

흡습성 에어로졸의 거동에 미치는 수증기 응축의 영향*

The effect of steam condensation on the behavior of an hygroscopic aerosol

박재우*

J. W. Park

Abstract

The growth by steam condensation of an hygroscopic aerosol is investigated using the condensation rate model which has been derived from the mass and heat transfer equations. The present model accounts for both the solute and Kelvin effects. When the hygroscopicity is considered, condensation can occur on hygroscopic seed particles even under subsaturated steam conditions. This study focuses on the effect of hygroscopicity on the evolution of the particle size distribution and decay of the total aerosol concentration. It is found that hygroscopicity causes the particle size distribution to rapidly move upward even in a very short time, resulting in substantially higher decay of the total aerosol concentration than the case without considering hygroscopicity.

주요기술용어 : Hygroscopic aerosol(흡습성 에어로졸), Steam condensation(수증기 응축),
Condensation rate model(응축률 모델)

1. 서론

수증기 응축에 의한 흡습성(hygroscopic) 에어로졸의 성장 현상은 대기과학, 환경공학, 보건학 등과 관련된 주요한 연구대상이다.^{(1),(2)} 흡습성 에어로졸의 수증기응축 성장은 또한 원자로 중대사고 해석분야에도 중요한 역할을 한다. 중대사고시 격납용기로 방출되는 핵분열생성물 가운데 방사선원함에 기여도가 큰 Cs, I 핵종은 CsOH, CsI 등과 같은 흡습성 에어로졸 형태로 존재한다. 이러한 에어로졸은 상대습도가 불포화 조건에서도 주위 기체의 수증기를 흡수하여 입자크기가 빠르게 성장하는 특징이 있다.

입자크기가 빠르게 성장하면 중력에 의한 침전이 가속되고 결과적으로 방사선원함을 감소시킨다. 원자로 중대사고와 관련된 흡습성 에어로졸의 연구는 Jokiniemi^{(3),(4)} 등에 의하여 수행된 바 있다. 방사선원함에 미치는 흡습성 에어로졸의 이러한 중요성에도 불구하고 MELCOR⁽⁵⁾ 등과 같은 일부 중대사고 해석 코드는 에어로졸의 흡습성을 고려하지 않고 있다. 본 연구는 이러한 중대사고 해석 코드의 모델 개선 과정의 일환으로 흡습성이 수증기 응축에 의한 에어로졸 성장에 미치는 영향을 조사하였다. 흡습성이 수증기 응축률과 입자 성장속도에 미치는 영향을 분석하였고, 중력침전과 수증기 응축을 고려한 경우에 대해서 에어로졸 거동방정식의 해를 구하여 흡습성이 에어로졸 입자크기 분포 및 전체 에어로졸량에 미치는 영향을 분석하였다.

* 이 논문은 97학년도 한국대학교육협의회 대학교수 국내교류 연구비 지원에 의한 것임.

** 제주대학교 에너지공학과

2. 흡습성 에어로졸의 수증기 응축률 모델

에어로졸 입자의 크기가 수증기 분자의 평균자유 비정보보다 작은 경우(free molecular regime) 수증기 응축률은 수증기분자와 입자의 충돌빈도에 좌우되며 입자의 크기가 수증기 분자의 평균자유비정보보다 큰 경우(continuum regime)는 응축률은 수증기 분자의 확산에 지배된다. 입자의 크기가 어느 정도 성장 하면 대체로 연속영역(continuum regime)에 속하므로 수증기 응축률은 기본적으로 수증기분자의 확산방정식을 풀어서 유도하며, 여기에 기체운동이론에 근거한 보정계수를 사용하여 작은 입자의 영향을 반영한다. 본 연구에서는 확산이 지배적인 경우를 가정하여 보정계수를 무시하였다. 확산이 지배적인 경우 수증기 응축률은 입자표면에서의 확산속(diffusion flux)과 입자 표면적의 곱으로 표시된다. 수증기 응축이 동반되는 경우 입자의 형태는 응축수의 표면장력의 영향으로 구형으로 근사될 수 있다. 이 경우 수증기 분자의 확산방정식은 입자의 중심이 구좌표계의 중심이 되는 수증기 밀도에 대한 2차미분방정식으로 표시되며 경계조건은 입자 반경($r=r_p$)에서 수증기 밀도 (ρ_r)와 입자로부터 먼 곳($r=\infty$)에서 수증기 밀도 (ρ_∞)가 된다. 이러한 조건에서 수증기 응축률을 구하기 위해서는 다음과 같은 가정이 필요하다. 수증기 밀도는 공간적으로 균일하며 수증기분자의 확산은 정상상태에서 일어난다. 이러한 가정에서 수증기 분자의 확산방정식을 풀어서 응축률을 구하면 다음과 같이 표시된다.

$$\phi(r_p, t) = 4\pi r_p D (\rho_\infty - \rho_r) \quad (1)$$

여기서 $\phi(r_p, t)$ 는 시간 t 에서 반경이 r_p 인 입자에 대한 수증기 응축률을 나타낸다. D 는 수증기분자의 확산계수, ρ_∞ 와 ρ_r 은 각각 주위기체와 입자 표면의 수증기 밀도이다. 입자표면의 수증기밀도 ρ_r 는 입자표면의 온도와 입자크기에 의해서 지배된다. 입자의 크기가 작을수록 입자표면의 수증기 밀도가 커져서 응축률이 감소하게 되고(Kelvin효과) 응축잠열의 첨가로 입자표면의 온도가 상승함에 ρ_r

이 커져서 응축률이 감소한다.

