

결절법을 이용한 전영역에서의 연기입자 응집체에 대한 브라운응집현상 해석

Simulation of the Brownian Coagulation of Smoke Agglomerates in the Entire Size Regime using a Nodal Method

구 재 학*

우석대학교 소방안전학과

(2011년 8월 30일 접수, 2011년 11월 14일 수정, 2011년 11월 25일 채택)

Jaehark Goo*

Department of Fire and Safety, Woosuk University

(Received 30 August 2011, revised 14 November 2011, accepted 25 November 2011)

Abstract

The size distributions of smoke particles from fire are prerequisite for the studies on fire detection and adverse health effects. Above the flame of the fire, coagulation dominates and the smoke particles grow from 1 to 50 nm up to 100 to 3,000 nm, sizes ranging from the free-molecular regime to the continuum regime. The characteristics of the agglomeration of the smoke particles are well known, independently for each of the free-molecular and continuum regimes. However, there are not many systematic studies in the entire regime by the complexity of the mechanisms. The purpose of this work is to find the characteristics of the development of the size distribution of smoke particles by agglomeration in the entire size range covering the free-molecular regime, via transition regime, to the near-continuum and continuum regime for each variation of parameters such as fractal dimension, primary particle size and dimensionless coagulation time. In this work, the dynamic equation for the discrete-size spectrum of the particles was solved using a nodal method based on the modification of a sectional method. In the calculation, the collision frequency function for the entire regime, which is derived by using the concept of collision volume and general enhancement function, was applied. The self-preserving size distribution for the entire regime is compared with the ones for the free-molecular or continuum regimes for each variation of the parameters.

Key words : Smoke particle, Coagulation, Size distribution, Entire regime, Self-preserving size distribution

*Corresponding author.
Tel : +82-(0)63-290-1428, E-mail : jaygoo@woosuk.ac.kr

1. 서 론

화재현장에서 발생하는 연기는 일반적으로 유독 가스와 여러 가지 성분의 유기증기로부터 생성된 미세입자로 되어 있으며 인명손상의 대부분은 이 연기로 인하여 발생한다. 이 미세입자는 주로 미연탄소 성분을 가진 단일입자들의 집합인 응집체 구조를 가지고 있는데 이것은 화학적인 성분과 크기분포 및 응집형상 등으로 특징 지워진다. 각 화재조건에서 이와 같은 응집체의 특성은 화염발생, 화재감지, 화재감식 및 피난과 같은 화재안전 분야 뿐만 아니라 연기의 확산, 대기 중의 반응 및 흡입에 의한 인체영향 등과 깊은 관련을 가지고 있으며 이에 따라 많은 연구가 이루어지고 있다 (Butler and Mulholland, 2004; Gann *et al.*, 2001).

연기입자는 응축핵 (nuclei)과 초기입자(primary particle) 및 응집체 (agglomerates)가 서로 공존하는 크기가 최소 1 nm 정도부터 100 nm 이상의 다양한 크기 및 형상을 가지는 고체상 또는 액체상으로 이루어져 있다. 일반적인 입자형성 과정에 따르면 가스상의 전구체 (precursor)가 핵생성 (nucleation)과정을 거쳐서 응축핵을 형성하고 이들이 성장하여 각 조건에 따라 다양한 크기를 갖는 단구형 (singlet)의 초기입자를 형성한다. 이 초기입자들은 입자간 충돌에 의하여 응집체로 되는데 이때 초기입자가 자체형상을 유지하며 뭉치는 응집 (coagulation)과 자체형상을 유지하지 않고 한 덩어리로 뭉치는 합체 (coalescence)가 동시에 일어나며 응집시간규모 (coagulation time scale)와 합체시간규모의 상대적 크기에 따라서 응집체의 형상이 다르게 나타난다. 고온에서는 초기입자가 다른 초기입자 또는 기존의 응집체와 충돌하면서 자체형상이 변하는 합체가 지배적으로 일어나나 일반적인 화재현장에서 주로 일어나는 확산화염과 같은 경우는 화염 내에서 생성된 초기입자가 대부분 성장하면서 고온영역을 빠져 나오기 때문에 합체보다는 응집이 지배적이 된다 (Bølling *et al.*, 2009; Diemer and Olson, 2006; Jun *et al.*, 2004).

이와 같은 연기 응집체의 특성과 관련하여, 공기의 평균자유행로 (mean free path)에 대한 미세입자의 상대적인 크기로 분류되는 영역 중에서 자유분자영역이나 연속체영역에서는 연기 응집체의 발생 및 성장

메커니즘이 많은 부분 잘 알려져 있으나 전이영역을 포함한 전영역에 관해서는 체계적인 연구가 부족하다. 그러나 실제 연기입자의 발생 및 성장 과정은 자유분자영역으로부터 연속체영역에 이르기까지 모든 범위를 거처가므로 각 영역에서의 독립적인 해석보다는 전영역에서의 해석이 필수적이며, 또한 응집체의 형상에 따라 응집특성이 변화하므로 이에 대한 해석이 포함될 것이 요구된다 (Yu and Lin, 2009; Friedlander, 2000; Otto *et al.*, 1999).

연기응집에 대한 연구는, 초기에는 단순구형을 가정한 응집체에 대하여 자유분자영역 또는 연속체영역에서의 독립된 연구가 이루어졌다 (Friedlander, 2000; Vemury and Pratsinis, 1995; Landgrebe and Pratsinis, 1990). 이후 전이영역을 포함한 전영역에 대한 연구가 진행되었고, 최근에는 프랙탈차원을 고려하여 입자의 형상을 반영한 연구가 진행되고 있다. 전영역에서의 응집에 관한 방정식은 해석상의 어려움으로 인하여 많은 연구들이 수치해석법을 사용하거나 (Maricq, 2007) 입경분포를 특정함수로 가정하여 해를 구하였다 (Yu and Lin, 2009; Otto *et al.*, 1999). 그러나 수치해석법은 많은 계산시간을 필요로 하고, 이론해석은 변수변화에 따른 결과표현에 제약이 많아 응집형상을 고려한 전이영역에서의 거동 등에 관하여 충분한 연구가 이루어지지 않았다.

