

수직 방향 응고시에 열-용질 대류의 발생

황인국 · 최창균

서울대학교 공과대학 화학공학과
(1991년 7월 15일 접수, 1991년 10월 16일 채택)

The Onset of Thermosolutal Convection during Upwards Solidification

In Gook Hwang and Chang Kyun Choi

Department of Chemical Engineering, College of Engineering, Seoul National University, Seoul 151-742

(Received 15 July 1991; accepted 16 October 1991)

요 약

이성분 용융액의 수직 방향 응고시에 열-용질 대류의 발생에 대해 선형 안정성 이론을 근거로 조사하였다. 본 연구의 주요한 관심은 열-용질 대류 발생에 있어 온도의 안정화 효과이다. 열 Rayleigh 수가 증가하면 임계 용질 Rayleigh 수가 증가하는 결과로부터 열 Rayleigh 수의 증가가 대류 발생에 안정화 효과를 주는 것을 알았다. 또한 Lewis 수나 Schmidt 수가 커지면 계는 불안정해지고, 대류 발생시에는 계면 가까운 곳에 한정되는 다중셀 대류가 나타남을 알 수 있었다. 열 Rayleigh 수가 증가함에 따라 이러한 열-용질 대류는 점점 응고 계면에 가까운 곳에서 발생하게 되며 다중셀의 경향이 더 나타났다.

Abstract—The onset of thermosolutal convection during upwards solidification of a binary melt is investigated by using linear stability theory. The present study concerns the stabilizing effect of temperature on the onset of thermosolutal convection. The results show that the critical solutal Rayleigh number increases with increasing the thermal Rayleigh number. This reflects the fact that an increase in thermal Rayleigh number makes the system more stable, while the system becomes more unstable with an increase in Lewis number or Schmidt number. Multicell convection is exhibited at onset condition and this thermosolutal convection is confined mainly to the vicinity of the interface. With increasing the thermal Rayleigh number, this trend becomes more pronounced with multicell patterns more distinguished.

1. 서 론

반도체 재료, 결정 성장(crystal growth), 금속 합금 분야 등 거의 모든 재료 공정에는 응고(solidification)가 수반된다. 응고시의 대류는 고체의 물성에 중요한 영향을 주기 때문에, 응고와 대류의 관계는 지난 수십년간 많은 이론적, 실험적 연구의 대상이 되어 왔다[1]. 밀도차에 의해 대류가 유발되면 고체 제품의 순도와 균일성이 떨어지게 되는데, 최근 반도체 산업의 발전과

더불어 좋은 물성을 갖는 고체 재료에 대한 요구가 높아짐에 따라 이러한 응고시에 나타나는 자연 대류의 발생에 대한 관심이 많아지고 있다[2, 3].

용융액을 냉각하여 응고시킬 때 고체-액체 계면에서는 열전달이 이루어짐에 따라 온도 구배가 존재하며, 상 전이 과정에서 선택적으로 배제되는 용질이 계면 가까이에서 쌓이게 됨에 따라 농도 구배가 존재하게 된다[4, 5]. 용융액이 아래로부터 냉각되면서 일정한 속도로 굳어갈 때 온도는 아래쪽이 차가운 상태를 갖게 되어

안정한 밀도 분포를 이루게 한다. 응고 계면에서 더 가벼운 용질이 배제되므로 농도는 계면 가까이에서 불안정한 밀도 분포를 이루게 한다. 따라서 전체적인 밀도 분포는 이러한 온도와 농도 분포에 따라 변화하고, 대류의 발생은 농도에 의한 불안정화와 온도에 의한 안정화에 관계된다. 이와 같은 온도 및 농도 구배에 의한 대류를 열-용질 대류(thermosolutal convection) 혹은 이중 확산 대류(double-diffusive convection)라고 한다 [4, 6].

응고계에 대한 불안정성 해석에는 대표적으로 형태적 불안정성(morphological instability)[7]과 대류 불안정성(convective instability)의 두 유형이 있다. Mullins와 Sekerka[8]는 선형 안정성 이론으로 대류가 없을 때 평평한 응고 계면이 셀(cell) 모양으로 변형되는 형태적 불안정성에 대해 연구했다. 용융액 내에서의 유동이 응고계의 불안정성에 큰 영향을 준다는 것이 알려지면서 Coriell 등[4]은 가벼운 용질에 의해 유발되는 대류 불안정성과 계면 안정성의 관계를 Pb-Sn 이성분 합금에 대해 선형 안정성 이론으로 연구하였다. Hurle 등[9]은 같은 계에 대해 온도 효과를 무시하고 용질에 의한 대류를 연구하였으며, McFadden 등[10]은 응고계의 열-용질 대류에 대해 시간 의존성 비선형 해석을 한 바 있다. 최근에 Thi 등[11]은 Pb-Tl계에 대해 열-용질 대류에 관한 실험으로 고체-액체 계면에 Bénard-Marangoni 셀 형태의 작은 육각 모양들이 생기는 것을 관측하였다.

본 연구에서는 Coriell 등[4], Hurle 등[9]이 선형 안정성 이론으로 해석한 바 있는 아래로부터 생각되는 이성분 응고계에 대해, 열-용질 대류에 관심을 갖고 온도에 의한 안정화 효과가 대류의 발생에 미치는 영향을 알아 보았다. 본 연구에서는 평평한 계면을 갖는 응고계에 대해 열 Rayleigh 수가 계의 안정성에 주는 영향을 조사하였는데, 이는 Hurle 등[9]이 열 Rayleigh 수를 무시하고 수행한 연구의 확장이 된다.