에어로졸 입자가 흡습성 성분을 포함하면 응축된 물과 흡습성 성분이 반응함으로써 입자표면의 증기 밀도를 감소시키는데 결과적으로 응축률을 증가시키는 작용을 한다. 이것을 흡습성 성분의 용질효과(solute effect)라 한다. Kelvin효과와 용질효과를 고려한 경우 입자표면의 증기밀도는 다음과 같이 표시된다.

$$\rho_r = \rho_s(T_r) a_w \exp\left(-\frac{2\sigma M_w}{r_p R \rho_s T_r}\right) \quad (2)$$

여기서 $\rho_s(T_r)$ 은 입자표면의 온도 T_r 에서 물의 포화 증기밀도이고, σ 는 흡습성 용액의 표면장력, M_w 는 물의 그램분자량, R 는 기체상수, ρ_s 는 입자의 밀도이다. a_w 는 물의 화학적 활동도(chemical activity)를 나타내며 Raoult의 법칙에 의하면 다음과 같이 표시된다⁶⁾.

$$a_w = \frac{1}{1 + f \frac{M_w m_s}{M_s m_w}} \quad (3)$$

여기서 M_s 는 흡습성 성분의 그램분자량이며 m_s 와 m_w 는 각각 입자에 포함된 흡습성 성분과 물의 질량이다. f 는 van't Hoff 계수로서 흡습성 성분의 전리도에 의해서 결정되는 상수이다. 식 (2)에서 지수함수는 Kelvin효과를 나타내며 a_w 는 용질효과를 나타낸다. 식 (2)로부터 입자표면의 포화비(saturation ratio) S_r 을 정의하면 아래와 같다.

$$S_r = \frac{\rho_r}{\rho_s(T_r)} = a_w \exp\left(-\frac{2\sigma M_w}{r_p R \rho_s T_r}\right) \quad (4)$$

식 (2)에서 본 바와 같이 ρ_r 은 입자표면의 온도의 함수이고 입자표면의 온도는 수증기가 응축함에 따라 잠열이 첨가되어 상승한다. 입자표면의 온도를 결정하기 위해서는 입자의 열량상승(질량x비열x온도상승)과 입자로부터 주위 기체로 전달되는 열량의 합과 첨가되는 잠열의 균형방정식을 풀어야 한다.

이 방정식은 비정상상태로서 입자의 열량상승이 온도의 시간에 대한 미분치로 표시된다. 그러나 대개 입자의 온도가 변하는 시간은 수증기 응축에 비하여 매우 길기 때문에 입자표면에서 주위 기체로 곧바로 열이 전달된다고 가정한다. 문헌 [3]은 실제로 이러한 가정으로 발생하는 오차는 1%정도에 불과함을 보고하고 있다. 따라서 정상상태에서 입자표면의 온도 T_r 은 첨가되는 잠열과 입자표면으로부터 주위 기체로 전달되는 열을 같게 됨으로써 결정된다.

$$\phi(r_p, t)L = 4\pi r_p K(T_r - T_\infty) \quad (5)$$

여기서 L 은 수증기의 잠열을 나타내고 T_∞ 와 K 는 각각 주위 기체의 온도와 열전도계수를 나타낸다. 식 (5)의 좌변은 수증기 응축으로 입자에 첨가되는 잠열량을 나타내고 우변은 입자로부터 주위 기체로 전달되는 열을 나타낸다. 우변은 구형 입자에 대한 열확산방정식을 풀어서 구한 결과이다.

식 (1)과 (5)로부터 수증기 응축률 $\phi(r_p, t)$ 를 구하기 위해서 Clausius-Clapeyron의 공식을 이용하여 입자표면의 포화 증기밀도를 다음과 같이 근사한다.⁽⁷⁾

$$\rho_s(T_r) = \rho_s(T_\infty) \left[1 + \frac{LM_w}{RT_\infty^2} (T_r - T_\infty) \right] \quad (6)$$

식 (5), (6)을 이용하여 T_r 을 소거한 후 그 결과를 식 (2)와 함께 식 (1)에 대입하면 흡습성 에어로졸의 수증기 응축률 모델은 다음과 같이 구해진다.

$$\phi(r_p, t) = 4\pi r_p \frac{(S_\infty - S_p)}{\frac{1}{D\rho_s} + \frac{L^2 M_w}{KRT_\infty^2}} \quad (7)$$

여기서 $\rho_s = \rho_s(T_\infty)$ 이고 S_∞ 은 주위 기체의 포화 비로서 $S_\infty = \rho_\infty/\rho_s$ 로 정의된다.