본 연구의 목적은 자유분자영역, 전이영역을 거쳐 연속체영역 모두를 포괄하는 전영역에서 응집체의 형상을 고려하여 연기 응집체의 시간에 따른 크기분포 변화를 해석하고, 특징적으로 전이영역에서의 자기보존입경분포 특성을 조사하는 것이다. 지금까지 연구의 단점을 보완하기 위하여, 특정함수로 가정하지 않은 원래의 입경분포식을 사용하고 또한 계산시간을 줄이기 위하여 효율적인 수치해석법을 적용하였다. 이를 위하여, 수정된 단면법 (sectional method)의 일종으로 입자에 대한 운동방정식 (general dynamic equation)을 풀기 위하여 기존에 개발되어 구형 단순입자의 응집해석에 적용된 결절법 (nodal method) (Prakash *et al.*, 2003)을 사용하여, 입자의 형상을 고려하여 전영역에서 적용 가능하도록 수정된 이산형 입경스펙트럼 방정식을 수치해석적 방법으로 풀었다. 이 계산에서는 충돌부피 및 강화함수를 사용하여 유도된 전영역에서의 충돌빈도함수가 적용되었다. 이와 같은 수치해석을 통하여, 형상을 나타내는 프랙탈

차원 (fractal dimension), 초기입자의 농도 및 크기에 따른 응집시간상수 (coagulation time constant) 등의 변화에 따라, 전영역에서 연기 응집체의 시간에 따른 수농도 및 크기분포 변화 등을 구하였으며 또한 자기보존입경분포 (self-preserving size distribution) 특성을 조사하였다.

2. 연구방법

2.1 응집

응집체는 그림 1과 같이 직경 d_{p0} 를 갖는 초기입자들의 무작위 응집에 의해 이루어져서 다양한 형상을 가지며, 이 형상은 특성반경 (characteristic radius: R) 및 프랙탈차원으로 표시될 수 있다. 응집체의 속이 꽉 찬 경우의 부피 즉 실제 부피를 v 라고 하고 단일 초기입자의 부피를 v_{p0} 라고 할 경우 응집체 내 초기입자수는 $N_p = v/v_{p0}$ 로 나타낼 수 있다. 실험에 의한 응집체에 포함된 초기입자의 수는 응집체의 특성반경의 거듭제곱으로 나타나며 이때의 거듭제곱 지수를 프랙탈차원 (fractal dimension: D_f)이라고 부른다.

$$N_p \sim R^{D_f} \tag{1}$$

응집체가 완전구형으로 이루어졌을 때 프랙탈차원은 3으로 정의되고 한 줄로 이어진 경우 1에 해당한다. 다른 입자와의 충돌빈도 (collision frequency)는 프랙탈차원에 따라 다르게 나타나는데 실제 형상의 응집체와 같은 충돌빈도를 가지는 완전 구형입자의 부피를 충돌부피 (v_c)라고 정의한다 (Friedlander, 2000).

단위부피를 가진 공간에서 부피 v_i 와 v_j 를 가진 두

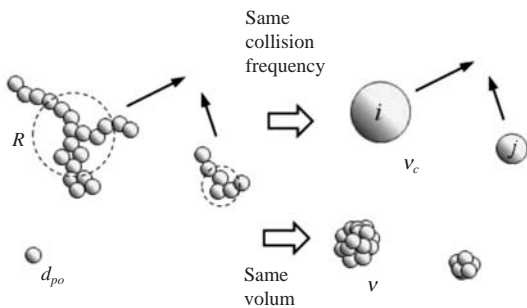


Fig. 1. Schematic for the coagulation of smoke particles.

입자의 단위시간당 충돌수 (collision frequency)는 다음과 같이 각각의 수농도 n_i 와 n_j 및 충돌빈도함수 (collision frequency function) β 로 나타낼 수 있다.

$$N_{ij} = \beta(v_i, v_j)n_i n_j \tag{2}$$

이 충돌빈도함수를 사용하면 부피 v_k 를 갖는 입자의 단위시간당 수농도 증가량은 다음과 같은 이산형 입경스펙트럼 (discrete-size spectrum) 방정식으로 계산된다.

$$\frac{dn_k}{dt} = \frac{1}{2} \sum_{i+j=k} \beta(v_i, v_j)n_i n_j - n_k \sum_{i=1}^{\infty} \beta(v_i, v_k)n_i \tag{3}$$

오른쪽 첫 번째 항은 각각 크기가 i 와 j 인 입자가 충돌하여 크기가 k 인 입자가 생성되는 양을, 두 번째 항은 크기가 k 인 입자가 다른 입자와 충돌하여 소멸되는 양을 의미한다.

충돌빈도함수는 입자의 크기 및 형상의 영향을 받게 되는데, 자유분자영역 (free molecular regime)에서 충돌빈도함수는 다음과 같이 나타나고:

$$\beta_f(v_i, v_j) = \left(\frac{6k_b T}{\rho_p}\right)^{1/2} \left(\frac{3}{4\pi}\right)^{(2/D_f-1/2)} r_{p0}^{2-6/D_f} \left(\frac{1}{v_i} + \frac{1}{v_j}\right)^{1/2} (v_i^{1/D_f} + v_j^{1/D_f})^2 \tag{4}$$

연속체영역 (continuum regime)에서는 다음과 같이 된다 (Friedlander, 2000).

$$\beta_c(v_i, v_j) = \frac{2k_b T}{3\mu} \left(\frac{1}{v_i^{1/D_f}} + \frac{1}{v_j^{1/D_f}}\right) (v_i^{1/D_f} + v_j^{1/D_f}) \tag{5}$$

그러나 이 식들은 입자가 성장하는 동안 같은 영역에 있어야만 적용이 가능하며 전이영역 또는 전영역에 사용하기 위해서는 보정이 필요하다. 연속체영역에서 정의된 상기 충돌빈도함수에 미끄럼보정계수를 도입하면 연속체근접영역에 적용할 수 있고, 충돌부피개념을 도입하면 프랙탈차원으로 표시되는 형상을 고려할 수 있으며 또한 여기에 강화함수 (enhancement function)을 도입하면 최종적으로 전영역에 적용이 가능한 충돌빈도함수를 구할 수 있게 된다. 본 연구에서 사용된 계산식의 도출과정은 다음과 같다.

