

이성분혼합물의 응고과정중 이중확산대류의 가시화

정우호* · 정재동** · 이준식*** · 유호선****

(1997년 7월 8일 접수)

Visualization of Double-Diffusive Convection during Solidification Processes of a Binary Mixture

W. H. Chung, J. D. Chung, J. S. Lee and H. Yoo

Key Words : Solidification(응고), Visualization(가시화), Binary Mixture(이성분혼합물), Double-Diffusive Layer(이중확산층)

Abstract

An experimental study has been conducted to investigate solidification of NH_4Cl-H_2O mixtures inside a vertical rectangular enclosure. Solidification process is visualized by the shadowgraph method. Emphasis is placed on the effect of solidification parameters such as the aspect ratio, cooling wall temperature and initial composition. The aspect ratio shows a dominant effect on the number and developing time of the double diffusive layers which reveals the relative strength of solutal convection to thermal convection. Similar flow pattern is observed when the concentration difference between interdendritic liquid and the pure liquid which drives solutal convection is the same regardless of the different cooling wall temperature and initial concentration.

———— 기호 설명 ————— i : 초기값

- A : 종횡비, 시험체적의 높이/폭
- C : 농도
- Le : Lewis수
- N : 부력비
- t : 시간
- T : 온도
- β_c : 물질팽창계수
- β_T : 열팽창계수

하첨자

- c : 냉각면
- e : 공정상태

1. 서론

응고과정은 주조, 연속주조, 용접, 결정성장, 열저장 등 여러 공학적인 공정뿐만 아니라 지질학, 해양학과 같은 자연현상과도 밀접하게 연관되어 있기 때문에 이에 대한 광범위한 연구가 수행되어 왔다. 그러나 순수물질의 응고에 수반되는 현상이 비교적 잘 알려진 것에 비하여 혼합물의 응고시 일어나는 특이한 현상, 구체적으로 상경계면에서의 불안정성, 재용해, 편석, 이중확산대류 등의 발생 메커니즘에 대한 명확한 이해는 불완전한 상태이다.

이러한 혼합물 응고과정과 관련된 현상을 규명하기 위하여 이론적, 수치적, 실험적인 방법에 의존한 많은 연구가 수행되어 왔다. 이론적 접근^(1~3)은 혼합물응고가 가지는 본질적인 난해함으로 인하여

*서울대학교 대학원 기계공학과
 **회원, 서울대학교 터보동력기계 연구센터
 ***회원, 서울대학교 기계공학과
 ****회원, 숭실대학교 기계공학과

극히 제한된 범위내에서만 수행되었고, 최근 그 해석범위를 확장한 시도^(4,5)가 이루어지고 있으나 다양한 혼합물 응고특성을 보여 주기에는 한계가 있다. 연속체모델과 체적평균기법으로 대표되는 수치적 접근방법은 여러 적용예⁽⁶⁻⁸⁾를 통해 이중확산대류, 거시편석 등을 예측하는데 그 유용성이 확인되었고 수치적 접근시 지적되어 온 해석능력의 한계를 극복하기 위한 후속연구가 활발히 수행되고 있다.^(9,10) 그럼에도 불구하고 현 단계에서는 미시적 현상과의 연계문제나 실험자료와의 정량적인 차이⁽¹¹⁾ 등 해결해야 할 문제를 안고 있다. 실험적 방법으로 대상물질에 대한 속도, 온도, 농도 측정과 가시화가 이루어졌다. 실제금속에 대한 실험적 연구는 금속의 Lewis수가 크고 불투명하기 때문에 응고과정을 직접 관찰할 수 없고, 응고가 끝난 상태에서 해석해야 하기 때문에 여러가지 제한이 따르므로 대부분 금속과 상사성이 있고 투명하여 응고과정을 직접 볼 수 있는 물질(예를들면 NH_4Cl , Na_2CO_3 , NaCl , Na_2SO_4 , K_2CO_3 , carbontetrabormide, succinonitrile, camphor 등)들에 대하여 수행되었다. 여기서 열전대를 시험체적 안에 고정시켜 온도를 측정⁽¹²⁻¹⁴⁾하거나 액정(liquid crystal)을 시험체적에 투입하여 측정⁽¹⁵⁾하는데, 두 경우 모두 응고과정에 영향을 주기 때문에 정확한 해석을 하기 위해서는 어려운 문제점이 있다. 또한 기존의 농도 측정방법은 응고과정중 특정위치와 시간에서 미소량의 액체를 추출함으로써 이루어지는데 비록 그 양이 작을지라도 액체분율이 작은 머시내에서는 추출로 야기된 수지상간 유동에 큰 영향을 미치는 것으로 지적되었다. 응고과정에 영향을 주지않고 관찰하는 방법으로는 가시화가 사용되었다. 가시화에는 광원을 사용하지 않고 사진을 찍어 상계면을 관찰하는 경우가 있는데,^(14,16) 이 경우에는 머시내의 용질의 흡수 또는 방출로 인한 이중확산층(double diffusive layer)의 생성과정을 관찰할 수 없고 생성된 이중확산층도 사진에 명확하게 나타나지 않는다. 광원을 사용하여 섀도그래프(shadowgraphs) 방법⁽¹³⁾으로 가시화를 수행하면 온도와 농도를 정량적으로 알 수는 없지만 정성적으로 이성분 응고의 특성인 이중확산층(double diffusive layer)의 생성, 재용해(remelting), 거시편석의 생성과정과 수지상 성장으로 인한 상계면의 모양을 자세히 살펴 볼 수 있는 장점이 있다.

본 연구는 중횡비, 초기농도와 냉각 벽면온도조

건이 전형적인 이성분혼합물인 $\text{NH}_4\text{Cl}-\text{H}_2\text{O}$ 의 응고과정에 미치는 영향을 살펴보기 위해서 응고과정에 영향을 주지않는 섀도그래프(shadowgraphs)를 통한 가시화를 수행하였다.

2. 실험 장치 및 방법

2.1 실험장치

열화암모늄 수용액($\text{NH}_4\text{Cl}-\text{H}_2\text{O}$)의 응고과정을 가시화하기 위한 실험장치의 개략도를 Fig. 1에 나타내었다. 본 실험장치는 시험체적, 냉각장치, 광학장치, 온도측정부 등으로 구성된다 그림에서 보듯이 광원(He-Ne laser)에서 나온 빛은 빔확산렌즈(beam expander)를 거쳐 구형파를 이루고 오목거울에 반사되어 평면파를 형성하여 시험체적을 통과한다.

시험체적 및 냉각장치의 개략도를 Fig. 2에 나타내었다. 시험체적 아래, 위, 좌측 벽면은 열전도율이 작은 MC 나일론을 사용하여 단열하였고 우측 벽면은 냉각을 효율적으로 하기 위해서 열전도성이 좋은 구리를 사용하였다. 시험체적의 폭과 길이는 각각 2 cm, 10 cm이고 높이는 2 cm, 4 cm, 6 cm로 변화시켜 중횡비(높이/폭)를 조절하였다. Christenson등⁽¹⁴⁾의 경우에서와 같이 삼차원적 영향을 최소화하기 위하여 길이는 10 cm로 충분히 크게 하였다. 시험체적의 전면과 후면은 빛이 통과하도록 광학유리(BK-7, 두께 10 mm)를 사용하였다. 빛이 통과하는 유리면은 이중창으로 제작하여 내부를 진공상태(10^{-3} torr)로 유지시켜 유리면에서 수증기의 응결을 방지하였다.

