

밀면으로부터 생각되는 응고에서 용융액의 대류 불안정성

황인국 · 최창균[†]

서울대학교 공과대학 화학공학과
(1994년 4월 22일 접수, 1994년 7월 24일 채택)

Convective Instabilities of the Melt during Solidification Cooled from Below

In Gook Hwang and Chang Kyun Choi[†]

Dept. of Chem. Eng., College of Eng., Seoul National University, Seoul 151-742
(Received 22 April 1994; accepted 24 July 1994)

요 약

냉각 경계면으로부터 결정층이 성장할 때, 시간이 지남에 따라 고체-액체 계면이 움직이고 용융액의 농도분포가 발전된다. 이러한 Stefan 유형의 응고문제에 대해 전파이론을 적용하여, 대류 불안정성을 수치해법으로 조사하였다. 해석 결과, 응고시의 대류 불안정성을 지배하는 중요한 인자인 무차원 응고율 λ 가 증가하면 대류발생 시간이 증가하였다. 농도경계층의 깊이를 길이척도로 갖고 있는 국지적인 임계 Rayleigh 수 R_c 는 λ 가 증가함에 따라 감소하였다. λ 가 작은 경우에 R_c 는 λ 에 따라 민감하게 영향받았으나, λ 가 큰 경우에는 그 영향이 작은 것으로 나타났다. 본 이론적인 결과는 기존의 염화암모늄 수용액의 실험결과를 잘 설명하여 주었다.

Abstract—When a crystal layer grows from the cooling boundary, the solid-liquid interface moves and the concentration profile evolves with time. In this Stefan-type solidification problem, convective instabilities of the melt were analysed numerically by using the propagation theory. It was found that the onset time of compositional convection increased with increasing the non-dimensional growth rate λ which is an important factor governing the instabilities of the melt during solidification. The local critical Rayleigh number R_c having the length scale of the concentration boundary-layer thickness decreased with increasing λ . For small values of λ , R_c was strongly dependent upon λ , while for large values of λ , its effect was not significant. The present theoretical results were compared favorably with existing experimental results of aqueous ammonium chloride solution.

1. 서 론

상변화를 수반하는 응고계에서 유체의 유동은 계의 특성을 결정짓는 중요한 역할을 하게 된다. 응고시의 대류는 생성되는 고체의 물성에 영향을 주기 때문에, 응고와 대류의 관계에 대해서 상당한 관심이 모아지고 있다[1]. 응고는 역사적으로 청동기 시대의 구리로 만든

주물제품으로부터 현대의 신소재에 이르기까지 재료공정에 중요한 역할을 하고 있다. 응고의 종류는 주조(casting), 용접(welding), 급속응고공정(rapid solidification process), 방향응고(directional solidification) 등으로 나눌 수 있는데, 이 중에서 방향응고는 결정성장 방법으로 쓰이는 Bridgman 방법, Czochralski 방법 및 액체급속 냉각(liquid metal cooling) 등을 포함한다. 금속합금,

반도체 공정 등에서 사용되는 방향응고 공정은 gallium arsenide, doped silicon 등의 전자재료를 생산하는 중요한 방법으로서, 고체-액체의 계면현상 및 용융액의 유동 등과 관련지어 지난 수십 년간 실험적, 이론적으로 상당한 연구가 진행되어 왔다[2].

방향응고는 액체를 응고 온도까지 냉각시키고, 고체-액체 계면에서 생기는 잠열을 제거함으로써 이루어진다[3]. 이 때 용융액은 보통 정지된 상태로 있게 되지만, 온도구배나 농도구배로 인한 밀도차가 용융액에 있으면 중력장 하에서 자연대류가 발생하게 된다. 두 가지 성분으로 되어 있는 용융액이 응고될 때, 생성되는 고체는 그 성분이 원래의 용융액의 성분과 다르게 되는데 이는 액체-고체의 상전이 과정에서 용질의 선택적 배제, 또는 혼입의 현상이 있기 때문이다[4]. 따라서 용융액을 냉각하여 응고시킬 때, 고체-액체 계면에서는 온도구배는 물론 농도구배가 존재하게 된다. 더욱이 아래쪽으로부터 위쪽으로 진행되는 응고시에는 밀면이 차가운 상태로 온도차로 인한 대류는 유발되지 않지만, 계면에서의 용질 배제 등으로 인해 성분의 농도차가 용융액에 이루어지면 자연대류는 피할 수 없게 된다.