누센수 (Knudsen number: Kn)가 1보다 작은 연속체영역 또는 연속체근접영역 (near-continuum regime)에서의 충돌빈도함수는 미끄럼보정계수 (slip correc-

tion coefficient: C_c)를 도입하면 다음과 같이 표시될 수 있다(Otto *et al.*, 1999).

$$\beta_{en}(v_i, v_j) = \frac{2k_b T}{3\mu} \left(\frac{C_c(v_i)}{v_i^{1/3}} + \frac{C_c(v_j)}{v_j^{1/3}} \right) (v_i^{1/3} + v_j^{1/3}) \quad (6)$$

여기서 볼츠만상수는 $k_b = 1.38 \times 10^{-23} \text{ J/K}$ 를 사용하고 미끄럼보정계수는 누센수가 $Kn = 2\lambda_a/d_p$ 로 정의된 다음의 식을 사용한다.

$$C_c(v) = 1 + 1.591 Kn \quad (7)$$

여기서 d_p 는 입자의 직경이고, 공기의 점성계수(viscosity: μ)와 평균자유행로(mean free path: λ_a)는 Otto *et al.* (1999)의 계산방식을 사용한다. 참고로 누센수는 공기의 자유행로에 대한 입경의 상대적인 크기를 나타내는 무차원수로, 입경이 작아질수록, 누센수가 커지고 브라운운동이 활발하게 일어나며, 공기분자 사이로의 미끄러짐 현상에 의하여 공기저항력이 연속영역에서 계산된 값보다 감소하게 되어 충돌빈도가 더 크게 나타난다(Friedlander, 2000). 다음 단계로 프랙탈차원으로 표시되는 입자의 형상을 반영하기 위하여 구형입자의 실제부피(v) 대신에 비구형 응집체의 충돌부피(collision volume: v_c)를 다음과 같이 계산하여 대입한다(Yu and Lin, 2009).

$$v_c = v_{po}^{(1-3/D_f)} v^{(3/D_f)} \quad (8)$$

마지막으로 전영역에 적용하기 위하여 누센수의 함수로 표시되는 강화함수(enhancement function)를 사용하였는데, 현재 가장 정확한 것으로 알려진 Write의 식과 거의 같은 정확도를 갖는 것으로 평가되는 다음과 같은 Dahneke (1983)식을 사용하였다(Yu and Lin, 2009).

$$f(\overline{Kn}) = \frac{1 + (2/3)\overline{Kn}}{1 + (4/3)\overline{Kn} + (8/9)\overline{Kn}^2} \quad (9)$$

여기서 \overline{Kn} 은 충돌하는 두 개의 각각 다른 입자를 고려한 누센수이며 Otto *et al.* (1999)의 계산방법을 사용하였다. 이와 같은 식을 사용하면 최종적으로 전영역(entire regime)에서의 형상을 고려한 충돌빈도함수를 다음과 같이 구할 수 있다.

$$\beta_{en}(v_i, v_j) = \frac{2k_b T}{3\mu} \left(\frac{C(v_{ci})}{v_{ci}^{1/3}} + \frac{C(v_{cj})}{v_{cj}^{1/3}} \right) (v_{ci}^{1/3} + v_{cj}^{1/3}) f(\overline{Kn}) \quad (10)$$

본 논문에서 입자는 다분산상태로 응집이 일어나는 것으로 설정하여 계산을 수행하였다. 그러나 결과 분석에서의 참고로, 응집이 일어나는 동안 연속영역에서 단분산입자 상태를 유지한다고 가정하면, 식(10)에서 충돌빈도함수는 다음과 같은 간단한 값을 가지고,

$$\beta = \frac{8k_b T}{3\mu} \equiv K \quad (11)$$

초기입자수농도를 N_o 로 가정하고 응집시간상수(coagulation time constant)를 $\tau \equiv \tau^*/2 = 2/KN_o$ 로 정의하면, 상기 식(3)에 나타난 입경스펙트럼방정식으로부터 시간에 따른 총 입자수농도는 다음과 같이 구해진다.

$$N(t) = \frac{N_o}{1 + t/\tau} \quad (12)$$

이 식에 따르면 시간 $t=0$ 에서 초기입자수농도 N_o 로 출발한 입자의 시간에 따른 총입자수농도 $N(t)$ 는 응집에 의하여 시간이 경과함에 따라 감소하는데, 같은 시간이 경과한 경우 응집시간상수 τ 가 작을수록, 즉 충돌빈도함수 β 또는 초기입자수농도 N_o 가 클수록, 응집이 더 많이 진행되어 총입자수가 더 많이 감소함을 알 수 있다. 이와 같은 기본적인 경향은 이 논문에서 얻어진 다분산입자에 대한 결과들에도 같이 적용된다.

2.2 결절법

시간에 따른 입경분포 변화를 얻기 위해서는 앞 절의 이산형 입경스펙트럼 방정식을 풀어야 하는데, 상기의 충돌빈도함수가 비선형특성을 가지고 있어서 해석이 쉽지 않기 때문에, 입자크기가 어떤 한 영역에 있다고 문제를 단순화 하거나 유사이론해법 또는 수치해석법 등 여러 가지 기법들을 적용하여 문제를 풀 수 있다. 본 연구에서 고려하는 실제 시스템에서는, 앞 절에서 기술된 것과 같이 프랙탈차원으로 입자의 형상이 고려되었고, 초기입자가 응집을 시작하여 자유분자운동영역에서 전이영역을 거쳐서 연속체 영역으로 성장을 하므로 누센수 범위가 어느 한 영역에 고정되어 있지 않다. 또한 입자가 무작위(random)로 응집하면서 각자 크기가 다른 다분산(poly disperse)상태를 유지한다. 따라서 이와 같은 복잡한 시스템을 효율적으로 해석하기 위하여 수치해석법의

일종으로 다른 연구자에 의하여 개발되어 구형입자의 응집에 적용된 결절법을 사용하였다 (Prakash *et al.*, 2003).

프랙탈차원을 고려한 전영역에서의 입경스펙트럼 방정식은 수식이 복잡하여 이론적 해석이 쉽지 않고 수치해석방법에 많은 시간이 소요된다. 결절법은 입경분포에서 이산화된 각 구간의 값을 각각 하나의 값을 갖는 결절값으로 치환하여 계산을 단순화하고, 이 결절들을 로그눈금에서 동일간격으로 배치하여 입자의 모든 크기 범위를 계산에 포함시킨다. 이 로그눈금에서 기하학적 간격지수(geometric spacing factor) q 를 정의하면 각 결절에서의 입자의 부피에 해당하는 결절값 (v_i)은 초기입자의 부피를 v_1 으로 할 때 각 결절에서의 부피는 $v_{i+1}=q \times v_i$ 식으로 구할 수 있다. 크기가 각각 v_i 와 v_j 인 두 입자가 응집하면 크기가 v_i+v_j 인 입자가 생성되는데 이 크기와 정확히 일치하는 결절값이 존재하지 않을 수 있다. 이 경우 v_i+v_j 근처의 결절 위치에, 생성된 입자를 배정해 주는 것이 필요한데 이를 위하여 다음과 같은 크기분할연산자(size splitting operator: χ)를 사용한다. 즉 응집입자 크기가 $v_k \leq v_i+v_j \leq v_{k+1}$ 범위일 때는

$$\chi_{ijk} = \frac{v_{k+1} - (v_i + v_j)}{v_{k+1} - v_k} \quad (13)$$

$v_{k-1} \leq v_i+v_j \leq v_k$ 범위일 때는

$$\chi_{ijk} = \frac{(v_i + v_j) - v_{k-1}}{v_k - v_{k-1}} \quad (14)$$

그리고 나머지 범위에서는 $\chi_{ijk}=0$ 을 식(3)의 우측 첫 번째 항에 곱해준다 (Prakash *et al.*, 2003).

