

36kHz 초음파 반응기에서의 원주파수 및 파생주파수의 음압 분포 분석

손 영 규*

국립금오공과대학교 환경공학과

The Analysis of Acoustic Emission Spectra in a 36 kHz Sonoreactor

Younggyu Son*

Department of Environmental Engineering, Kumoh National Institute of Technology

ABSTRACT

Acoustic emission spectra was analyzed to investigate the distribution of sound pressure in a 36 kHz sonoreactor. The sound pressure of fundamental frequency (f: 36 kHz), harmonics (2f: 72 kHz, 3f: 108 kHz, 4f: 144 kHz, 5f: 180 kHz, 6f: 216 kHz), and subharmonics (1.5f: 54 kHz, 2.5f: 90 kHz, 3.5f: 126 kHz, 4.5f: 162 kHz, 5.5f: 198 kHz, 6.5f: 234 kHz) was measured at every 5 cm from the ultrasonic transducer using a hydrophone and a spectrum analyzer. It was revealed that the input power of ultrasound, the application of mechanical mixing, and the concentration of SDS affected the sound pressure distributions of the fundamental frequency and total detected frequencies frequencies significantly. Moreover a linear relationship was found between the average total sound pressure and the degree of sonochemical oxidation while there was no significant linear relationship between the average sound pressure of fundamental frequency and the degree of sonochemical oxidation.

Key words : Acoustic emission spectra, Sound pressure, Fundamental frequency, Harmonics, Subharmonics, Sonochemical reactions

1. 서 론

초음파 기술은 미세한 버블에 의해 발생하는 캐비테이션(Cavitation) 현상을 이용하는 것으로 미세 기포가 생성, 성장, 폭발하는 일련의 과정을 통해 일어나는 물리적 및 화학적 효과를 이용한다. 그러므로 미세 버블의 거동을 어떻게 조절하느냐에 따라 캐비테이션 현상 및 그에 따른 초음파 물리/화학적 효과의 정도를 예측 및 이용할 수 있다. 일반적으로 세척/세정, 추출 등을 위한 초음파 물리적 효과(Sonophysical effects)는 20~40 kHz의 낮은 주파수 영역대에서 가장 큰 효과를 얻을 수 있는 것으로 알려져 있는데, 이는 해당 주파수 영역에서 미세 버블의 크기 및 버블 내부 에너지가 상대적으로 크기 때문이다. 물질의 합성, 오염물질의 분해/무기화 등을 위한 초음파 화학적 효과(Sonochemical effects)는 상대적으로 높은 수백 kHz 영역대의 주파수 조건에서 가장 활발하게 일어나는 것으

로 알려져 있는데, 이는 상대적으로 작은 크기의 버블이 보다 많이 발생하고, 빠른 주기로 생성, 성장, 폭발을 반복하면서 산화 등을 위한 라디칼 등을 보다 빠르게 공급하기 때문이다(Beckett and Hua, 2001; Adewuyi, 2001; Son et al., 2011).

이와 같이 초음파 기술의 이용 가능성은 적정 주파수의 선정이 우선적으로 이루어져야 하기 때문에 기존의 많은 연구들이 최적 주파수 선정을 목적으로 다양한 분야에서 수행되었다. 최근에는 원주파수 이외의 파생 주파수의 발생 및 그에 따른 음압 분포 등에 대한 연구가 일부 진행되기도 하였는데, 이는 초음파 진동자가 진동하며 발생된 초음파에 의해 영향 받는 캐비테이션 버블이 스스로 진동하면서 다시 또 다른 음원이 되는 현상을 이론적 배경으로 두고 있다. 즉, 최초의 주파수인 원주파수(Fundamental frequency) 이외에 버블이 진동하면서 버블 외부로 방출하는 형태의 하모닉스(Harmonics), 서브하모닉스(Subharmonics)

*Corresponding author : yson@kumoh.ac.kr

Received : 2016. 11. 14 Reviewed : 2016. 11. 28 Accepted : 2016. 11. 30

Discussion until : 2017. 2. 28

등의 파생 주파수를 갖는 음압이 발생한다는 것이다 (Frohly et al., 2000; Ashokkumar et al., 2007; Avvaru and Pandit, 2009; Price et al., 2005; Hodnett et al., 2004; Son et al., 2012a).

기존의 연구는 아직까지는 단순히 원주파수 및 하모닉스에 의해 발생하는 주파수의 종류와 그에 따른 음압의 분포 분석에 집중되어 있으며, 초음파 화학적 효과와의 연관성 분석 수준에 머물러 있다. 그러나 유입 에너지의 증가가 원주파수의 음압 상승이 아닌 파생 주파수의 음압 상승에 더 기여한다는 기존 연구 등을 고려해보면 최적의 초음파 주파수 선정을 위해서는 하모닉스에 대한 연구가 보다 활발하게 이루어져야 될 것으로 판단된다(Son et al., 2012a). 또한 소규모 반응기에서의 음압 분포 분석이 아닌 중대형 반응기에서 반응기 내부의 에너지 분포 수준과 이때의 하모닉스 생성 수준에 대한 연구 역시 필요할 것으로 판단된다.