결정성장(crystal growth) 및 응고에서의 대류에 관한 연구문헌들 중에서 자연대류와 관련된 연구를 찾아볼 수 있다[5]. 최근에는 자연대류가 결정성장, 응고에 미치는 영향을 알아 보기 위해서 우주에서의 저중력 실험도 행해지고 있다[6]. 이러한 자연대류가 결정성장시에 불균일한 물질전달 등의 의도하지 않는 결과를 초래하는 것이 알려짐에 따라, 점차 자연대류에 대한 연구의 필요성이 인식되고 있다[7]. 1980년대에는 응고시의 자연대류에 대한 연구로서, 선형 안정성 이론을 이용하여 이성분 응고계에 대해 그 임계조건 등을 연구한 논문이 보고되고 있다[8, 9]. 황과 최[10]는 열 Rayleigh 수의 효과를 고려하여 응고시의 열-용질 대류의 발생에 대해 연구하였다.

응고에 대한 연구와 관련지어 이른바 고전적인 Stefan 문제라고도 하는 전형적인 응고문제를 찾을 수 있다[11]. 이는 순 용융액이 냉각면으로부터 응고되는 단순한 응고계에 대해 다룬 것으로서, 응고계면의 성장문제로 볼 수 있다. Stefan 문제는 이동경계문제(moving boundary problem)의 전형으로서 응고(solidification) 및 용융(melting) 공정에 관한 연구에서 기초적으로 다루어지고 있다[12]. 응고에 대한 연구가 진행되면서, 1986년 Worster[13]는 이성분 용융액의 경우에 대해서 Stefan 문제를 적용하였다. 최근의 여러 문헌에서 이러한 Stefan 문제와 관련된 자료를 찾아볼 수 있다[14, 15]. 그리고 응고계에 대한 실험으로서 NH_4Cl 수용액으로 방향응고에 대해 그 계면의 성장에 대해 연구한 결과도

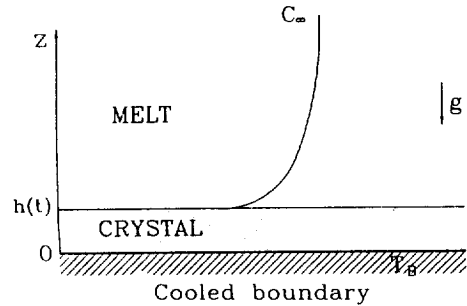


Fig. 1. Schematic diagram of directional solidification system.

있다[16]. NH_4Cl 수용액에서는 희석된 농도 경계층에 의해 자연대류가 유발된다[17].

본 연구에서는 선형 안정성 이론과 전파이론(propagation theory)[18]을 적용하여 밀면으로부터 냉각되는 응고계의 대류 불안정성을 조사하였다. 전파이론은 시간의존성 비선형 온도분포 하에서 안정성 해석에 적용하는 이론으로서 열 침투깊이를 활용하여 급격한 가열 시나 일정온도 가열시의 계의 해석에서 좋은 결과를 얻고 있다[19, 20]. 본 연구의 관심은 Stefan 문제유형의 응고계에서 결정층이 시간에 따라 성장하고 용융액에서의 농도분포가 시간에 따라 변하게 될 때, 밀도차로 인한 대류발생에 대한 것이다. 수치해법을 이용하여 대류가 발생할 때의 임계시점과 임계 Rayleigh 수 및 응고율의 영향을 조사하였다.

2. 이론적 해석

2-1. 기본농도분포

Fig. 1과 같은 응고계를 고려해 보자. 초기에 균일한 농도 C_∞ 로 유지되고 있는 용융액이 있다. 이 용융액의 초기 온도는 T_∞ 이다. $Z=0$ 의 경계면으로부터 액체는 반무한 영역을 갖고 있으며, 시간 $t=0$ 에서 갑자기 경계면이 $T=T_B$ 로 냉각된다. 시간이 지남에 따라 냉각 경계면으로부터 결정이 형성되어 자라게 된다. 결정층의 위치는 $h(t)$ 로 나타내었고, 이 고체-액체 계면은 평평하다고 가정한다.

본 연구에서 고려한 Fig. 1과 같은 문제는 순물질의 응고문제인 고전적인 Stefan 문제로서 이미 풀리어져 있다[11]. 이성분 용융액의 응고문제에 대해서, 액상에서의 농도에 대한 지배방정식과 경계조건을 설정하면 다음과 같다[13].

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_L \frac{\partial^2 C}{\partial Z^2} \quad [Z > h(t)] \quad (1)$$

$$C = C_k \quad [Z = h(t)] \quad (2)$$

$$C = C_\infty \quad (Z \rightarrow \infty, t = 0) \quad (3)$$

위의 식 (1)은 액체상에서의 용질 확산식이다. D_L 은 용질확산계수이며, C_k 는 계면에서의 액체의 농도이다.

