

염화암모늄 수용액 응고시에 Mush 층에서 성분적 대류의 선형안정성

황 인 국[†]

수원대학교 화학공학과
445-743 경기도 화성시 봉담읍 와우리 산 2-2
(2011년 5월 2일 접수, 2011년 5월 30일 채택)

Linear Stability of Compositional Convection in a Mushy Layer during Solidification of Ammonium Chloride Solution

In Gook Hwang[†]

Department of Chemical Engineering, The University of Suwon,
San 2-2, Wau-ri, Bongdam-eup, Hwaseong-si, Gyeonggi-Do 445-743, Korea
(Received 2 May 2011; accepted 30 May 2011)

요 약

이성분 용융액의 시간의존형 응고계에서 mush 층의 대류발생을 선형 안정성 이론으로 해석하였다. 본 연구에서는 근공융물 mush 층을 다공성 블록으로 가정한 단순화된 모델에 전파이론을 적용하여 대류발생 임계조건을 구하였다. 본 연구 모델에서는 기존의 실험결과 및 mush층 위의 액체층을 포함하여 고려한 이론적 연구의 결과보다 더 높은 임계 Rayleigh 수가 얻어졌다. mush 층의 윗 경계면에 일정압력(투과)조건을 적용하는 경우가 비투과조건에 비해 임계 Rayleigh 수를 더 작게 하며 염화암모늄 수용액의 응고실험결과와 더 근접한 것으로 조사되었다.

Abstract – The onset of convection in a mushy layer is analyzed by using linear stability theory in time-dependent solidification of a binary melt. A simplified model of a near-eutectic mush, in which the mush is assumed to be a porous block, is used and the propagation theory is applied to determine the critical conditions for the onset of convection. The present critical Rayleigh number is higher than the existing experimental result and also theoretical results obtained by considering the mushy layer with an overlying liquid layer. The constant pressure (permeable) condition applied on the mush-liquid interface produces a lower critical Rayleigh number, which is closer to the experimental results of aqueous ammonium chloride solution, compared with the impermeable condition.

Key words: Mushy Layer, Compositional Convection, Solidification, Linear Stability, Propagation Theory

1. 서 론

이성분 용융액(binary melt)을 냉각하여 응고시킬 때, 고체-액체 계면에서 온도구배는 물론 농도구배가 존재하며 이로 인해 중력장에서 불안정한 밀도분포가 이루어져서 자연대류가 유발된다[1-3]. 수지상결정(dendrite)으로 이루어진 고체-액체의 공존 상태인 mush 층에서도 이러한 자연대류가 나타난다. 용융액이 아래로부터 냉각되어 응고될 때 온도는 안정한 밀도분포를 이루게 하지만, 응고계면에서 더 가벼운 용질이 배제될 경우에 농도는 계면 근처에서 불안정한 밀도분포를 이루게 한다. 방향성응고(directional solidification)에서 mush 층 내의 전체적인 밀도 분포는 주로 농도분포에 따라 변화하며, 이와 같은 농도구배로 인해서 발생하는 대류를 성분적 대류(compositional convection) 또는 용질대류(solutal convection)라고 한다.

Fowler[4]는 이성분 합금에 나타나는 반점(freckle) 형성과 관련하여

여 mush 층에서의 대류 불안정성을 이론적으로 조사하였다. Tait와 Jaupart[5]는 28 wt% 염화암모늄 수용액으로 mush 층에서의 자연대류에 대해 실험하여 다공성 매질에 대한 임계 Darcy-Rayleigh 수를 구하였다. 그들은 염화암모늄 수용액의 점도를 변화시키면서 대류발생 조건을 조사하였다. 또한 mush 층에 생기는 chimney는 mush 층에서의 대류와 관련이 있음을 관찰하였다. Emms와 Fowler[6]는 염화암모늄 수용액에 대해 mush 층에서 나오는 finger 대류를 고려하여 대류발생 임계조건을 준정적 안정성 해석(quasi-static stability analysis)으로 구하였고, Hwang과 Choi[7,8]는 전파이론(propagation theory)을 적용하였다. 전파이론은 교란량의 시간의존성을 고려하기 위해 경계층 두께를 길이척도로 하여 교란식을 유사변환하고 대류발생 임계조건을 결정한다.

