

다분산 입자의 브라운 응집속도에 관한 실험적 연구

Experimental Study of the Brownian Coagulation Rate of Polydisperse Aerosols

김현옥·이규원

광주과학기술원 환경공학과

1. 서론

브라운 응집(coagulation)으로 인한 에어로졸의 입경 및 입자 크기분포의 시간에 따른 변화는 입자가 가지는 많은 물리·화학적 특성들에 영향을 미치므로 대기과학이나 연소공학, 산업위생학, 콜로이드 과학 및 핵 안전 분석과 같은 많은 응용연구분야에서 주요한 관심거리이다.

에어로졸의 응집문제는 모든 입자들이 동일한 크기를 가졌다는 가정하에 Smoluchowski가 처음으로 입자의 직경을 불연속적으로 분할하여 계산하였다. 그 이후 Müller에 의해 브라운 응집을 완전하게 표현하는 편미적분방정식이 유도되었으나 매우 비선형적이어서 수치적인 방법을 이용해서만 계산할 수 있다. 이 방법은 정확하기는 하나 계산시간이 많이 소요되므로 실용성에 문제가 제기되었다. 이에 Lee와 Chen(1984)은 보편적 기법을 적용하여 연속영역(continuum regime)과 기체-미끄러짐영역(gas-slip regime) 및 자유분자영역(free-molecule regime)에서 초기 다분산 입자들에 대한 각각의 해석해를 제안하였다. 또한 Park et al.(1999)은 조화평균계수법을 적용하여 전입자크기영역에 대한 단일한 해석해를 구하였다.

본 연구에서는 브라운 응집이 주요기작으로 작용하는 기체-미끄러짐영역 및 전이영역(transition regime)에서 에어로졸 입자들의 크기분포에 따른 응집속도의 변화를 알아보기 위해 응집실험을 수행하였고, 전입자크기영역에 대해 개발된 Park et al.(1999)의 해석해와 비교하였다.

2. 실험 방법

액체입자들은 입자들간에 충돌이 일어날 경우 고체입자들보다 응집효율이 높고, 응집후에도 고체입자와는 달리 구형을 유지하므로 응집실험에 더 적합하다. 따라서 시험입자로서 구형의 액체입자인 Dioctyl phthalate(DOP) 에어로졸이 사용되었다. 응축화 입자발생기를 통해 발생한 DOP 에어로졸은 흐름형태의 응집관에 주입되며, 채취된 에어로졸은 Linear flowmeter를 이용하여 유량을 측정할 다음 회석장치로 유입시킨다. 채취된 에어로졸을 회석하는 이유는 개수농도를 감소시켜 응집이 더 이상 일어나지 않도록 하면서, 기기들의 측정한계 농도범위로 개수농도를 감소시키기 위해서이다. 응집실험의 초기값을 얻기 위해 응집관의 입구에서 바로 채취하면 중심축에 놓여 있는 입구근처의 샘플링관 때문에 층류흐름에 변화가 생겨 응집에 영향을 준다. 따라서 본 실험에서는 따로 제작된 보조관을 이용하였다. 응집관의 입구와 출구에서 각각의 입자개수농도는 Condensation Particle Counter(CPC)를 가지고 측정하였고, 기하평균경 및 기하표준편차는 Scanning Mobility Particle Sizer(SMPS)를 이용하여 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

응집이 얼마나 빨리 일어나는 가를 나타내는 응집속도는 일반적으로 다음과 같이 간단한 식으로 나타낼 수 있다.

$$\frac{dN(t)}{dt} = -\gamma N(t)^2 \quad (1)$$

여기서, N은 전체입자개수농도, t는 응집시간, γ 는 응집속도이다.