3. 결과 및 분석

각 프랙탈차원 (D_f)에서 입자크기에 따른 충돌빈도 함수(β_{ij})의 변화 경향을 쉽게 알아보기 위하여, 그림 2에서 누센수 ($Kn=2\lambda_a/d_p$)에 따른 동일크기 입자 간의 충돌빈도함수 (β_{ii})를 나타내었다. 충돌빈도함수 계산조건은 입자밀도 $\rho_p=1,000 \text{ kg/m}^3$, 온도 $T=300 \text{ K}$, 압력 $p=1.013 \times 10^5 \text{ Pa}$, 공기의 평균자유행로 $\lambda_a=67.3 \text{ nm}$ 이다. 여기서 누센수 계산에 사용된 입경 (d_p)은 응집체의 실제부피를 구형으로 가정했을 때의 직경

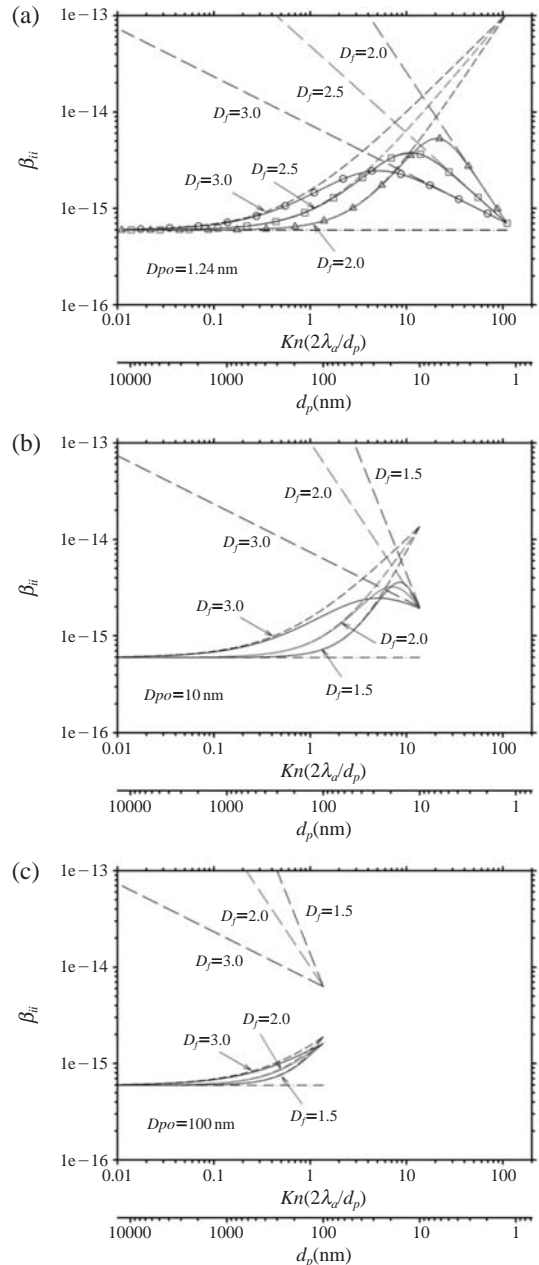


Fig. 2. Collision frequency function for mono-disperse particles (β_{ii}) versus Knudsen number (Kn) under the following conditions; $\rho_p=1,000 \text{ kg/m}^3$, $T=300 \text{ K}$, $p=1.013 \times 10^5 \text{ Pa}$: (a) $v_{po}=1.0 \times 10^{-27} \text{ m}^3$ or $d_{po}=1.2407 \text{ nm}$; (b) $d_{po}=10 \text{ nm}$; (c) $d_{po}=100 \text{ nm}$. Long dashes are the results for free molecular, short dashes are for near-continuum, dot-dashes are for continuum, and solid lines are for entire regimes. Symbols on (a) represent the data of Yu and Lin (2009).

을 말하며 가로축에 추가로 누센수에 해당하는 입경 값을 나타내었다. 충돌빈도함수는 초기입자의 크기 (d_{po})별로 각기 다른 특성을 나타내는데, 그림 2(a)는 부피로 $v_{po}=1.0 \times 10^{-27} \text{ m}^3$ 또는 입경으로 $d_{po} \approx 1.2407 \text{ nm}$ 인 경우, 그림 2(b)는 $d_{po}=10 \text{ nm}$, 그림 2(c)는 $d_{po}=100 \text{ nm}$ 인 경우에 대하여 계산되었다. 실선은 전 영역, 일점쇄선은 연속체영역, 짧은 점선은 연속체근접영역, 그리고 긴 점선은 자유분자영역에서의 충돌빈도함수를 나타낸다. 전영역에 대한 계산에서는 Dahneke (1983)의 강화함수 (f)가 사용되었다. 그림 2(a)에 사용된 초기입자크기 ($d_{po} \approx 1.2407 \text{ nm}$)는 이전 연구와의 계산 비교를 위하여 택한 값이며, 각 기호로 표시된 점은 각 프랙탈차원에서 전영역에 대한 Yu and Lin (2009)의 계산 결과로 본 계산 값과 잘 일치한다. 그림에서 보면 연속체영역에서 β_{ii} 값은 입자크기와 관계없이 일정한 값을 갖는다. 연속체근접영역에서는 입자크기가 작아짐에 따라 미끄럼보정계수를 적용하기 때문에 β_{ii} 값이 점점 크게 나타나며, 그 값은 각 프랙탈차원에 따라 다르게 나타나는데, 초기입자크기에서는 모두 같은 값을 가짐을 알 수 있다. 자유분자운동영역에서는 초기입자크기에서 일정한 값을 가지다가 입자크기가 커짐에 따라 증가하는데 프랙탈차원이 작을수록 더 급격하게 증가함을 알 수 있다. 연속체근접영역과 자유분자운동영역 사이 입자크기에서는 β_{ii} 값이 양쪽 모두에 유효하지 않은 중간영역 즉 전이영역이 나타나는데, 전영역모델은 이 모든 영역을 포괄하여 유효하도록 고안되었다.