이성분 합금의 응고중에 mush 층에서 발생하는 대류는 chimney를 형성시키며, 수직구멍 형태의 chimney는 최종적으로 응고재료의 구조에 영향을 준다. chimney의 형성은 mush 층에서 상향유동(upflow)으로 인한 것으로 알려졌으며, mush 층 대류의 해석을 위해 액체층

[†]To whom correspondence should be addressed.
E-mail: ighwang@suwon.ac.kr

을 고려하지 않는 단순화된 모델을 사용한다[9-11]. 본 연구에서는 밀면이 냉각되는 염화암모늄 수용액의 응고계에서 발생하는 성분적 대류에 대해 mush 층을 다공성 블록(porous block)으로 가정한 모델 [9-11]을 사용하여 해석하였다.

본 연구는 액체층을 포함하여 수행한 이전의 연구[7,8]에 비해 단순한 안정성 방정식과 경계조건으로 mush 층에서 성분적 대류의 발생을 해석하였다. 조성이 공융점(eutectic point)에 가까운 이성분 용액의 응고계를 고려하였다. Emms와 Fowler[6]의 모델을 이용하였고, 성장하는 mush 층의 윗 경계면에 비투과(impermeable) 조건과 일정압력(constant-pressure) 조건을 적용하여 비교하였다. 다공성 mush 층의 지배방정식으로부터 전파이론하에 유도된 자기유사 안정성방정식(self-similar stability equations)을 수치해법으로 풀어 대류 발생조건 및 임계 Rayleigh 수를 조사하였다.

2. Mush 층 모델

본 연구에서는 Fig. 1과 같이 밀면으로부터 mush 층이 성장하는 이성분 응고계를 고려하였다. 수지상결정(dendrite)과 액체의 두 가지 상으로 이루어진 mush 층은 다공성 매질로 가정한다. 중력장 하에서 초기에 온도 T_∞ 와 용매의 농도 C_∞ 를 갖는 용액이 수직좌표 위치 $Z=0$ 의 냉각면으로부터 응고된다. 염화암모늄 수용액($\text{NH}_4\text{Cl}-\text{H}_2\text{O}$)에서 용질은 염화암모늄이며, 생성된 mush 층은 염화암모늄 결정과 물로 이루어져 있다. 본 연구에서 mush 층의 두께 $H(t)$ 는 시간 t 에 따라 변하며, mush 층의 윗면은 액체층과 접하고 있다.

본 연구에서는 액체층에서의 안정성 방정식을 다루지 않고 mush 층을 윗면이 평평한 다공성 블록으로 가정하는 단순화된 모델을 사용한다. Amberg와 Homsy[9]의 모델에서 mush-액체 계면은 경직된(rigid) 비투과(impermeable) 조건으로 가정되고, Chung과 Chen[10] 그리고 Govendor[11]의 연구에서는 일정압력(constant-pressure) 조건, 즉 투과(permeable) 조건으로 가정된다. mush 층의 윗면에서 농도조건은 $C = C_\infty$ 로 주어지며, 밀면에서는 $C = C_E$ 로 주어진다. C_E 는 공융(eutectic) 농도를 나타낸다. 물(용매)과 염화암모늄(용질)로 이루어진 이성분 혼합물에서 $C_E \sim 0.8$ 이며, $T_E \sim -15^\circ\text{C}$ 이다. mush 층에서 고체 수지상결정 틈 사이의 액체의 농도 C 는 국지적인 준액상(liquidus) 농도가 되며, 준액상 온도 T_L 는 열역학적 평형상태에서 $T_L = T_0 - \Gamma C$ 의 선형관계를 갖는다. Γ 는 준액상 기울기이며, T_0 는 순수한 용매의 녹는점이다.

mush 층에서의 지배 방정식은 Worster[2]와 Fowler[4]의 문헌에서 찾을 수 있다. 고체상과 액체상의 밀도가 같다는 가정 하에 mush 층에서 지배방정식은 다음과 같다[6].

$$-\bar{L} \frac{\partial}{\partial t} (1-\chi) + [\chi c_{p,L} + (1-\chi) c_{p,S}] \frac{\partial T}{\partial t} + c_{p,L} \mathbf{U} \cdot \nabla T = \nabla \cdot (k \nabla T) \quad (1)$$

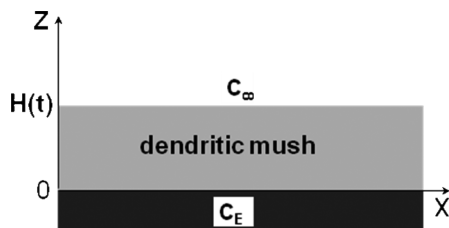


Fig. 1. Schematic diagram of solidifying mush confined between two planar boundaries.