냉각장치는 열전열펌프(thermoelectric heat pump), 수냉식 냉각환, 항온조로 구성되어 있다. 열전열펌프를 시험체적의 우측 벽면인 구리면에 부착하였다. 열전열펌프는 4개씩 직렬로 연결하여 최대 열전달용량을 120W가 되게 하였다. 여기에 공급되는 전원은 8A/70V의 직류전원장치(DC power supply)를 사용하였다. 열전열펌프는 공급되는 전압에 의해서 저온부와 고온부의 온도차가 결정되므로 저온부의 온도를 조절하기 위해서는 고온부의 냉각이 요구된다. 따라서, 고온부 측에 수냉식 냉각장치를 부착하였다. 수냉식 냉각장치는 알루미늄 환의 외부를 밀폐시켜 항온조에서 공급되는 냉각수를 순환시켰다. 열전열펌프 양면에 열전도성 그리스(Toshiba Silicon YG6111)를 사용하여 접촉면에

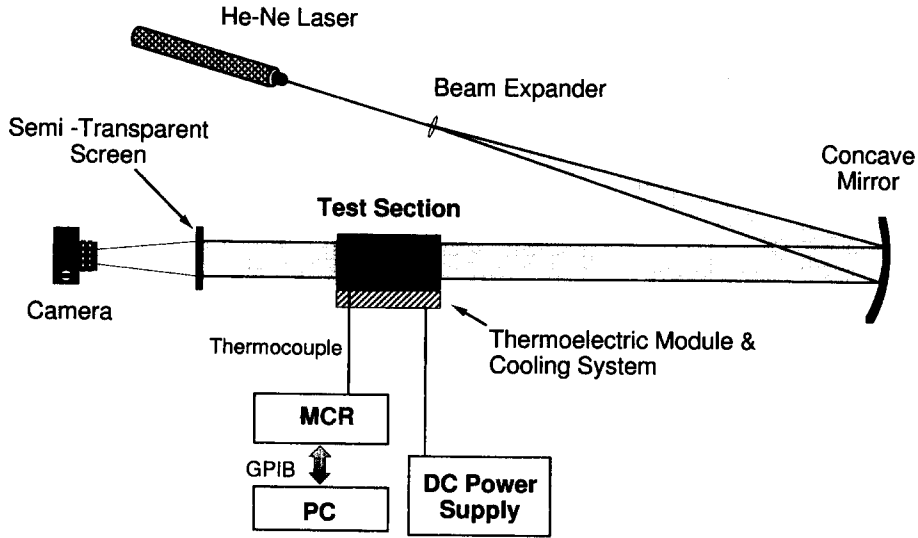


Fig. 1 Schematic of the optical setup and acquisition system.

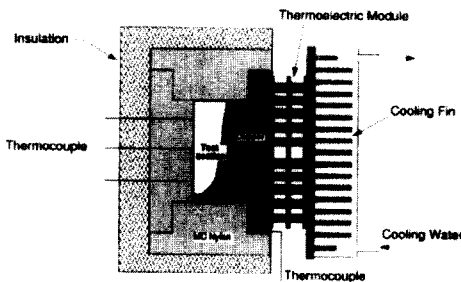


Fig. 2 Schematic of the experimental model and cooling system.

서의 열전도성을 좋게 하였다.

본 실험의 가시화를 위하여 편광 He-Ne 레이저 (30 mW), 빔 확산 렌즈 (beam expander), 오목거울 (직경 200 mm), 반투과막 (semi-transparent screen), 사진기 (Nikon F3), CCD (Charge Coupled Device) 카메라 등을 사용하였고 필름은 Kodak Tmax 400을 사용하였다. 빔 확산 렌즈는 오목거울의 초점 위치 (2 m)에 고정하여 오목거울에서 반사된 빛이 평면파가 되게 하였다. 시험체적을 통과한 빛은 반투명막에 응고현상의 섀도우그래프 상 (shadowgraph image)을 형성한다. 반투명막의 뒷면에서 사진기, CCD 카메라로 맺힌 상을 촬영하였다.

냉각벽면의 일정온도 조건을 유지하기 위해서 구리의 내부벽면의 5지점에 열전대 (T-type, 30gage)를 부착하고 측정된 온도의 평균값이 일정하도록

열전열펌프에 공급되는 전압을 조절하였다. 응고과정 동안의 단열 벽면온도의 변화를 보기 위해서 좌측 단열면의 아래에서 53 mm, 35 mm, 12mm되는 지점에 열전대를 부착하였다. 열전대 신호는 다채널기록계 (TR2721)로 측정하여 GPIB를 통해서 컴퓨터로 처리하였다.

2.2 실험 방법

본 실험에서는 이성분혼합물의 응고를 해석하기 위해서 염화암모늄 수용액을 사용하였다. 이 물질의 상평형도 (equilibrium phase diagram)를 Fig. 3에 나타내었다. 그림에서 보듯이, 전체적으로 순수 액상, 액상과 고상이 공존하는 머시, 순수고상의 세 부분으로 나뉜다. 염화암모늄 수용액의 공정온도와 공정농도는 각각 $T_e = -15.4^\circ\text{C}$, $C_e = 19.7\%$ 이다. 머시영역은 공정점 이상에서 공정점 이하보다 더 넓게 나타난다. 농도는 NH_4Cl 의 질량비로 나타내었다. 측정물질로 염화암모늄을 선택한 이유는 다음과 같다: (1) 빛의 투과성이 좋아 가시화에 적합하다. (2) 수지상 성장 (dendrite growth) 면에서 액체금속의 응고과정과 유사성이 있다. (3) 물성치가 잘 알려져 있어 이용에 편리하다. (4) 실험 범위를 조절함으로써 열 및 농도변화에 따른 부력의 힘을 쉽게 조절할 수 있는 유연성이 있다. 염화암모늄 수용액의 가장 큰 단점은 부식성 (corrosion)이 커서 시험체적의 수명을 단축시키는 것이다. 구리가 염화 암모늄 수용액에 부식되는 정도는

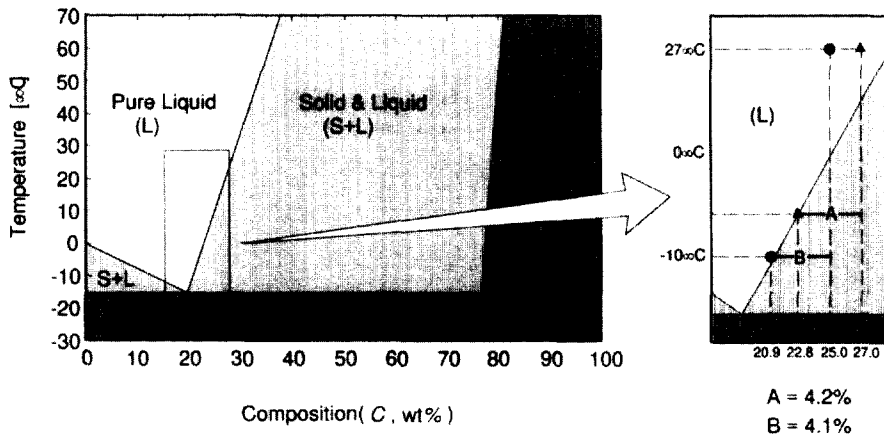


Fig. 3 Equilibrium phase diagram of $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ solutions.