2. 이 론

2-1. 지배 방정식

본 연구에서 고려한 계는 Fig. 1과 같이 농도 C_∞ 를 갖는 이성분 용융액이 뒷방향으로 일정한 속도 V_0 로 굳어 가고 있는 응고계이다. 액체는 유동이 없는 상태이고 계면으로부터 더 가벼운 용질이 배제된다. 이 때, 고체-액체 계면이 움직이고 있으므로 관측 좌표를 이동 계면에 놓고 지배 방정식과 경계 조건을 설정한다[4, 5].

고체에 대해서는 용질 확산을 무시하고 에너지식만을 고려하면 다음과 같다.

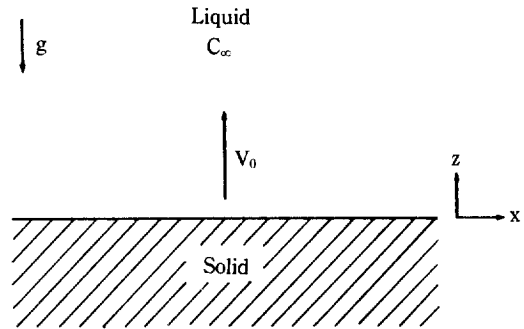


Fig. 1. Schematic diagram of solidification system.

$$\frac{\partial T_s}{\partial t} - V_0 \frac{\partial T_s}{\partial z} = \kappa_s \nabla^2 T_s \quad (1)$$

T_s 는 고체 온도, κ_s 는 고체에서의 열 확산 계수이고, t 는 시간이다.

액체에 대해서는 에너지식, 용질 보존식, 연속식이 있고, 운동량식에 Boussinesq 근사를 적용한다.

$$\frac{\partial T_L}{\partial t} + \mathbf{U} \cdot \nabla T_L = \kappa_L \nabla^2 T_L \quad (2)$$

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \mathbf{U} \cdot \nabla C = D_L \nabla^2 C \quad (3)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{U} = 0 \quad (4)$$

$$\rho_L \left\{ \frac{\partial \mathbf{U}}{\partial t} + (\mathbf{U} \cdot \nabla) \mathbf{U} \right\} = -\nabla P - \bar{\rho}_L g \mathbf{e}_3 + \mu \nabla^2 \mathbf{U} \quad (5)$$

여기서 T_L , C , \mathbf{U} , P 는 액체의 온도, 용질의 농도, 액체의 속도, 압력이고 κ_L , D_L , ρ_L , μ 는 각각 액체의 열 확산 계수, 용질 확산 계수, 밀도, 점도이다. g 는 중력 가속도이고 \mathbf{e}_3 는 Z 방향 단위 벡터이다. 밀도에 대한 상태식은 다음과 같다.

$$\bar{\rho}_L = \rho_L \{ 1 - \alpha(T_L - T_0) - \beta(C - C_0) \} \quad (6)$$

α 는 열 팽창 계수, β 는 용질 팽창 계수이며, T_0 , C_0 는 각각 기준 온도, 기준 농도로서 계면 위치에서의 온도, 농도이다.

계면에서의 경계 조건을 나타내기 위해 다음과 같은 일반적인 가정을 한다[2, 9].

- 1) 고체와 액체의 밀도는 같다.
- 2) 계면은 평평한 모양이다.
- 3) 과냉각 효과는 무시한다.

상 변화시 고체와 액체의 부피차로 인한 대류(volume-change convection)는 강제 대류나 자연 대류가 존재

하는 경우에는 그 영향이 미약하다고 알려져 있다[2]. 본 연구는 자연 대류의 발생에 관한 것이므로 1)의 가정을 적용하였다. 또, 대류 안정성은 큰 척도의 대류 (large-scale convective flow)에 관계되고 형태적 안정성은 작은 척도의 형태 (small-scale morphology)에 관계되기 때문에 이 둘의 상호 작용은 약하다고 알려져 있다[2, 9]. 일반적으로 응고 문제에서는 계면의 굴곡과 구성적 과냉각 (constitutional supercooling) 효과를 고려하지만, 본 연구는 대류 불안정성에 대한 것이기 때문에 2), 3)의 가정으로 경계 조건에 형태적 불안정성에 관계되는 매개 변수를 나타내지 않게 된다. 그러나 대류 안정성과 형태적 안정성의 상호 작용이 있는 경우도 연구되어 있음을 밝혀둔다[12].

계면에서 경계 조건은 다음과 같다.

$$\mathbf{U} = -V_0 \mathbf{e}_3 \quad (7)$$

$$D_L \frac{\partial C}{\partial Z} + V_0(1-k)C = 0 \quad (8)$$

$$k_s \frac{\partial T_s}{\partial Z} - k_L \frac{\partial T_L}{\partial Z} = LV_0 \quad (9)$$

$$T_s = T_L = T_m \quad (10)$$

식 (7)은 V_0 로 움직이는 이동 좌표계에서 관측되는 액체의 속도를 나타낸다. 식 (8)은 용질보존에 관한 것인데, k 는 분정 계수 (segregation coefficient)로서 계면에서의 고체속의 용질 농도와 액체의 농도의 비이다. 용질이 배제되면 $k < 1$ 이고, 용질이 선택적으로 혼입되면 $k > 1$ 이다. 식 (9)는 에너지 보존에 관한 식이며, k_s , k_L 은 각각 고체 열 전도도, 액체 열 전도도이고, L 은 고체 단위 부피당 잠열이며, T_m 은 융점을 나타낸다.

