

해석적 방법을 이용한 흡습성 에어로졸의 거동 분석

박재우
제주대학교

요 약

원자로 중대사고시 생성되는 흡습성(hygroscopic) 에어로졸의 거동을 해석적인 방법을 이용하여 분석하였다. 분석한 내용은 상대습도가 불포화, 포화, 과포화 조건에서 CsOH 에어로졸의 수증기 응축률, 입자성장에 따른 크기분포의 변화, 중력침전에 의한 전체 에어로졸량의 변화이다. 용질효과를 고려한 흡습성 에어로졸 모델을 사용한 경우 상대습도가 불포화 조건에서도 에어로졸 입자에 수증기 응축이 발생하며 입자의 크기가 평형반경에 달할 때까지 지속됨을 발견하였다. 이러한 입자 성장은 매우 빠른 입자크기분포 변화를 초래하여 중력침전에 의한 급속한 에어로졸 감소를 초래하는 것으로 예측되었다. 따라서 현재 사용되고 있는 MELCOR 및 CONTAIN 코드는 흡습성 에어로졸에 대해서 용질효과를 고려한 모델을 사용하여야 할 것이다.

1. 서론

중대사고시 생성되는 에어로졸 형태의 핵분열생성물은 원자로일차계통을 거쳐 격납용기로 유출되며 격납용기 손상시에는 궁극적으로 환경으로 방출된다. 이러한 이동과정에서 에어로졸은 중력침전(sedimentation)과 벽면부착 등의 현상에 의해서 그 양이 감소되어 결과적으로 환경으로 방출되는 방사선원향(source term)을 감소시킨다. 중력침전은 에어로졸이 제거되는 가장 중요한 현상으로 입자크기에 직접적으로 영향을 받는다. 에어로졸은 입자간 결합(coagulation)과 입자표면으로의 수증기응축에 의해서 크기가 성장하여 결과적으로 중력침전이 가속화 된다. 특히 수증기응축은 입자간 결합에 비하여 매우 빠른 입자성장을 일으키는 현상으로서 에어로졸의 거동에 미치는 영향이 대단히 크다. 차세대 원자로인 경우 노심손상 사고시 다량의 냉각수를 이용하여 중대사고를 완화하는 안전개념을 도입하고 있으므로 중대사고시 생성되는 에어로졸은 많은 양의 수증기와 함께 공존하게 됨을 예상할 수 있다.

과포화 상태의 수증기는 격납용기의 구조물표면이나 에어로졸 입자에 빠른 속도로 응축하여 과포화 상태가 해소된다. 에어로졸 형태의 핵분열생성물의 대부분은 물에 용해되지 않기 때문에 응축된 수분과 함께 혼합물로 존재한다. 그러나 일부 핵분열생성물은 응축수에 용해되어 용액상태의 에어로졸을 형성하게 되는데 이러한 특성을 갖는 대표적인 화합물이 방사선원향에 중요한 영향을 미치는 CsOH와 CsI이다.[1] 이러한 성분을 포함한 에어로졸은 상대습도(RH)가 불포화(subsaturated) 상태에서도 주위의 수증기를 흡수하여 입자크기가 급속

히 성장하는 흡습성을 가진다. 흡습성은 용해된 성분으로 인하여 입자표면에서의 수증기압이 주위 기체보다 낮아지기 때문에 발생하는 현상이다. 즉, 매질기체의 수증기압이 입자표면의 수증기압보다 상대적으로 높게 되어 입자표면으로의 수증기분자의 확산이 계속되는 용질효과(solute effect) 때문이다.[2]

원자로 중대사고 해석 코드인 CONTAIN[3]과 MELCOR[4]는 방사선원항 계산을 위하여 MAEROS[5]란 에어로졸 계산 모델을 사용하고 있다. 원래의 MAEROS모델은 용질효과를 고려하지 않았으므로 CONTAIN 1.11까지는 용질효과를 고려하지 않았으나 CONTAIN 1.12는 모델개선을 통하여 용질효과를 고려하고 있다. 반면 MELCOR코드는 여전히 용질효과를 고려하지 않는 MAEROS모델을 사용하고 있다. MAAP코드[6]는 용질효과를 고려한 에어로졸 계산 모델을 사용하고 있으나 모든 입자를 동일한 크기로 가정한 근사법을 사용하기 때문에 정확성이 결여된다. NAUA[7]코드인 경우 용질효과를 고려한 NAUA-HYGROS가 개발되어 LACE Test LA4 실험[8]을 (흡습성 성분인 CsOH와 비흡습성 성분인 MnO의 혼합 에어로졸을 사용한 실험) 모의한 결과가 발표된 바 있다.[9]