3. 흡습성 에어로졸 입자의 평형반경

흡습성 에어로졸은 주위 기체의 수증기가 과포화인 조건에서는 입자크기가 지속적으로 성장을 하게

된다. 하지만 상대습도가 100% 이하인 경우에는 처음에는 수증기 응축이 일어나지만 흡습성 성분의 농도가 희석되어 입자표면의 증기압이 주위 기체의 증기압과 같게 되면 입자의 성장이 멈춘다. 이때 응축률은 0이 되고 입자는 평형크기에 도달한다. 그러므로 주어진 상대습도에서 입자의 평형반경은 식 (7)의 S_p 이 S_∞ 과 같게 되는 점에서 결정된다. 식 (2)의 지수함수를 일차식으로 근사하고 식 (3)의 m_w 를 전체 입자의 질량에서 흡습성 성분의 질량을 뺀 값으로 대입하면 평형반경을 계산하는 방정식은 다음과 같이 얻어진다.

$$\begin{aligned} (S_\infty - 1)r_p^3 - \left(\frac{2\sigma M_w}{\rho_s RT_\infty} \right) r_p^2 \\ - \left(\frac{\rho_o r_o^3}{\rho_s} \right) (S_\infty - 1 - S_\infty f \frac{M_w}{M_s}) r_p \\ + \frac{2\sigma M_w \rho_o r_o^3}{RT_\infty \rho_s^2} = 0 \end{aligned} \quad (8)$$

여기서 r_s 와 r_o 는 각각 입자의 평형반경과 초기 반경을 나타내며 ρ_o 는 흡습성 성분의 밀도를 나타낸다. 식 (8)은 입자의 평형크기를 구하는 4차 방정식으로 $S_\infty \leq 1$ 인 경우에 r_s 의 실근이 존재한다.

4. 에어로졸의 입자 성장 방정식

수증기 응축에 의한 에어로졸 입자의 크기 성장은 수증기 응축물이 입자의 질량 증가율과 같으므로 입자 성장 방정식은 다음과 같이 표시된다.

$$\frac{dv}{dt} = \phi(r_p, t) \quad (9)$$

여기서 v 는 반경이 r_p 인 입자의 질량으로서 $v = \frac{4}{3} \pi r_p^3 \rho_s$ 의 관계가 성립한다. 식 (7)과 (9)를 이용하면 입자의 반경변화는 다음의 식으로 나타낼 수 있다.

$$\frac{dr_p}{dt} = \frac{1}{r_p} \frac{(S_\infty - S_r)}{\frac{\rho_p}{D\rho_s} + \frac{\rho_p L^2 M_v}{KRT_\infty}} \quad (10)$$

에어로졸은 광범위한 크기의 입자들의 집합체로서 입자간 결합과 증기의 응축으로 크기가 성장하며 증력침전을 비롯한 여러 가지 부착현상에 의해서 제거된다. 에어로졸의 부착은 확산 부착, 벽면과의 온도 차에 의한 부착(thermophoresis), 수증기 응축에 동반된 부착(diffusiophoresis), 관성충격에 의한 부착(inertial impaction) 등이 있다. 수증기응축에 의한 입자 성장은 입자간 결합에 비하여 매우 빠르게 진행되기 때문에 짧은 시간에는 입자간 결합의 영향은 무시할 수 있다. 또한 증기응축으로 인하여 급속한 입자의 성장이 일어나는 경우는 증력에 의한 부착이 지배적이다. 본 연구에서는 증력침전과 수증기 응축이 동시에 일어나는 경우를 고려하였으며 다른 현상의 영향은 무시하였다. 이 경우 에어로졸 거동방정식은 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$\frac{\partial n(v,t)}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial v} [\phi(v,t)n(v,t)] - R(v,t)n(v,t) \quad (11)$$

여기서 $n(v,t)$ 는 입자크기 분포함수로서 $n(v,t)dv$ 는 입자의 질량이 v 와 $v+dv$ 사이에 있는 입자수 밀도를 나타낸다. $\phi(v,t)$ 는 질량이 v 인 입자의 수증기 응축률로서 식 (7)의 우변을 v 의 함수로 나타낸 것이다. $R(v,t)$ 는 질량이 v 인 입자의 증력침전에 의한 제거율을 나타내는데 아래와 같이 쓸 수 있다.

$$R(v,t) = R_0 v^{2/3} \quad (12)$$

여기서 R_0 는 에어로졸 용기의 기하학적 구조와 증력가속도, 점성계수 등에 의해서 결정되는 상수이다. 식 (11)은 해석적인 방법으로 $n(v,t)$ 의 해를 구할 수 있는데 다음과 같이 주어진다⁽⁸⁾.

$$n(v,t) = n_0(v') \frac{\phi(v',t)}{\phi(v,t)} E(t) \quad (13)$$

여기서 v' 는 시간 t 에서 크기가 v 인 입자의 초기 질량으로서 아래의 방정식에 의해서 결정된다.

$$\frac{dv'}{dt} = -\phi(v',t) \quad (14)$$

$$\text{초기조건: } v'(0) = v$$

$E(t)$ 는 시간 t 동안 증력침전으로 제거되는 에어로졸의 감쇠상수로서 아래와 같이 정의된다.

$$E(t) = \exp\left[-\int_0^t R(v',t') dt'\right] \quad (15)$$

수증기 응축률 모델 (7)과 증력침전 모델 (12)에 대해서 식 (14)와 (15)는 각각 상용화된 미분방정식 해법과 수치분법을 사용하여 해를 구할 수 있다. 본 연구에서는 IMSL의 DGEAR와 DCADRE를 사용하였다. 식 (13)으로부터 입자크기분포 $n(v,t)$ 가 구해지면 이것을 수치적분하면 전체 에어로졸 입자수 밀도 $N(t)$ 를 계산할 수 있다.

$$N(t) = \int_{v_{\min}}^{v_{\max}} n(v,t) dv \quad (16)$$

여기서 v_{\min} 과 v_{\max} 는 각각 최소 및 최대 입자의 크기를 나타낸다.