그림 2(a, b, c)에서 보는 것과 같이 자유분자영역과 연속체근접영역 모두에서, β_{ii} 값이 $D_f=3.0$ 인 경우에는 d_{po} 에 관계없이 Kn 에 따라 일정한 값을 가지나 $D_f \neq 3.0$ 인 경우는 d_{po} 에 따라 변하게 된다. 특히 $d_p = d_{po}$ 인 경우는 β_{ii} 값이 모든 D_f 에 대하여 같은 값을 가지게 되는데, 자유분자영역인 경우는 특별히 그 값이 $d_{po}^{1/2}$ 에 비례한다. 전영역에서는 Kn 값이 작을 경우에는 연속체근접영역의 값을 가지고 Kn 이 클 경우에는 자유분자영역의 값을 가지며 그 두 영역 사이 즉 전이영역에서는 그들보다 낮은 값을 갖는다. 이 전이영역의 범위는 각 D_f 및 d_{po} 에 따라 달라지는데, 그림 2(a) 즉 $d_{po} \approx 1.2407 \text{ nm}$ 인 경우에는 $D_f=3.0$ 에서는 대략 $0.5 < Kn < 20$ 의 범위를, $D_f=2.0$ 에서는 대략 $10 < Kn < 50$ 의 범위를 가진다. 그러나 초기입자크기가 좀 더 커져서 그림 2(b)와 같이 $d_{po}=10 \text{ nm}$ 인 경우는 자

유분자영역 해당범위가 줄어들면서 전이영역의 범위도 줄어들는데, D_f 값이 작아질수록 d_{po} 가 작을 때와 비교하여 전이영역범위가 Kn 이 좀 더 작은 쪽으로 이동하는 것을 알 수 있다. 그림 2(c)와 같이 $d_{po}=100 \text{ nm}$ 인 경우는 초기입자크기가 이미 자유분자영역을 넘어서 연속체 근접영역에 접근해 있으므로 전이영역이 나타나지 않는다.

전이영역에서의 충돌빈도함수를 사용하여 초기에 단분산(mono-disperse)상태로 구형의 입경이 $d_{po}=3 \text{ nm}$ 이고 수농도가 $N_o=1 \times 10^{15} \text{ \#/m}^3$ 인 입자의 응집에 따른 입경분포변화를 결정방법을 사용하여 구하였다. 이 조건은 응집시간상수로 $\tau^* \approx 6.706s$ 에 해당하며 기하간격지수는 $q=1.29$ 을 사용하였다. 그림 3은 프랙탈차원 $D_f=3.0$ 에 대하여 이 조건에서 계산된, 시간에 따른 기하학적 수농도분포(Geometric number concentration distribution) 변화를 나타낸다. 초기의 단분산 입자는 서로 응집하기 시작하여 시간이 지남에 따라 응집체로 성장하여 점차 크기가 커지고 다분산(poly-disperse)화 되며 수농도는 감소하게 된다. 이 변화 특성은 프랙탈차원에 영향을 받으며, 그림 4에서는 응집시간 (t)이 $100\tau^*$ 경과된 후의 각 프랙탈차원에 따른 입경분포변화 결과를 보여준다. 이와 같은 프랙탈차원에 따른 입경분포변화 특성은, 그림 5에 나타난, 시간변화에 따른 응집체의 각 특성치 변화와

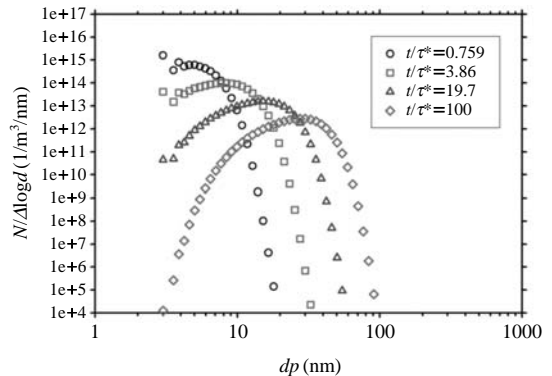


Fig. 3. Change of the geometric number concentration ($N/\Delta \log d$) vs. particle diameter (d_p) with time for the initially mono-dispersed particles. Simulations are carried out for entire regime under the following conditions: $d_{po}=3 \text{ nm}$, $D_f=3.0$, $N_o=1 \times 10^{15} \text{ \#/m}^3$, $\rho_p=1,000 \text{ kg/m}^3$, $T=300K$, $p=1.013 \times 10^5 \text{ Pa}$, $q=1.29$. It corresponds to $\tau^* \approx 6.706s$.

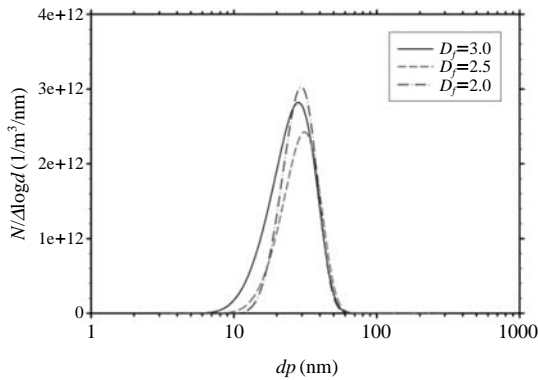


Fig. 4. Final geometric number concentration ($N/\Delta\log d$) vs. particle diameter (d_p) of the initially mono-dispersed particles for each different D_j at $t=100\tau^*$. The conditions are same to Fig. 3 except D_r .

더불어 이해하면 도움이 된다. 참고로 그림 3의 $t=100\tau^*$ 와 그림 4의 $D_j=3.0$ 에 해당하는 기하학적 수농도분포는 같으며 로그눈금과 선형눈금차이로 인하여 다른 형태로 나타난다.

그림 5(a)에서는 각각 다른 D_j 값에서 시간에 따른 정규화된 총입자수농도 (N/N_0) 변화를 보여준다. 이 그림은 본 계산방법을 타 연구와 비교 검증하기 위하여 인용되었다(Goo, 2012). 실선은 결절법을 사용한 본 연구의 결과를 나타내고 점선은 테일러-확장 모멘트 방법(TEMOM)을 사용한 Yu and Lin (2009)의 결과를 보여주는데, 두 결과가 잘 일치하는 것을 알 수 있다. 그림 5(b)는 각 D_j 값에서 시간에 따른 기하학적 수농도평균입경(geometric mean number diameter: d_{gn}) (Mulholland, 2002) 변화를 나타내 준다. 그림에서 보면 $D_j=2.0$ 에서 d_{gn} 의 증가율은 응집시간이 대략 $t \approx 10\tau^*$ 에 해당하는 $d_p \approx 14$ 정도에서 변하여 $D_j=3.0$ 에서의 증가율과 비슷하게 됨을 알 수 있다. 이것은, 단분산 경우 특성이 약간 다르기는 하지만, 그림 2(a)에서 보는 바와 같이 대략 $Kn > 10$ ($d_p < 2 \times 67.3/10 \approx 14$)에서 $D_j=2.0$ 에 대한 충돌빈도함수가 $D_j=3.0$ 에 대한 것보다 크고 이후에 d_p 가 커짐에 따라 상대적으로 작아지기 때문에 나타나는 결과이다. 이는 또한 그림 5a에서 나타난 것과 같이 대략 $t/\tau^* < 10$ 에서 $D_j=2.0$ 에서의 N/N_0 가 $D_j=3.0$ 에서의 값과 비교하여 더 급격한 감소를 보이고 이후에 감소세가 줄어드는 것과도 밀접한 관계가 있다.