본 연구는 흡습성 에어로졸의 용질효과를 고려한 수증기 응축성장 모델을 제시하고 이 모델을 이용하여 에어로졸 거동방정식의 해석해를 구함으로써 흡습성이 에어로졸의 거동에 미치는 영향을 분석하는 데 목적을 두었다.

2. 흡습성 에어로졸의 수증기 응축률 모델

입자표면의 수증기 응축은 입자와 주위 기체간의 물질전달 및 열전달의 결과로서 발생한다. 입자표면의 수증기 분압이 주위기체의 수증기 분압보다 낮은 경우 수증기 분자는 입자표면으로 확산되며 응축률은 입자표면에서의 수증기 flux와 입자의 표면적의 곱으로 표시된다. 입자표면의 수증기 분압은 온도의 함수이므로 입자표면의 온도를 구하기 위해서는 수증기 응축으로 입자에 첨가되는 잠열을 고려하여야 한다. 따라서 입자표면의 수증기 응축률을 구하기 위해서는 수증기분자의 확산방정식과 응축잠열에 대한 열전달 방정식을 동시에 풀어야 한다. 구형 입자를 가정한 경우 입자표면의 수증기 응축률은 다음과 같이 유도된다.

$$g(v, t) = 4\pi r D \frac{(\rho_\infty - \rho_r)}{1 + \frac{D\rho_s L}{KT_\infty} \left(\frac{LM_w}{RT_\infty} - 1 \right)} \quad (1)$$

여기서 $g(v, t)$ 는 크기(질량)가 v 인 입자에 대한 수증기 응축률(kg/sec)을 나타내며 r 은 입자의 반경이다. D 는 수증기의 확산계수이며 ρ_r 과 ρ_∞ 는 각각 입자표면과 입자로부터 멀리 떨어진 곳(주위 기체)의 수증기 밀도를 나타낸다. ρ_s 는 기체의 온도(T_∞)에서의 포화증기밀도를 나타내며 L 과 K 는 각각 수증기의 응축잠열과 수증기 혼합기체의 열전도계수를 나타낸다. M_w 과 \bar{R} 은 각각 물의 분자량과 기체상수를 나타낸다.

흡습성 에어로졸인 경우 입자표면의 수증기밀도(ρ_r)는 입자의 크기와 표면장력의 영향을 받는다. 즉, 구형 입자의 표면에서는 물분자간의 인력이 평면에서보다 작기 때문에 물분자가 쉽게 증발되어 수증기압이 높아지고 그 결과 수증기의 밀도가 커진다(Kelvin 효과). 한편 입자에 포함된 용질은 용액의 비등점을 상승시켜 수증기압을 떨어뜨리며 결과적으로 수증기의 밀도를 감소시킨다(용질효과). 이러한 상반된 두 가지 효과를 반영할 경우 흡습성 에어로졸 입자 표면의 수증기 밀도는 아래와 같이 나타낼 수 있다.

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

여기서 $\rho_s(T_r)$ 은 온도가 T_r 인 평면에서의 포화증기밀도이며 σ 와 ρ_p 는 각각 입자의 표면 장력과 밀도이다. A_w 는 물의 화학적 활동도(chemical activity)를 나타내며 지수함수는 Kelvin효과를 나타낸다.