5. 계산결과 및 분석

수증기 응축이 흡습성 에어로졸의 거동에 미치는 영향을 분석하기 위하여 본 연구에서는 CsOH 에어로졸을 고려하였다. 계산에 사용된 에어로졸 성분의 물성치 및 열역학적 조건은 다음과 같다.

CsOH의 밀도(ρ_0): $3.68 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$

기체의 온도(T_∞): $323 \text{ }^\circ\text{K}$ ($50 \text{ }^\circ\text{C}$)

기체의 압력(P_∞): $1.10325 \times 10^5 \text{ Pa}$

물의 그램분자량(M_w): 0.018 kg/mol

CsOH의 그램분자량(M_w): 0.150 kg/mol

수증기의 잠열:

$$L = 3.255 \times 10^6 - 2.6845 \times 10^3 T_\infty \text{ J/kg}$$

기체의 열전도계수:

$$K = 1.96 \times 10^{-3} \frac{T_\infty^{1.5}}{T_\infty + 125} \text{ J/kg m sec}$$

수증기분자의 확산계수(m^2/sec):

$$D = 2.11 \times 10^{-5} \left(\frac{1.01325 \times 10^5}{P_\infty} \right) \left(\frac{T_\infty}{273.15} \right)^{1.94}$$

수증기의 포화밀도(kg/m^3):

$$\rho_s = \frac{0.2888}{T_\infty} \exp \left[18.304 - \frac{3816.44}{(T_\infty - 46.13)} \right]$$

물의 표면장력(N/m):

$$\sigma = 7.785 \times 10^{-2} - 1.925 \times 10^{-4} (T_\infty - 273.15)$$

위에 주어진 물성치의 상관식은 에어로졸 거동 계산 코드인 NAUA⁽⁶⁾에서 취하였다. 식 (3)의 van't Hoff 계수 f 는 실험을 통하여 결정되는 값으로 CsOH인 경우 1.5와 2.0 사이의 값이 보고되고 있으며 본 연구에서는 2.0을 사용하였다. 에어로졸 입자의 초기 온도는 기체와 동일한 것으로 가정하였다.

Fig. 1-3은 각각 상대습도가 90%, 100%, 105%일 때(즉, $S_\infty = 0.9, 1.0, 1.05$) -자연 상태에서는 상대습도가 100%이하가 정상이나 원자로 증대사고 해석에서는 포화상태에서 추가로 유입된 수증기는 계산목적상 과포화도로 환산함- 흡습성을 고려한 경우와 고려하지 않은 경우에 대해서 CsOH 원시입자(seed particle)에 수증기가 응축하여 용액을 형성할 때 용액입자의 크기에 따른 응축률의 변화율 식 (7)를 사용하여 계산한 결과이다. 흡습성을 고려하지 않은 경우는 물의 활동도 a_w 를 1로 두고 계산하였다. CsOH 원시입자의 반경 r_0 는 0.1 μm 로 가정하였으며 용액입자의 크기는 원시입자에 대한 반경의 비 (r_p/r_0)로 나타내었다. 상대습도가 90%에서 흡습성을 고려한 경우 용액입자의 반경비 r_p/r_0 가 약 2.06에 이를 때까지는 응축률이 (+) 값으로 응축이 일어남을 보이고 있으나 반경비가 2.06이상이면 증발이 일어남을 보이고 있다. 이에 반하여 흡습성을 고려

하지 않은 경우는 모든 크기의 입자에 대해서 응축률이 (-) 값으로 실질적으로 증발이 일어남을 보이고 있다. 용액입자의 반경비가 약 5배 이상에서는 흡습성의 영향이 거의 없음을 알 수 있다. 이 경우 용액입자의 크기가 클수록 증발률은 가파르게 상승하고 있다.

상대습도가 100%인 포화상태에서 흡습성을 고려한 경우는 앞의 경우와 같이 용액입자의 반경비가 약 9.85에 이를 때까지는 응축이 일어남을 보이거나 그 이상에서는 증발이 일어남을 알 수 있다. 이 경우에 있어서도 흡습성을 고려하지 않은 경우는 모든 입자 크기에서 증발이 일어나고 있다.