기본 상태에서 온도, 농도 분포는 다음과 같다[5].

$$\bar{T}_s(0) = T_m + \frac{\kappa_s G_s}{V_0} \left\{ 1 - \exp \left(-\frac{V_0}{\kappa_s} Z \right) \right\} \quad (11)$$

$$\bar{T}_L(0) = T_m + \frac{\kappa_L G_L}{V_0} \left\{ 1 - \exp \left(-\frac{V_0}{\kappa_L} Z \right) \right\} \quad (12)$$

$$\bar{C} = C_\infty \left\{ 1 + \frac{(1-k)}{k} \exp \left(-\frac{V_0}{D_L} Z \right) \right\} \quad (13)$$

\bar{T} , \bar{C} 는 각각 기본 상태에서 온도, 농도를 나타내며, G_s , G_L 은 $Z=0$ 에서의 고체, 액체 온도 구배이고, C_∞ 는 $Z \rightarrow \infty$ 에서의 농도이다.

앞의 지배 방정식과 경계 조건을 무차원화하기 위해 속도 척도를 응고 속도인 V_0 로, 길이 척도를 용질 확산층의 길이인 D_L/V_0 로 하여 다음과 같은 무차원 변수를

도입한다.

$$z = \frac{V_0}{D_L} Z, \quad \mathbf{u} = \frac{1}{V_0} \mathbf{U}, \quad p = \frac{D_L}{\mu V_0^2} P$$

$$\tau = \frac{V_0^2}{D_L} t, \quad \theta = \frac{V_0}{G_L D_L} (T - T_m), \quad c = \frac{C - C_0}{C_\infty - C_0} \quad (14)$$

여기서 온도차 ΔT 는 온도 구배에 길이 차원을 곱한 것으로 $G_L D_L/V_0$ 에 해당된다[13]. 위의 상관관계를 이용하여 무차원화된 지배 방정식과 경계 조건은 다음과 같다.

$$\text{(고체)} \quad \frac{\partial \theta_s}{\partial \tau} + \frac{\partial \theta_s}{\partial z} = \frac{1}{Le_s} \nabla^2 \theta_s \quad (15)$$

$$\text{(액체)} \quad \frac{\partial \theta_L}{\partial \tau} + \mathbf{u} \cdot \nabla \theta_L = \frac{1}{Le} \nabla^2 \theta_L \quad (16)$$

$$\frac{\partial c}{\partial \tau} + \mathbf{u} \cdot \nabla c = \nabla^2 c \quad (17)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \quad (18)$$

$$\frac{1}{Sc} \left\{ \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial \tau} + (\mathbf{u} \cdot \nabla \mathbf{u}) \right\} = -\nabla p + \left(R_s c + \frac{R_T}{Le} \theta_L \right) + \nabla^2 \mathbf{u} \quad (19)$$

(경계 조건)

$$z=0 \quad \mathbf{u} = -\mathbf{e}_3 \quad (20a)$$

$$\frac{\partial c}{\partial z} + (1-k)c = 0 \quad (20b)$$

$$\hat{k} \frac{\partial \theta_s}{\partial z} - \frac{\partial \theta_L}{\partial z} = \Lambda \quad (20c)$$

$$\theta_s = \theta_L \quad (20d)$$

여기서 \hat{k} 는 열 전도도 비로서, $\hat{k} = k_s/k_L$ 이다. 위의 식들에 나타나는 무차원군들은 다음과 같이 정의된다.

$$Le_s = \frac{D_L}{\kappa_s} \quad (\text{Lewis number for solid})$$

$$Le = \frac{D_L}{\kappa_L} \quad (\text{Lewis number for liquid})$$

$$Sc = \frac{\nu}{D_L} \quad (\text{Schmidt number})$$

$$R_S = \frac{g \beta C_\infty (1-k)}{D_L \nu k} \left(\frac{D_L}{V_0} \right)^3 \quad (\text{solutal Rayleigh number})$$

$$R_T = \frac{g \alpha G_L}{\kappa_L \nu} \left(\frac{D_L}{V_0} \right)^4 \quad (\text{thermal Rayleigh number})$$

$$\Lambda = \frac{L V_0}{G_L k_L} \quad (\text{Stefan number})$$

정상 상태인 식(11)-(13)을 무차원화하면 다음과 같다.

$$\bar{\theta}_S = \frac{1+\Lambda}{k Le_S} \{1 - \exp(-Le_S z)\} \quad (21)$$

$$\bar{\theta}_L = \frac{1}{Le} \{1 - \exp(-Le z)\} \quad (22)$$

$$\bar{c} = -\{1 - \exp(-z)\} \quad (23)$$

2-2. 선형 안정성 해석

교란된 상태는 선형 안정성 이론에 입각하여 다음과 같이 기본량과 무한소의 교란량의 합으로 나타낸다.

$$\theta_S = \bar{\theta}_S + \theta'_S, \quad \theta_L = \bar{\theta}_L + \theta'_L$$

$$c = \bar{c} + c', \quad u = \bar{u} + u', \quad p = \bar{p} + p' \quad (24)$$

위의 식에 보이는 교란량들은 다음과 같은 정규 형태(normal mode)로 나타낼 것으로 가정한다.

$$\{\theta'_S, \theta'_L, c', w'\} = \{\theta'_S(z), \theta'_L(z), c'(z), w'(z)\} \exp[i(a_x x + a_y y) + \sigma \tau] \quad (25)$$

위의 식은 임의의 교란이 파수 $a = (a_x^2 + a_y^2)^{1/2}$ 를 가지는 2차원 주기와 특성을 보인다는 것을 뜻한다. 여기서 시간의존함수 σ 는 " $\sigma = \sigma_r + i \sigma_i$ "로 표시되는데, σ_r 은 교란의 성장, σ_i 는 교란의 진동수를 나타낸다.