3. 비흡습성 에어로졸의 응축률 모델

비흡습성 에어로졸인 경우 에어로졸 성분이 응축된 물에 용해되지 않기 때문에 용질효과에 의한 입자표면에서의 증기압 감소가 일어나지 않는다. 따라서 식 (1)의 ρ_r 은 입자표면 온도에서의 포화증기압 ρ_s 와 같다. 이 경우 수증기응축률은 Mason식으로 표시되며 다음과 같이 주어진다[10].

$$g(v, t) = 4\pi r D \frac{(\rho_\infty - \rho_s)}{1 + \frac{D\rho_s L}{KT_\infty} \left(\frac{LM_w}{RT_\infty} - 1\right)} \quad (3)$$

식 (3)에 의하면 수증기의 상대습도($RH = \frac{\rho_\infty}{\rho_s}$)가 1보다 작은 경우, 즉 불포화 상태에서는 응축률이 음수가 되어 입자로부터 이미 응축된 물의 증발이 일어나게 됨을 알 수 있다.

4. 에어로졸 거동방정식

에어로졸은 입자간 결합과 증기의 응축으로 입자의 크기가 성장하며 중력침전을 비롯한 벽면부착으로 제거된다. 일반적으로 입자간 결합은 수증기응축에 비하여 매우 느리게 진행되기 때문에 짧은 시간동안은 입자의 성장에 미치는 영향을 무시할 수 있다. 따라서 본 연구에서는 증기응축과 중력침전에 의한 에어로졸 거동을 고려하였다. 이 경우 에어로졸 거동방정식은 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$\frac{\partial n(v, t)}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial v} [g(v, t)n(v, t)] - R(v, t)n(v, t) \quad (4)$$

여기서 $n(v, t)$ 는 입자크기 분포함수(size distribution function)로서 $n(v, t)dv$ 는 입자의 크기가 $v, v+dv$ 사이에 위치한 입자수의 밀도를 나타낸다. $R(v, t)$ 는 중력침전에 의한 제거율을 나타내며 아래와 같이 쓸 수 있다.

$$R(v, t) = R_0 v^{2/3} \quad (5)$$

여기서 R_0 는 에어로졸 용기의 부피와 바닥면적, 기체의 점도의 함수로 결정되는 상수이다.

식 (4)는 초기 입자크기분포가 주어지면 식 (1) 및 (3)의 응축률 모델에 대해서 해석적인 방법으로 해를 구할 수 있다[11,12].

5. 계산결과 및 분석

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

CsOH의 밀도(ρ_p)= 3.68×10^3 kg/m³; 기체의 온도(T_∞)=323 °K (50 °C); 기체의 압력(P_∞)= 1.10325×10^5 Pa; 물의 그램분자량(M_w)=0.018 kg/mol; CsOH의 그램분자량(M_s)=0.150 kg/mol; 중력침전 제거상수(R_o)= 3.8×10^5 ; 수증기의 잠열(L)= 2.388×10^6 J/kg; 기체의 열전도계수(K)= 2.539×10^{-2} J/kg.m.sec; 수증기분자의 확산계수(D)= 2.921×10^{-5} m²/sec; 수증기의 포화밀도(ρ_s)= 8.312×10^{-2} kg/m³; 물의 표면장력(σ)= 6.825×10^{-2} N/m

그림 1-3은 각각 상대습도가 90%, 100%, 110%일 때 흡습성 모델과 비흡습성 모델인 Mason모델을 이용하여 입자크기에 따른 수증기 응축률을 계산한 결과이다. CsOH 성분의 초기 입자반경(r_o)는 0.1 μ m이며 입자의 크기는 초기입자에 대한 반경의 비(r/r_o)로 나타내었다. 상대습도가 90%인 경우 흡습성 모델은 입자의 크기가 평형반경($r/r_o=2.0$)에 달할 때까지는 응축을 예측하나 응축률이 급속히 감소하며 크기가 평형반경 이상이 되면 입자로부터의 증발이 일어남을 보이고 있다. 반면 Mason 모델은 처음부터 증발이 발생함을 보이고 있으며 입자의 크기가 초기 크기의 약 5배 이상이 되면 두 모델간의 차이는 거의 없음을 알 수 있다. 이 경우 상대습도가 낮기 때문에 입자의 크기가 클수록 (즉 많은 양의 응축수를 내포한 경우) 증발률은 기하급수적으로 증가함을 볼 수 있다.