염화암모늄 수용액이 포화상태이고 온도조건이 상온 이상일 때 10^{-2}mm/day 이상으로 상당히 큰 편이다.⁽¹⁷⁾ 그러나, 본 실험조건에서는 농도가 높지 않고 온도가 낮기 때문에 상대적으로 부식정도가 높지 않다. 실제로 본 실험조건에서 부식정도를 시험해 본 결과 10^{-4}mm/day 정도로 나타났는데 전체 실험 시간 동안 구리의 부식정도가 10^{-2}mm 이하이기 때문에 많은 영향을 끼치지 않는다고 볼 수 있다.

실험을 시작하기 전과 후에 실험장치를 분해하여 구리 표면의 부식물을 깨끗이 닦아 내고 실험장치 내부의 불순물도 알코올을 사용하여 제거하였다. 이성분응고 실험에서 초기농도조건을 맞추는 것이 상당히 중요하고 불순물은 응고과정에 영향을 줄 수 있기 때문에 반드시 제거하여야 한다. 시험체적을 오목렌즈에서 반사된 빛이 평행하게 지나가도록 장치한다. 염화암모늄을 시험체적에 투입한 후 초기조건을 맞춘다. 초기조건은 실험 전체경우에 대해서 벽면온도, 내부온도와 반투과막에 맺힌 상을 관찰하면서 초기조건이 만족될 때까지 기다린다. 초기조건이 맞으면 냉각부 전원과 온도측정장치의 전원을 동시에 켜고 시간과 온도를 기록한다. 실험 중 냉각부 온도는 적류전원장치를 이용하여 $\pm 0.5^\circ\text{C}$ 범위 안에서 조절한다. 비정상 상태가 지속될 때 5분 간격으로 사진을 찍고 급격히 현상이 변할 때에는 사진 찍는 시간 간격을 좀더 줄인다. 또한 2가지 경우에 대해서 CCD카메라를 이용해 비디오 촬영을 하였다. 총 실험 시간은 각 경우에

Table 1 Experimental conditions; the cooling temperature, initial concentration and aspect ratio at a fixed initial temperature $T_i=27^\circ\text{C}$.

Cooling Temperature (T_c)	Composition (C_i)	Aspect ratio (A)
0°C	25%	1, 2, 3
	27%	1, 2, 3
-10°C	25%	1, 2, 3
	27%	1, 2, 3

따라서 다르지만 2시간에서 3시간 정도 소요되었다.

3. 결과 및 검토

초기 온도는 전체 경우에 대해서 $T_i=27^\circ\text{C}$ 이고 구체적인 실험조건은 Table 1에 나타내었다. 그리고 오른쪽 벽면은 일정 온도로 냉각시켰고 윗면, 아랫면과 왼쪽 벽면은 단열 조건이다. 비디오 녹화는 초기 온도, 냉각벽면온도, 초기농도가 각각 $T_i=32^\circ\text{C}$, $T_c=0^\circ\text{C}$, $C_i=0.27$ 이고 종횡비 $A=1$, 3인 경우에 대해서 수행하였다.

3.1 응고과정

본 실험의 여러 경우 중 먼저 대표적으로 초기 온도, 냉각벽면온도, 초기농도와 종횡비가 각각

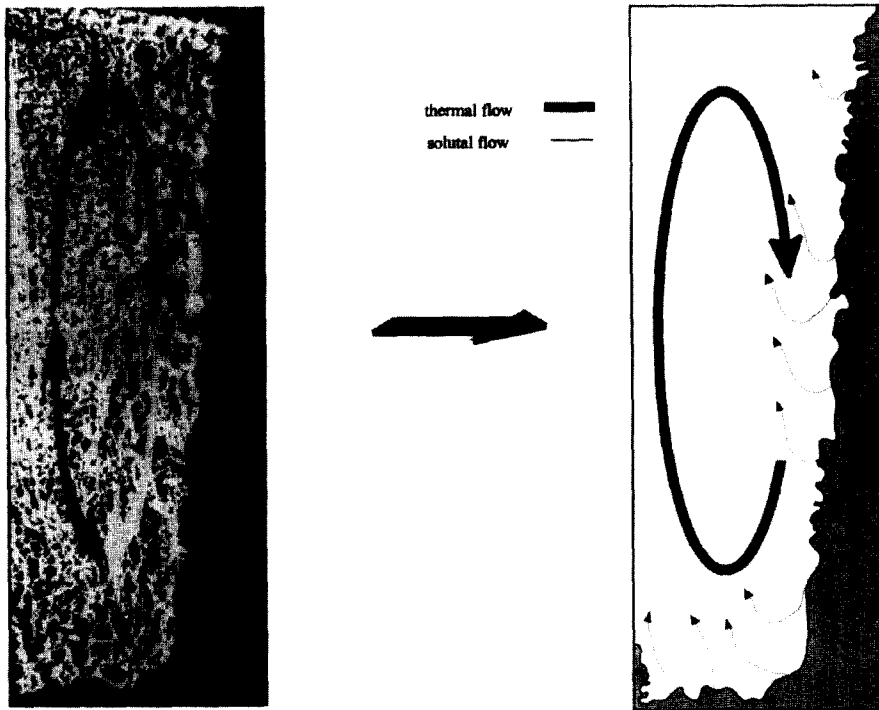


Fig. 4 Flow pattern and shadowgraph image during solidification of a $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ solution for the case of $A=3$, $C_i=27\%$, $T_i=0^\circ\text{C}$ at $t=10\text{min}$.

$T_i=27^\circ\text{C}$, $T_c=0^\circ\text{C}$, $C_i=0.27$, $A=3$ 인 경우에 대한 Fig. 4를 중심으로 살펴보기로 한다. 이는 Fig. 6의 색도그래프 상에 나타낸 시간 $t=10\text{min}$, 25min 의 경우에 대한 유동 형태이다. 응고가 일어나는 초기에는 냉각벽면에 생긴 수지상 고상(solid dendrite)이 유체의 유동에 의해 떨어져 나가게 된다. 이러한 현상은 Beckermann과 Viskanta⁽¹³⁾의 실험에서도 동일하게 나타났다. 떨어져 나간 수지상 고상의 일부는 시험체적의 아랫면에 쌓이고 일부는 유동을 따라 고체입자(crystal particle)상태로 용액 전체에 퍼져 나간다. 10분이 지나면 벽면에서 머시가 안정적으로 발달하기 시작하여 Fig. 4에 보인 것과 같이 전체적으로 시계방향의 유동이 나타난다.