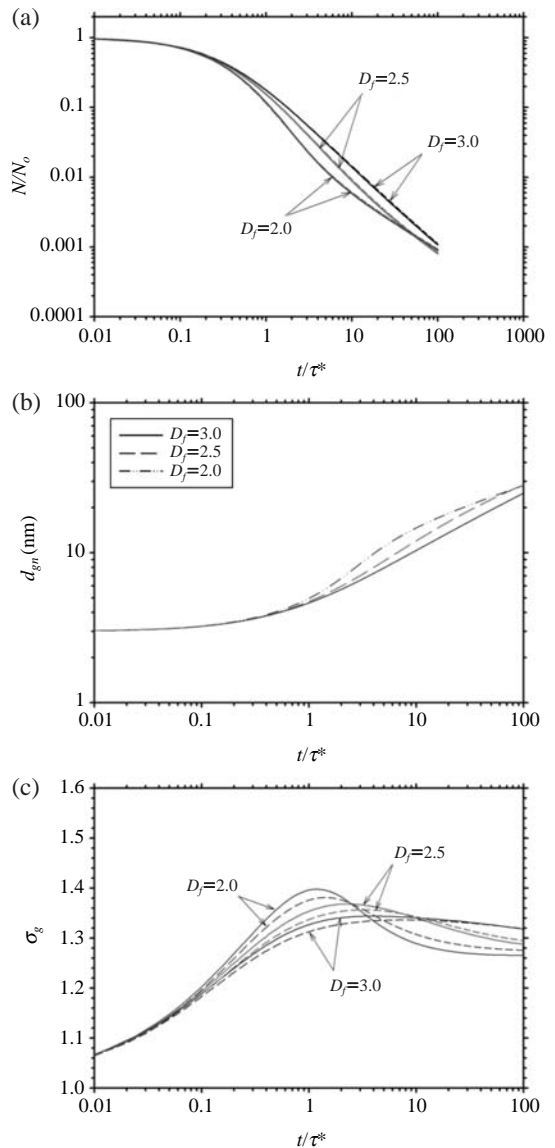


Fig. 5. Characteristics of the changes of the: (a) normalized total number concentration (N/N_0) (Goo, 2012); (b) geometric mean number diameter (d_{gn}); (c) geometric standard deviation (σ_g) of the particles with time for each D_r . The results of this work (solid lines) are compared with those of previous work (dashed lines) by Yu and Lin (2009) in the figures (a) and (c). The conditions are same to Fig. 3 except D_r .

그림 5(c)에서는 입경분포에 대하여 아래와 같이 정의된 기하학적 표준편차(geometric standard devia-

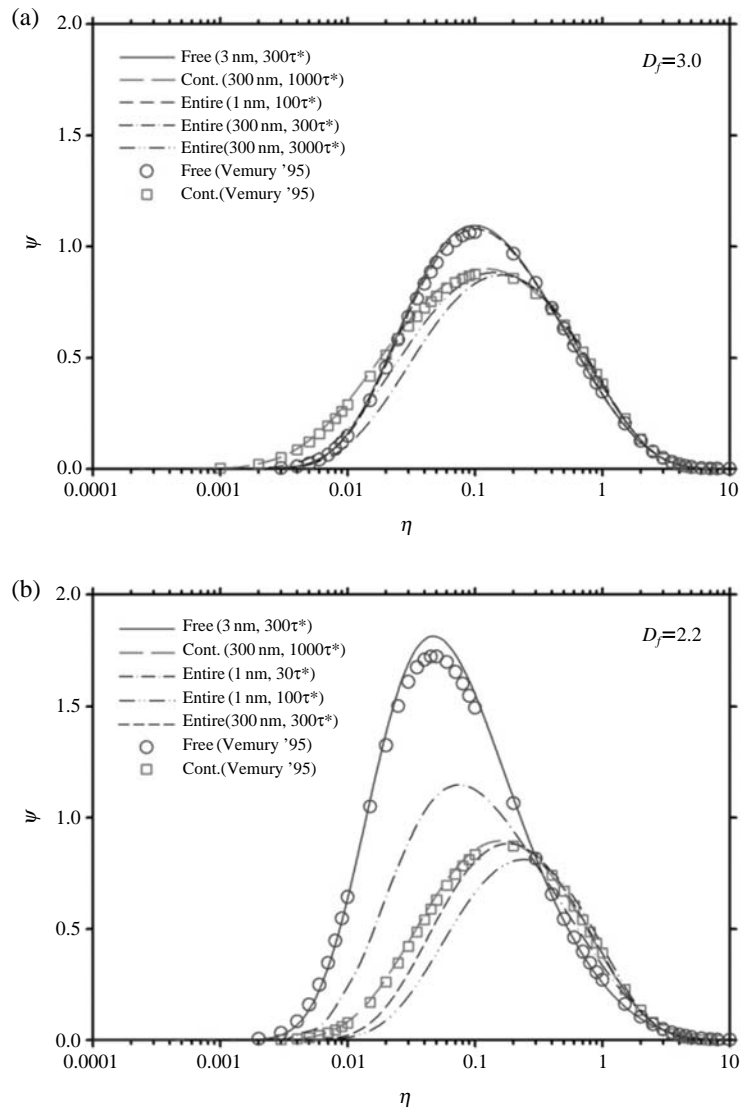


Fig. 6. Dimensionless number concentration (ψ) versus dimensionless particle volume (η) for: (a) $D_f=3.0$; (b) $D_f=2.2$. The results of this work for different d_{p0} and time (t) are compared with previous results (Vemury and Pratsinis, 1995). The conditions are same to Fig. 3 except the size regimes, D_f and d_{p0} .

tions: σ_g 의 시간에 따른 변화특성을 보여준다 (Lee *et al.*, 1984).

$$\ln^2 \sigma_g = \frac{1}{9} \ln \left(\frac{m_0 m_2}{m_1^2} \right) \quad (15)$$

여기서 m_i 는 입경분포의 i 차 모멘트이다. 실선으로 표시된 것은 결절법을 사용한 이 계산결과이고 점선

으로 표시된 것은 테일러-확장 모멘트 방법을 사용한 Yu and Lin (2009)의 계산결과인데, 시간에 따른 경향과 절대값이 상호 비교적 잘 일치함을 알 수 있다. 자유분자영역 또는 연속체영역모델에서는 표준편차가 단순 증가하다가 일정 값에 수렴하지만, 전영역 모델을 사용한 이 계산에서는 자유분자영역에서 출발한 응집이 전이영역을 거쳐가는 특성상, 단순 증가

후 수렴하지 않고 프랙탈차원에 따라 각기 다른 변화특성을 보인다. 이것은 다음에 설명하는 입경분포의 자기보존특성 (self-preserving size distribution)과 관련이 있다 (Vemury and Pratsinis, 1995).