식 (1)을 풀기 위해 유사변수를 도입하면

$$\eta = \frac{Z}{2(D_L t)^{1/2}} \quad (4)$$

이고, 계면의 위치를 표시하면

$$h(t) = 2\lambda(D_L t)^{1/2} \quad (5)$$

이 된다. 여기서 λ 는 무차원 성장률(non-dimensional growth rate)로서 물성 및 경계 조건에 의해 정해지는 상수이다. 기본농도분포는 다음과 같이 얻어진다.

$$C = C_\infty - \frac{(C_\infty - C_k) \operatorname{erfc}(\eta)}{\operatorname{erfc}(\lambda)} \quad (\eta > \lambda) \quad (6)$$

위의 식 (6)의 기본 농도 C 를 $\Delta C = C_\infty - C_k$ 로 무차원화시키면 다음과 같다.

$$c_0 = -\frac{\operatorname{erfc}(\eta)}{\operatorname{erfc}(\lambda)} \quad (\eta > \lambda) \quad (7)$$

여기서 $c_0 = (C - C_\infty)/(C_\infty - C_k)$ 는 무차원 기본농도를 나타낸다.

2-2. 선형 안정성 이론

응고가 진행됨에 따라 액상에서는 계면 가까이에 농도구배가 생김을 식 (6)으로부터 알 수 있다. 이러한 농도 경계층으로 인해 밀도차이가 생기게 되면 중력장 하에서 자연대류가 일어난다. 액상에서의 지배방정식은 다음과 같다.

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + \vec{U} \cdot \nabla \right) C = D_L \nabla^2 C \quad (8)$$

$$\rho \left(\frac{\partial}{\partial t} + \vec{U} \cdot \nabla \right) \vec{U} = -\nabla P + \rho \vec{g} + \mu \nabla^2 \vec{U} \quad (9)$$

$$\nabla \cdot \vec{U} = 0 \quad (10)$$

$$\rho = \rho_0 [1 + \beta(C - C_\infty)] \quad (11)$$

여기서 식 (8)은 용질보존식이며, 식 (9)의 Navier-Stokes 식에는 중력장의 밀도 변화만을 고려한 Boussinesq 근사를 적용한다[21]. 식 (10)은 연속식이다. 식 (11)의 상태식에서 밀도는 온도와 농도에 관계되는데, 본 연구에서는 온도의 영향을 무시하고, 농도에 의한 밀도

변화를 고려하였다[9, 17]. U, P, ρ, μ, β 는 각각 액체의 속도, 압력, 밀도, 점도, 용질팽창계수이며, g 는 중력 가속도이다. 하첨자 r 은 기준상태를 나타낸다.

선형 안정성 이론을 적용하기 위해서 교란상태에서의 농도, 속도, 압력 등의 물리량은 다음과 같이 기본량과 무한소의 교란량의 합으로 나타낸다.

$$C = C_0 + C_1, \quad W = W_0 + W_1, \quad P = P_0 + P_1 \quad (12)$$

여기서 하첨자 0은 기본상태, 1은 교란 상태를 나타낸다.

앞의 지배방정식 (8)-(10)을 무차원화하기 위해 다음의 무차원 변수를 도입한다.

$$z = \frac{1}{L_s} Z, \quad w = \frac{L_s}{D_L} W, \quad \tau = \frac{D_L}{L_s^2} t, \\ c = \frac{g \beta L_s^3}{D_L v} C, \quad p = \frac{L_s^2}{\mu D_L} P \quad (13)$$

여기서 L_s 는 길이척도로서, 응고속도가 일정한 계의 문제[9]에서와 같이 농도 경계층의 깊이인 $L_s = V/D_L$ 로 정의된다. $V = dh/dt$ 는 계면의 속도이다. 농도를 위와 같이 무차원화하는 것은 전파이론(propagation theory)을 적용하기 위해서이다. 앞의 식 (12)와 (13)을 지배방정식 (8)-(10)에 적용하고, 교란량들을 선형화하면 다음과 같다.

$$\frac{\partial c_1}{\partial \tau} + R w_1 \frac{\partial c_0}{\partial z} = \nabla^2 c_1 \quad (14)$$

$$\frac{1}{Sc} \frac{\partial w_1}{\partial \tau} = -\nabla p + \nabla^2 w_1 + c_1 \quad (15)$$

여기서 R 은 Rayleigh 수로서 $R = g\beta\Delta C L_s^3 / (D_L v)$ 이고, Sc 는 Schmidt 수로서 $Sc = v/D_L$ 이다.