식 (24)를 앞의 식 (15)-(20)에 대입하여, 운동량식에 컵을 두 번 취하여 압력항을 소거하고 교란량들을 선형화하면 다음과 같다.

(고체)

$$\{D^2 + Le_S(D - \sigma) - a^2\} \theta'_S = 0 \quad (26)$$

(액체)

$$\{D^2 + Le(D - \sigma) - a^2\} \theta'_L = w' Le \exp(-Le z) \quad (27)$$

$$(D^2 + D - \sigma - a^2) c' = -w' \exp(-z) \quad (28)$$

$$\begin{aligned} & (D^2 - a^2) \{D^2 + \frac{1}{Sc} (D - \sigma) - a^2\} w' \\ & = a^2 (R_S c' + \frac{R_T}{Le} \theta'_L) \end{aligned} \quad (29)$$

(경계 조건)

$$\begin{aligned} & \underline{z=0} \\ & Dc' + (1-k)c' = 0 \end{aligned} \quad (30a)$$

$$kD\theta'_S - D\theta'_L = \theta'_S - \theta'_L = 0 \quad (30b)$$

$$w' = Dw' = 0 \quad (30c)$$

여기서 $D = d/dz$ 이다. 또, 온도 경계 조건에 Λ 가 나타나지 않는데, Λ 는 계면이 평평한 경우 교란량에 관계하지 않게 된다. 계면에서 멀리 떨어진 곳에서는 교란이 없으므로 다음의 경계 조건을 적용한다.

$$\begin{aligned} & \underline{z \rightarrow \infty} \\ & \theta'_L = c' = w' = D^2 w' = 0 \end{aligned} \quad (31)$$

$$\begin{aligned} & \underline{z \rightarrow -\infty} \\ & \theta'_S = 0 \end{aligned} \quad (32)$$

식 (31), (32)는 계면에서부터 멀리 떨어진 곳에서는 온도, 농도, 속도 교란이 없다는 것을 뜻하고, $D^2 w' = 0$ 의 조건은 액체의 깊이가 한정되지 않음을 나타낸다[5].

2-3. 해법

고체에 대한 에너지식 (26)은 액체에 대한 식들과 결부되어 있지 않으므로 경계 조건으로 식 (30b)와 (32)를 적용하여 따로 풀 수 있다.

$$\theta'_S = B_S \exp(b_S z) \quad (33)$$

여기서,

$$b_S = \frac{1}{2} [-Le_S + \{Le_S^2 + 4(Le_S \sigma + a^2)\}^{1/2}] \quad (34a)$$

$$B_S = \theta'_L \quad (34b)$$

이다. 계면에서의 온도 경계 조건인 식 (30b)는 다음과 같이 된다.

$$D\theta'_L - k b_S \theta'_L = 0 \quad (35)$$

지배 방정식에는 대류 안정성 해석에 중요한 무차원 수 Le , Sc , R_S , R_T 와 파수 a 가 있고, 경계 조건에는 Le_S 와 k , k 가 있다. 고체와 액체의 열 확산 계수를 같게 놓아

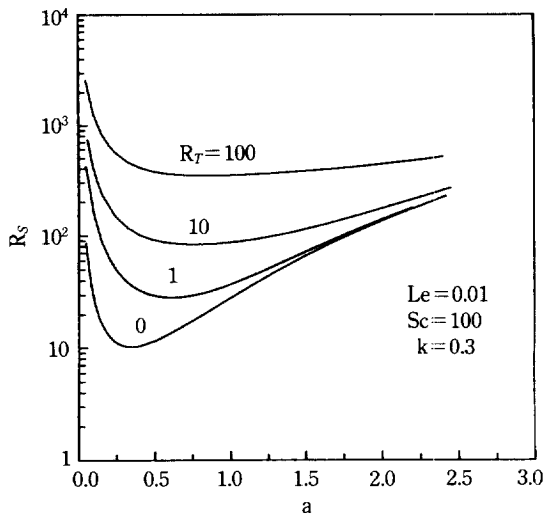


Fig. 2. Neutral curves for various thermal Rayleigh numbers.

$Le_s = Le$ 로 하고, 대류 발생은 고정형 불안정성(stationary instability)에 대한 것이므로 $\sigma=0$ 으로 놓고 해석한다[14]. 온도, 농도, 속도 교란식이 서로 결부되어 있는 식 (27), (28), (29)를 풀기 위해 수치 해법으로 Runge-Kutta-Gill 방법을 사용했다. 경계 조건 문제를 초기 조건 문제로 바꾸어야 하므로 $z=0$ 에서 4개의 조건이 더 필요하다. R_T , Le , Sc , a 를 주고, 고유치의 크기를 고정하기 위해서 임의로 $D^2w^*=1$ 로 놓고, R_s , D^3w^* , c^* , θ^* 를 가정한다. 계면에서 멀리 떨어진 곳의 조건, 즉 $z \rightarrow \infty$ 의 조건은 z 값을 z_g 로 변해도 고유치와 고유함수가 변하지 않게 되는 $z=10-30$ 정도의 값으로 놓고, 경계 조건인 식 (31)을 만족시킬 때까지 Newton-Raphson 방법으로 초기치를 다시 가정하여 반복 계산한다. 경계 조건에 나오는 매개 변수의 값은 $k=0.3$, $k=1$ 로 놓고 계산하였으며 Le 수는 0.001, 0.01, 0.1, 0.5, 1에 대해, Sc 수는 0.5, 1, 10, 100에 대해 계산했다. 계면에서의 경계 조건의 변화가 계의 안정성에 주는 영향을 알아보기 위해서, $0 < k < 2$ 의 범위와 $\hat{k}=0$, $\hat{k}=\infty$ 에 대해 계산을 수행했다.