Fig. 3의 상평형도를 보면 머시영역내의 수지상 고상보다 수지상 액상에 H_2O 성분이 더 많은 것을 알 수 있다. 다시 말하면, 미시적 고상-액상 경계에서 H_2O 를 방출하여 머시영역내에 남아있는 액체의 H_2O 농도가 높아져 그 밀도가 감소하게 된다. 밀도가 낮아진 액체의 일부는 머시영역에서 곧바로

시험체적 위쪽으로 올라가 쌓이고 나머지는 수평으로 빠져나와 띠 모양을 이루며 위쪽으로 향하게 된다. 이때 H_2O 농도가 높은 액체는 열확산계수에 비해 물질 확산계수가 낮으므로 ($Le \approx 28$) 위쪽으로 올라가는 동안 원래의 농도를 그대로 유지하게 된다. Fig. 6에서 액체내의 검은 띠모양을 이루는 것이 바로 여기에 해당하며 가시화를 통해서 살펴보면 아지랭이 모양으로 시험체적 위쪽으로 올라가 쌓이게 된다. 이와 같이 시험체적 위쪽에 올라간 H_2O 농도가 높은 액체는 초기의 농도를 가진 아랫쪽 층 위에 하나의 새로운 층을 형성하게 된다. 13분이 되면 시험체적 위쪽에 형성된 층을 명확하게 볼 수 있다. 윗쪽 층과 아랫쪽 층은 명확한 경계면(double-diffusive interface)에 의해서 구분되며 시간의 경과에 따라 윗쪽 층의 수직폭이 넓어진다.

아랫쪽 층에서는 시계방향으로 회전하는 유동이 나타난다. 머시 주위의 액체가 냉각에 의해 밀도가 낮아져 머시면의 아래 방향으로 내려오게 된다. 이 유동의 영향으로 전체적으로 시계방향의 회전유동

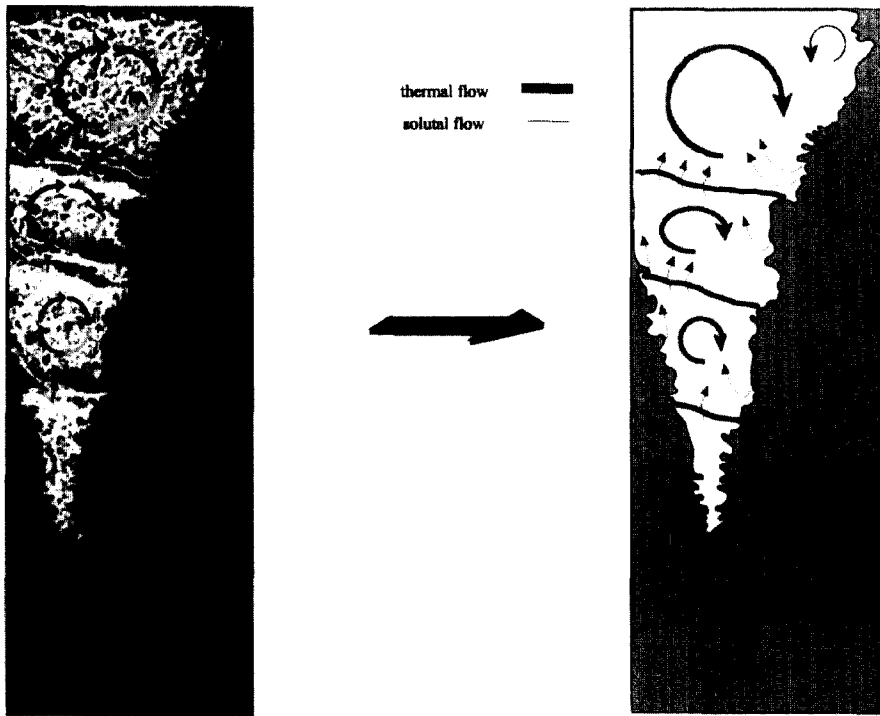


Fig. 5 Flow pattern and shadowgraph image during solidification of a $\text{NH}_4\text{Cl}-\text{H}_2\text{O}$ solution for the case of $A=3$, $C_i=27\%$, $T_i=0^\circ\text{C}$ at $t=25\text{min}$.

이 생성된다. 윗쪽 층에서는 처음에는 유동이 관찰되지 않다가 수직폭이 어느 정도 넓어진 후에는 아랫쪽 층과 마찬가지로 시계방향 회전 유동이 관찰된다. 결과적으로 윗쪽과 아랫쪽 층에서 같은 방향의 유동이 동시에 존재하게 된다. 이러한 두가지 유동은 이중확산경계면에 의해서 분리된다.

머시를 따라 아랫 방향으로는 상대적으로 강한 유동이 나타난다. 그리고 머시영역내에서 형성되어 수평으로 빠져나온 H_2O 농도가 높은 액체는 밀도가 주위 액체보다 작기 때문에 위쪽으로 향하게 되는데 주위 액체의 유동이 아랫쪽으로 나타나기 때문에 결국 곡선을 그리며 위쪽으로 올라가게 된다. 이러한 현상은 Fig. 8에서 주로 초기단계에서 명확하게 확인할 수 있으며 Fig. 4와 Fig. 5에 유동 형태를 표시하였다. 여기서 온도구배에 의한 부력의 방향과 농도구배에 의한 부력의 방향이 반대임을 알 수 있다. 본 실험에서는 농도구배에 의한 영향이 온도구배에 의한 영향보다 크기 때문에 ($N = \beta_c \Delta C / \beta_T \Delta T \sim -1.8$) 머시영역내에서 나온 대부분의 액체는 위쪽으로 올라가게 된다.

13분이 되면 아랫쪽 면 뿐만 아니라 윗쪽 단열면에서도 수직상이 자라는 것을 볼 수 있다. 이러한 현상은 온도부력에 의한 시계방향의 유동에 의해서 아랫면과 윗쪽 단열면이 냉각되었기 때문이다. 시간이 경과하면 새로운 층이 생겨나서 25분에는 모두 4개의 층으로 나뉘어진다. 15분경에 첫번째 층의 수직폭이 점점 넓어지면서 윗쪽면에 또 하나의 층이 형성되기 시작한다. 20분에는 첫번째 층과 두번째 층 사이의 경계면이 점차 두꺼워져 또다른 하나의 층을 형성했다. 결국 25분에 이르르면 명확한 4개의 층이 형성된다.