안정성 교환원칙(principle of the exchange of stabilities)이 성립한다는 가정하에서, 위의 식에서 나타나는 교란량들을 정규형태로 표시하면 다음과 같다[21].

$$(c_1, w_1) = \{c_1^*(\tau, z), w_1^*(\tau, z)\} \exp [i(a_x x + a_y y)] \quad (16)$$

식 (16)을 앞의 식 (14)-(15)에 대입하고, 식 (15)에 컬(curl)을 두 번 취하여 압력항을 제거하면 다음의 교란식들을 얻는다[19].

$$\left[\frac{1}{Sc} \frac{\partial}{\partial \tau} - \left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} - a^2 \right) \right] \left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} - a^2 \right) w_1^* = +a^2 c_1^* \quad (17)$$

$$\left[\frac{\partial}{\partial \tau} - \left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} - a^2 \right) \right] c_1^* = -R w_1^* \frac{\partial c_0}{\partial z} \quad (18)$$

여기서 $a = (a_1^2 + a_2^2)^{1/2}$ 는 무차원 수평파수이다.

2-3. 전파이론

전파이론은 경계층 문제에서 교란량들의 시간의존적 성질을 다루기 위해 경계층의 깊이를 길이차원으로 정한다[19]. 본 연구에서는 응고계면이 성장함에 따라 계면 근처에서 농도 경계층이 발전하게 되므로 길이 단위를 농도침투깊이로 재조정하게 된다. 경계층 깊이인 농도침투깊이는 다음과 같이 무차원 깊이인 δ 로 정의되며, 무차원 길이 변수로서 식 (4)의 유사변수 η 를 도입하게 된다.

$$\delta = 2\tau^{1/2}, \quad \eta = \frac{Z}{2(D_L t)^{1/2}} = \frac{z}{\delta} \quad (19)$$

즉, 경계층 깊이는 시간의 제곱근에 비례하는 형태가 된다. 그리고, 교란량들의 진폭함수들은 다음과 같은 관계로 유사변환한다[19].

$$[c^*(\tau, z), w_1^*(\tau, z)] = [c^*(\eta), \delta^2 w^*(\eta)] \quad (20)$$

위의 식 (20)을 앞의 교란식 (17), (18)에 대입하면 다음의 식을 얻는다.

$$\left[(D^2 - a^*)^2 + \frac{2}{Sc} (\eta D^3 - a^* \eta D + 2a^*) \right] w^* = -a^* c^* \quad (21)$$

$$(D^2 + 2\eta D - a^*) c^* = R^* w^* D c_0 \quad (22)$$

여기서 $D = d/d\eta$, $a^* = a\delta$, $R^* = R\delta^3$ 이다. 이제 교란량들의 진폭함수들은 농도침투깊이를 기준으로 한 유사변수 η 만의 함수로 바뀌게 되었다. 적용하게 될 경계조건은 다음과 같다.

$$\begin{aligned} (\eta = \lambda) \\ w^* = D w^* = c^* = 0 \end{aligned} \quad (23)$$

$$\begin{aligned} (\eta \rightarrow \infty) \\ w^* = D^2 w^* = c^* = 0 \end{aligned} \quad (24)$$

여기서 $\eta = \lambda$ 는 계면의 위치를 나타낸다. 식 (23)은 응고계면에 고정경계조건을 적용한 것을 나타낸다.

3. 결과 및 토론

자연대류의 임계시점을 구하기 위해서는 앞의 식 (21), (22)와 경계조건인 식 (23), (24)를 만족하는 고유치 R^* , a^* 를 구하여 그 최소값을 찾아야 한다. 본 연구에서는 수치해법으로 Runge-Kutta 4차의 방법을 사용하였다. 경계조건 문제를 초기치 문제로 풀기 위해서 경

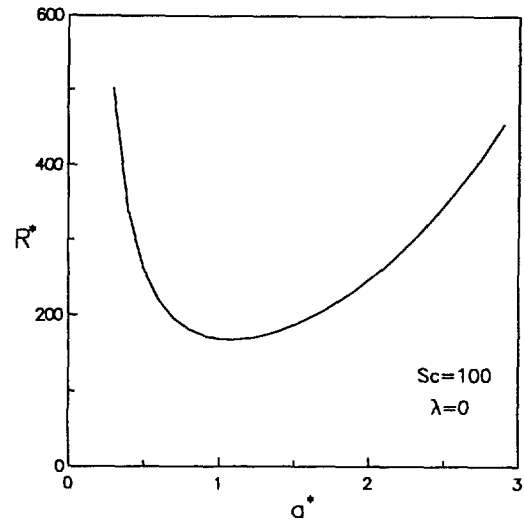


Fig. 2. Neutral stability curve for $Sc=100$, $\lambda=0$.