3. 결과 및 토의

3-1. 대류의 발생

응고시에는 냉각되는 고체상으로 열의 흐름이 수반되며, 액상에서 응고 방향으로 온도 구배가 존재하므로 용질에 의한 대류 발생에는 이러한 온도 구배가 안정화 요인으로 작용한다. Fig. 2는 $Le=0.01$, $Sc=100$, $k=0.3$

Table 1. Critical values for thermal Rayleigh numbers for $Le=0.01$, $Sc=100$ and $k=0.3$

R_T	0	1	10	100
$R_{s,c}$	10.27	28.72	83.71	348.5
a_c	0.34	0.61	0.77	0.83

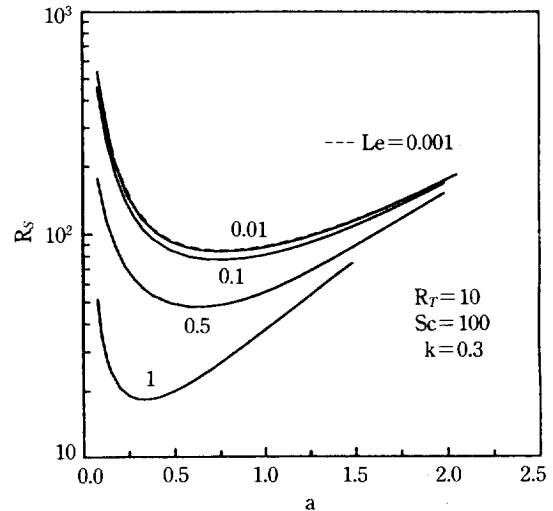


Fig. 3. Effect of Lewis number.

일 때 중립 안정성 곡선을 나타낸 것이다. 온도에 의한 안정화 효과를 알아보기 위해 열 Rayleigh 수를 0, 1, 10, 100으로 바꾸어 가며 용질 Rayleigh 수를 구했다. 임계 용질 Rayleigh 수($R_{s,c}$)와 임계 파수(a)는 곡선의 극소점에서 결정된다. 이를 요약하면 Table 1과 같다. R_T 가 증가함에 따라 $R_{s,c}$ 도 증가하는데, 이는 R_T 의 증가가 대류의 발생에 안정화 효과를 주는 것을 의미한다. R_T 가 증가한다는 것은, 응고 속도가 변하지 않는 경우에 온도 구배가 커지는 것인데, 온도 구배가 커지면 대류 발생을 더 억제하기 때문에 안정화 효과를 주게 되는 것이다. Coriell 등[4]은 Pb-Sn계에 대해 온도 구배가 있을 때, 자기장과 계면의 굴곡, 형태적 매개 인자를 고려하여 응고 속도, 온도 구배에 따른 임계 용질 농도를 구하였다. 본 연구에서는 온도의 안정화 효과를 R_T 의 효과로부터 알 수 있으며, 이것이 Coriell 등[4]의 연구와 다른 점이 된다. 또, $R_T=0$ 일 때는 열 팽창 계수 α 를 0으로 놓은 Hurle 등[9]이 고려한 경우와 비교할 수 있다.

용융액이나 액체 용액에서 용질 확산 계수는 열 확산 계보다 훨씬 작는데, 일반적으로 Lewis 수는 10^{-2} 부터 10^{-4} 정도의 범위를 갖게 된다[5, 15]. Lewis 수가 대류의 발생에 미치는 영향은 Fig. 3에 나타났다. $R_T=10$,

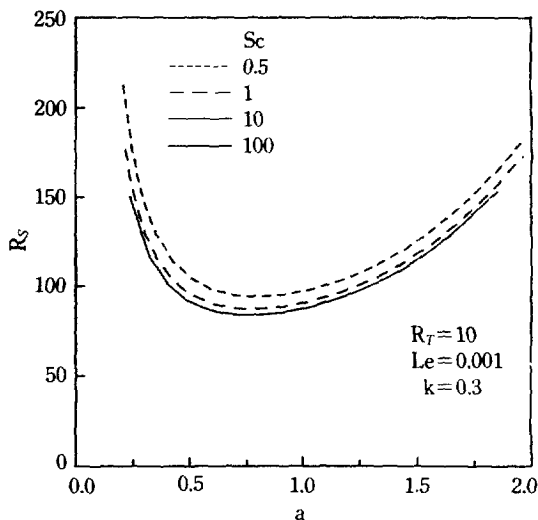
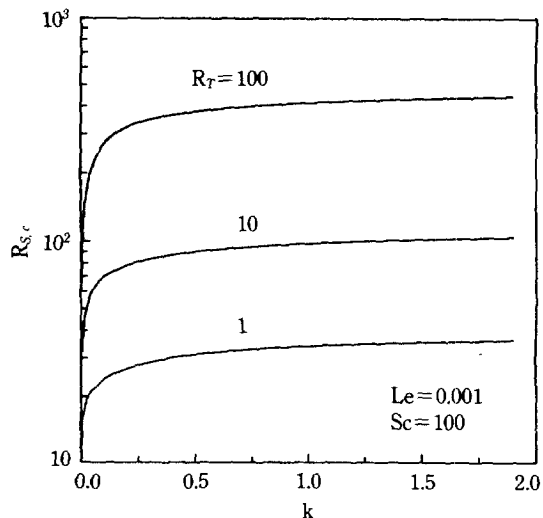
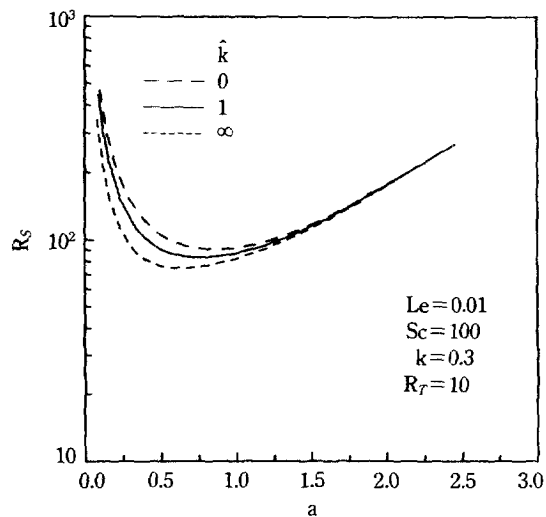


