

고에너지 물질의 연소반응 해석을 위한 반응속도식 개발 및 정의에 관한 연구

김보훈* · 여재익*†

A study on development of reaction rate equation for reactive flow simulation in energetic materials

Bohoon Kim* · Jai-ick Yoh*†

ABSTRACT

A modified Ignition and Growth(I&G) model which is necessary to simulate the combustion phenomena of energetic materials and an analytical model determining the unknown parameters of the reaction rate equation are proposed. The modified I&G model sustains important physical implications with overcoming some problems of previous rate equations. This rate model consist of Ignition term which represent the formation of the hotspot due to void collapse and Growth term which means the shock to detonation transition phenomena. Also, the theoretical model is used to investigate the combustion characteristics of certain energetic materials before running Hydrocode by pre-determination of unknown parameter, b, G, x, I . The analytical model provides efficient and highly accurate results rather than previous method which simulated the unconfined-rate-stick via the numerical means.

초 록

고에너지 물질의 연소 현상을 해석하기 위하여 반드시 필요한 반응속도식과 이를 구성하고 있는 미정상수를 결정하는 이론적 방법을 제안하였다. 개선된 I&G 모델은 기존의 반응속도식이 갖던 문제점들을 효과적으로 극복하면서 동시에 중요한 물리적 의미를 내포하는 형태로 제안되었다. 이는 공극붕괴(void collapse)로 인한 hotspot의 생성을 의미하는 점화 모델과 폭굉(detonation)으로의 전이를 의미하는 화염 발달 모델의 합으로 구성되어 있다. 또한 함께 소개된 이론적 모델은 고에너지 물질의 수치해석 기법인 Hydrocode를 사용하기 전에 미정상수 b, G, x, I 를 결정함으로써 특정 고에너지 물질의 연소 특성을 규명하는데 사용된다. 이론적 방법은 기존의 고에너지 물질의 연소 시험을 모사한 수치해석적 방식보다 효율적이고 정확도가 높은 결과를 제공하므로 진일보 된 방법이라고 할 수 있다.

Key Words: Energetic Materials(고에너지 물질), Reaction Rate Equation(반응속도식),
Modified I&G model(개선된 I&G 모델), Unknown Parameters(미정상수결정)

* 서울대학교 기계항공공학부 항공우주신기술연구소

† 교신저자, E-mail: jjyoh@snu.ac.kr

1. 서 론

고에너지 물질(Energetic Materials)은 연료 물질과 산화제로 이루어진 복합체로 외부에서 에너지가 가해지면 화학적 엔탈피가 열적 엔탈피로 급격하게 변화하는 물질이다. 따라서 고에너지 물질은 로켓과 미사일 등의 연소부나 폭발 및 폭발물 등 짧은 시간동안 큰 힘을 필요로 하는 시스템에 주로 사용된다.

고에너지 물질이 연소될 때 순간적으로 높은 압력과 온도 환경을 형성하며 폭연(deflagration) 혹은 폭굉(detonation)과 관련된 현상들이 복합적으로 나타나기 때문에 유동 및 연소장이 어떠한 특성을 갖는지 규명하는 것은 매우 어려운 것으로 알려져 있다. 또한 어떤 충격이 고에너지 물질에 가해졌을 때 과연 점화가 진행될 것인지 여부를 예측하는 것 또한 쉽지 않다. 그럼에도 불구하고 고에너지 물질은 각종 산업 환경에서 사용되고 있고, 폭발사고 분석이나 군사목적에 따라 광범위하게 활용되기 때문에 이에 대한 현상을 해석할 수 있는 기반을 마련한다는 것은 매우 중요하다. 특히, 종말효과가 높은 효율적인 무기체계를 설계하기 위해서는 화약의 폭발현상에 대한 이해가 필수적이라고 할 수 있다.

고에너지 물질의 폭발 현상을 이해하고 화약이 충전된 무기체계의 성능과 취약성을 검증하기 위해서 다양한 형태의 실험적 시도들이 있었다.[1,2] 그러나 실험적 방법은 막대한 시간과 비용을 요구하고 고압과 고온 환경이라는 극악조건으로 인한 잠재적 위험성을 내포하고 있기 때문에 고에너지 물질의 실험적인 접근이 쉽지 않다. 이에 따라 최근 수치해석적 연구에 대한 필요성이 점차 증대되고 있는 실정이다. 수치해석에 기반한 폭발현상 해석은 시험을 통해 얻기 힘든 다양한 해석 결과를 비교적 용이하게 제공하며, 여러 형태의 전산모의 시험(numerical experiment)을 할 수 있기 때문에 비용절감은 물론 고에너지 물질을 활용한 화약의 개발기간을 단축시킬 수 있는 장점이 있다.