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + \mathbf{U} \cdot \nabla \right) (\chi C) + \nabla \cdot [(1-\chi) C \mathbf{U}] = \nabla \cdot (\chi D \nabla C) \quad (2)$$

$$\frac{\mu}{\Pi} \mathbf{U} = -\nabla P - \rho g \mathbf{e}_k \quad (3)$$

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

위의 식에서 χ 는 액체의 질량분율, P 는 압력, \mathbf{e}_k 는 z 방향 단위벡터, \mathbf{U} 는 속도벡터를 나타낸다. \bar{L} 은 용융잠열(latent heat of fusion), $c_{p,L}$ 는 액체의 비열, $c_{p,S}$ 는 고체의 비열, k 는 열전도도, D 는 액체의 확산도, μ 는 점도, ρ 는 용액의 밀도, g 는 중력가속도를 나타낸다. Π 는 다공성 매질로 취급되는 mush 층의 투과도(permeability)이다.

mush 층의 높이, 즉 mush-액체 계면의 위치 H 는 다음의 관계를 갖는다.

$$H(t) = 2\lambda \sqrt{\kappa t} \quad (5)$$

여기서 κ 는 열확산도이며, λ 는 mush 층의 성장률 또는 상변화율을 나타내는 상수이다. mush 층에서는 용질확산이 열확산에 비해 매우 작아 Lewis 수($=D/\kappa$)가 0이 되며, 이 경우에 mush 층의 밀면, 즉 mush-고체 계면의 속도는 매우 작은 값을 갖게 된다[6]. 또한 Tait와 Jaupart[5]의 실험과 같이 냉각면의 온도가 공융점 T_E 보다 높으면 냉각면으로부터 바로 mush 층이 성장한다. 본 연구에서는 고체층의 성장속도를 무시하고 mush-고체 계면의 위치를 $Z=0$ 에 놓는다.

3. 무차원 지배방정식

본 연구에서는 액체층에서 대류가 없는 기본상태에서만 열전도를 고려하고, 액체층의 선형교란식은 고려하지 않는다. mush 층에서 온도와 농도는 다음과 같이 무차원화된다.

$$\theta = \frac{T - T_L^\infty}{\Delta T}, c = \frac{C - C_\infty}{\Delta C} \quad (6)$$

여기서 $T_L^\infty (= T_0 - \Gamma C_\infty)$ 는 초기용액의 준액상온도를 나타내며, $\Delta T = T_L^\infty - T_E$, $\Delta C = C_E - C_\infty$ 이다. 준액상 관계에 의해 $\Delta T = \Gamma \Delta C$ 이며, mush 층에서 $\theta = -c$ 이다. 염화암모늄 수용액에서 초기 용매의 농도 C_∞ 가 공융농도에 C_E 가 가까운 경우 mush 층에서 액체분율은 1에 근접한다($\chi \rightarrow 1$). C_∞ 가 C_E 에 가까운 근공융물(near-eutectic) mush 층을 가정하여 Emms와 Fowler[6]가 사용한 무차원 지배방정식은 다음과 같다.

$$(1 + \text{St}) \left(\frac{\partial}{\partial \tau} + \mathbf{u} \cdot \nabla \right) c = \nabla^2 c \quad (7)$$

$$\mathbf{u} = -\nabla p + \text{R} \mathbf{e}_k \quad (8)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \quad (9)$$

여기서 시간 τ 는 시간척도 L^2/κ 로 무차원화되었고, L 은 임의의 길이척도이다. 속도 \mathbf{u} 는 κ/L 로 무차원화되었고, 압력은 $p = (P_a - \rho_\infty g Z) \Pi / \mu \kappa$ 이며, P_a 는 주변 압력, ρ_∞ 는 용액의 초기밀도를 나타낸다. 다공성 매질 문제에서 Darcy-Rayleigh 수로 불리는 mush 층에 대한 Rayleigh 수는 $R = g \beta_m \Delta C L / (\kappa \nu)$ 로 정의된다. ν 는 동점도, $\beta_m = \beta - \alpha \Gamma$, α 는 열팽창계수, β 는 용질팽창계수이다. 비열에 대한 잠열의 크기를 나타내는 Stefan 수는 $\text{St} = \bar{L} / (c_{p,L} \Gamma C_\infty)$ 로 정의된다. 염화암모늄 수용액의 물성값은 $\bar{L} = 3.14 \times 10^2 \text{ kJ kg}^{-1}$, $C_p = 3.25 \text{ kJ kg}^{-1} \text{ K}^{-1}$,