상대습도가 100%인 포화상태에서 흡습성 모델은 앞의 경우와 같이 평형반경에 이를 때까지는 급속히 감소하는 응축률을 보이나 그 이후에는 입자크기의 증가에 따라 증발률이 급속히 증가하다가 차츰 거의 일정한 값을 유지함을 보여주고 있다. 이 경우에 있어서도 Mason 모델은 입자로부터 증발이 일어나고 있음을 보이나 증발률은 상대습도가 90%인 경우보다 훨씬 낮은 값을 보이고 있다. 상대습도가 110%인 경우 흡습성 응축 모델과 Mason모델 모두 응축이 발생함을 예측하고 있다. 흡습성 모델인 경우 입자성장 초기에는 입자의 크기가 커짐에 따라 응축률이 감소하나 Mason 모델은 반대로 급속한 증가를 보이고 있다. 이러한 차이는 흡습성 모델인 경우 입자성장 초기에는 용질효과가 지배적인 영향을 미치기 때문이며 Mason모델인 경우는 Kelvin효과의 영향이 지배적이기 때문이다. 즉 입자의 크기가 작을수록 입자표면의 증기압이 높아져 응축률이 감소하기 때문이다. 반경비가 약 10를 초과하면서 두 모델이 예측한 응축률이 거의 일치하고 있는 이유는 용질효과와 Kelvin효과의 영향이 거의 작용하지 않고 응축률은 입자의 크기에 의존하기 때문이다.

흡습성이 에어로졸의 입자크기분포에 미치는 영향을 분석하기 위하여 초기분포가 대수정규분포(log-normal distribution)을 갖는 CsOH 에어로졸을 대상으로 흡습성 응축 모델과 Mason모델을 이용하여 계산을 수행하였다. 초기분포에서 입자직경의 중앙값(median diameter)은 0.225 μ m, 총입자수는 1×10^{10} #/m³, 표준편차는 1.5, 최소입자의 직경은 0.01 μ m로 가정하였다. 흡습성 응축모델에 대해서는 상대습도를 99%, 100%, 101%를 적용하였으며 Mason모델에 대해서는 101%를 사용하였다. 각 경우 모두 열역학적 조건과 상대습도는 모의시간동안 일정한 것으로 가정하였다.

그림 4-5는 초기분포와 각각 0.1초 및 1초후의 입자크기분포를 나타내고 있다. 0.1초에서의 입자크기 분포는 상대습도가 101%이고 흡습성 응축모델을 사용한 경우 가장 빠른 입자성장을 보였으며 같은 상대습도에서 Mason모델을 사용한 경우가 다음으로 빠른 입자성장을 보이고 있다. 상대습도가 100% 및 99% 조건에서 Mason 모델을 적용하면 입자성장이 일

어날 수 없으나 흡습성 응축모델을 사용한 경우에는 상당히 빠른 입자성장을 나타내고 있다. 상대습도가 동일한 응축조건에서는 작은 입자의 성장속도가 빠르기 때문에 입자크기 분포의 폭은 시간이 지남에 따라 좁아져 1초후에는 거의 선분포를 나타내고 있음을 알 수 있다. 이러한 입자크기 분포의 변화는 중력에 의한 침전과 입자간 결합에 직접적인 영향을 미치게 된다. 입자의 성장속도가 빠를수록 빨리 침전이 일어나므로 흡습성 성분이 포함된 에어로졸은 습한 조건에서 비흡습성 에어로졸에 비해 빨리 제거됨을 예상할 수 있다.

그림 6은 흡습성 응축모델과 Mason 모델을 사용한 경우 중력침전에 의한 에어로졸의 감소를 보여주고 있다. 흡습성 응축 모델에 대해서 상대습도는 101%, 100%, 99%로 가정하였으며 Mason 모델에 대해서는 101%로 가정하였다. 에어로졸의 감소는 초기량에 대한 비로 나타내었다. 앞의 결과로부터 예상한 바와 같이 상대습도가 101%이고 흡습성을 고려한 경우 가장 빠른 속도로 감소하며 그 다음은 101%의 상대습도에서 흡습성을 고려하지 않은 경우이다. 흡습성을 고려한 경우 초기량의 1/10로 감소하는데 소요되는 시간은 상대습도가 100%에서 약 65초, 상대습도가 99%에서는 약 80초이다. 같은 조건에서 흡습성을 고려하지 않은 경우 응축성장이 발생하지 않으므로 제거되는 에어로졸량은 무시할 수 있다. 상대습도가 101%인 조건에서 흡습성을 고려한 경우 고려하지 않은 경우에 비하여 최대 약 25배 (약 40초경)의 많은 양이 제거됨을 볼 수 있다.