윗쪽 층의 수직폭이 넓어지면서 윗쪽 층에 속해 있는 머시가 다시 녹는 재용해 현상을 볼 수 있다. 이는 윗쪽 층에 있는 액체의 H_2O 농도가 높아져서 이에 대응하는 액상선의 온도가 점차로 낮아지기 때문이다. H_2O 농도가 낮은 상태에 대응하는 액상선의 온도는 H_2O 농도가 높은 상태보다 높은 온도를 가지므로 비록 동일한 온도에서도 전자는 머시 영역에 속하지만 후자는 순수액상에 속하게 되어 H_2O 농도가 높아짐에 따라 재용해가 일어난다. 이

러한 재용해는 시간이 지난 후 머시의 경계모양에 많은 영향을 미친다. 120분이 지난 후의 상을 보면 머시 경계면에 이중확산경계면에 대응하는 단(step)이 형성되는 것을 볼 수 있다. 재용해의 영향으로 층의 수가 많을 때와 적을 때의 머시 경계면의 모양에는 많은 차이가 있다. 본 실험의 Fig. 6를 살펴보면 층의 갯수에 따라 머시 경계면의 모양을 관찰할 수 있다. 층의 갯수가 많을수록 여러 개의 단(step)이 생겨 경계면이 울퉁불퉁해지는 것을 알 수 있다. 왼쪽 단열면에서도 재용해가 일어난다. 초기에 왼쪽 단열면에 생겼던 머시는 윗쪽 층의 수직폭이 넓어짐에 따라 점점 녹는다. 결국 120분경이 되면 왼쪽 벽면에는 머시영역이 거의 존

재하지 않게 된다.

30분에는 두 개의 이중확산경계면이 존재하는데 위쪽 경계면이 왼쪽 벽면에서 아래로 기울어지면서 왼쪽 벽면을 따라 경계면이 조금씩 파괴되는 것을 볼 수 있다. 이때 경계면은 왼쪽 벽면에 붙었다 떨어졌다를 주기적으로 반복하지만 아래로 완전히 내려올 때까지 그대로 유지되었다. 이러한 현상은 왼쪽 벽면을 일정한 온도로 가열한 Beckermann과 Viskanta⁽¹³⁾의 실험과는 상이한 새로운 발견이다. 이들의 실험에서는 일정시간 경과후 이중확산경계면은 왼쪽 벽면에서 아래로 기울어지고 결국 붕괴되면서 정상상태로 접근하였으며, 수치적으로도 예측⁽⁸⁾된 바 있다. 본 연구에서 경계면이 끝까지 유

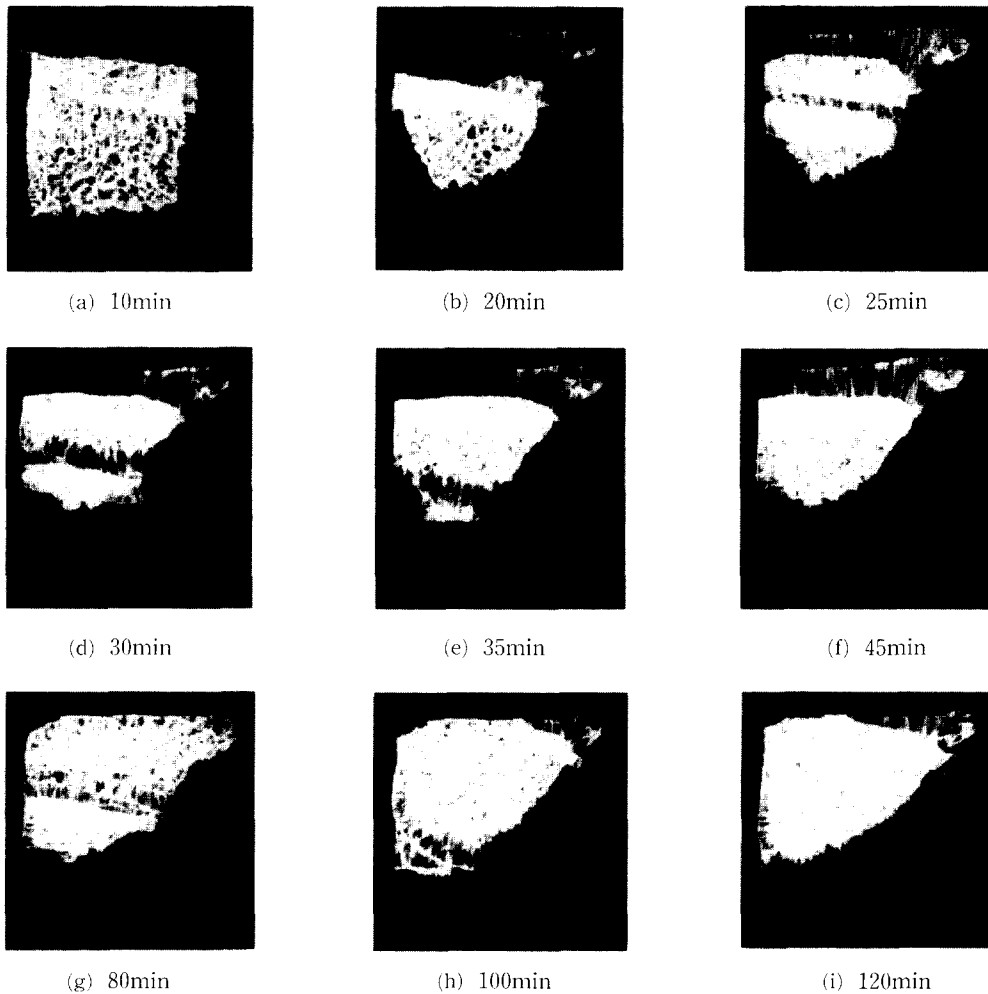


Fig. 6 Time evolution of the shadowgraph images showing solidification of a $\text{NH}_4\text{Cl}-\text{H}_2\text{O}$ solution for the case of $A=1$, $C_i=27\%$, $T_i=0^\circ\text{C}$.

지되는 이유는 왼쪽 벽면의 단열로 인하여 정상상태에 도달하지 못하기 때문으로 보인다.

25분에 3개의 경계면이 존재하다가 시간이 지나면서 점차 경계면이 아래로 내려가 50분이 지나면 경계면들은 모두 사라지고 전체적으로 하나의 시계방향 유동만 존재하게 된다. 이후부터는 주로 왼쪽 단열면 근처에서 재용해가 일어나게 된다. 또한 머시 경계면에 존재하는 수지상 돌기가 재용해되어 경계면이 매끄럽게 된다. 50분이 지난 후에도 H_2O 농도가 높은 액체가 머시영역에서 빠져나와 위쪽으로 올라가는 것을 볼 수 있지만 윗쪽면에 층으로 쌓이지는 않는다.

120분이 지나면 전체 액체의 온도는 계속 내려가지만 더 이상의 응고는 이루어지지 않는다. 이는 앞의 과정을 거치면서 농도의 재분배가 이루어져 남아있는 용액의 농도조건이 냉각벽면온도조건에서 액체상태이기 때문이다.