그러므로 본 연구에서는 초음파 진동자에서의 거리에 따른 원주파수 및 파생 주파수의 음압 분포를 분석하기 위해 조사방향으로 60 cm 거리가 확보되는 반응기 및 하이드로폰과 스펙트럼 분석기를 이용하여 실험을 수행하였다. 원주파수는 36 kHz를 적용하였으며, 다양한 조건에서의 음압 분포를 확인하기 위하여 유입에너지 증가, 기계적 교반 적용여부, 계면활성제 농도변화 등의 조건을 적용하였다. 또한 그에 따른 초음파 화학적 효과를 KI 방법을 이용하여 정량화하였다.

2. 실험 방법

2.1. 초음파 반응기

본 연구에 사용한 초음파 반응기 및 관련 장치에 관한 모식도를 Fig. 1에 나타내었다. 아크릴 사각 반응기 (110 × 600 × 250 mm³)의 한쪽 측면에 36 kHz 초음파 모듈(Mirae Ultrasonic Tech)을 설치하였으며, 기계적 교반

적용을 위해 반대쪽에 교반기를 설치하였다. 초음파 모듈에는 지름 45 mm의 진동자 1개가 포함되었으며, 유입에너지는 파워미터(M-4660M, Metex) 측정결과인 40 W 및 70 W를 적용하였다. 반응기에는 12 L의 증류수 혹은 SDS (Sodium dodecyl sulfate) 용액(0.5~4.0 mM)을 채워 실험을 수행하였으며, 실험 온도 및 pH는 각각 20~22°C와 6.2~7.0 수준이었다.

2.2. 음압 측정

36 kHz 초음파로 인해 발생하는 원주파수 음압 및 파생 주파수의 음압을 하이드로폰(TC4034, Reson)과 스펙트럼 분석기(N9320A, Agilent) 등을 이용하여 진동모듈부터 5 cm 간격으로 50 cm 거리까지 측정하였다. 하이드로폰은 진동자로부터의 초음파를 정확하게 측정하기 위해 진동자 중심부의 높이(바닥에서 5 cm)와 동일하게 위치시켜 측정을 수행하였다. 다양한 주파수의 음압은 10초 동안 최대치가 측정되어 기록되었으며 하이드로폰의 선형적 측정범위인 1~250 kHz 영역을 대상으로 하였다. 결과적으로 음압은 원주파수(f: 36 kHz), 하모닉스(harmonics, 2f: 72 kHz, 3f: 108 kHz, 4f: 144 kHz, 5f: 180 kHz, 6f: 216 kHz), 서브하모닉스(subharmonics, 1.5f: 54 kHz, 2.5f: 90 kHz, 3.5f: 126 kHz, 4.5f: 162 kHz, 5.5f: 198 kHz, 6.5f: 234 kHz) 등을 mV 단위로 측정된 후 하이드로폰 제조사에서 제공한 변환 식을 이용하여 Pa 단위로 변환하였다. 측정된 여러 주파수의 음압들은 원 주파수의 음압과 측정된 모든 음압의 합으로 구분하여 비교 분석하였다(Son et al., 2012a).

2.3. KI 측정법

각 실험 조건에서의 초음파 화학적 효과를 정량적으로 분석하기 위해 라디칼 반응 등의 정량화에 널리 사용되고 있는 KI 측정법(KI dosimetry)을 적용하였다. 이는 고농도의 KI 용액을 이용하는 방법으로 이온화된 I⁻ 이온이

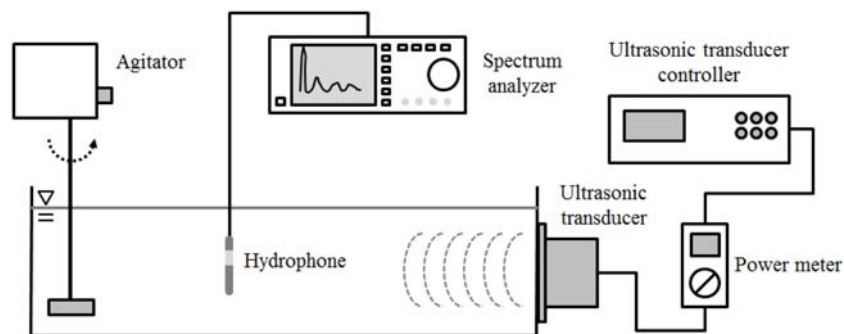


Fig. 1. A schematic diagram of the experimental set-up.