본 연구에서는 해석적인 방법으로 에어로졸의 거동을 분석하기 위하여 수증기 응축과 중력침전만을 고려하였으며 짧은 시간 동안의 에어로졸 거동을 모의하였다. 모의 시간이 짧은 경우 입자간 결합에 의한 성장과 벽면부착은 응축성장과 중력침전에 비하여 에어로졸의 거동에 미치는 영향이 크지 않기 때문에 무시할 수 있으나 장시간에 걸친 에어로졸의 거동을 분석하기 위해서는 이러한 현상을 고려되어야 한다. 그러한 경우 해석적인 방법의 적용은 불가능하며 전산코드를 이용한 계산이 수행되어야 할 것이다.

6. 결론

흡습성 에어로졸의 수증기 응축에 의한 입자성장 모델을 이용하여 중대사고시 방사선원항에 기여도 큰 CsOH 에어로졸의 거동을 중력침전을 고려하여 해석적인 방법으로 계산하였다. 흡습성 에어로졸의 수증기 응축 모델을 이용한 결과 용질효과에 의하여 상대습도가 불포화 상태에서도 주위의 수증기를 흡수하여 입자성장이 일어남을 알 수 있었다. 이러한 입자성장은 평형반경에 달할 때까지 지속되었다. 반면 용질효과를 고려하지 않은 비흡습성 모델은 상대습도가 100% 이하인 조건에서는 입자성장이 일어날 수 없으며 오히려 입자로부터의 증발이 발생함을 예측하였다.

용질효과를 고려한 모델과 고려하지 않은 Mason 모델을 비교한 결과 입자 크기에 따라 응축률에서 큰 차이를 보였다. 용질효과를 고려한 응축모델을 사용하여 에어로졸의 입자크기 분포를 모의한 결과 입자크기 분포의 빠른 변화를 보였다. 이러한 입자크기 분포변화는 중력침전으로 제거되는 에어로졸량에도 영향을 주어 흡습성을 고려한 경우 짧은 시간에 빠른 에어로졸의 감소를 보였다.

본 연구에서 분석한 결과에 따르면 중대사고 해석을 위하여 현재 사용되고 있는 MELCOR와 CONTAIN코드의 에어로졸 계산모델은 흡습성 에어로졸의 용질효과를 고려하는 방향으로 개선되어야 할 것으로 판단된다. MAAP 코드의 에어로졸 계산모델은 흡습성을 고려하고 있으나 모든 입자를 동일한 크기로 가정(즉, 입자크기분포의 영향을 무시)하고 있기 때문에 상당한 오차를 초래할 것으로 여겨진다.

7. 참고문헌

1. J. Jokiniemi, "Effect of selected binary and mixed solutions on the steam condensation and aerosol behavior in containment", *Aersol Science and Tech.* 12:891-902 (1990).
2. M.S. Hosyni and A.T. Wassel, "Growth of aerosol particles in a steam environment and its effect on removal", *Nuclear Eng. Design* 97:103-109 (1986).
3. K.D. Bergeron et. al. "User Manual for CONTAIN 1.0, A computer code for severe nuclear reactor qccident containment analysis", SAND81-1495, NUREG/CR-2224, (1984).
4. SNL, "MELCOR 1.8.2 Computer code manual", (1993).
5. F. Gelbard, "MAEROS User Manual", NUREG/CR-1391, Sandia National Laboratory (1982).
6. IDCOR, "MAAP-3.0B Modular Accident Analysis Program for LWR Power Plants", Fauske & Associates , November 1990.
7. H. Bunz, M. Kyoro, and W. Schock, "NAUA Mod4, A code for for calculating aerosol behavior in LWR core melt accidents; codel description and users manual", KfK-3554 Kernforschungszentrum Karlsruhe, (1983).
8. J.H. Wilson and P.C. Arwood, "Comparison of predictions of aerosol codes with measurements in LWR containment experiment LACE LA4", ORNL/M-991, (1990).
9. J. Jokiniemi, "The growth of hygroscopic particles during severe core melt accidents", *Nuch. Tech.* 83:16-23 (1988).
10. B.J. Mason, The Physics of Clouds, 1st ed. Clarendon Press, Oxford, (1957).
11. M.M.R. Williams and S.K. Loyalka, Aerosol Science: Theory and Practice, Pegamon Press, (1991).
12. S.K. Loyalka and J.W. Park, "Aerosol growth by condensation: A generalization of Mason's formula", *J. Colloid Int. Sci.* 125:712-716 (1988).