Fig. 1과 Fig. 2를 비교하면 흡습성을 고려한 경우

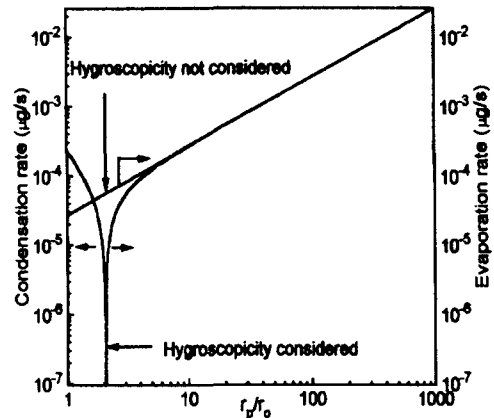


Fig.1 Condensation rates at 90% relative humidity

r_p =grown radius, r_0 =initial radius

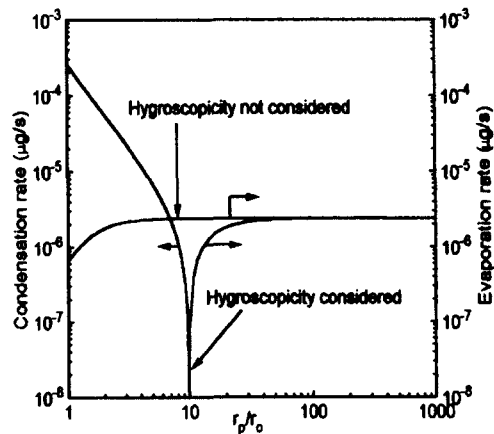


Fig.2 Condensation rates at 100% relative humidity

r_p =grown radius, r_0 =initial radius

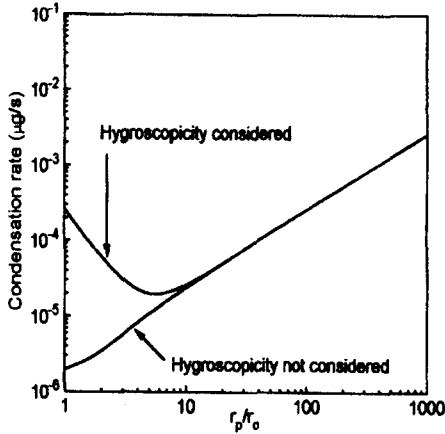


Fig.3 Condensation rates at 105% relative humidity
 r_p =grown radius, r_0 =initial radius

상대습도가 높아짐에 따라 응축이 일어나는 영역이 증가하고 증발률이 감소함을 알 수 있다. 상대습도가 105%인 경우는 흡습성을 고려한 경우와 고려하지 않은 경우 모두 응축이 발생함을 보이고 있다. 흡습성을 고려한 경우 응액입자의 크기가 커짐에 따라 응축률이 감소하여 반경비가 약 2.2에서 최소치에 달한 후 일정하게 증가하고 있다. 반면 흡습성을 고려하지 않은 경우는 초기에는 급속한 응축률의 증가를 보이다 그 이후에는 흡습성을 고려한 경우와 비슷한 증가를 나타내고 있다. 위의 결과에 따르면 흡습성 에어로졸인 경우 상대습도가 아포화상태에서도 수증기 응축으로 입자크기가 성장할 수 있다. 그러나 입자의 크기가 커지면 흡습성의 영향은 거의 무시할 정도이다. 또한 입자의 크기가 작을수록 Kelvin효과 영향이 커져서 응축률의 급속한 변화가 있음을 알 수 있다.

Fig. 4-6은 상대습도가 각각 90%, 99%, 100%에서 반경(r_0)이 0.1, 0.5, 1.0, 5.0 μm 인 CsOH 원시입자의 성장속도와 평형반경(r_e)의 계산결과를 보이고 있다. 입자 성장속도는 식 (10)을 이용하여 계산하였으며 평형반경은 식 (8)로부터 계산하였다. 상대습도가 90%인 경우 평형반경은 각각 0.206, 1.306, 2.074, 10.38 μm 이며 평형반경에 도달하는 데 소요되는 시간은 각각 2×10^{-3} 초, 5×10^{-2} 초, 2.5×10^{-1} 초, 8×10^1 초이다. 상대습도가 99%인 경우 평형반경은 각각 0.418, 2.199, 4.426, 22.25 μm 이며 평형에 도달하는 시간은 각각 4×10^{-2} 초, 2초, 10초, 200초이다.

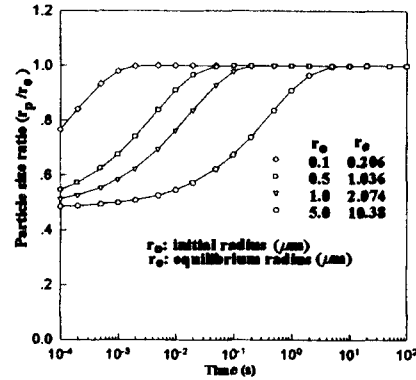


Fig.4 CsOH particle growth rates and equilibrium radii at 90% relative humidity

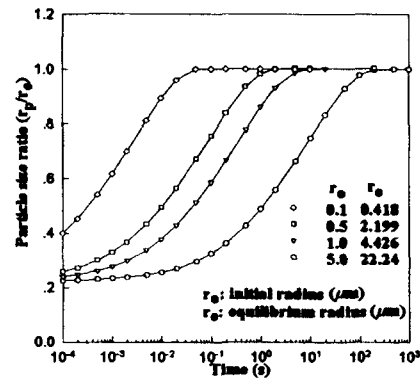


Fig.5 CsOH particle growth rates and equilibrium radii at 99% relative humidity

상대습도가 100%인 경우 평형반경은 각각 0.985, 10.99, 31.08, 347.4 μm 이며 0.1 μm 입자는 평형반경에 도달하는 시간이 20초, 0.5 μm 입자는 30000초로 계산되었다. 이상의 결과에서 알 수 있듯이 상대습도와 초기반경이 클수록 평형반경은 증가하지만 평형반경에 도달하는 시간은 길어진다.