$\Gamma = 490 \text{ K}$ 이며, Stefan 수는 0.25이다[6].

mush 층을 윗면($z=h$)과 밑면($z=0$) 사이에 있는 다공성 매질층으로 볼 때, 위의 지배방정식에 대한 경계조건은 다음과 같다.

$$\begin{aligned} (z=h) \\ c=0, w=0 \text{ or } p=0 \end{aligned} \quad (10)$$

$$\begin{aligned} (z=0) \\ c=1, w=0 \end{aligned} \quad (11)$$

식 (10)은 mush 층의 윗 경계면에 속도조건으로 비투과조건($w=0$) 또는 일정압력조건($p=0$) 중에 하나를 적용하는 것을 나타낸다. $h(=2\lambda\sqrt{\tau})$ 는 mush 층의 무차원 높이를 나타내며, w 는 수직속도성분이다.

mush 층에서 대류가 없는 상태에서 기본농도분포에 대한 지배방정식과 경계조건은 다음과 같다.

$$\begin{aligned} (\text{mush}) \\ (1+St)\frac{\partial c_0}{\partial \tau} = \frac{\partial^2 c_0}{\partial z^2} \end{aligned} \quad (12)$$

$$c_0=0 \text{ at } z=h, c_0=1 \text{ at } z=0 \quad (13)$$

mush 층의 밑면은 공융농도 C_E 를 갖는다. 액체에서 Lewis 수($=D/\kappa$)가 매우 큰 경우에 온도 경계층에 비해 상대적으로 농도 경계층은 매우 작으므로, 윗면은 액체의 농도 C_∞ 를 갖는다. 액체층에서 기본 온도는 다음과 같이 주어진다.

$$\begin{aligned} (\text{liquid}) \\ \frac{\partial \theta_0}{\partial \tau} = \frac{\partial^2 \theta_0}{\partial z^2} \end{aligned} \quad (14)$$

$$\theta_0 = \theta_\infty \text{ at } z \rightarrow \infty \quad (15)$$

$$\theta_0 = 0, \frac{\partial \theta_0}{\partial z} = \frac{\partial c_0}{\partial z} \text{ at } z=h \quad (16)$$

여기서 $\theta_\infty(=(T_\infty - T_L^\infty)/\Delta T)$ 는 과열량(superheat)을 나타낸다. 상변화열 λ 는 $z=h$ 에서의 조건 (16)을 사용하여 구한다. 본 연구에서는 mush 층과 액체층에서 기본 분포를 수치해법으로 구하면서 St 와 θ_∞ 에 대한 λ 값을 구하였다.

4. 안정성 방정식

선형안정성 이론을 적용하기 위해서 교란상태에서의 농도, 속도 등의 물리량을 기본량과 무한소의 교란량의 합으로 나타낸다. 지배방정식 (7)~(9)로부터 선형화된 교란식을 다음과 같이 얻었다.

$$(1+St)\left(\frac{\partial c_1}{\partial \tau} + R w_1 \frac{\partial c_0}{\partial z}\right) = \nabla^2 c_1 \quad (17)$$

$$\nabla^2 w_1 = -\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}\right)c_1 \quad (18)$$

여기서 하첨자 '1'은 교란량을 나타낸다. θ_1 은 $(T_L^\infty - T_E)/R$ 의 척도(scale)를 가지며, c_1 는 $(C_E - C_\infty)/R$ 의 척도를 갖는다. 교란량들을 정규형태로 표시하면 다음과 같다.

$$[w_1, c_1] = [w^*, c^*] \exp[i(a_x x + a_y y)] \quad (19)$$

여기서 i 는 허수를 나타내고, a_x 는 x -방향 수평파수, a_y 는 y -방향 수

평파수이다. Emms와 Fowler[6]는 mush 층의 높이를 고정시키는 준정적 안정성 해석을 적용했으나, 본 연구에서 사용한 전파이론은 이러한 제약없이 시간의존성을 고려한다. 전파이론은 침투깊이(penetration depth)를 새로운 길이척도로 도입하여, 시간의존형 교란식을 유사변수의 식으로 변환하여 근사적인 임계조건을 구한다. 본 연구에서는 mush 층의 두께 $H(=2\lambda(\kappa t)^{1/2})$ 를 길이척도로 사용하여 임계시점에서 유사변수 $\zeta(=z/h=z(2\lambda\tau)^{1/2})$ 의 함수로 나타내고, 시간에는 매개변수로 취급된다. 무차원 교란식으로부터 유도된 자기유사 안정성 방정식(self-similar stability equation)은 다음과 같다[8].