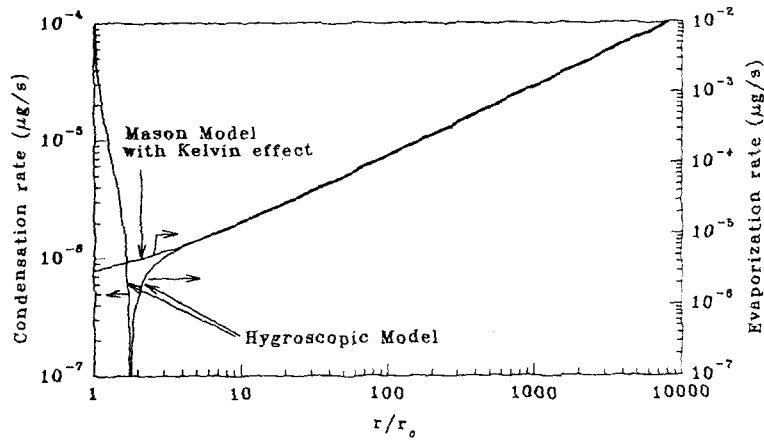


그림 1 상대습도 90%에서 흡습성 모델과 비흡습성 모델(Mason 모델)을 이용하여 계산한 수증기 응축률의 비교

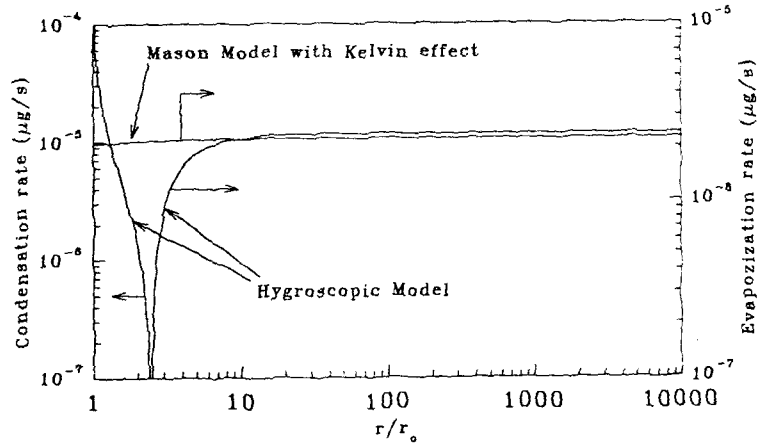


그림 2 상대습도 100%에서 흡습성 모델과 비흡습성 모델(Mason 모델)을 이용하여 계산한 수증기 응축률의 비교

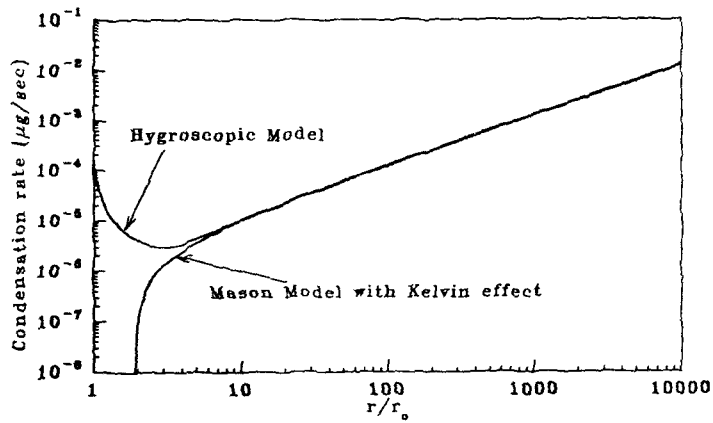


그림 3 상대습도 110%에서 흡습성 모델과 비흡습성 모델(Mason 모델)을 이용하여 계산한 수증기 응축률의 비교