계조건인 $\eta = \lambda$ 에서의 주어진 조건 이외에 4개의 조건을 더 가정한다. 교란방정식 (21), (22)를 풀기 위해 Sc , a^* 를 주고, 고유치의 크기를 고정하기 위해서 임의로 $D^2 w^* = 1$ 로 놓고, R , $D^2 w^*$, $D c^*$ 를 가정한다. 계면에서 멀리 떨어진 곳의 조건, 즉, $\eta \rightarrow \infty$ 의 조건은 η 값을 10에서 15 정도의 값으로 놓고, 경계 조건인 식 (24)를 만족시킬 때까지 Newton-Raphson 방법으로 초기치를 다시 가정하여 계산한다. Sc 수는 일반적으로 NH_4Cl 수용액과 같은 이성분 용융액에 적용할 수 있는 큰 값으로 $Sc=100$ 을 대표값으로 계산했다.

3-1. 자연대류 발생시점

Fig. 2는 $Sc=100$, $\lambda=0$ 일 때의 중립 안정성 곡선을 나타낸다. 곡선의 위쪽은 계가 불안정한 상태이며, 아래쪽은 안정한 상태이다. 임계 Rayleigh 수 R^* 는 주어진 파수 a^* 에 대해 구해진 최소의 Rayleigh 수가 된다. $\lambda=0$ 일 때에는 응고가 진행되지 않을 때이며, 임계값으로 $R^* = 167.79$, $a^* = 1.08$ 의 결과를 얻었다. 이 값들은 밀면이 급격하게 가열되는 계[19]의 결과와 비교하여 일치함을 확인하였다. Sc 수의 영향을 알아보기 위하여, Fig. 3에 $\lambda=3$ 일 때, Sc 수가 1, 10, 100, 500에 해당하는 중립 안정성 곡선을 도시하였다. Sc 수가 증가함에 따라 임계 Rayleigh 수가 더 낮아짐을 알 수 있다. 또한 Sc 수가 100 이상이 되면 Sc 수에 따른 임계값의 변화는 매우 작게 된다.

Fig. 4는 $Sc=100$ 일 때, 임계 Rayleigh 수 R^* 와 무차원 성장률 λ 의 관계를 나타낸 것이다. 그림에서 *로 표시된 점들은 수치해석 결과의 데이터이며, 실선은 상

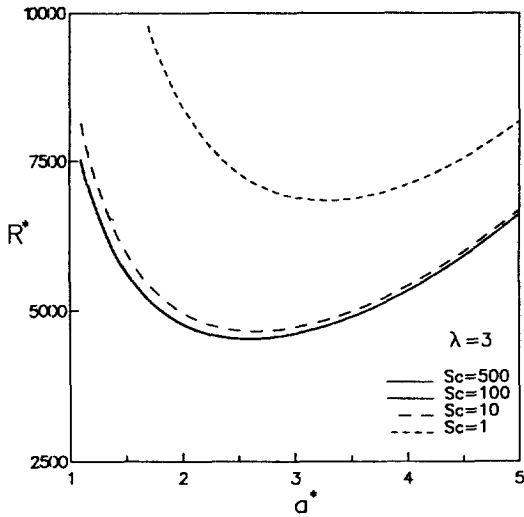
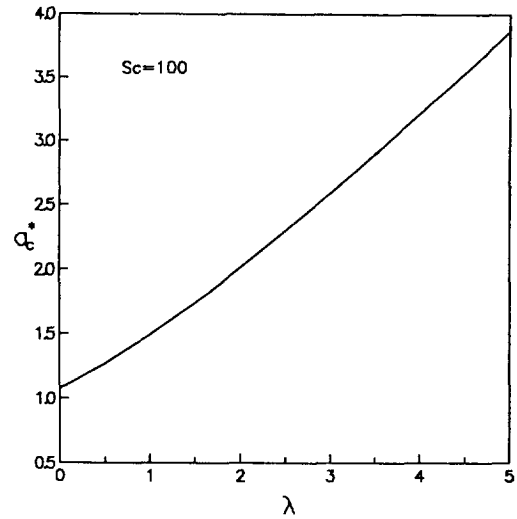
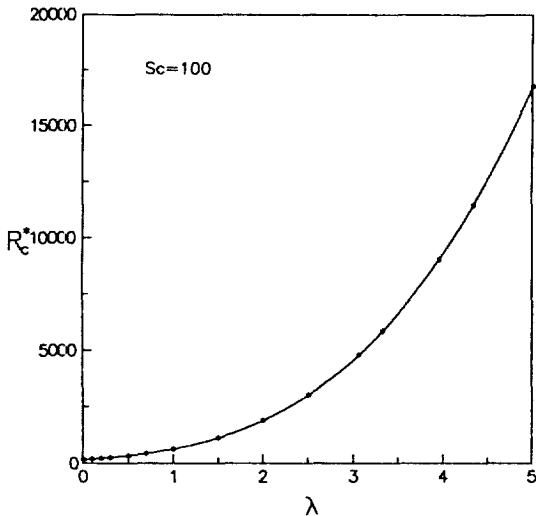
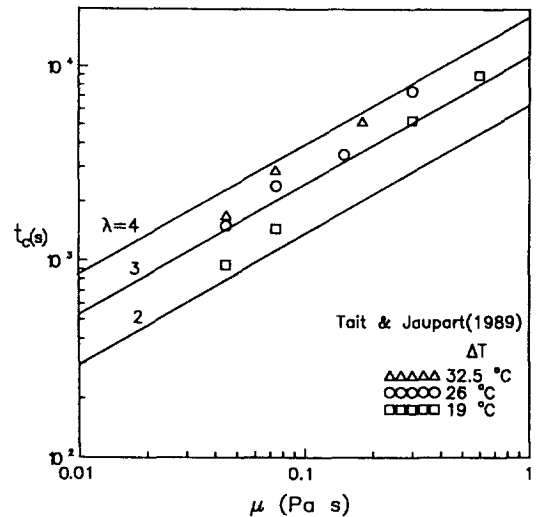
Fig. 3. Effect of Schmidt number for $\lambda=3$.Fig. 5. Critical wave number vs. non-dimensional growth rate λ for $Sc=100$.Fig. 4. Critical Rayleigh number vs. non-dimensional growth rate λ for $Sc=100$.