그러나 아직 수치해석을 통해 고에너지 물질의 폭발현상을 연구하기 위해서 해결해야 할 부

분이 많이 남아 있다. 먼저 화약의 정확한 구성관계식(constitutive relation)을 파악해야 하는 문제가 있다. 구성관계식은 상태방정식(equation of state)과 반응속도식(reaction rate equation)으로 이루어져 있다. 이중 상태방정식은 화약의 반응 전 고체 상태와 반응 후 폭발반응으로 형성된 가스 상태를 기술하는 관계식을 의미하는데, 현재까지 개발된 고에너지 물질의 상태방정식은 적용되는 화약에 따라 차이가 있지만 해석에 큰 지장이 없는 수준에서 양호한 정보를 제공한다. 그러나 반응속도식은 고에너지 물질에 따른 고유한 특성이기 때문에 각각의 화약에 대한 폭발 특성을 잘 묘사할 수 있는 관계식을 결정해야 한다. 이를 위하여 화약의 반응특성을 기술할 수 있는 폭발역학이론(Detonation Shock Dynamics)과 I&G 모델(Ignition & Growth model), 그리고 JWLL++ 모델(Jones-Wilkins-Lee++ model)의 반응속도식 모델이 제안되었다.

폭발역학이론[3]은 Wood와 Kirkwood의 폭발이론을 일반화하여 Bdzil에 의하여 개발된 2차원 정상상태의 폭발현상을 기술할 수 있는 폭발이론으로써, 2차원 고유치 이론(2D eigenvalue detonation theory)을 이용하여 폭발파에 대한 유체역학 방정식들을 폭발파면에 수직인 방향과 평행인 방향의 고유좌표계(intrinsic-coordinate system)로 변환하여 표현하는 방식이다. 폭발역학이론은 폭발파면의 곡률이 작은 상태를 전제로 하는데, 이 때 반응대역 내의 흐름을 1차원 준 정상상태(quasi-steady state)로 단순화시켜 표현할 수 있기 때문에 유체역학의 2차원 편미분 방정식들을 근사적으로 1차원 상미분 방정식으로 변환할 수 있다. 따라서 폭발역학이론은 비교적 간단한 상미분방정식을 풀어 반응대역내의 흐름에 대한 해석이 가능하다는 장점이 있다. 하지만 반응대역 길이가 화약의 크기와 폭발파의 곡률에 비해 작지 않은 경우와 화약 경계면에서의 폭발파의 왜곡이 큰 경우에는 폭발역학이론을 적용하는데 어려움이 있다는 물리적 한계가 있다.

I&G 모델[4]은 Tarver와 Edward Lee에 의해 고안된 폭굉(detonation)을 기반으로 하는 연소

현상을 모사하기 위한 반응식으로 미 에너지부 연구소(LLNL)를 중심으로 검증되었으며, 현재 AUTODYN을 비롯한 대부분의 상용코드에서도 폭넓게 쓰이고 있다. I&G 모델은 hotspot의 발생 및 그에 의한 영향을 고려하며, 반응물과 생성물의 상태방정식과 1개의 생성물의 분율 관계식으로 구성되어 있다.

고에너지 물질이 급격하게 연소하는 폭굉 현상은 기폭 물질의 화학적 에너지를 대단히 짧은 시간($\sim 1 \mu\text{s}$)내에 높은 온도($\sim 3000 \text{ K}$)의 폭발반응 생성기체와 높은 압력($10\sim 50 \text{ GPa}$)의 충격파($\sim 5 \text{ km/s}$) 형태로 방출하는데, I&G 모델은 초고속으로 전파되는 반응파(reacting wave) 생성에 관련된 폭굉 반응 해석에 가장 적합한 모델로 알려져 있다. 폭굉 현상은 연소 반응이 급격하게 발생하여 압력의 팽창과 구배가 지배적인 요소로 작용하기 때문에 초음속으로 전파되는 화염이 있는 문제에 대해서는 압력을 고려하는 I&G 모델이 적합하나, 일반적으로 연소 반응이 느려 화염이 아음속으로 전파되는 폭연 현상의 경우는 온도에 큰 영향을 받기 때문에 I&G 모델을 적용하는데 한계가 있을 수 있다. 또한 I&G 모델이 포함하는 12개의 미정상수(unknown parameters)들을 동시에 다발적으로 결정하는데 비교적 많은 시간과 비용이 요구된다는 단점이 있다.