초음파 캐비테이션 현상에 의해 발생하는 OH 라디칼 등의 다양한 산화 라디칼에 의해 I₂로 산화되고, 다시 주변에 과량으로 존재하는 I⁻와 반응하여 I₃⁻가 형성되는 반응을 이용한다. KI 용액의 농도는 10 g/L를 적용하였으며, 발생된 I₃⁻ 이온은 분광광도계(SPECORD 40, Analyticjena)로 350 nm 조건에서 측정하여 정량화한 후 abs 단위로 각 조건의 결과를 비교분석하였다(Asakura et al., 2008).

2.4. 초음파화학발광기법

초음파 반응기 내부에 형성되는 캐비테이션 활성화 정도를 시각적으로 확인하기 위하여 초음파화학발광기법(Sonochemiluminescence, SCL)을 루미놀 용액을 이용하여 적용하였다. 빛이 완벽하게 차단된 조건에서 루미놀 용액(0.1 g/L 루미놀(5-Amino-2,3-dihydrophthalazine-1,4-dione)과 1 g/L의 NaOH)이 포함된 초음파 반응기의 액상을 초음파 조사 동안 노출 기능이 있는 디지털 카메라를 이용하여 수분간 촬영하여 이미지를 얻어내었다(Asakura et al., 2008; Son et al., 2012a).

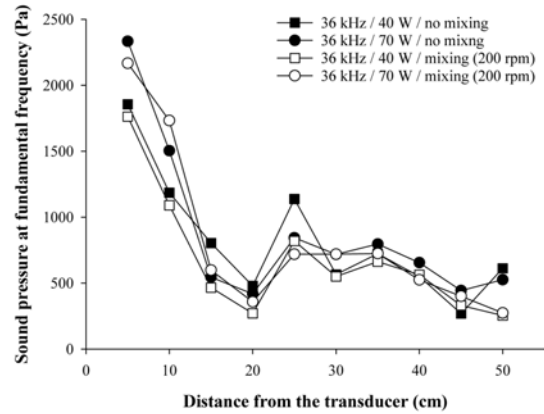
3. 결과 및 고찰

3.1. 음압 분포 분석

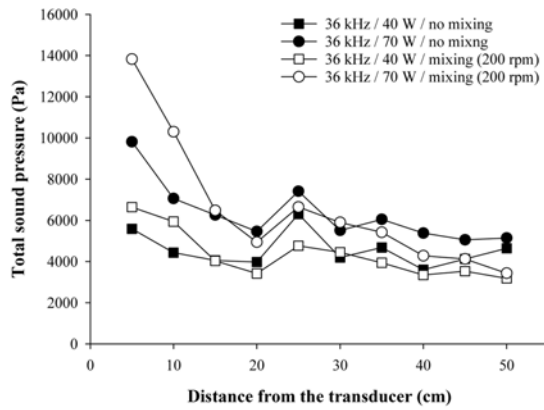
다양한 조건에서 초음파 반응기 내부의 음압 분포 및 그에 따른 초음파화학적 효과의 정도가 어떻게 변화하는지 확인하기 위하여 36 kHz 초음파 반응기를 이용하여 조사방향의 음압 분포 분석 실험을 수행하였다. 우선 초음파 진동자 모듈의 유입에너지가 40 W 혹은 70 W인 경우에 대하여 기계적 교반(200 rpm)에 의한 효과를 확인하기 위해 진동자를 기준으로 초음파 조사방향으로 5 cm 간격으로 하이드로폰을 이용하여 음압을 측정하였고, 이를 Fig. 2와 같이 원주파수의 음압 및 원주파수의 음압과 파생 주파수(하모닉스와 서브하모닉스)의 음압들을 합산한 결과(Total sound pressure)로 각각 정리하였다.

전반적으로 초음파의 음압이 음원(Sound source)인 진동자에서 멀어질수록 감소하는 경향을 확인할 수 있는데, 이는 초음파가 매질을 통과하면서 매질의 점성으로 인한 에너지 손실/전환 및 반응기 벽면, 수면 등의 경계면에서의 손실이 발생하기 때문이다. 이론적으로 매질에 의해 발생하는 손실에 대한 감쇠계수(Attenuation coefficient)는 다음의 식과 같이 계산될 수 있다.

$$\alpha = \frac{2\pi^2 f^2}{\rho c^3} \left\{ \frac{4}{3} \eta_s + \frac{(\gamma-1)\kappa}{c_p} \right\} \quad (1)$$



(a) Sound pressure for the fundamental frequency (36 kHz)



(b) Total sound pressure for the fundamental frequency, harmonics and subharmonics

Fig. 2. Sound pressure distributions in the 36 kHz sonoreactor.