$$(\bar{D}^2 + 2(St+1)\lambda^2\zeta\bar{D} - a^*c^*)c^* = (St+1)R^*w^*\bar{D}c_0 \quad (20)$$

$$(\bar{D}^2 - a^*c^*)w_m^* = a^*c_m^* \quad (21)$$

여기서 $a^*=ah$, $R^*=Rh$, $\bar{D}=d/d\zeta$ 이며, $a=(a_x^2+a_y^2)$ 는 무차원 수평파수이다. mush 층에서 기본 농도분포의 구배는 다음과 같이 얻어진다.

$$\bar{D}c_0 = \frac{2(1+St)^{1/2}\lambda e^{-(1+St)\lambda^2\zeta^2}}{\sqrt{\pi}\text{erf}((1+St)^{1/2}\lambda)} \quad (22)$$

mush 층의 깊이를 길이척도로 갖는 Rayleigh 수는 다음과 같이 정의된다.

$$R^* = \frac{g\beta_m\Delta CPH}{\kappa\nu} \quad (23)$$

위의 자기유사 안정성 방정식에 적용하게 될 경계조건은 다음과 같다.

$$(\zeta=1)$$

$$c^*=0 \quad (24)$$

$$w^*=0(\text{impermeable}) \text{ or } \bar{D}w^*=0(\text{constant pressure}) \quad (25)$$

$$(\zeta=0)$$

$$c^*=0, w^*=0 \quad (26)$$

대류발생 임계조건을 구하기 위해서는 주어진 St 와 θ_∞ 에 대해 안정성 방정식과 경계조건을 만족하는 고유치 a^* 와 R^* 를 구하여 그 최소값을 찾아야 한다. 수치해법으로는 Runge-Kutta 4차의 방법과 'shooting' 방법을 사용하였다. 매개변수 St 와 θ_∞ 의 값을 주고 경계조건을 만족시키는 초기치를 다시 가정하여 교란식을 적분하였다.

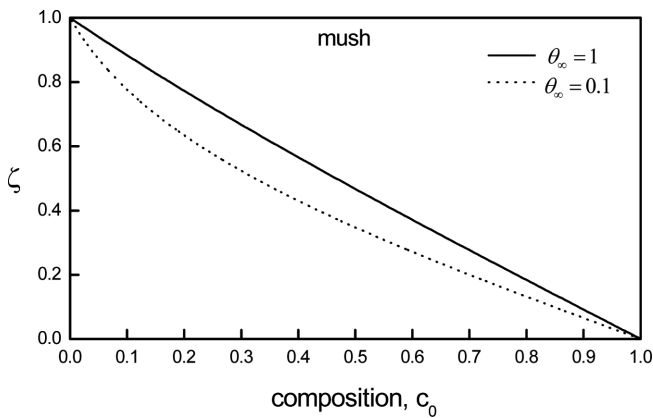
5. 결과 및 토론

본 연구에서는 염화암모늄 수용액 응고계에 해당하는 매개변수 값들로 $St=0.25$, $\theta_\infty=0.1\sim 1$ 에 대해 계산을 수행하였다. Mush-액체 계면의 조건을 비투과조건($w^*=0$) 또는 일정압력조건($\bar{D}w^*=0$)으로 놓고 결과를 비교하였다. 일정압력조건($\bar{D}w^*=0$)은 mush 층의 윗면을 수평다공성 매질층의 자유투과계면으로 가정하는 것과 같다.

$\theta_\infty(=(T_\infty - T_L^\infty)/(T_L^\infty - T_E))$ 는 과열량 또는 무차원 초기 온도로서 초기 용융액의 온도에 따라 달라지며, 기본분포에 영향을 주는 매개변수이다. Table 1에 θ_∞ 에 대한 mush 층의 성장률 λ 의 값을 기록하였다. θ_∞ 가 증가함에 따라 λ 가 감소함을 알 수 있으며, 이는 과열량 또는 액체의 초기온도가 큰 경우 mush 층의 성장속도가 작음을 나타낸다. Mush 층에서 θ_∞ 값에 따른 기본농도분포의 변화를 알기 위