JWL++ 모델[5]은 Jones와 Wilkins, Lee에 의해 고안된 화학반응식이다. 이 모델은 I&G 모델을 간략화한 형태로, 방정식을 구성하는 미정상수의 수가 적기 때문에 실험이나 경험식을 통해서 용이하게 파라미터들을 구할 수 있다는 장점이 있다. I&G 모델로부터 몇 가지 가정에 의해 방정식이 간략화 되었으나, 고에너지 물질의 연소현상에 대한 모사를 I&G 모델과 거의 유사한 수준에서 해석할 수 있다는 강점이 있다. 그러나 이 모델은 점화(ignition) 메커니즘을 생략하고 화염의 발달(growth)만 고려하기 때문에 초기 hotspot의 생성을 물리적으로 모델링하지 못한다는 단점을 지닌다. 따라서 JWL++ 모델은 사용하기에 편리하나 점화가 진행될 것인지 여부를 판단할 수 없다는 한계가 있다.

따라서 고에너지 물질의 연소 반응 현상을 모사하기 위해 점화와 화염의 발달을 모두 고려할 수 있으면서 동시에 각각의 고에너지 물질마다 다른 폭발특성을 나타내는 화약의 고유한 특성 관계식을 용이하게 정의할 수 있는 반응속도식 모델이 요구된다. 즉, I&G 모델이 갖는 물리적 타당성과 JWL++ 모델의 미정상수 결정에 대한 용이성을 동시에 갖고 있는 강력한 연소반응 모델링 기법이 필요하다. 이러한 요구에도 불구하고, 아직 이 분야에 대한 연구가 대체적으로 이루어져 있지 않은 상태이며, 특히 반응속도식을 구성하는 미정상수를 결정하는 방법론이 아직 정립되어 있지 않은 실정이다.

I&G 모델과 JWL++ 모델을 사용한 기존의 연구[5-7]에서는 연소장 전체를 반복적으로 풀어 얻은 수치해석 결과와 실험 데이터를 비교하는 방식으로 대상으로 한 고에너지 물질의 미정상수값을 결정했다. 따라서 기존의 방법은 상당한 크기의 비용과 시간이 소요되는 연소장 해석을 실험 결과와 동일한 결과를 얻을 때까지 계속적으로 수행해야 하는 비효율성을 갖고 있으며, 수치해석을 통해 도출된 결과가 사용된 격자의 개수와 코드내 접목된 수치해석 기법들에 따라 달라질 수 있기 때문에 정확한 미정상수값을 결정하는데 한계가 있었다. 따라서 기존의 I&G 모델과 JWL++ 모델의 미정상수 결정 방법은 정량적이기 보다는 정성적 측면에서 이를 결정하는 수준이라고 할 수 있다.

따라서 본 연구에서는 고에너지 물질의 폭발 현상을 수치해석적 방법으로 해석하기 위한 선행연구로써 I&G 모델과 JWL++ 모델의 장점을 동시에 지니면서 단점을 극복할 수 있는 새로운 형태의 반응방정식을 제안하고자 한다. 그리고 고에너지 물질의 반응속도식을 구성하고 있는 미정상수들의 특성과 역할을 고찰하여, 기존의 방법이 가지고 있던 비효율성과 고비용 등의 문제를 효과적으로 해결함과 동시에 수치해석과 관련된 격자와 기법들에 무관하게 미정상수들을 결정할 수 있는 새로운 방법론을 제시하는 것을 목적으로 한다.