여기서 α 는 감쇠계수, f 는 적용 주파수, ρ 는 초음파 조사 액체의 밀도, c 는 액체에서의 소리의 속도, η_s 는 액체의 점성, γ 는 비열비, κ 는 열전도율, 그리고 c_p 는 일정 압력에서의 열용량을 의미한다(Son et al., 2012b). 초음파의 음압은 20 cm 지점까지 급격히 감소하다 일시적으로 회복된 후 다시 상대적으로 완만하게 감소하는 양상을 보이는데, 25 cm 지점에서 일시적으로 음압이 상승하는 현상은 진동자 반대쪽 벽면에서 반사된 반사파로 인한 영향일 것으로 판단되었다. 감소하는 중 일시 상승하는 에너지 분포 경향은 기존 연구에서도 보고되었으나 정확한 이유에 대한 논의는 이루어지지 않았다(Son et al., 2012a). 진동자 반대편 벽면에 흡음재를 설치하여 벽면에 의한 초음파 반사를 최소화하는 경우 음압이 일시 상승하지 않고 지속적으로 감소하는 경향이 보고되기도 하였다(Son et al., 2009).

36 kHz 원주파수의 음압과 원주파수 및 파생 주파수의 총합계 음압을 살펴보면, 원주파수 음압의 분포는 전반적으로 유입에너지 증가와 기계적 교반 적용 여부에 크게 영향을 받지 않는 것으로 확인되었다. 다만 초반 5 cm 및 10 cm 지점의 70 W 조건이 40 W 조건보다 다소 높은 음압이 측정되어 유입에너지의 증가 영향은 진동자 근처 일부지역에 한정되는 것으로 판단되었다. 반면에 총합계 음압은 유입에너지 상승으로 인한 음압 상승이 반응기 전체구간에 걸쳐 뚜렷하게 확인되었다. 이는 유입에너지의 상승이 원주파수의 음압을 상승시키는데 사용되기보다는 파생주파수의 음압을 상승시키는데 보다 더 많이 사용되는 것을 의미할 수 있으며, 경우에 따라 일정 크기 이상의 파생주파수 음압을 생성시켜 원주파수와 또 다른 주파수 영향이 동시에 이루어질 수 있는 다중 주파수(Multi frequency) 조건을 만들 수 있을 것으로 판단되었다(Son et al., 2012a). 기존에는 이중(Dual frequency) 등의 다중 주파수 조건을 만들기 위해서 다른 주파수의 진동자를 각각 반응기에 설치한 후 동시에 조사하는 방식을 적용하였다. 단일 주파수의 유입에너지를 조정하여 다중 주파수 시스템을 구현하는 것은 진동자 개발 연구, 유입에너지 변화 연구 등의 추가 연구가 필요할 것으로 판단되었다.

기계적 교반에 의한 효과는 앞서 언급한 바와 같이 원 주파수 음압에는 큰 영향이 없으나 총합계 음압에는 유입 에너지 증가의 경우와 유사한 구간인 진동자 근처 구간에서 큰 차이를 만드는 것으로 확인되었다. 이러한 음압 차이의 발생은 기계적 교반에 의한 수체의 불안정성에 의한 것으로 판단되었다. 또한 15 cm 이후 구간에서 기계적 교반에 의한 차이가 거의 없는 것으로 보아 이러한 차이는 음압이 높은 경우에 뚜렷하게 나타나는 것으로 고려되었다. 기존 연구에서는 하단에서 상부로 초음파를 조사하는 경우 수면에 실리콘 시트를 띄워 초음파 조사에 의해 수면이 흔들리는 것을 최소화하여 캐비테이션 버블의 분포 및 음파발광(Sonoluminescence, SL)의 분포가 보다 넓은 지역에 안정적으로 이루어지는 것을 보고하였다(Lee et al., 2011). 또한, 초음파 조사에 직접적인 방해가 되지 않는 지점에서의 기계적 교반 적용이 초음파화학적 반응을 증진시킨다는 결과도 보고되었다(Kojima et al., 2010). 즉, 수체의 안정성 정도가 초음파 반응기 내부의 캐비테이션 현상, 초음파화학적 반응 등에 직접적인 관계가 있는 것으로 판단된다. 그러나 수체의 안정성 정도가 음압 분포에 미치는 직접적인 영향에 대한 연구는 아직까지 보고되지 않고 있으며, 초음파 반응에 긍정적일지 부정적일지에 대해서 현재로서는 불명확한 상태이다. 본 연구에서

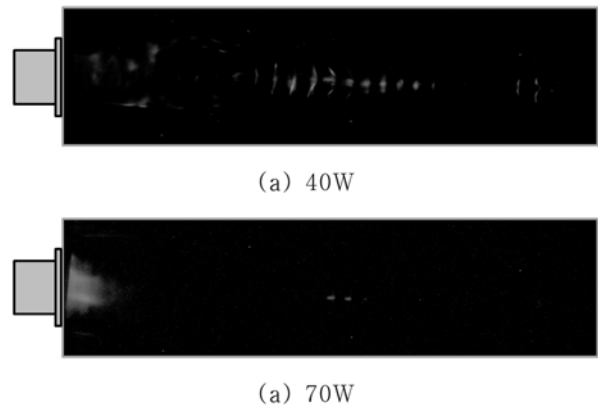


Fig. 3. Sonochemiluminescence images for 40 and 70 W (No mixing and SDS).