Fig. 6. Onset time as a function of viscosity.

관식으로부터 그려진 것이다. λ 가 증가함에 따라 R_c^* 가 증가함을 알 수 있다. 실선으로 표시한 λ 와 R_c^* 의 관계는 다음의 상관식으로 나타내어진다.

$$R_c^* = 167.8(1 + 1.83\lambda + 0.374\lambda^2 + 0.637\lambda^3) \quad (25)$$

R_c^* 는 λ 의 3차식으로 잘 표현됨을 알 수 있다. Fig. 5는 $Sc=100$ 일 때 α_c^* 와 λ 의 관계를 나타낸 것이다. 역시 λ 가 증가함에 따라 α_c^* 가 증가하였다.

임계 Rayleigh 수 R_c^* 에는 임계시간 t_c 가 들어있다.

R_c^* 를 다시 써보면 다음과 같다.

$$R_c^* = R_c \delta^3 = \frac{g\beta\Delta CL_s^3}{D_L\nu} \left[2 \left(\frac{D_L t_c}{L_s^2} \right)^{1/2} \right]^3 \quad (26)$$

위의 식 (26)을 볼 때, 임계 Rayleigh 수 R_c^* 의 값을 알면 대류발생시점 t_c 를 구할 수 있음을 알 수 있다.

1989년에 Tait와 Jaupart[17]은 NH_4Cl 수용액으로 실험하여 점도의 변화에 따른 대류발생시점 t_c 를 조사하였다. 본 연구의 결과와 Tait와 Jaupart[17]의 실험

결과를 비교하면 Fig. 6과 같다. 경계조건과 실험조건상의 여러 요인이 이론과 실험이 정확히 일치하는 것은 아니지만, 실험결과와 본 이론적인 결과의 추세를 비교해 볼 수 있다. $\Delta T = T_{\infty} - T_b$ 는 초기 수용액의 온도와 냉각면의 온도의 차이이다. 그림에 표시한 실험 데이터를 보면 ΔT 가 증가할 때, 즉 응고율이 증가할 때, 대류발생시점 t_c 가 증가함을 알 수 있다. 이러한 결과는 실선으로 표시한 본 연구결과가 잘 설명해주고 있다. λ 가 증가하면 t_c 가 증가한다. 즉, 응고가 빠르게 진행될 때, 대류는 더 늦게 발생한다. 이는 응고율이 더 크면, 농도경계층의 발달이 더 지연되어 대류발생에 필요한 불안정한 농도경계층으로 도달하기까지의 시간이 더 걸린다는 물리적인 해석과 타당한 결과이다. 이 결과로부터 응고율 λ 가 응고계의 대류 불안정성을 지배하는 중요한 인자임을 알 수 있다.

3-2. 국지적인 임계 Rayleigh 수와 무차원 응고율의 관계

일반적으로 응고 문제에서 사용되는, 길이척도가 들어 있는 국지적인 임계 Rayleigh 수 R_c 와 λ 의 관계에 대해서 알아보고자 한다. 식 (5)와 (26)으로부터 다음의 관계를 얻을 수 있다.

$$R_c^* = \frac{g\beta\Delta C}{D_L\nu} \left(\frac{D_L}{V}\right)^3 (2\lambda)^3 = R_c (2\lambda)^3 \quad (27)$$