2. 개선된 I&G 모델

2.1 I&G 모델

I&G 모델(Ignition and Growth model)의 질량분율 방정식은 점화(ignition)와 화염의 발달(growth)에 관계된 식들의 합으로 구성되어 있다. Eq. 1은 Lee 등[4]에 의해 제안된 I&G 모델의 반응속도식이다.

$$\frac{dF}{dt} = I(1-F)^b \left(\frac{\rho}{\rho_0} - 1 - a \right)^x + G_1(1-F)^c F^d P^y + G_2(1-F)^e F^g P^z \quad (1)$$

여기서 F 는 연소질량분율(burned mass fraction)을 의미하며, $I, b, a, x, G_1, c, d, y, G_2, e, g, z$ 는 미정상수(unknown parameters)이고, P, ρ, t 는 각각 압력, 밀도, 시간을 의미한다.

I&G 모델은 고체 상태의 물질이 충격파나 외부 충격에 의해 압축되어 hotspot 생성을 나타내는 점화항(ignition term, I)과 hotspot에 의해 고체 물질 내에서 주변으로 확산되는 반응성 전파에 의한 영향을 의미하는 첫 번째 화염발달항(1st growth term, G_1), 그리고 고에너지 물질의 반응속도가 점차 증가하면서 충격파를 동반한 폭풍으로 급격히 천이하는 현상에 의한 영향을 의미하는 두 번째 화염발달항(2nd growth term, G_2)의 합으로 이루어져 있다. I&G 모델을 구성하고 있는 12개의 미정상수들을 결정하는 방법으로 실험에 의해 측정된 표본화(sampling)한 데이터베이스에 대하여 알맞은 곡선을 계산하고 산출해 나가는 곡선 맞춤(curve fitting) 방식이 있다. 이 수법은 평면 위에 흩어진 점에 대하여 어떤 파형 또는 함수에 측정값과의 제곱오차합(root mean square)을 구하고 그것을 최소가 되도록 하여 각 점으로부터 곡선의 편차를 줄여 나가는 방식이다. 하지만 미정상수들의 값들을 결정할 때 곡선 맞춤 기법과 같은 귀납적 추리는 물리적으로 한계가 있을 수 있다. 모든 고에너지 물질이 각각 다른 연소 거동 특성을 보이고 이 때 미정상수들의 값도 달라지기 때문이다.

또한 일반적으로 미정상수의 값을 정확히 계산하려면 변수의 개수만큼 방정식이 필요하고, 이를 위해 곡선 맞춤 기법과 함께 전역적 최적화 기법(global optimization method)이나 확률론적 탐색 기법(stochastic search techniques)을 도입한다고 해도 I&G 모델은 너무 많은 수의 미결정 상수들의 존재로 인해 그 값을 명확하게 정의하는데 어려움이 있다. 따라서 I&G 모델은 hotspot 생성에 의한 점화 메커니즘과 화염의 발달 및 폭풍으로의 천이 현상까지 모든 연소 현상을 아우르는 물리적 모델로 구성되어 있으나, 모델을 구성하고 있는 많은 미정상수들로 인해 실효성에 문제가 있다.

2.2 JWL++ 모델

JWL++ 모델은 I&G 모델에 비해 굉장히 간단한 형태로 구성되어 있다. I&G 모델에서 상대적으로 영향이 적은 점화항(I)과 두 번째 화염발달항(G_2)을 무시하고, 남은 화염발달항(G_1)에서 G_1 을 G 로, 그리고 $F^d P^y$ 를 $(P+Q)^b$ 와 같다고 가정하여 일반화 시키면, I&G 모델에서 Eq. 2와 같은 JWL++ 모델을 얻을 수 있다.

$$\frac{dF}{dt} = G(P+Q)^b(1-F)^c \quad (2)$$

우리는 인공점성(artificial viscosity)을 의미하는 Q 값과 연료소모량(fuel depletion)을 의미하는 $(1-F)$ 의 계수인 c 값을 임의로 조절하면서 JWL++ 모델을 조율(tuning)할 수 있지만, 이에 대한 영향 또한 무시하면 결과적으로 다음과 같은 수식을 얻는다.

$$\frac{dF}{dt} = GP^b(1-F) \quad (3)$$

여기서, G 는 반응상수(rate constant)이고, b 는 압력기반계수(power dependence on pressure)이다. 이는 질량분율의 시간에 대한 상미분이 결국 몇 가지 상수들로 이루어진 간단한 형태의 방정식으로 표현될 수 있음을 의미한다.