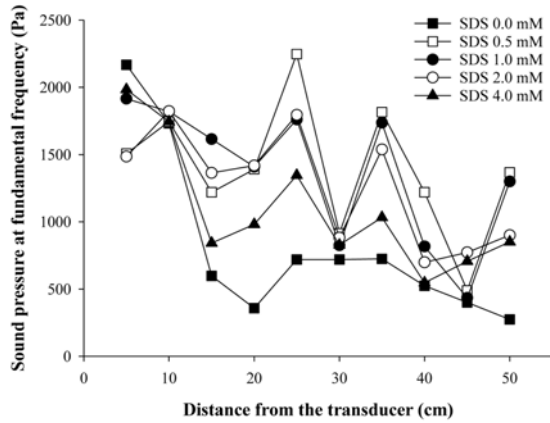
는 기계적 교반으로 인한 수체의 높은 불안정성이 진동자 주변 음압이 높은 구간에서 총합계 음압을 상승시키는 긍정적인 효과로 확인되었다.

앞에서 언급한 Kojima et al.(2010)의 연구결과와 같이 기계적 교반에 의해 캐비테이션 비활성화 지역에 있는 반응물을 활성화 지역으로 빠르게 이동시켜 초음파화학적 반응의 정도를 향상시킬 수 있다. 유입에너지가 높은 경우 캐비테이션 버블이 진동자 주변에 많이 만들어져 버블 클러스터를 형성하게 되며, 이로 인해 초음파의 진행이 제한되어 초음파 화학적 반응이 진동자 주변에 국한될 수 있게 되는데, 이를 기계적 교반 등으로 어느 정도 해결할 수 있을 것으로 예상하였다. 이를 확인하기 위하여 기계적 교반과 계면활성제를 적용하지 않은 40 W 및 70 W의 유입에너지 조건에서 캐비테이션 활성화 범위의 시각화를 위한 초음파화학 발광 실험을 수행하였고, 그 결과 이미지를 Fig. 3에 나타내었다.

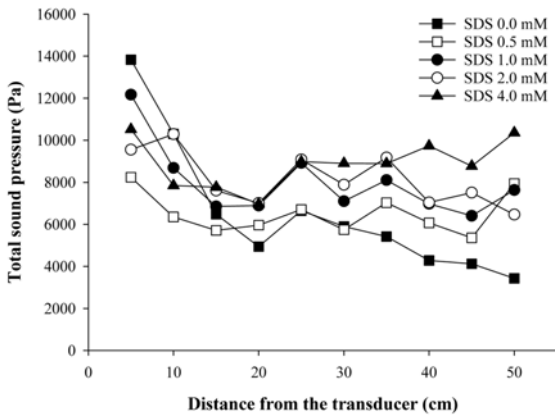
유입에너지 40 W 조건에서는 상대적으로 약하지만 반응기 전반에 걸쳐 밝게 빛나는 캐비테이션 활성화 지역이 나타났으나, 70 W 조건에서는 진동자 주변에 매우 강하게 빛나는 활성화 지역만이 나타나 높은 유입에너지 조건에 의한 초음파 에너지 전달 제한 현상을 확인할 수 있었다. 이러한 현상으로 인하여 초음파화학적 반응의 정도가 감소될 수 있는데 이를 기계적 교반 등을 통해 캐비테이션 비활성화 범위에 있는 반응물을 활성화 범위로 이동시켜 반응을 증진시킬 수 있을 것으로 판단하였고, 이를 3.3장의 KI 방법으로 확인하였다.

3.2. 계면활성제 영향

초음파 캐비테이션 반응에서 계면활성제는 캐비테이션 버블의 거동 및 그에 따른 초음파화학적 효과 등에 큰



(a) Sound pressure for the fundamental frequency (36 kHz)

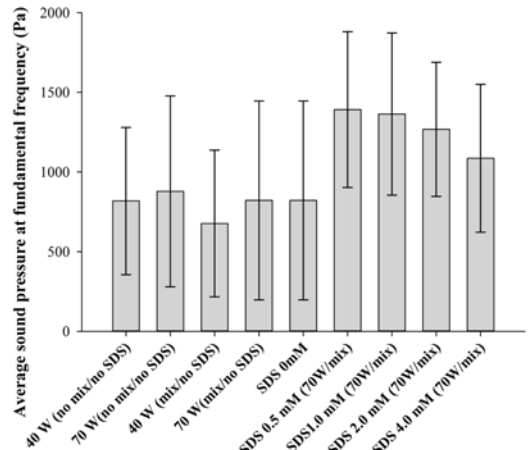


(b) Total sound pressure for the fundamental frequency, harmonics and subharmonics

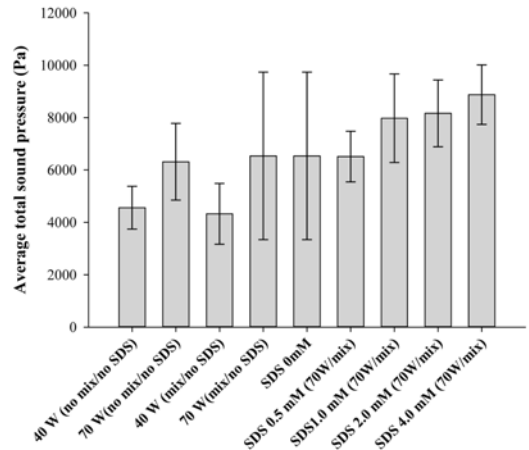
Fig. 4. Sound pressure distributions in the presence of SDS (0~4.0 mM) in the 36 kHz sonoreactor.