Fig. 7은 상대습도에 따른 초기반경과 평형반경의 관계를 보이고 있는데 상대습도가 높아질수록 상대습도의 변화가 입자 성장에 미치는 영향이 커짐을 알 수 있다. 즉, 상대습도가 99.5% 및 100%일 때의 평

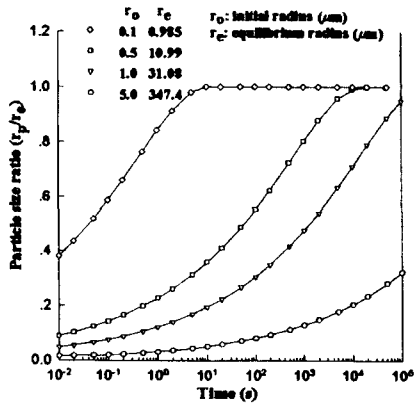


Fig.6 CsOH particle growth rates and equilibrium radii at 100% relative humidity

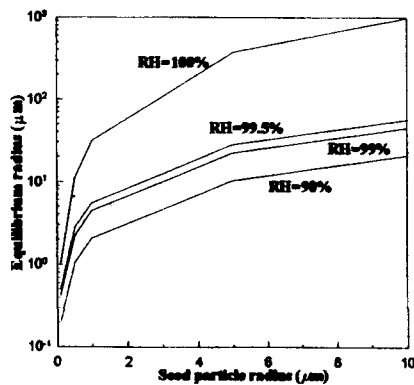


Fig. 7 Change of the equilibrium radius vs. relative humidity and seed particle radius

형반경비의 차이는 상대습도가 99% 및 99.5%일 때 평형반경비의 차이보다 훨씬 크다.

흡습성이 입자크기분포에 미치는 영향을 고찰하기 위하여 초기분포가 대수정규분포(log-normal distribution)을 갖는 CsOH 에어로졸을 대상으로 흡습성을 고려한 경우와 고려하지 않은 경우에 대해서 각각 식 (13)을 이용하여 입자크기분포를 계산하였다. 초기분포의 입자직경의 중앙값은 0.45 μm , 총입자수는 $1 \times 10^6 \text{ \#}/\text{m}^3$, 분포의 표준편차는 1.5, 최소입자의 직경은 0.01 μm 로 가정하였다. 중력침전에 대

한 제거상수(R_0)는 3.844×10^5 로 하였다. 흡습성을 고려한 경우는 상대습도를 99%, 100%, 101%로 가정하였으며, 흡습성을 고려하지 않은 경우는 100%, 101%로 가정하였다. 각 경우 모두 용축된 수증기의 외부에서 지속적으로 보충되어 상대습도는 일정하게 유지되는 것으로 가정하였다.

Fig. 8과 9는 각각 1초 및 5초후의 입자크기분포를 보여주고 있다. 입자크기분포의 변화는 분포의 최대치에 해당하는 입자크기(최빈직경)를 비교함으로써 개략적인 경향을 알 수 있다. 이것은 전체 에어로졸량의 변화가 입자크기분포의 최대치에 해당하는 입자크기에 좌우되기 때문이다.

1초에서의 입자크기분포의 최빈직경은 상대습도가 101%이고 흡습성을 고려한 경우가 4.7 μm , 흡습성을 고려하지 않은 경우가 2.1 μm , 흡습성을 고려한 경우 상대습도가 99% 조건에서 1.5 μm , 상대습도가 100%인 조건에서는 2.5 μm 로 나타났다. 상대습도가 100% 조건에서 흡습성을 고려하지 않은 경우 수증기 용축이 일어날 수 없으므로 입자크기분포의 변화는 거의 없었다. 이상의 결과로 보면 상대습도가 101% 조건에서 흡습성을 고려한 경우 가장 빠른 입자성장을 보였으며, 다음으로 상대습도가 100%에서 흡습성을 고려한 경우이다. 상대습도가 100% 조건에서 흡습성을 고려하지 않은 경우와 고려한 경우 최빈직경은 각각