Fig. 4. Effect of Schmidt number.

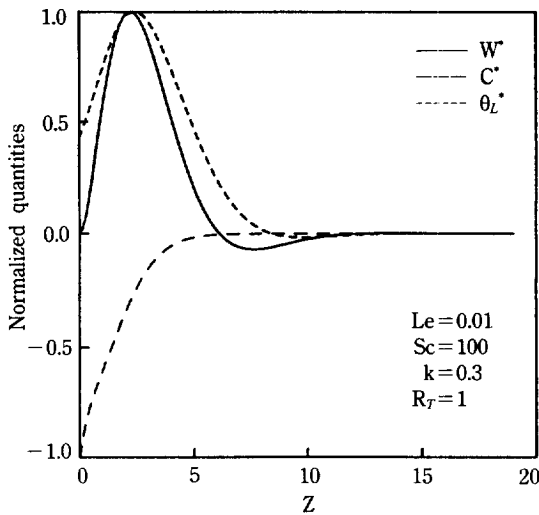
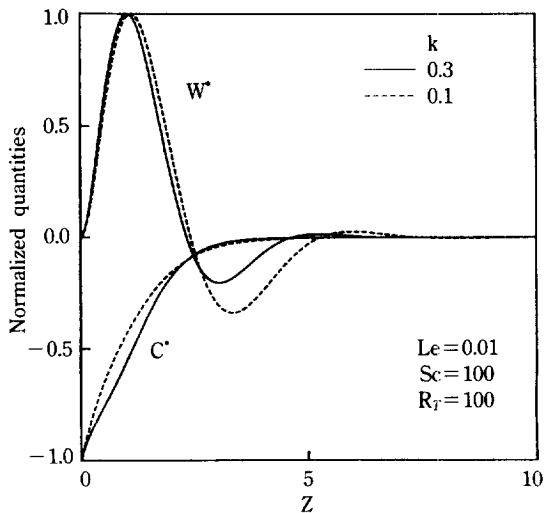
$Sc=100$ 으로 고정시켰을 때 Lewis 수가 작아지면 계는 더 안정해짐을 알 수 있다. Lewis 수는 용질 확산 계수와 열 확산 계수의 비이므로, 같은 R_T 값에 대해서는 열 확산 계수가 큰 계가 열 확산 계수가 작은 계보다 더 안정하다고 생각할 수 있다. 또, $Le=0.01$ 과 $Le=0.001$ 일 때의 안정성 곡선이 거의 일치함을 알 수 있는데, 이는 Lewis 수가 0으로 접근하는 경우 R_s 가 일정한 값으로 가기 때문이다. 따라서 Lewis 수가 0.01 이하의 영역에서는 $R_{s,c}$ 의 Lewis 수에 대한 의존성은 거의 없다고 볼 수 있다.

Fig. 4는 $R_T=10$, $Le=0.001$, $k=0.3$ 인 경우, Schmidt 수의 효과를 나타낸 것이다. Schmidt 수가 커짐에 따라 계는 더 불안정해짐을 알 수 있다. 이는 용질 확산 계수가 더 작아지면 계면으로부터 배제된 용질이 더 늦게 확산되어 나가게 되고 용질에 의한 자연 대류의 발생 가능성은 더 커짐을 나타낸다. Schmidt 수가 10과 100일 때, $R_{s,c}$ 가 거의 같으므로 Schmidt 수가 10 이상인 영역에서 대류 안정성은 Schmidt 수에 영향받지 않음을 알 수 있다. 실제 금속용융액이나 액체 용액에서 Schmidt 수는 10에서 10^2 정도의 범위를 갖는다고 알려져 있다[5, 15].

다음으로 경계조건에 나오는 두 매개 인자인 분정 계수 k 와 고체-액체 열 전도도의 비 \hat{k} 의 영향을 알아 보았다. k 는 계면에서의 용질의 선택적 배제, 혼입에 관계되므로 계면에서의 농도에 직접적인 영향을 준다. Pb-Sn계에서 $k=0.3$, NH_4Cl-H_2O 계에서 $k=0.003$ 이며, Pb-Tl계에서는 $k=1.1$ 로서 더 무거운 Tl이 혼입된다[4, 11]. Fig. 5는 $Le=0.001$, $Sc=100$ 으로 놓고, R_T 가 1, 10,

Fig. 5. Influence of segregation coefficient k on critical solutal Rayleigh number.Fig. 6. Neutral curves for $\hat{k}=0$, $\hat{k}=1$ and $\hat{k}=\infty$.