영향을 미친다. 계면활성제는 발생하는 캐비테이션 버블이 작은 크기로 독립적으로 존재할 수 있도록 정전기적 보호(Electrostatic shielding)를 통해 서로 합쳐지는 현상(Coalescence)을 최소화할 수 있는 것으로 알려져 있으며, 이로 인하여 음파발광(SL), 초음파화학음파발광(SCL), 초음파화학적 반응 등을 증진시키는 것으로 보고되고 있다 (Lee et al., 2011; Grieser and Ashokkumar, 2001). 본 연구에서는 70 W의 유입에너지 조건 및 기계적 교반 적용 조건에서 0~0.4 mM 범위의 계면활성제 SDS 용액을 초음파 반응기에 적용하여 앞선 방법과 동일하게 음압 분포 측정 실험을 수행하였다.

Fig. 4에 나타낸 바와 같이 SDS가 존재하는 경우 원주파수 음압 분포 및 총합계 음압 분포 모두 Fig. 2의



(a) Average sound pressure for the fundamental frequency (36 kHz)



(b) Average total sound pressure for the fundamental frequency, harmonics and subharmonics

Fig. 5. Average sound pressure distributions (0~50 cm) in the 36 kHz sonoreactor.

SDS가 없을 때와 비교하여 크게 변화하는 것으로 확인되었다. 원주파수 음압 분포의 경우 진동자 바로 앞인 5 cm 지점에서는 SDS 적용으로 인해 음압이 감소되었으나 15 cm 이후 구간에서는 SDS의 적용이 음압을 크게 증진시키는 것으로 측정되었다. 그러나 본 연구에서 적용한 SDS 농도 범위에서는 SDS 농도와 음압 크기 사이의 상관관계를 명확하게 규명하는 것은 어려운 것으로 판단하였다. 이는 원주파수 음압 분포의 경우 SDS 4.0 mM 조건에서 다른 SDS 농도 조건보다 낮은 음압 수준이 확인되었으나 총합계 음압 분포의 경우 전반적으로 높은 SDS 농도 조건에서 상대적으로 높은 음압 수준이 관측되었기 때문이다. 이는 본 연구에서 수행한 각 조건에 대한 0~50 cm 구간의 음압 분포의 평균값을 나타낸 Fig. 5에서

확인할 수 있다. 그래프 상의 “70 W(mix/no SDS)” 조건과 “SDS 0 mM(70 W/mix)”는 동일한 실험 결과로 비교를 용이하게 하기 위해 두 번 표현하였다.

음압 분포에 대한 SDS 농도의 영향에 대한 기존 연구를 살펴보면, Lee et al.(2011)은 SDS가 캐비테이션 버블이 서로 합쳐지는 것을 막아 눈에 잘 보이지 않는 수준의 작은 버블들만이 존재하는 것을 SDS 1 mM 조건에서 확인하였으며 그로 인해 초음파 감쇠현상이 현저하게 줄어드는 것을 확인하였다. 그러나 SDS 10 mM 조건에서는 SDS 미적용 조건보다는 덜 한 수준이지만 눈에 보일 정도의 큰 버블들이 반응기 내부에 형성되는 것을 관찰하였으며, 이로 인해 초음파 감쇠현상이 크게 증가하는 것으로 보고하였다. 이는 고농도의 SDS 조건에서 과도한 양의 해리된 SDS 단위체(monomer)가 전해물질로 작용하여 버블들이 합쳐지는 것을 방지하는 정전기적 반발을 감소시키기 때문인 것으로 설명하였다. 결과적으로 SDS로 인해 초음파 감쇠현상이 크게 감소될 수 있으나 CMC(Critical micelle concentration) 수준의 고농도의 SDS 조건에서는 감쇠현상이 줄어드는 것이 저해될 수 있어 본 연구결과와 같이 초음파 에너지가 상대적으로 낮은 수준으로 전달되는 것으로 판단하였다. Ashokkumar et al.(2007)은 다양한 SDS 농도 범위에서 원주파수 및 파생주파수의 음압 스펙트럼을 분석하였는데, 일반 물 조건 및 높은 SDS 농도 조건(3~10 mM)에서는 스펙트럼 상 백색 잡음(White noise)이 관찰되었으나 낮은 SDS 농도 범위(0.5~2 mM)에서는 백색 잡음이 없는 스펙트럼을 확인하였다. 이는 SDS 농도에 따라 원주파수 및 파생주파수의 음압 스펙트럼 구성이 크게 달라질 수 있음을 의미한다.