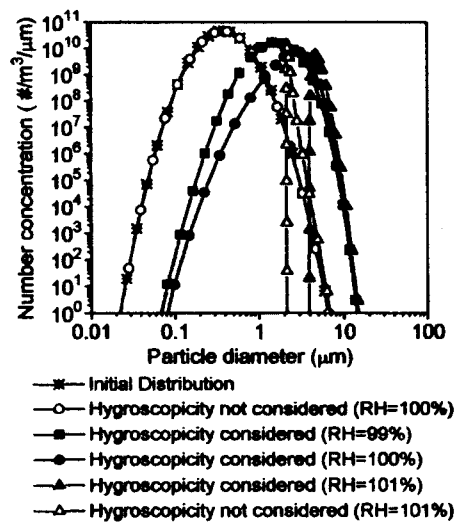


Fig.8 Evolution of the particle size distribution after 1 second

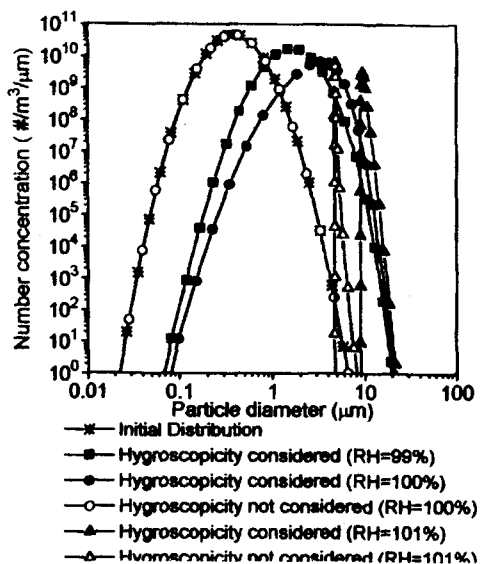


Fig.9 Evolution of the particle size distribution after 5 seconds

0.45 μm, 2.5 μm로서 흡습성을 고려한 경우 약 5배 정도 빨리 성장함을 알 수 있다.

5초후의 입자 크기분포를 보면 상대습도가 101%에서 흡습성을 고려한 경우 최빈직경은 9.4 μm, 흡습성을 고려하지 않은 경우가 4.7 μm로 나타났으며 상대습도가 100%에서 흡습성을 고려한 경우 3.3 μm, 고려하지 않은 경우는 초기분포와 같은 0.45 μm이다. 상대습도가 99%에서 흡습성을 고려한 경우는 1.46 μm이다. 5초후의 결과를 보면 상대습도가 101%인 조건에서 흡습성을 고려한 경우에 가장 빠른 성장을 보였으며 다음 같은 상대습도에서 흡습성을 고려하지 않은 경우이다. 1초후의 결과와 비교하여 입자성장속도의 차이는 상대습도가 100%에서 흡습성을 고려한 경우보다 상대습도가 101%에서 흡습성을 고려하지 않은 경우가 최빈직경이 더 크다는 점이다. 이것은 상대습도가 100%를 초과하는 조건에서는 흡습성의 고려여부와 관계없이 지속적으로 입자 성장이 일어나지만 상대습도가 100%이하 조건에서는 흡습성을 고려하여도 평형크기이상으로 입자성장이 일어나지 않기 때문이다. 따라서 5초후의 입자크기 분포변화는 이와 유사한 경향으로 지속된다고 볼 수 있다. 또 한 가지 주목할 점은 입자크기분포의 폭이 점점 좁아지는 것인데 이것은 작은 입자가 상대적으로 빨리 성장하기 때문이다. 이러한 입자크기 분포의 변화는 중력

에 의한 침전과 입자간 결합에 직접적인 영향을 미치게 된다. 즉, 입자의 성장속도가 빠를수록 빨리 침전이 일어나므로 같은 상대습도에서는 흡습성을 고려한 경우 더 빨리 제거됨을 예상할 수 있다.

Fig. 10은 처음 200초 동안의 CsOH 에어로졸량의 변화를 초기량에 대한 비율[N(t)/N(0)]로 나타낸 것이다. 시간에 따른 에어로졸량은 식 (13)을 (16)에 대입하여 수치적분하여 구하였으며 에어로졸의 감소를 일으키는 현상으로 식 (12)에 의한 중력침전만을 고려하였다. 수증기 응축에 의해서 입자의 크기가 성장하면 중력침전이 가속되므로 입자 성장이 빠를수록 빨리 감소한다. 앞의 결과에서 예상한 바와 같이 상대습도가 101%이고 흡습성을 고려한 경우 가장 빠른 속도로 감소하며 다음은 상대습도가 101%에서 흡습성을 고려하지 않은 경우이다. 상대습도가 100% 조건에서 흡습성을 고려하지 않은 경우 200초 동안 약 1.4%정도 감소한 반면 흡습성을 고려한 경우 약 50%가 감소하는 것으로 계산되었다. 상대습도가 101%에서 초기량의 1/10로 감소하는데 소요된 시간은 흡습성을 고려한 경우 약 75초, 고려하지 않은 경우는 약 130초이다. 상대습도가 100%를 초과하는 조건에서는 흡습성을 고려하여도 수증기 응축이 진행됨에 따라 흡습성 성분의 농도는 떨어져 입자는 거의 몰로 이루어지기 때문에 흡습성의 영향은 거의 없어져 두 경우의 감소 속도가 같아진다고 볼

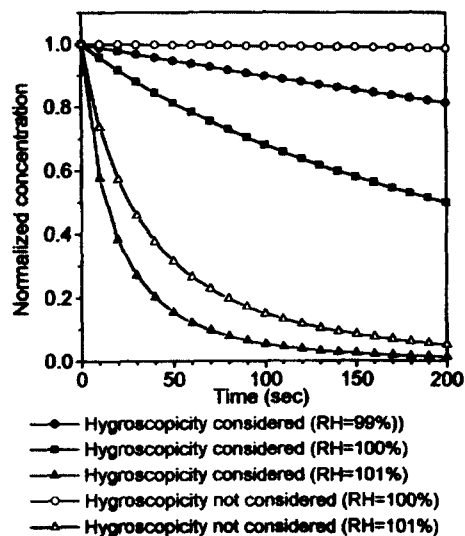


Fig.10 Decay of the normalized total number concentration with increasing time

수 있다.