식 (27)은 R_c^* 와 R_c 의 관계를 나타낸다. 따라서 R_c^* 의 값을 알면 R_c 와 λ 의 관계를 구할 수 있다. 무차원 깊이 δ 는 $\delta = 2\lambda$ 의 관계를 갖게 되며, 파수에 대해서도 이 관계를 적용하면, 임계 파수 a^* 는 다음과 같이 표시된다.

$$a^* = a(2\lambda) \quad (28)$$

식 (25)에서 R_c^* 가 λ 의 3차식으로 표현되므로, 식 (27)의 관계로부터 R_c 를 표현하면 다음과 같다.

$$R_c = 13.4 \left(1 + \frac{0.585}{\lambda} + \frac{2.86}{\lambda^2} + \frac{1.59}{\lambda^3} \right) \quad (29)$$

위의 식 (29)의 R_c 와 λ 의 관계를 Fig. 7에 나타내었다. λ 가 증가하면 R_c 는 감소함을 알 수 있다. 또한 Fig. 7에서 보면 λ 가 큰 경우($\lambda \rightarrow \infty$)에는 R_c 가 일정한 값에 접근함을 알 수 있으며, 위의 식 (29)로부터 $\lambda \rightarrow \infty$ 일 때의 R_c 의 접근값을 추정할 수 있다. 파수 a 에 대해서도 구해보면 그 값은 다음과 같다.

$$R_c = 13.4, a = 0.30 \quad (\lambda \rightarrow \infty) \quad (30)$$

또한 λ 가 작은 경우($\lambda \rightarrow 0$)에는 다음의 관계를 얻을 수

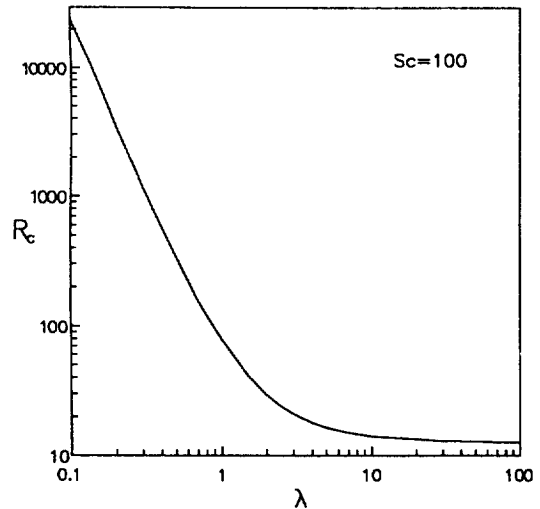


Fig. 7. Local critical Rayleigh number vs. non-dimensional growth rate λ for $Sc = 100$.

있다.

$$R_c \lambda^3 = 21.0, a \lambda = 0.54 \quad (\lambda \rightarrow 0) \quad (31)$$

R_c 와 λ 의 관계는 λ 가 클 때와 작을 때의 두 경우로 나누어 설명할 수 있다. 첫째로, λ 가 큰 경우($\lambda \rightarrow \infty$)에 R_c^* 는 λ^3 에 비례하며, R_c 는 일정한 값 13.4로 접근한다. λ 가 R_c 에 미치는 영향에 대해서는 Fig. 7에서 보면 λ 가 10 이상인 영역에서, R_c 는 λ 변화에 따른 변화가 둔감하다. 둘째로, λ 가 작은 경우($\lambda \rightarrow 0$)에는 R_c^* 가 일정한 값 167.8에 접근하고, R_c 와 λ^3 의 곱이 일정한 값 21.0을 갖는다. λ 가 10 이하인 영역에서 R_c 는 λ 에 따라 그 변화가 민감하다.

4. 결 론

본 연구에서는 이성분 용융액이 밀면으로부터 냉각되어 결정층이 시간에 따라 자랄 때, 전파이론을 적용하여 대류 발생에 대해 조사하였다. 이 연구는 이성분 용융액에서의 Stefan 문제에 대해 처음으로 시도된 대류 불안정성의 해석이라고 볼 수 있다. 자연대류발생의 임계조건을 수치해법으로 구하였다. 그 결과 임계 Rayleigh 수, R_c^* 는 무차원 성장률 λ 가 증가함에 따라 증가하며, 그 관계는 λ 의 3차식으로 잘 표현됨을 알 수 있었다. 또, 대류발생시점 t_c 는 λ 가 증가함에 따라 증가함을 알 수 있었다. 즉, 응고가 빠르게 진행될수록 대류는 더 늦게 발생한다. 따라서 응고율 λ 는 계의 안정

성을 지배하는 중요한 인자이다.