3.3. 초음파화학적 반응의 정량적 평가

본 연구에서 음압분포를 분석한 유입에너지 조건(40, 70 W), 기계적 교반 적용 여부, SDS 농도 조건(0~4.0 mM) 등에서의 초음파화학적 반응의 정량적 평가를 위해 관련 연구에서 일반적으로 많이 사용되고 있는 KI 방법을 적용하였고, 이를 Fig. 6에 나타내었다. KI 방법은 열분해(Pyrolysis)와 라디칼 반응(Radical reactions)의 두 가지 초음파 화학적 반응 중 라디칼 반응에 대한 정량화 방법으로 비휘발성 오염물질의 초음파 반응에 의한 산화 정도를 간접적으로 평가할 수 있는 방법으로 알려져 있다. 그래프 상의 “70 W(mix/no SDS)” 조건과 “SDS 0 mM (70 W/mix)”는 동일한 실험 결과로 비교를 용이하게 하기 위해 두 번 표현하였다.

KI 방법에 의한 초음파화학적 반응의 정도는 높은 유입

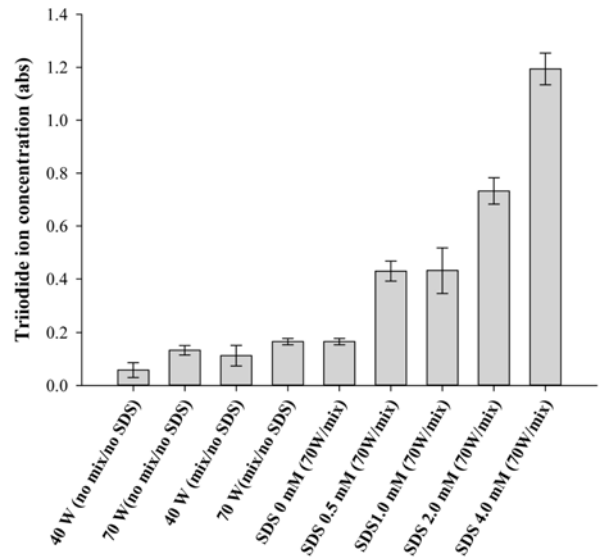


Fig. 6. Quantification of sonochemical oxidation reactions in the 36 kHz sonoreactor.

에너지 조건, 기계적 교반이 적용되는 조건, SDS 농도가 높은 조건에서 크게 향상되는 것으로 확인되었다. 또한, 유입에너지 상승 및 기계적 교반의 적용과 비교하여 SDS의 적용 및 농도 증가로 인한 산화 정도의 상승이 상대적으로 매우 높게 나타나 앞서 언급한 SDS로 인한 캐비테이션 버블의 뭉침 방지 및 초음파 에너지 전달 향상 등의 긍정적 효과가 그대로 나타나는 것으로 판단되었다. 세부적으로 살펴보면 SDS를 적용하지 않는 경우에 대해 기계적 교반을 적용한 70 W 조건의 결과를 기계적 교반을 적용하지 않은 40 W 조건의 결과보다 약 290% (0.058 abs → 0.166 abs)의 산화력 상승이 확인되었으며, SDS를 적용하는 경우(70 W 및 기계적 교반 적용)에 대해서는 0 mM 조건보다 4.0 mM 조건에서 약 720% (0.166 abs → 1.194 abs)의 산화력 상승이 확인되었다.

반응기 전체 구간에 대한 초음파 음압 분포의 평균값 (Fig. 5)과 초음파화학 반응의 산화력 (Fig. 6)의 상관관계를 살펴보면, 원주파수에 대한 평균 음압 값보다 원주파수 및 파생 주파수 모두에 대한 평균 총합계 음압 값과의 상관성이 보다 높은 것으로 판단되었다. 이는 초음파 화학적 반응을 위한 초음파 반응기 설계 시 적용 원주파수에 의한 영향과 함께 파생 주파수에 의한 영향을 같이 고려해야함을 의미한다. 각각의 상관관계수(R)는 0.564 및 0.833으로 산정되었다. 기존의 연구에서는 원 주파수에 의한 영향 중심으로 연구가 수행되었으며, 파생 주파수 측정 등에 대한 연구가 거의 이루어지지 않아 주파수와 초음파화학적 반응의 보다 명확한 관련성 규명을 위해서는

보다 다양한 조건에서의 관련 연구 수행이 필요할 것으로 판단되었다.