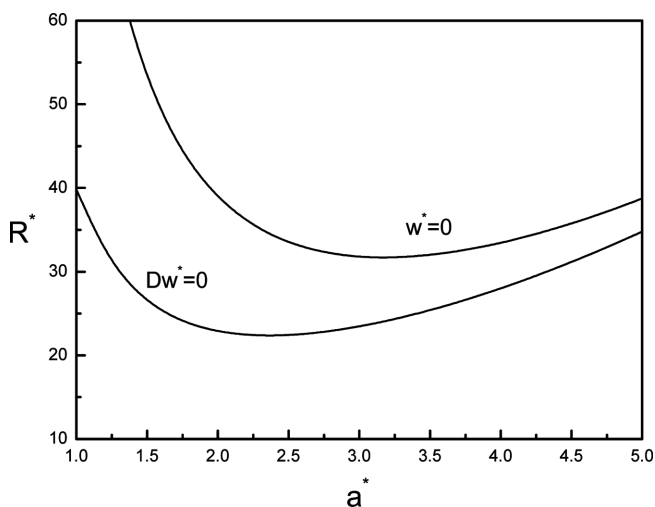
Table 1. Numerical values of λ for $St = 0.25$

| θ_∞ | 0.1 | 0.2 | 0.4 | 0.6 | 0.8 | 1 |
|-----------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| λ | 1.121 | 0.927 | 0.725 | 0.608 | 0.527 | 0.467 |

**Fig. 2. Dimensionless basic composition profiles in the mush for $\theta_\infty = 0.1$ and 1 when $St = 0.25$.**

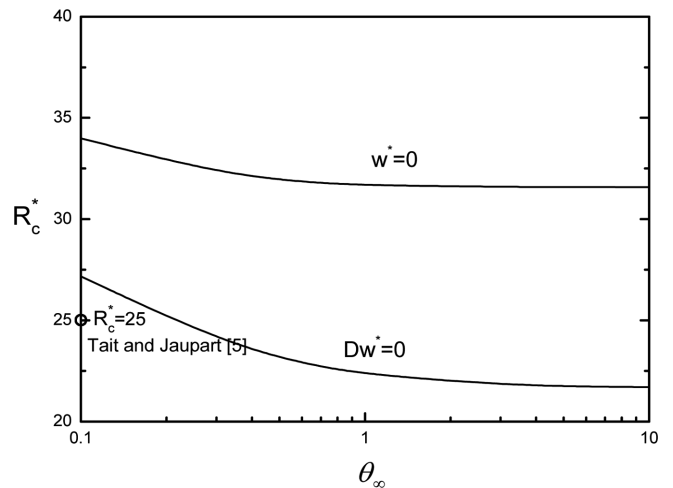
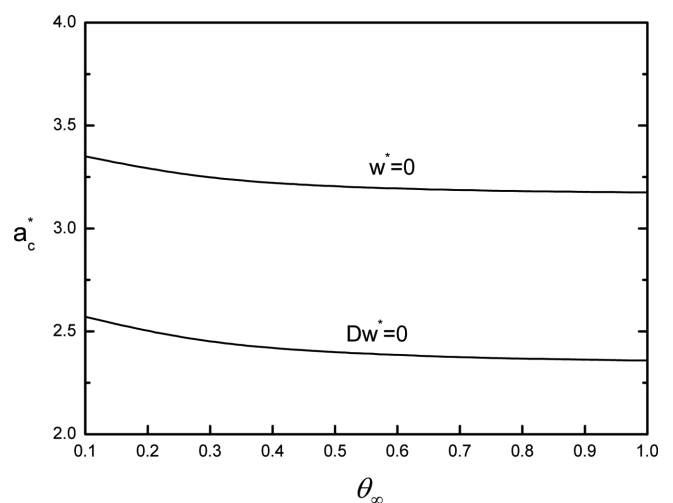
하여 Fig. 2에 $\theta_\infty = 0.1$ 과 $\theta_\infty = 1$ 일 때 무차원 기본농도 $c_0 = (C_0 - C_\infty) / (C_E - C_\infty)$ 를 나타내었다. $\theta_\infty = 0.1$ 인 경우 mush 층의 성장률은 $\lambda = 1.121$ 이며 농도분포는 곡선의 형태를 갖는다. $\theta_\infty = 1$ 인 경우에 θ_∞ 는 초기 액체의 온도가 높은 상태이므로 mush 층의 성장률은 $\lambda = 0.467$ 로 낮으며 농도분포는 선형에 가깝게 된다. Mush 층에서 불안정한 밀도구배는 농도분포에 의해 달라진다. 성분적 대류 (compositional convection)를 유발시키는 농도의 유효 경계층 (effective boundary layer)의 크기는 θ_∞ 가 작은 경우에 더 작게 된다. 따라서 $\theta_\infty = 0.1$ 인 경우가 $\theta_\infty = 1$ 인 경우보다 mush 층에서의 대류 발생에 있어 계가 더 안정적이다.