여기서 P 는 압력을 의미하고 Eq. 4와 식 Eq. 5로 반응 전과 후의 압력을 각각 구할 수 있다.

$$P_{unreacted} = \frac{1}{n\kappa} \left(\frac{1}{\nu^n} - 1 \right) \quad (4)$$

$$P_{reacted} = Ae^{-R_1\nu} + Be^{-R_2\nu} + \frac{C}{\nu^{1+w}} \quad (5)$$

Equation 4와 5는 연소질량분율(F)과 연료소모량($1-F$)을 이용하여 다음과 같이 통합적으로 표현된다.

$$P_{total} = (1-F)P_{unreacted} + FP_{reacted} \quad (6)$$

JWL++ 모델을 다소 결정하기 어려운 I&G 모델을 간략화한 형태로 구성되어 모델 상수가 적기 때문에 비교적 미정상수 결정이 용이하다. 그리고 화염의 발달과 폭굉에 대한 모사는 I&G 모델과 유사한 수준에서 결과를 제공하기 때문에 매우 유용한 모델이라고 할 수 있다. 그러나 초기 hotspot 생성을 고려하지 않음으로 인해 점화 메커니즘이 생략되어 화학반응의 시작(initiation) 여부를 해석할 수 없다는 물리적 한계를 갖는다.

2.3 개선된 I&G 모델

본 연구에서는 I&G 모델의 물리적 타당성과 JWL++ 모델의 용이성을 동시에 포함하는 새로운 형태의 반응방정식을 제안하고자 한다.

$$\frac{dF}{dt} = I(1-F)\eta^x + G(1-F)P^b \quad (7)$$

$$\eta = \frac{\rho}{\rho_0} - 1$$

Equation 7은 I&G 모델에서부터 JWL++ 모델을 유도한 일반화 과정에서 사용된 가정들을 점화항에도 적용하여 Eq. 3과의 합으로 도출한 결과이다. 즉, I&G 모델의 조절상수들을 생략함으로써 물리적으로 반드시 존재해야 하는 항들만으로 구성된 개선된 I&G 모델(modified I&G model)이다. 이 모델은 점화와 화염 모델을 동

시에 지니는 간략화 된 형태로, I, x, G, b 총 4개의 미정상수를 포함하고 있다.

점화항은 점화 상수(ignition constant, I)와 연료소모량, 그리고 압축(compression)을 의미하는 압력비항으로 구성되어 있다. 여기서 압축항($\eta = \rho/\rho_0 - 1$)은 고에너지 물질이 외부 요인에 의해 점화가 실제로 시작(initiation)되는 제약조건(constraint)으로 스위치 기능(switch function)의 역할을 한다. 즉, 초기밀도인 ρ_0 와 현재 상태의 밀도 ρ 가 같은 상태일 때는 압축항 전체가 0이 되어 반응속도 또한 0이 된다. 이는 점화가 일어나지 않은 상태를 의미한다. 반면, 고에너지 물질에 외부 충격이 가해짐에 따라 국부적 압축이 발생하고 압축항이 0이 아닌 값을 갖게 되면서 점화가 시작된다. 이때 발생된 국부적 압축을 hotspot의 생성(formation) 메커니즘이라고 한다.

본 연구에서 제안한 개선된 I&G 모델을 다양한 고에너지 물질을 대상으로 적용하여 물리적 타당성과 효율성을 검증해야 하겠으나, 개선된 반응속도식을 사용하기 위해서는 먼저 4개의 미정상수들을 결정하는 방법론을 구축해야 한다. I&G 모델이나 JWL++ 모델에서 아직까지 알려지지 않은 부분은 반응속도식을 구성하고 있는 상수들을 과연 어떻게 결정하는가에 대한 문제이다. 개선된 I&G 모델이 아무리 간략화 된 모델이라고는 하나, 미정상수값을 결정하는 방법을 모른다면 무용지물이나 다름이 없다. 따라서 본 연구에서는 간략화 된 반응속도식의 미정상수들을 결정하는 방법을 제안하고자 한다.