4. 결 론

본 연구에서는 36 kHz 초음파 반응기를 이용하여 진동자에서 발생하는 초음파 에너지가 조사 방향으로 어떻게 분포되는지에 대해 분석하기 위해 하이드로폰을 이용하여 진동자에서 5~50 cm 구간에 대해 원주파수 및 파생 주파수(하모닉스 및 서브하모닉스)의 음압을 측정하였다. 초음파 유입에너지(40 및 70 W) 변화, 기계적 교반 적용 여부, 계면활성제 SDS 농도(0~4.0 mM) 변화 등의 조건에 대해 음압을 측정한 결과 높은 유입에너지 조건, 기계적 교반 적용 조건, 높은 SDS 농도 조건 등이 음압 분포에 크게 영향을 미치는 것으로 확인하였다. 또한 각 조건에서의 초음파화학적 반응의 정도를 KI 방법으로 정량화한 결과 원주파수 및 파생 주파수의 총합계 음압과의 선형적 상관성이 높은 것으로 확인되었다. 이를 통해 효율적인 초음파화학 반응기 설계를 위해서는 원주파수의 에너지 수준 분석과 함께 파생 주파수의 에너지 수준 분석이 함께 이루어져야 할 것으로 판단되었다. 해당 연구를 통해 고도산화처리공정(AOPs)에 사용할 수 있는 초음파 반응기 설계/운영을 위한 기초 자료 축적이 가능할 것으로 판단한다.

사 사

본 연구는 환경부의 토양지하수오염방지기술개발사업(No. 2012000550003 및 No. 2015000560002)으로 지원받았습니다.

References

- Adeyuyi, Y.G., 2001, Sonochemistry: Environmental science and engineering Applications, *Ind. Eng. Chem. Res.*, **40**(22), 4681-4715.
- Asakura, Y., Nishida, T., Matsuoka, T., and Koda, S., 2008, Effects of ultrasonic frequency and liquid height on sonochemical efficiency of large-scale sonochemical reactors, *Ultrason. Sonochem.*, **15**(3), 244-250.
- Ashokkumar, M., Hodnett, M., Zeqiri, B., Grieser, F., and Price, G.J., 2007, Acoustic emission spectra from 515 kHz cavitation in aqueous solutions containing surfaceactive solutes, *J. Am. Chem. Soc.*, **129**(8), 2250-2258.
- Avvaru, B. and Pandit, A., 2009, Oscillating bubble concentration and its size distribution using acoustic emission spectra, *Ultrason. Sonochem.*, **16**(1), 105-115.
- Beckett, M.A., 2001, Impact of ultrasonic frequency on aqueous sonoluminescence and sonochemistry, *J. Phys. Chem. A*, **105**(15), 3796-3802.
- Frohly, J., Labouret, S., Bruneel, C., Looten-Baquet, I., and Torguet, R., 2000, Ultrasonic cavitation monitoring by acoustic noise power measurement, *J. Acoust. Soc. Am.*, **108**(5), 2012-2020.
- Grieser, F. and Ashokkumar, M., 2001, The effect of surface active solutes on bubbles exposed to ultrasound, *Adv. Colloid Interfac.*, **89-90**, 423-438.
- Hodnett, M., Chow, R., and Zeqiri, B., 2004, High-frequency acoustic emissions generated by a 20 kHz sonochemical horn processor detected using a novel broadband acoustic sensor: a preliminary study, *Ultrason. Sonochem.*, **11**(6), 441-454.
- Kojima, Y., Asakura, Y., Sugiyama, G., and Koda, S., 2010, The effects of acoustic flow and mechanical flow on the sonochemical efficiency in a rectangular sonochemical reactor, *Ultrason. Sonochem.*, **17**(6), 978-984.
- Lee, J., Ashokkumar, M., Yasui, K., Tuziuti, T., Kozuka, T., Towata, A., and Lida, Y., 2011, Development and optimization of acoustic bubble structures at high frequencies, *Ultrason. Sonochem.*, **18**(1), 92-98.
- Price, G.J., Ashokkumar, M., Hodnett, M., Zeqiri, B., and Grieser, F., 2005, Acoustic emission from cavitating solutions: implications for the mechanisms of sonochemical reactions, *J. Phys. Chem. B*, **109**(38), 17799-17801.
- Son, Y., Lim, M., Ashokkumar, M., and Khim, J., 2011, Geometric optimization of sonoreactors for the enhancement of sonochemical activity, *J. Phys. Chem. C*, **115**(10), 4096-4103.
- Son, Y., Lim, M. and Khim, J., 2009, Investigation of acoustic cavitation energy in a large-scale sonoreactor, *Ultrason. Sonochem.*, **16**(4), 552-556.
- Son, Y., Lim, M., Khim, J., and Ashokkumar, M., 2012a, Acoustic emission spectra and sonochemical activity in a 36 kHz sonoreactor, *Ultrason. Sonochem.*, **19**(1), 16-21.
- Son, Y., Lim, M., Khim, J., Kim, L.H., and Ashokkumar, M., 2012b, Comparison of calorimetric energy and cavitation energy for the removal of bisphenol-A: The effects of frequency and liquid height, *Chem. Eng. J.*, **183**, 39-45.