Mush 층의 윗 경계면의 속도조건이 대류발생에 미치는 영향을 조사하기 위하여 $\theta_\infty = 1$ 에 대해 Fig. 3에 한계 안정성 곡선 (marginal stability curve)을 나타내었다. 곡선의 위쪽은 계가 불안정한 상태이며, 아래쪽은 안정한 상태이다. 대류가 발생하는 조건을 정해주는 임계 (critical) Rayleigh 수 R_c^* 는 주어진 파수 a^* 에 대한 최소의 값으로

**Fig. 3. A comparison of marginal stability curves for $\theta_\infty = 1$ and $St = 0.25$ between the impermeable ($w^* = 0$) and constant pressure ($Dw^* = 0$) conditions on the upper boundary of the mush.**

구해진다. Mush-액체 계면의 조건이 비투과조건 ($w^* = 0$)인 경우가 일정압력조건 ($Dw^* = 0$)인 경우보다 더 높게 나타났다. 수치계산으로 얻어진 임계값들은 비투과조건인 경우 $R_c^* = 31.7$, $a_c^* = 3.17$ 이며, 일정압력조건 (투과조건)인 경우 $R_c^* = 22.3$, $a_c^* = 2.35$ 이다. 투과조건인 경우가 비투과조건인 경우에 비해 임계 Rayleigh 수가 약 30% 정도 낮아진다. 이는 다공성 매질층의 대류 불안정성에서 투과조건인 경우가 비투과조건인 경우에 비해 임계 Rayleigh 수가 더 낮게 얻어지는 일반적인 결과와 같다.

Emms와 Fowler[6]의 모델에서 제안된 액체층의 식을 사용하여 mush 층과 액체층의 대류를 고려하여 구한 임계 Rayleigh 수는 Hwang과 Choi[7]의 연구에서 기존의 결과들[2,5,6]과 잘 비교되었다. 본 연구에서는 액체층을 고려하지 않고 비투과조건 ($w^* = 0$)과 일정압력조건 ($Dw^* = 0$)을 각각 mush 층의 윗 경계면에 적용하여 θ_∞ 가 임계값에 미치는 영향을 조사하였고 Fig. 4와 5에 나타내었다. θ_∞ 가

**Fig. 4. Plot of critical Rayleigh number R_c^* as a function of θ_∞ for the impermeable ($w^* = 0$) and constant pressure ($Dw^* = 0$) conditions on the upper boundary of the mush. In the experiment of aqueous ammonium chloride solution the critical Rayleigh number $R_c^* = 25$ is obtained in the range of low superheats $0 < \theta_\infty < 0.2$ by Tait and Jaupart [5].****Fig. 5. Plot of critical Rayleigh number a_c^* as a function of θ_∞ for the impermeable ($w^* = 0$) and constant pressure ($Dw^* = 0$) conditions on the upper boundary of the mush.**

증가하면 임계 Rayleigh 수와 임계 파수가 더 작아짐을 알 수 있다. θ_∞ 가 작으면 mush 층의 성장률 λ 가 크고 mush 층에서 불안정한 밀도분포가 존재하는 경계층의 깊이는 작으므로 계가 더 안정해진다. θ_∞ 가 0.1과 1 사이에서 일정압력조건($Dw^*=0$)인 경우에 임계 Rayleigh 수 R_c^* 는 27에서 22로 작아진다. Tait와 Jaupart[5]의 염화암모늄 수용액의 응고실험결과에서 임계 Rayleigh 수는 과열도 θ_∞ 가 증가함에 따라 작아지며, 낮은 과열도($0<\theta_\infty<0.2$)에 대한 R_c^* 는 약 25로 얻어졌다. Fig. 4를 보면 $\theta_\infty=1$ 에서 비투과조건인 경우 R_c^* 는 Tait와 Jaupart[5]의 실험결과 값($0<\theta_\infty<0.2$ 에서 $R_c^*=25$)과 비교할 때 상당히 높으나, 일정압력조건(자유투과계면)인 경우의 R_c^* 는 실험결과보다 약간 높음을 알 수 있다. Mush 층과 그 위의 액체층을 같이 고려한 기존의 이론결과[6,7]의 임계 Rayleigh 수는 $\theta_\infty=0.1$ 에 대해 Emms와 Fowler[6]의 연구에서 $R_c^*=15$ 로 얻어졌고, Hwang과 Choi[7]의 연구에서 $R_c^*=18.7$ 로 본 연구결과보다 더 낮게 얻어졌다. 결론적으로 본 연구 모델은 기존의 실험 및 이론적 결과들과 비교할 때 더 높은 임계 Rayleigh 수를 산출하였고, mush 층의 윗 경계면에 일정압력조건(자유투과계면)을 적용한 경우가 비투과조건을 적용한 경우보다 실험결과와 더 근접한 대류발생 임계조건을 산출하였다.