100일 때 k 가 $R_{s,c}$ 에 미치는 영향을 나타낸 것이다. k 가 작아짐에 따라 $R_{s,c}$ 도 점점 작아져 계가 불안정해지는데, 이러한 결과는 Hurle 등[9]의 연구에서도 찾아 볼 수 있다. 온도에 대한 경계 조건에 나오는 k 를 0과 ∞ 로 바꾸었을 때 $R_{s,c}$ 에 미치는 영향을 Fig. 6에 나타내었다. \hat{k} 가 0과 ∞ 일 때 $R_{s,c}$ 의 변화는 17.8%로써 농도 경계 조건에서 나오는 k 의 효과와 비교할 때, \hat{k} 는 계의 안정성에 큰 영향을 주지 않음을 알 수 있다.

Fig. 7. Distributions of disturbances for $R_T=1$.Fig. 8. Distributions of disturbances $k=0.1$, and $k=0.3$ for $R_T=100$.

3-2. 임계점에서 교란의 분포

대류 발생 임계점에서 속도, 농도, 온도 교란의 분포를 Fig. 7에 나타내었다. 이 그림은 수치 계산된 속도, 농도, 온도 교란의 고유 함수(eigenfunction)를 각각의 최대치로 정규화시킨 것이다. 우선 대류가 발생하는 깊이를 살펴 보면, $R_T=1$ 일 때, 대류 침투 깊이는 15 정도로서 대류는 주로 응고 계면에 가까운 곳에서 발생하게 된다. 속도 분포는 계면에서 가까운 곳에서 최대값을 갖게 되며 대류 침투 깊이의 절반 정도되는 지점에서부터 음의 부호를 갖는 영역이 있게 된다. 이는 계면 가까

이에서 유발된 대류 셀 위에 또 다른 미약한 셀이 생김을 의미한다. 이러한 대류의 모습은 특이한 것이며 일반적인 Bénard-Rayleigh의 대류에서 생기는 단일셀과는 다른 형태이다. 이러한 다중셀 대류는 본 연구 결과의 특징으로서, 이는 온도의 안정화 효과를 고려하면 계의 안정성뿐만 아니라 대류의 형태도 달라짐을 나타낸다. 이중 확산 대류의 salt-finger 영역에서 대류 발생시에 다중셀(multicell)이 생기는 현상은 Chen과 Chen[16], McFadden 등[17]의 문헌에서 찾아 볼 수 있다. 또, McCay와 McCay[18], Hopkins 등[19]은 $\text{NH}_4\text{Cl}-\text{H}_2\text{O}$ 계에서 응고시 가벼운 용질에 의한 대류 불안정성의 실험으로 응고 계면 가까이에 Bénard-Rayleigh 셀이 여러 층으로 발전하는 것을 관측했다.

이중 확산 대류에서는 확산 계수가 다른 두 성분인 온도, 농도가 수직 방향 밀도 구배에 서로 상반되는 역할을 하는데, $Le < 1$ 인 경우는 작은 확산 계수를 갖는 용질에 의해 대류가 유발되고 더 큰 확산 계수를 갖는 열이 반대 작용을 하게 되는 salt-finger 영역에 속한다. 본 연구에서의 다중셀 대류도 이와 같은 확산 속도가 다른 두 성분에 의한 밀도 분포하에서 생기는 것으로 추측된다.

Fig. 8은 $R_T=100$ 인 경우 $k=0.3$, $k=0.1$ 에 대해 온도와 속도의 교란을 나타낸 것이다. $R_T=10$ 인 경우는 그림으로 나타내지 않았지만, 대류 침투 깊이는 10 정도로서 $R_T=1$ 일 때 보다 더 작게 된다. R_T 가 100으로 더 커지면, 대류 침투 깊이는 더 작아져 $z=8$ 정도까지 대류가 분포되고 2차셀의 크기가 상대적으로 더 커지게 되며 또 다른 아주 미약한 3차셀의 모양도 보인다. Fig. 8에서 점선으로 표시한 속도 분포와 같이 k 를 0.1로 더 작게 하면 2차셀, 3차셀의 크기가 더 커진다. 이는 k 가 작아지면, 계면에서 배제되는 용질이 더 많아짐으로써 더 강력한 대류가 유발되어 생기는 다중셀의 형태라고 추측된다.

4. 결 론

본 연구에서는 이성분 용융액이 수직 방향으로 응고될 때 열-용질 대류의 발생요인을 선형 안정성 이론으로 조사하였다. 온도의 안정화 효과를 고려한 결과 열 Rayleigh 수가 증가함에 따라 임계 용질 Rayleigh 수가 증가함을 알았다. 이는 열 Rayleigh 수가 대류 발생에 안정화 효과를 주는 것을 의미한다. Lewis 수가 작아지면 계는 안정해지며, Lewis 수가 0.01 이하인 영역에서는 R_{λ} 의 Lewis 수에 대한 의존성은 거의 없다. 또, Schmidt 수가 작아져도 계는 안정해지는데, 본 연구 범위에서 Schmidt 수가 10 이상인 영역에서 대류 안

정성은 Schmidt 수에 거의 영향을 받지 않는다. 농도 경계 조건에 나오는 분점 계수 k 가 작아짐에 따라 계는 불안정해지지만, 온도 경계 조건에 나오는 고체, 액체 열전도도의 비 k 는 계의 안정성에 큰 영향을 주지 않는다.