실험에서 측정된 자료들을 가지고 응집속도를 계산하기 위해서 식(1)을 이용하였다. 응집시간은 응집관을 통과한 유량을 측정하여 계산하였다. 확산으로 인한 벽면에서의 입자손실효과를 이론적인 식을 이용하여 계산한 결과, Knudsen number(Kn)가 3보다 작은 경우는 2%이하의 오차를, 그 이외에 Knudsen number가 3.67인 경우는 약 9%의 오차를 발생하는 것으로 나타났다. 즉 입자가 작아질수록 확산으로

인한 입자손실이 증가하는 것을 알 수 있다. 확산으로 인한 입자들의 손실효과가 고려된 실험결과들을 Park et al.(1999)의 해석해 및 기존실험들의 응집속도들과 비교하여 그림1에 나타내었다. 이 그림에서 우리는 이번 실험의 결과가 Park et al.(1999)의 이론적인 응집속도곡선들 사이에 놓여있는 것을 볼 수 있다. 이는 실험에서 사용된 에어로졸의 기하표준편차가 1.46~1.94의 범위에 존재하기 때문이다. 또한 전이영역에서는 이번 실험결과가, 자유분자영역에서는 Fuchs와 Sutugin(1965)의 실험결과가 각각 Shon et al.(1980) 및 Kim, C. S.(1978)의 결과보다 높다. 이는 이번 실험 및 Fuchs와 Sutugin(1965)의 실험에서 사용된 다분산 입자들이 응집속도를 증가시킨 것으로 설명될 수 있다. 그림1에서 실험자료들 모두가 이론적인 응집속도곡선들 사이에 포함되지는 않았지만, 몇몇 실험결과들은 다분산 효과를 고려해준다면 이론값과의 오차가 훨씬 감소된다. 더 자세한 비교를 위해 실험에서 얻어진 초기조건을 그대로 Park et al.(1999)의 이론에 대입하여 계산한 결과를 실험결과와 비교하여 그림2에 나타내었다. 직접 실험을 통해 얻은 응집속도가 Park et al.(1999)의 이론치보다 더 높은 것을 쉽게 알 수 있다. 이는 응집실험을 수행하는 동안 각종 실험장치들과 측정기기들에서 일어나는 입자손실 및 난류응집이나 중력침강 등과 같은 에어로졸의 수많은 운동기작으로 인해 발생하는 입자손실의 결과이다.

결론적으로 우리는 입자의 크기분포가 넓어지면 넓어질수록 브라운 응집속도가 증가한다는 사실과 Park et al.(1999)의 이론이 응집속도에 미치는 크기분포의 영향을 잘 설명할 수 있음을 이번 실험을 통해 확인할 수 있었다.

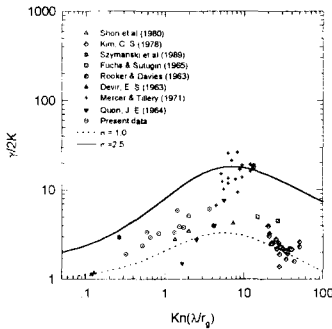


Figure 1. Comparison of the experimental results with the theoretical results of Park et al.(1999)

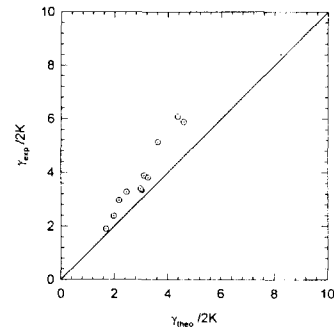


Figure 2. Comparison of the experimental results with the analytical solutions of Park et al.(1999)

4. 감사

본 연구는 한국과학재단(KOSEF 975-1000-003-2) 및 Deutsche Forschungsgemeinschaft(DFG)의 국제공동연구과제의 일환으로 수행되었음을 밝히며 이에 감사드립니다.

참고 문헌

- Fuchs, N. A. and Sutugin, A. G. (1965), "Coagulation Rate of Highly Dispersed Aerosols", J. Colloid Sci., 20:492-500
- Kim, C. S. (1978), "Studies on Ultrafine Aerosols", Ph.D. Thesis University of Minnesota, Minneapolis, Minnesota
- Lee, K. W. and Chen, H. (1984), "Coagulation Rate of Polydisperse Particles", Aerosol Sci. & Tech., 3:327-334
- Park, S. H., Lee, K. W., Otto, E. and Fissan, H. (1999), "The Log-Normal Size Distribution Theory of Brownian Aerosol Coagulation for the Entire Particle Size Range:Part I -Analytical Solution using the Harmonic Mean Coagulation Kernel", J. of Aerosol Sci., 30:3-16
- Shon, S.-N., Kasper, G. and Shaw, D. T. (1980), "An Experimental Study of Brownian Coagulation in the Transition Regime", J. Colloid Interface Sci., 73:233-243.