6. 결 론

본 연구에서는 염화암모늄 수용액의 응고시에 다공성 블럭 모델로 가정한 mush 층에서 발생하는 성분적 대류에 대해 선형 안정성 해석을 수행하였다. 본 연구는 기존의 연구[11-13]가 일정한 속도로 응고되는 정상상태의 응고계를 다룬 것과는 달리, 염화암모늄 수용액의 응고실험계와 부합하는 시간의존형 mush 층을 해석하였다. 액체층과 접하는 mush 층의 윗 경계면에 속도경계조건으로 비투과조건과 일정압력조건(투과조건)을 적용하여 대류 불안정성에 미치는 영향을 조사하였다. 과열량(무차원초기농도) θ_∞ 가 작으면 mush 층의 성장률 λ 가 커지고 성분적 대류를 유발시키는 농도의 유효 경계층의 크기는 작아지므로 임계 Rayleigh 수는 더 커진다. Mush-액체 계면에 일정압력(투과) 조건을 적용한 경우가 비투과조건을 적용한 경우에 비해 임계 Rayleigh 수를 더 작게 산출시켜 계를 불안정화시킨다. Mush 층 위에 있는 액체층에서의 대류를 고려하지 않은 본 연구모델에서는 기존의 실험결과 및 액체층을 고려한 이론적 결과보다

더 높은 임계 Rayleigh 수가 얻어졌다. 그리고 mush 층의 윗 경계면에 일정압력조건을 적용하는 경우가 비투과조건을 적용하는 경우보다 염화암모늄 수용액 응고계의 실험결과와 더 근접한 임계 Rayleigh 수를 산출하였다.

참고문헌

1. Tait, S., Jahrling, K. and Jaupart, C., "The Planform of Compositional Convection and Chimney Formation in a Mushy Layer," *Nature*, **359**, 7406-408(1992).
2. Worster, M. G., "Instabilities of the Liquid and Mushy Regions During Solidification of Alloys," *J. Fluid Mech.*, **237**, 649-669 (1992).
3. Chen, C. F., "Experimental Study of Convection in a Mushy Layer during Directional Solidification," *J. Fluid Mech.*, **293**, 81-98 (1995).
4. Fowler, A. C., "The Formation of Freckles in Binary Alloys," *IMA J. Appl. Maths*, **35**, 159-174(1985).
5. Tait, S. and Jaupart, C., "Compositional Convection in a Reactive Crystalline Mush and the Evolution of Porosity," *J. Geophys. Res.*, **97**, 6735-6756(1992).
6. Emms, P. W. and Fowler, A. C., "Compositional Convection in the Solidification of Binary Alloys," *J. Fluid Mech.*, **262**, 111-139 (1994).
7. Hwang, I. G. and Choi, C. K., "The Onset of Mushy-Layer-Mode Instabilities During Solidification in Ammonium Chloride Solution," *J. Crystal Growth*, **220**, 326-335(2000).
8. Hwang, I. G. and Choi, C. K., "Convective Instabilities of the Melt during Solidification Cooled from Below," *Korean Chem. Eng. Res. (HWAHAK KONGHAK)*, **47**, 174-178(2009).
9. Amberg, G. and Homsy, G. M., "Nonlinear Analysis of Buoyant Convection in Binary Solidification with Application to Channel Formation," *J. Fluid Mech.*, **252**, 79-98(1993).
10. Chung, C. A. and Chen, F., "Onset of Plume Convection in Mushy Layers," *J. Fluid Mech.*, **408**, 53-82(2000).
11. S. Govender, "Linear Stability of Solutal Convection in Solidifying Mushy Layers: Permeable Mush-Melt Interface," *Transport in Porous Media*, **67**, 431-439(2007).