3.2 종횡비의 영향

본 실험은 종횡비 $A=1, 2, 3$ 인 경우에 대해서 수행하였다. 초기농도와 냉각벽면온도는 각각 $C_i=27\%$, $T_c=0^\circ\text{C}$ 로 고정할 때 각 종횡비에서의 응고현상은 다음과 같다. 종횡비가 1일 때와 2일 때 생성된 층의 수는 각각 3개로 같았지만 층이 완전히 발달하기까지 걸린 시간은 종횡비가 1인 경우에는 100분이 걸린 반면(Fig. 6) 2인 경우에는 55분이 걸렸다(Fig. 7). 반면에 종횡비가 3일 경우(Fig. 8)는 4개의 셀로 발달하며 이는 저자가 아는 한 응고과정에 대해서는 지금까지 보고된 바 없는 형태이다. 이와 같이 종횡비는 이중확산층의 생성에 직접적인 영향을 미침을 알 수 있다. 종횡비가 클수록 층의 수가 많아지거나 층의 수직폭이 넓어지는 속도가 빨라지는 것을 알 수 있다. 종횡비에 따른 층 수의 차이에 따라 머시 경계의 모양이 많이 달라짐을 Fig. 6, Fig. 7, Fig. 8에서 명확히 볼 수 있다. 종횡비가 3인 경우는 종횡비가 1, 2인 경우에

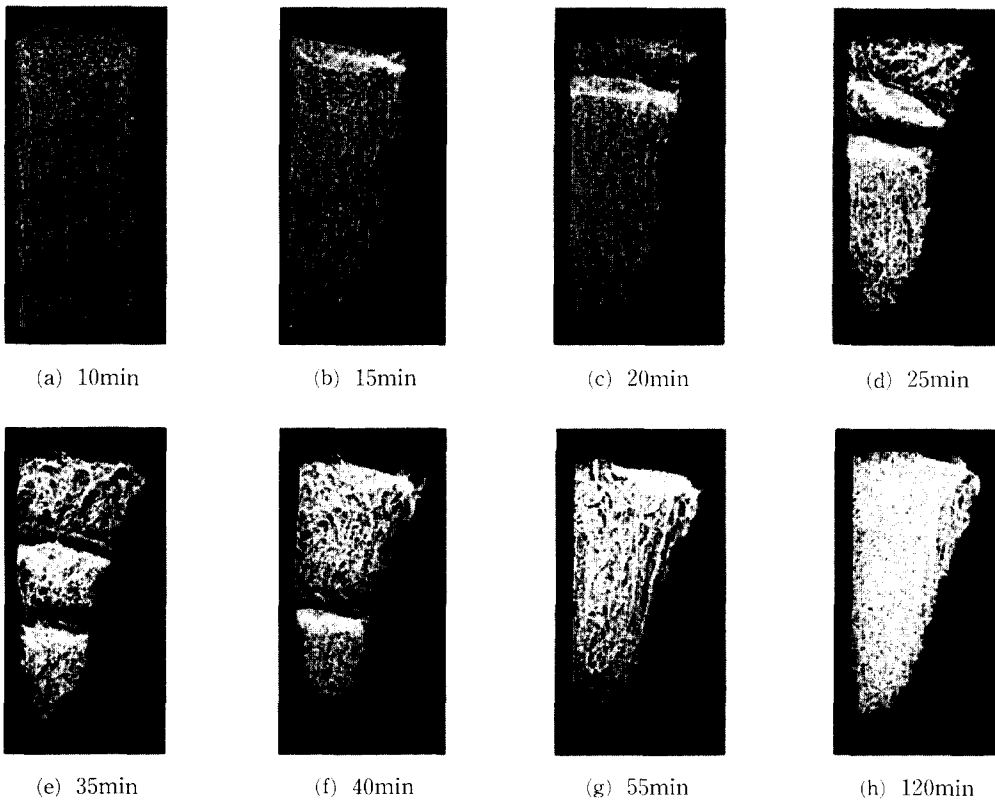


Fig. 7 Time evolution of the shadowgraph images showing solidification of a NH_4Cl-H_2O solution for the case of $A=2$, $C_i=27\%$, $T_c=0^\circ\text{C}$.

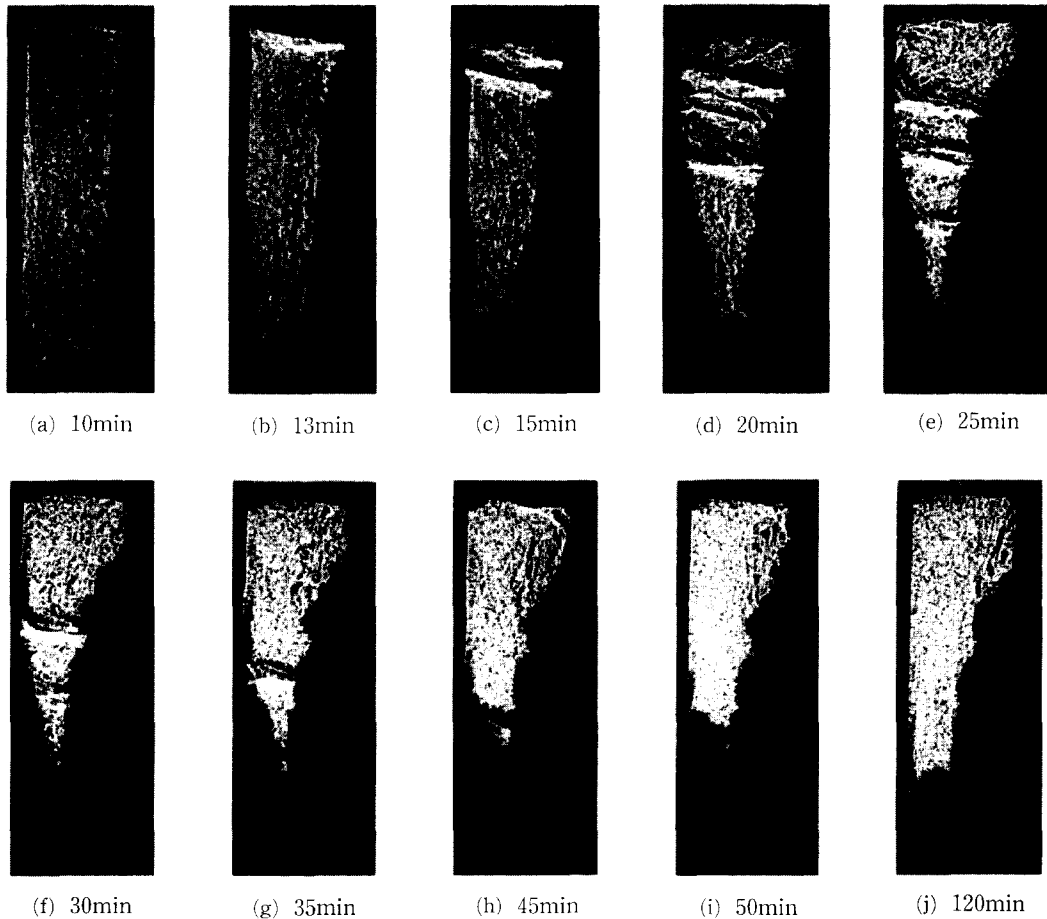


Fig. 8 Time evolution of the shadowgraph images showing solidification of a $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ solution for the case of $A=3$, $C_i=27\%$, $T_i=0^\circ\text{C}$.