본 연구에서는 수증기 응축에 따른 흡습성 에어로졸 입자의 크기분포 변화 및 그에 따른 감소를 해석적인 방법으로 분석하고자 입자간 결합이나 다른 에어로졸 부착현상을 무시하고 수증기 응축과 중력침전만을 고려하였으며, 200초란 짧은 시간 동안의 에어로졸 거동을 계산하였다. 수증기 응축이 동반되는 조건에서 짧은 시간의 에어로졸 거동은 입자간 결합의 영향 대개 무시되며 자연적인 조건에서는 중력침전이 주된 제거과정이 된다. 장시간에 걸친 에어로졸의 거동을 해석하기 위해서는 입자간 결합의 영향을 고려되어야 한다. 이 경우 에어로졸 거동방정식의 해는 해석적인 방법으로 구할 수 없기 때문에 수치해법으로 에어로졸 거동방정식의 해를 구하여야 할 것이다.

6. 결론

흡습성 에어로졸의 용질효과와 Kelvin효과를 고려한 수증기 응축률 모델을 이용하여 수증기 응축에 따른 흡습성 에어로졸의 입자성장 현상을 분석하였다. 원자로 중대사고시 방사선원항에 기여도가 큰 CsOH, CsI 등과 같은 흡습성 에어로졸은 상대습도가 포화상태 이하에서도 주위의 수증기를 흡수하여 입자성장이 일어날 수 있으며 그 영향이 상당함을 보았다. 이 경우(상대습도 $\leq 100\%$) 입자는 평형크기에 이를 때까지 성장한다. 상대습도가 100%를 초과하는 조건에서 입자는 지속적으로 성장하며, 이 경우에도 흡습성을 고려하는 경우에 더 빠르게 성장함을 보았다. 입자의 성장속도를 계산한 결과 원시입자의 크기가 클수록 평형크기는 증가하고 평형크기에 도달하는 시간은 길어진다.

수증기 응축과 중력침전을 고려한 경우에 대해서 입자 크기분포 변화를 계산한 결과 흡습성은 입자 크기분포의 빠른 성장을 초래하였고, 이러한 입자 크기분포의 성장은 중력침전으로 제거되는 에어로졸량에 영향을 주어 짧은 시간에 빠른 에어로졸의 감소를 초래하였다.

본 연구에서 분석한 바에 의하면 흡습성은 에어로졸의 감소에 크게 기여하였다. 그러므로 중대사고 해석 코드에서 정확한 방사선원항을 계산하기 위해

서는 흡습성 수증기 응축을 고려하는 방향으로 관련 모델이 개선되어야 할 것이다.

참고 문헌

1. R. J. Robinson and C. P. Yu, "Theoretical Analysis of Hygroscopic Growth Rate of Mainstream and Sidestream Cigarette Smoke Particles in the Human Respiratory Tract", *Aerosol Sci. and Tech.* Vol. 28, pp. 21-32, 1998.
2. R. Hitznerberger, A. Berner, U. Dusek, and R. Alabashi, "Humidity-Dependent Growth of Size-Segregated Aerosol Samples", *Aerosol Sci. and Tech.* Vol. 27, pp. 116-130, 1997.
3. J. Jokiniemi, "The Growth of Hygroscopic Particles During Severe Core Melt Accidents", *Nucl. Tech.* Vol. 83, pp. 16-23, 1988.
4. J. Jokiniemi, K. Koistinen, and T. Raunemaa, "Experimental Verification of Hygroscopic Aerosol Growth in Reactor Accident Conditions", *Nucl. Tech.* Vol. 90, pp. 394-407, 1990.
5. Sandia National Laboratory, MELCOR 1.8.3 Computer code manual, 1994.
6. J. Jokiniemi, "Effect of selected binary and mixed solutions on the steam condensation and aerosol behavior in containment", *Aerosol Sci. and Tech.* Vol. 12, pp. 891-902, 1990.
7. M. Mozurkewich, "Aerosol Growth and the Condensation Coefficient for Water: A Review", *Aerosol Sci. and Tech.* Vol. 5, pp. 223-236, 1986.
8. M. M. R. Williams, and S. K. Loyalka, *Aerosol Science: Theory and Practice*, Pergamon Press, 1991.
9. H. Bunz, M. Kyoro and W. Schock, NAUA Mod4, A code for calculating aerosol behavior in LWR core melt accidents; Code description and users manual, KfK-3554, Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1983.