임계점에서 열-용질 대류는 일반적인 Bénard-Rayleigh 대류와는 달리 다중셀 대류가 된다. 열 Rayleigh 수가 증가함에 따라 대류 침투 깊이는 점점 응고 계면에 가까운 곳으로 한정되며 다중셀의 경향이 더 나타난다. 이와 같이 본 연구에서의 열-농도 대류는 농도에 의한 불안정화 효과와 온도의 안정화 효과에 의해 발생되는 다중셀 대류인데, 이는 이중확산계의 대류 현상과 많은 관련이 있는 것으로 생각된다.

감 사

본 연구는 한국과학재단이 지원하는 목적 기초 연구비에 의하여 이루어진 것입니다. 본 연구를 후원한 한국과학재단에 감사드립니다.

NOMENCLATURE

- a : dimensionless horizontal wave number
 C : concentration [wt%]
 C_∞ : concentration far in the melt [wt%]
 c : dimensionless concentration
 D : differential operator with respect to z
 D_L : solute diffusivity [m^2/s]
 e_3 : unit vector in z -direction
 G_L : gradient of temperature in liquid [K/m]
 G_S : gradient of temperature in solid [K/m]
 g : gravitational acceleration constant [m/s^2]
 i : imaginary number
 k : segregation coefficient
 k_L : thermal conductivity of liquid [$J/m \cdot K \cdot s$]
 k_S : thermal conductivity of solid [$J/m \cdot K \cdot s$]
 \bar{k} : ratio of thermal conductivities
 L : latent heat per unit volume of solid [J/m^3]
 Le : Lewis number for liquid, D_L/κ_L
 Le_S : Lewis number for solid, D_L/κ_S
 P : pressure [N/m^2]
 p : dimensionless pressure
 Rs : solutal Rayleigh number, $\frac{g \beta C_\infty (1-k)}{D_L \nu k} \left(\frac{D_L}{V_0} \right)^3$
 R_T : thermal Rayleigh number, $\frac{g \alpha G_L}{\kappa_L \nu} \left(\frac{D_L}{V_0} \right)^4$
 Sc : Schmidt number, ν/D_L

- T : temperature [K]
 T_m : melting temperature [K]
 t : time [s]
 U : velocity vector [m/s]
 u : dimensionless velocity vector
 V_0 : solidification velocity [m/s]
 w : dimensionless vertical velocity
 Z : vertical coordinate [m]
 z : dimensionless vertical coordinate

Greek Letters

- α : thermal expansion coefficient [K^{-1}]
 β : solute expansion coefficient [$wt\%^{-1}$]
 θ : dimensionless temperature
 κ : thermal diffusivity [m^2/s]
 Λ : Stefan number, $L V_0 / G_L k_L$
 μ : viscosity [$kg/m \cdot s$]
 ρ_L : liquid density [kg/m^3]
 σ_r : dimensionless growth rate of disturbance
 σ_i : dimensionless frequency of disturbance
 τ : dimensionless time

Superscripts

- $-$: basic state
 $'$: perturbed state
 $*$: amplitude function for perturbation quantity

Subscripts

- c : critical state
 L : liquid phase
 S : solid phase
 0 : reference state

REFERENCES

- Glicksman, M. E., Coriell, S. R. and McFadden, G. B.: *Ann. Rev. Fluid Mech.*, **18**, 307(1986).
- Davis, S. H.: *J. Fluid Mech.*, **212**, 241(1990).
- Huppert, H. E.: *J. Fluid Mech.*, **212**, 209(1990).
- Coriell, S. R., Cordes, M. R., Boettinger, W. J. and Sekerka, R. F.: *J. Crystal Growth*, **49**, 13(1980).
- Hurle, D. T. J., Jakeman, E. and Wheeler, A. A.: *J. Crystal Growth*, **58**, 163(1982).
- Huppert, H. E. and Turner, J. S.: *J. Fluid Mech.*, **106**, 299(1981).
- Coriell, S. R., McFadden, G. B. and Sekerka, R. F.:

- Ann. Rev. Mater. Sci.*, **15**, 119(1985).
8. Mullins, W. W. and Sekerka, R. F.: *J. Appl. Phys.*, **35**, 444(1964).
 9. Hurle, D. T. J., Jakeman, E. and Wheeler, A. A.: *Phys. Fluids*, **26**, 624(1983).
 10. McFadden, G. B., Rehm, R. G., Coriell, S. R., Chuck, W. and Morrish, K. A.: *Metall. Trans. A*, **15**, 2125 (1984).
 11. Thi, H. N., Billia, B. and Jamgotchian, H.: *J. Fluid Mech.*, **204**, 581(1989).
 12. Young, G. W. and Davis, S. H.: *Phys. Rev.*, **B34**, 3388(1986).
 13. Hurle, D. T. J.: *J. Crystal Growth*, **72**, 738(1988).
 14. Smith, M. K.: *J. Fluid Mech.*, **188**, 547(1988).
 15. Turner, J. S.: *Ann. Rev. Fluid Mech.*, **17**, 11(1988).
 16. Chen, F. and Chen, C. F.: *J. Heat Transfer*, **110**, 403(1988).
 17. McFadden, G. B., Coriell, S. R. and Boisvert, R. F.: *Phys. Fluids*, **28**, 2716(1985).
 18. McCay, T. D. and McCay, M. H.: Proc. 22nd Int. Symp. on Manufacturing and Materials Processing, Dubrovnik, 1990(to be published).
 19. Hopkins, J. A., McCay, M. H., Smith, L. M. and McCay, T. D.: Proc. 22nd Int. Symp. on Manufacturing and Materials Processing, Dubrovnik, 1990 (to be published).