입경분포의 닮음변환 (similarity transformation)은 아래 식 (16)에 나타난 것과 같이 특정 입경크기범위에 있는 입자의 비율은 평균입자부피 ($\bar{v} = \phi / N_{\infty}$)로 정규화된 입자부피만의 함수라는 가정에 바탕을 두고 이루어진다.

$$\frac{n(v, t)dv}{N_{\infty}} = \psi\left(\frac{v}{\bar{v}}\right) d\left(\frac{v}{\bar{v}}\right) \quad (16)$$

이 식을 적분하여 무차원입자부피 ($\eta = v/\bar{v}$)로 나타내면 입자부피에 따른 입경분포를 다음과 같이 시간에 따라 변하지 않는 무차원 수농도함수 (ψ)로 나타낼 수 있다.

$$n(v, t) = \frac{N_{\infty}^2}{\phi} \psi(\eta) \quad (17)$$

여기서 N_{∞} 은 단위부피당 총 입자수, ϕ 는 입자의 총 부피를 의미한다. ϕ 가 고정된 시스템에서는 응집이 일어남에 따라 시간이 지나면서 N_{∞} 가 감소한다. 만일 ψ 를 알게 되면, 특정 N_{∞} 와 ϕ 값에서의 입경분포로부터, 위 식에 의하여 임의 시간에서 그때 대응되는 N_{∞} 값을 사용하여 입자부피에 따른 입경분포 즉, $n(v, t)$ 를 구할 수 있게 된다. 임의시간에서 입경분포는 크기상수만 곱하면 서로 같은 모양을 갖기 때문에 이 분포를 자기보존 입경분포 (self-preserving size distribution)라 한다 (Friedlander, 2000).

그림 6(a)와 6(b)에서는 각각 $D_f=3.0$ 및 $D_f=2.2$ 에 대하여 각 응집특성영역에서 초기입경 (d_{p0}) 및 응집 시간 (t)에 따라 위에서 설명한 무차원입자부피 (η)에 따른 무차원수농도 (ψ) 계산 결과를 보여준다. 실선과 긴 점선은 각각 자유분자영역과 연속체영역에 해당하는 충돌함수에 대한 계산결과로, 각각 자기보존입경분포에 해당하는 원기호와 사각기호로 표시된 기존의 계산결과 (Vemury and Pratsinis, 1995)와 잘 일치한다. 그러나 전영역모델을 사용한 계산 결과는 그림과 같이 자유분자영역이나 연속체영역모델 결과와 다르고 초기입자직경 및 응집시간에 따라 다르게 나타난다. 이론적 해석상 자유분자영역과 연속체영역에서는 시간에 따라 변하지 않는 자기보존입경분포를

보여주지만 전이영역에서는 자기보존입경분포 특성을 가지지 못한다. 이것은 자기보존입경분포가 연속체영역 및 자유분자영역 모델에서만 이론적으로 성립하는 특성이기 때문인데, 전영역모델을 이용한 계산 결과도, 입자직경이 아주 작거나 아주 커서 충돌함수가 각각 자유분자영역이나 연속체영역에 근접하면, 자기보존입경분포를 가질 수 있다.

$D_f=3.0$ 에 해당하는 그림 6(a)에서 보면, 초기입자 직경이 $d_{p0}=1$ nm이고 응집시간 (t)이 $100\tau^*$ 인 경우, 그림 2(a)와 5(b)에서 유추할 수 있는 것과 같이 응집이 일어나는 대부분 시간 동안 입자크기가 자유분자운동영역에 머무르므로, 무차원수농도 (ψ) 계산 결과가 자유분자운동영역의 자기보존입경분포와 거의 일치함을 알 수 있다. 그러나 초기입경이 300 nm인 경우 응집초기에는, 그림 2(c)에서 유추해 볼 때 자유분자영역과 연속체영역에서 모두 떨어져, 자기보존입경분포를 갖기 어려우나 응집시간이 길어질수록 연속체영역에 가까워져서 응집시간이 $300\tau^*$ 에서 $3000\tau^*$ 로 증가함에 따라 그림 6(a)에서 나타난 것과 같이 좀 더 연속체영역의 자기보존입경분포에 근접해 감을 알 수 있다. 다음으로 $D_f=2.2$ 에 해당하는 그림 6(b)에서는, 그림 2(a)에서 알 수 있는 것과 같이 자유분자운동영역이 $D_f=3.0$ 에 비하여 좁기 때문에, 초기입자직경이 1 nm에서 응집시간이 $t=30\tau^*$ 면 이미 입자크기가 전이영역으로 진입하므로 자유분자운동영역의 자기보존입경분포에서 멀어지고, 응집시간이 $100\tau^*$ 로 더 늘어나면 자기보존입경분포에서 차이가 더 벌어짐을 알 수 있다. 그러나 초기입자직경이 300 nm에서는 그림 2(c)에서 알 수 있는 것과 같이 $D_f=3.0$ 에 비하여 연속체영역에 좀 더 가까우므로 응집시간이 같은 $300\tau^*$ 에서도 $D_f=3.0$ 보다 연속체영역의 자기보존입경분포에 좀 더 근접함을 알 수 있다.

4. 결 론

이 연구에서는 형상을 나타내는 프랙탈차원별로 연기응집체의 시간에 따른 크기분포 변화를, 충돌부피 및 강화함수를 사용하여 유도된 전영역에서의 충돌빈도함수와, 수정된 단면법의 일종인 결절법을 사용하여 수치해석적 방법으로 풀었다.

연구결과로, 응집체 크기에 따른 충돌함수의 변화

특성을 이용하여 각 프랙탈차원 및 초기입자 크기별로 전이영역범위의 변화 특성을 구하였으며, 또한 전 영역에서 연기 응집체의 시간에 따른 수농도 및 크기분포 변화를 응집시간상수, 프랙탈차원 및 초기입자크기의 함수로 효율적으로 구할 수 있게 되었다.

