : 폐기물 매립안정화 및 토지이용, 월간폐기물, Vol. 25, 77-88, 1995.
- 3. 환경백서 : 환경부, 188-207, 1995.

- 4. Deborah R. Birchler, Mark W. Milke, A. Leigh Marks, Richard G. Luthy : Landfill Leachate Treatment by Evaporation. Journal of Environmental Engineering, Vol. 120, No. 5, October, 1109-1131, 1994.
- 5. A. Leigh Marks, Richard G. Luthy, Urmila M. Diwekar : Semi-Continuous Evaporation Model for Leachate Treatment Process Evaluation, Environmental Progress, November, Vol. 13, No. 4, 278-289, 1994.
- 6. Hans-Christian Steinmetzer : Distillation of Leachates from Hazardous Waste Landfills - One Year of Experience, Proc., Int. Conf. On New Frontiers in Hazardous Waste Mgmt., EPA/600/9-87/018F, USEPA, 367-374, 1987.
- 7. Tiefel, H. : Erfahrungen mit Einer Betriebsanlage zur Eindampfung von Sickerwassern, Ber. Wasserguetewirtsch, Gesundheitsingenieurwes, Vol. 86, 257-277, 1989.
- 8. 이정곡 : 쓰레기 매립장의 침출수에 대한 연구, 수도학회지, Vol. 53, 42-51, 1990.
- 9. 이성호 : 도시쓰레기 침출수의 성분분석 및 처리에 관한 연구, 한국폐기물학회, Vol. 11, No. 2, 262-272, 1994.