또한 농도 경계층의 깊이를 길이척도로 사용하여 정의된 국지적인 임계 Rayleigh 수 R_c 는 λ 가 증가하면 감소한다. λ 가 큰 경우($\lambda \rightarrow \infty$)에 R_c 와 a_c 는 일정한 값으로 접근함을 알았다. λ 가 작은 경우($\lambda \rightarrow 0$)에는 $R\lambda^3$ 와 $a\lambda$ 가 일정한 값을 갖는다. λ 가 10 이상인 영역에서는 λ 에 따라 R_c 의 값이 둔감하게 변하며, λ 가 10 이하인 영역에서는 λ 에 따라 R_c 의 값이 민감하게 변한다.

감 사

본 연구는 한국과학재단이 지원한 핵심전문연구(과제번호: 931-1100-020-2)에 의하여 수행된 것입니다. 본 연구를 후원한 한국과학재단에 감사드립니다.

사용기호

- a : dimensionless horizontal wave number [-]
- a^* : modified dimensionless horizontal wave number [-]
- C : concentration [wt%]
- c : dimensionless concentration [-]
- D : differential operator [$=d/d\eta$]
- D_L : solute diffusivity [m^2/s]
- g : gravitational acceleration constant [m/s^2]
- h : position of the solidification front [m]
- L_s : length scale [m]
- P : pressure [N/m^2]
- p : dimensionless pressure [-]
- R : local Rayleigh number, $g\beta\Delta CL_s^3/(D_L\nu)$
- R^* : Rayleigh number, $R\delta^3$
- Sc : Schmidt number, ν/D_L
- T : temperature [K]
- t : time [s]
- \vec{U} : velocity vector [m/s]
- V : solidification velocity [m/s]
- W : vertical velocity [m/s]
- w : dimensionless vertical velocity [-]
- Z : vertical coordinate [m]
- z : dimensionless vertical coordinate [-]

그리스 문자

- β : solute expansion coefficient [$wt\%^{-1}$]
- δ : dimensionless penetration depth [-]
- η : similarity variable [-]
- λ : non-dimensional growth rate [-]
- μ : viscosity [$kg/(m \cdot s)$]
- ν : kinematic viscosity [m^2/s]

ρ : density [kg/m^3]

τ : dimensionless time [-]

상첨자

- $*$: amplitude function for perturbation quantity

하첨자

- c : critical state
- r : reference state
- 0 : basic state
- 1 : perturbed state

참고문헌

1. Huppert, H. E.: *J. Fluid Mech.*, **212**, 209(1990).
2. Glicksman, M. E., Coriell, S. R. and McFadden, G. B.: *Ann. Rev. Fluid Mech.*, **118**, 307(1986).
3. Kurz, W. and Fisher, D. J.: "Fundamentals of Solidification", 3rd ed., Trans. Tech. Publications, Switzerland(1984).
4. Woodruff, D. P.: "The Solid-Liquid Interface", Cambridge University Press, London(1973).
5. Davis, S. H.: *J. Fluid Mech.*, **212**, 241(1990).
6. Jansen, R. and Sahm, P. R.: *Mater. Sci. Eng.*, **65**, 192(1984).
7. Ostrach, S.: *J. Fluids Eng.*, **105**, 5(1983).
8. Coriell, S. R., Cordes, M. R., Boettinger, W. J. and Sekerka, R. F.: *J. Crystal Growth*, **49**, 13(1980).
9. Hurle, D. T. J., Jakeman, E. and Wheeler, A. A.: *J. Crystal Growth*, **58**, 163(1982).
10. 황인국, 최창균: 화학공학, **29**, 381(1991).
11. Carslaw, H. S. and Jaeger, J. C.: "Conduction of Heat in Solids", 2nd ed., Oxford University Press, London(1959).
12. Woods, A. W.: *J. Fluid Mech.*, **239**, 429(1992).
13. Worster, M. G.: *J. Fluid Mech.*, **167**, 481(1986).
14. Smith, T. J.: "Modelling the Flow and Solidification of Metals", Martinus Nijhoff Publishers, Boston(1987).
15. Alexiades, V. and Solomon, A. D.: "Mathematical Modeling of Melting and Freezing Processes", Hemisphere, Washington, D.C.(1993).
16. Huppert, H. E. and Worster, M. G.: *Nature*, **314**, 703(1985).
17. Tait, S. and Jaupart, C.: *Nature*, **338**, 571(1989).
18. Yoo, J. S. and Choi, C. K.: *Korean J. Chem. Eng.*, **4**, 128(1987).
19. Lee, J. D.: Ph. D. Dissertation, Seoul National Univ., Seoul(1989).

20. Kim, M. C., Choi, C. K. and Yoon, D. Y.: Proc. 4th Int. Symp. Transport Phenomena in Heat Mass Transfer, Sydney, **1**, 279(1991).
21. Chandrasekhar, S.: Hydrodynamic and Hydromagnetic Stability, Oxford University Press, London (1961).