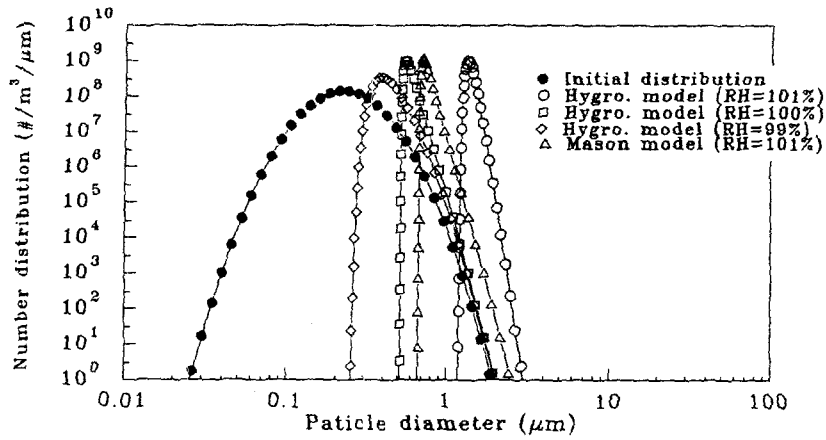


그림 4 흡습성 모델과 비흡습성 모델(Mason 모델)을 이용하여 계산한 입자크기분포 비교 (시간 0.1초)

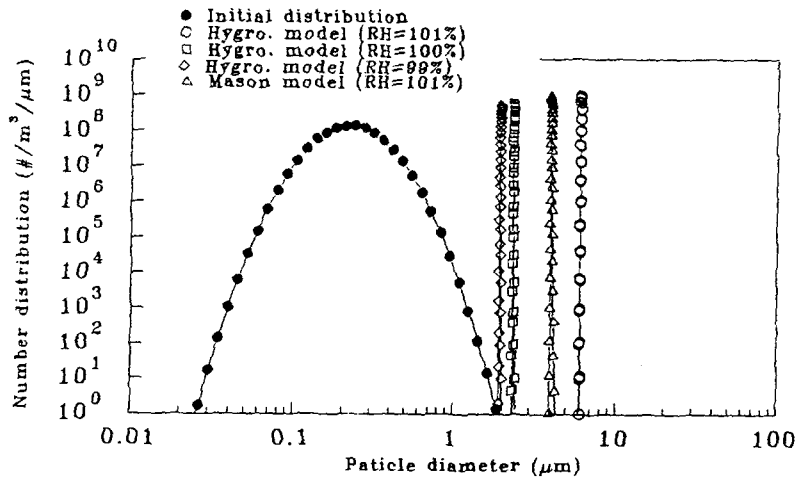


그림 5 흡습성 모델과 비흡습성 모델(Mason 모델)을 이용하여 계산한 입자크기분포 비교 (시간 1초)

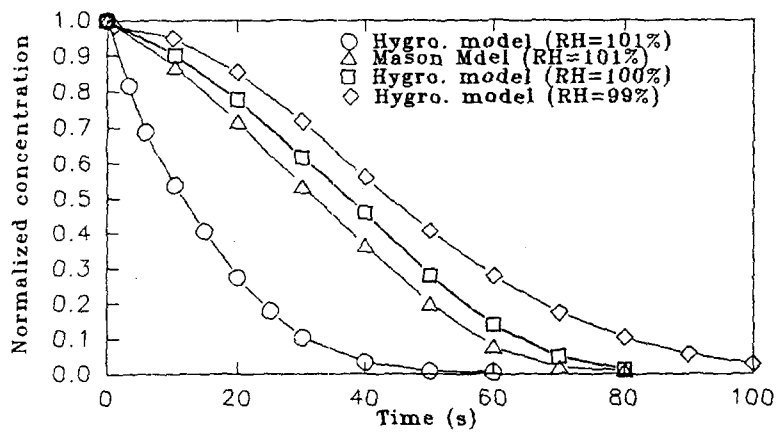


그림 6 흡습성 모델과 비흡습성 모델(Mason 모델)을 이용하여 계산한 에어로졸 감소량 비교