본 연구의 특징적인 주제로서 자기보존입경분포와 관련하여, 자유분자영역과 연속체영역에 해당하는 충돌함수에 대한 입경분포 계산결과는 시간에 따라 변하지 않는 자기보존입경분포를 보여주며 각각 기존의 계산결과와 잘 일치한다. 그러나 전영역모델을 사용한 자기보존입경분포특성에 대한 계산 결과는 자유분자영역이나 연속체근접영역모델 결과와 다르고 그 특성이 초기입자직경 및 응집시간에 따라 다르게 나타났다. 이 연구에서는 이들의 구체적인 특성변화를 구하고 충돌함수 변화에 따라 계산된 전이영역범위 특성을 이용하여 이유를 설명하였다.

감사의 글

이 연구는 2011학년도 우석대학교 교내학술연구비 지원에 의하여 이루어졌습니다. 이 연구와 관련하여 체재하는 동안 많은 도움을 준 매릴랜드대학교 소방공학과 및 J. A. Milke 교수와, NIST의 G. W. Mulholland 박사 및 J. Averill 화재안전그룹 리더에게 감사를 드립니다.

Nomenclature

C_c : Slip correction coefficient (-)
 d_{gn} : Geometric mean number diameter of the particle (m)
 d_p : Diameter of particles (m)
 d_{po} : Diameter of primary particles (m)
 D_f : Fractal dimension of the agglomerate (-)
 f : Enhancement function (-)
 K : Constant (m^3/s)
 k_b : Boltzman constant (J/K)
 Kn : Knudsen number (-)
 \bar{Kn} : Knudsen number for two particles (-)
 m_0, m_1, m_2 : 0, 1, 2-th moment of a log-normal size distribution (m^0, m^3, m^6)
 n_i : Number-concentration of particles of volume v_i ($\#/m^3$)

N : Number-concentration of particles ($\#/m^3$)
 N_∞ : Total number of particles per unit volume ($\#/m^3$)
 N_{ij} : Number of collisions between two classes of particles of volumes v_i and v_j ($\#/m^3/s$)
 N_o : Initial number-concentration of particles ($\#/m^3$)
 N_p : Total number of primary particles (#)
 p : Pressure (Pa)
 q : Geometric spacing factor (-)
 R : Characteristic radius of the agglomerate (m)
 r_{po} : Radius of primary particles (m)
 T : Temperature (K)
 t : Time (s)
 v : Volume of a particle (m^3)
 \bar{v} : Average particle volume (m^3)
 v_c : Collision volume (m^3)
 v_{po} : Volume of a primary particle in the agglomerate (m^3)

Greek letters

β : Collision frequency function ($m^3/\#/s$)
 η : Dimensionless particle volume (-)
 λ_a : Mean free path of air molecules (m)
 μ : Gas viscosity ($Pa \cdot s$)
 ρ_p : Density of particles (kg/m^3)
 σ_g : Geometric standard deviation (-)
 τ : Coagulation time constant (s)
 τ^* : Second coagulation time constant (s)
 ϕ : Total volume of particles per unit volume (m^3/m^3)
 χ : Size-splitting operator (-)
 ψ : Dimensionless function (-)

참고 문헌

- Bølling, A.K., J. Pagel, K.E. Yttri, L. Barregard, G. Sallsten, P.E. Schwarze, and C. Boman (2009) Health effects of residential wood smoke particles: the importance of combustion conditions and physicochemical particle properties, *Particle and Fibre Toxicology*, 6, 29-48.
- Butler, K.M. and G.W. Mulholland (2004) Generation and transportation of smoke components, *Fire Technology*, 40, 149-176.

- Dahneke, B. (1983) Simple kinetic theory of Brownian diffusion in vapors and aerosols, in: R.E. Meyer (Eds.), *Theory of Dispersed Multiphase Flow*, Academic Press, New York, 97-113.
- Diemer Jr., R.B. and J.H. Olson (2006) Bivariate moment methods for simultaneous coagulation, coalescence and breakup, *Journal of Aerosol Science*, 37, 363-385.
- Friedlander, S.K. (2000) *Smoke Dust and Haze: Fundamentals of Aerosol Behavior*, Oxford Univ. Press, Oxford.
- Gann, R.G., J.D. Averill, K.M. Butler, W.W. Jones, G.W. Mulholland, J.L. Neviasser, T.J. Ohlemiller, R.D. Peacock, P.A. Reneke, and J.R. Hall, Jr. (2001) *International Study on the Sublethal Effects of Fire Smoke on Survivability and Health (SEFS): Phase I Final Report*, NIST Technical Note 1439, NIST, U. S. A.
- Goo, J. (2012) Development of the Size Distribution of Smoke Particles in a Compartment Fire. *Fire Safety Journal*, 47, 46-53.
- Jun, F., X. Shu, H. Yuan, and X. Zheng (2004) Self-preserving size distribution of fire soot fractal coagulation in flaming combustion, *Journal of Fire Science*, 22, 53-68.
- Landgrebe, J.D. and S.E. Pratsinis (1990) A discrete-sectional model for powder production by gas phase chemical reaction and aerosol coagulation in the free-molecular regime. *J. Colloid Interface Sci.*, 139, 63-86.
- Lee, K.W., H. Chen, and J.A. Gieseke (1984) Log-Normally Preserving Size Distribution for Brownian Coagulation in the Free-Molecule Regime, *Aerosol Science and Technology*, 3, 53-62.
- Maricq, M.M (2007) Coagulation dynamics of fractal-like soot aggregates. *J. Aerosol Sci.*, 38, 141-156.
- Mulholland, G.W. (2002) Smoke Production and Properties, *SFPE Handbook of Fire Protection Engineering* [Ch. 13, Sec.2], 258-268.
- Otto, E., H. Fissan, S.H. Park, and K.W. Lee (1999) The log-normal size distribution theory of Brownian aerosol coagulation for the entire particle size range: Part II - analytical solution using Dahneke's coagulation kernel, *J. Aerosol Sci.*, 30, 17-34.
- Prakash, A., A.P. Bapat, and M.R. Zachariah (2003) A simple numerical algorithm and software for solution of nucleation, surface growth and coagulation problems, *Aerosol Science and Technology*, 37, 892-898.
- Vemury, S. and S.E. Pratsinis (1995) Self-Preserving Size Distributions of Agglomerates, *Journal of Aerosol Science*, 26, 175-185.
- Yu, M. and J. Lin (2009) Taylor-expansion moment method for agglomerate coagulation due to Brownian motion in the entire size regime, *Aerosol Science*, 40, 549-562.