비해 머시 경계면에서 단(step)모양이 확실히 나타나며 머시 경계면을 따라 여러 곳에서 나타난다. 다시 말하면, 층의 수가 적었던 $A=1, 2$ 의 경우에서 머시 경계면이 더 매끄럽게 나타났다. 이러한 현상은 전술한 재용해와 관계가 있다. 여러 층이 생길 경우에 재용해가 되는 양이 각 층에서 다르기 때문에 층의 모양이 더욱 복잡해 진다.

3.3 냉각벽면온도와 초기농도의 영향

냉각벽면온도와 초기농도의 영향을 살펴보기 위해 $C_i=27\%$, $T_c=0^\circ\text{C}$ 인 경우(Fig. 7)와 $C_i=25\%$, $T_c=-10^\circ\text{C}$ 인 경우(Fig. 9)를 비교해 보자. 특정 인자의 영향만을 살펴보기 위해 나머지는 고정시키고 고려할 하나의 인자만을 변화시켜야 하나 다음 이유로 인해 냉각벽면온도와 초기농도를 동시에 변

화시킨 결과를 비교하였다. 첫째는 실험경우의 수에 대한 제한이며 둘째는 고려할 냉각벽면온도와 초기농도 두가지 모두 농도대류를 일으키는 구동력의 크기를 결정하기 때문이다. 상평형도(Fig. 3)를 통해 구체적으로 이를 살펴보면 머시영역내에 존재하는 용액의 농도가 전자의 경우는 $C=22.8\%$ 이고 후자의 경우는 $C=20.9\%$ 이므로 농도대류의 구동력인 머시영역내에 존재하는 용액의 농도와 액상의 농도 차이가 각각 4.2%, 4.1%로 전자와 후자의 차이가 거의 없음을 알 수 있다. 따라서 대표적으로 중형비가 2일 때(Fig. 7, Fig. 9)를 비교해 보면 이중확산층의 수, 층의 발달 시간, 발생 형태, 시간에 따른 머시경계면의 모양, 두께가 일치함을 알 수 있다. 냉각벽면온도를 고정하고 초기농도(C_i)를 높이거나 초기농도를 고정하고 냉각벽면온도를

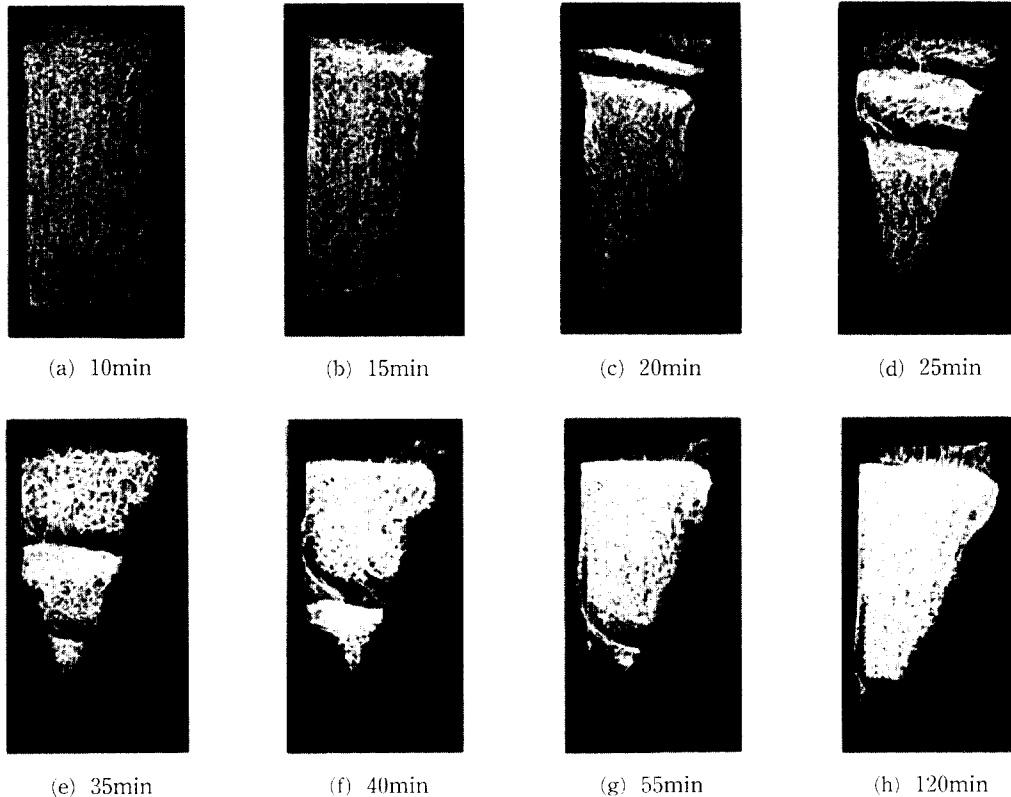


Fig. 9 Time evolution of the shadowgraph images showing solidification of a $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ solution for the case of $A=2$, $C_i=25\%$, $T_i=-10^\circ\text{C}$.

낮추면 머시영역내에 존재하는 용액의 농도와 액상의 농도 차이가 커지기 때문에 층의 수가 늘어나고 머시영역도 두꺼워질 것으로 예측된다.

3.4 단열 벽면온도의 변화

열전대를 이용하여 왼쪽 단열면의 온도를 측정하였다. 종횡비 $A=2$, 3인 경우에 대해서, 시간에 따른 단열벽면의 온도 변화를 Fig. 10에 나타내었다. 초기에는 시계방향의 열대류에 의해서 시험체의 위쪽의 온도가 가장 높게 나타난다. 하지만 이중확산대류 경계면이 측정점 a를 지나게 되면 왼쪽 측정점의 온도가 아랫쪽보다 낮게 된다. 그림에 이러한 지점을 원으로 표시하였다. 색도그래프 상과 벽면온도를 비교해 보면 그림에서 원으로 표시한 지점이 색도그래프 상에서 경계면이 지나가는 순간과 일치함을 알 수 있다. 그러나 측정지점이 제한되어 있어서 벽면온도 측정으로 모든 경계면의 발생과 발달 과정을 기술할 수는 없다. 초기에는

온도가 급격하게 낮아지나 이중확산대류가 일어나면서 온도의 감소가 현저하게 줄어드는 것을 볼 수 있다. 그리고 부분적으로 온도가 시간에 따라 잠시 높아지는 현상도 나타난다. 이러한 현상은 Nishimura 등⁽¹⁵⁾의 연구에서도 동일하게 나타난다.

4. 결 론

이중확산대류의 형태가 이성분혼합물의 응고과정에 미치는 영향을 규명하기 위하여 실험적 연구를 수행하였다. 대상물질로 $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ 를 선정하여 응고과정을 색도그래프를 통해 가시화를 하였다. 또한 이중확산경계층의 발달 메커니즘을 관찰하기 위하여 3개의 종횡비를 실험대상으로 취하였다. 머시내 용액과 액상의 농도차가 응고과정에 미치는 영향은 냉각벽면온도와 초기농도를 변화를 통하여 파악하였다. 본 연구의 결과는 다음과 같이 요약될 수 있다.

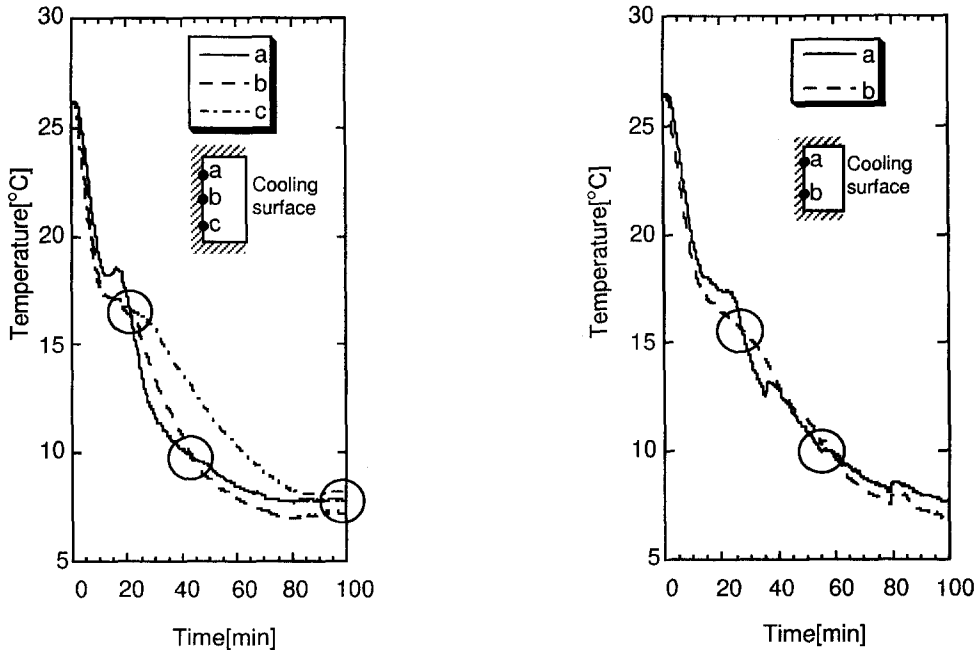


Fig. 10 Timewise variation of the insulated wall temperature for the cases of (a) $A=3$, $C_i=27\%$, $T_i=0^\circ\text{C}$, and (b) $A=2$, $C_i=27\%$, $T_i=0^\circ\text{C}$.

(1) 종횡비가 클수록 이중화산층의 수가 많아지고, 그 수가 같은 경우에는 종횡비가 작은 쪽 층의 발달시간이 오래 걸린다.

(2) 혼합물 응고과정에서 4개의 유동셀까지 발달되는 과정을 가시화 하였다.

(3) 냉각벽면온도와 초기농도가 다르더라도 농도 대류를 일으키는 구동력인 머시영역내의 용액과 액상의 농도차가 동일하면 응고과정은 유사하게 나타난다.

참고문헌

- (1) Cho, S. H. and Sunderland, J. E., 1969, "Heat-Conduction Problems with Melting or Freezing," *J. Heat Transfer*, Vol. 91, pp. 421~426.
- (2) Ozisik, M. N. and Uzzell, Jr. J. C., 1979, "Exact Solution for Freezing in Cylindrical Symmetry with Extended Freezing Temperature Range," *J. Heat Transfer*, Vol. 101, pp. 331~334.
- (3) 정재동, 유호선, 이준식, 노승탁, 1996, "열전도에 의해 지배되는 이성분혼합물의 응고문제에 대한 해석해," 대한기계학회논문집 B권, 제20권, 제11호, pp. 3655~3665.
- (4) Voller, V. R., 1997, "A Similarity Solution for the Solidification of a Multicomponent Alloy," *Int. J. Heat Mass Transfer*, Vol. 40, pp. 2869~2877.
- (5) 정재동, 유호선, 이준식, 1998, "혼합물의 응고 문제에 대한 확장된 해석해," 대한기계학회논문집 B권, 제22권, 제2호, pp. 343~353.
- (6) Incropera, F. P., Engel, A. H. H. and Bennon, W. D., 1989, "Numerical Analysis of Binary Solid-Liquid Phase Change with Buoyancy and Surface Tension Driven Convection," *Numer. Heat Transfer*, Vol. 16A, pp. 407~427.
- (7) Prescott, P. J. and Incropera, F. P., 1991, "Numerical Simulation of a Solidifying Pb-Sn Alloy: The Effect of Cooling Rate on Thermosolutal Convection and Macrosegregation," *Metal. Trans., B*, Vol. 22, pp. 529~540.
- (8) Yoo, H. and Viskanta, R., 1992, "Effect of Anisotropic Permeability on the Transport Process During Solidification of a Binary Mixture," *Int. J. Heat Mass Transfer*, Vol. 35, pp. 2335~2346.
- (9) Ni, J. and Incropera, F. P., 1995, "Extension of

- the Continuum Model for Transport Phenomena Occurring During Metal Alloy Solidification- II. Microscopic Considerations," *Int. J. Heat Mass Transfer*, Vol. 38, pp. 1285~1296.
- (10) 정재동, 유호선, 이준식, 1996, "역확산을 고려한 이원합금의 비평형 수지상응고 해석," 대한기계학회논문집 B권, 제20권, 제10호, pp. 3361~3370.
- (11) Christenson, M. S., Bennon, W. D. and Incropera, F. P., 1989, "Solidification of a Aqueous Ammonium Chloride Solution in a Rectangular Cavity- II. Comparison of Predicted and Measured Results," *Int. J. Heat Mass Transfer*, Vol. 32, pp. 69~79.
- (12) Szekeley, J. and Jassal, A. S., 1978, "An Experimental and Analytical Study of the Solidification of a Binary Dendritic System," *Metall. Trans.*, Vol. 9B, pp. 389~398.
- (13) Beckermann, C. and Viskanta, R., 1988, "Double-Diffusive Convection during Dendritic Solidification of a Binary Mixture," *Physico-Chemical hydrodyn.*, Vol. 2, pp. 195~213.
- (14) Christenson, M. S., Bennon, W. D. and Incropera, F. P., 1989, "Solidification of a Aqueous Ammonium Chloride Solution in a Rectangular Cavity- I. Experimental Study," *Int. J. Heat Mass Transfer*, Vol. 32, pp. 47~68.
- (15) Nishimura, T., Imoto, T. and Miyashita, H., 1994, "Occurrence and Development of Double-Diffusive Convection During Solidification of a Binary System," *Int. J. Heat Mass Transfer*, Vol. 10, pp. 1455~1464.
- (16) Thompson, M. E., and Szekeley, J., 1989, "Density Stratification Due to Counterbuoyant Flow Along a Vertical Crystallization Front," *Int. J. Heat Mass Transfer*, Vol. 32, pp. 1021~1036.
- (17) Schweitzer, P. A., 1995, "Corrosion Resistance Tables," *M. Dekker*, 4th ed. pp 80~81.