3. 미정상수 결정

3.1 기존의 미정상수 결정법

기존의 JWL++ 모델의 미정상수인 b 와 G 는 JWL++ 모델이 적용된 Hydrocode[7] 전체를 시간에 따라 풀어 도출된 연소장 결과를 고에너지 물질의 연소 시험(unconfined rate stick)의 폭굉 파속(detonation velocity)과 반지름 간의 관계를 통해 조율(tuning)하는 방식으로 결정하였다[5-7]. 또한 기존에는 미 에너지부 연구소(LLNL)의

Lee 등[4]에 의해 제안된 상수값들을 참조하여 JWLL++ 모델을 정의하는 방식으로 해석해 왔지만, 최근 폭발물의 종류가 다양해지고 각각의 폭발물 대상에 따라 미정상수들의 값이 다르기 때문에 일반적으로 모든 고에너지 물질에 대하여 반응속도식의 미정상수값들을 결정하는 방법론을 정립하려는 요구가 계속 이어져 왔다.

따라서 본 연구에서는 개선된 I&G 모델을 사용하는데 있어서 가장 핵심적인 부분이라고 할 수 있는 미정상수를 결정하는 방법을 정립하는데 목적이 있다. 기존의 방법이 갖고 있는 문제점을 분석하고 이를 해결할 수 있는 방안을 제시하여, 본 연구에서 제안한 개선된 I&G 모델을 반응속도식으로 사용할 때 반드시 필요한 미정상수들을 결정하는 과정을 새롭게 제안하고자 한다. 이를 통해 특정 고에너지 물질의 반응 특성을 기술할 수 있는 반응속도식을 정의할 수 있고, 화약의 화학반응을 해석할 수 있는 수치해석적 기법인 Hydrocode를 구축하는데 기여할 수 있을 것으로 생각된다.

기존에는 화약의 크기효과(size effect)를 고려한 고에너지 물질의 연소 시험(unconfined rate stick)에서 도출된 폭굉파의 속도와 고에너지 물질의 반지름간의 관계를 수치해석적인 방법인 Hydrocode를 완전히 풀어 도출된 값과 실험으로 측정된 데이터를 상호 반복비교 함으로써 상태방정식의 미정상수를 결정하였다. 이 방법은 고비용의 문제와 더불어 상당히 비효율적이며 도출된 값이 정량적이지 않기 때문에 문제가 있다고 사료된다. 그러나 폭굉 파속과 고에너지 물질의 연소 시험의 반지름 간의 관계를 실험결과와 비교분석하여 미정상수를 결정한다는 기본 방법론은 고에너지 물질의 반지름이 실험을 구성하는 초기조건이며, 폭굉 파속 또한 연소 실험에서 측정 가능한 가장 뚜렷한 현상 중 하나로써 정보를 획득하는데 용이하다. 따라서 기존의 방식이 가지고 있는 비효율성과 고비용 등의 문제를 효과적으로 해결함과 동시에 수치해석과 관련된 격자와 기법들에 무관하게 미정상수들을 결정할 수 있는 방안으로서 이론적 방법(analytic method)을 제안한다.

3.2 화염 발달 모델의 이론적 미정상수 결정법(b, G)

이론적 방법은 JWLL++ 모델을 해석적으로 풀어 유도된 무차원 폭굉 파속과 고에너지 물질의 반지름간의 관계식을 사용하여 b 값을 결정한 이후 차원해석을 통해 G 값을 결정하는 방법이다. 무차원화 기법은 단위를 갖는 관련 변수들을 정규화(normalization)하여 제거함으로써 물리적 의미는 유지하고 방정식을 간략화 시키는 중요한 차원해석이다. I&G 모델이나 JWLL++ 모델과 같이 다수의 미정상수들이 혼재되어 있는 경우 무차원화 기법을 통해 이들을 상쇄시킴으로써 매개변수를 줄일 수 있다. 본 연구에서 제안한 이론적 방법은 다음의 수식들로 구성되어 있다.

$$U_s = D \left(1 - \frac{\langle x_e \rangle}{\sigma R_0} \right) \quad (8)$$

고에너지 물질의 연소 실험(unconfined rate stick)에서 폭굉파의 속도(detonation velocity)는 Eyring 등[8]이 제안한 Eq. 8과 같다. 여기서 R_0 는 초기 폭발물의 반경(initial explosive radius)이고, U_s 는 반경 R_0 일 때 폭굉파의 속도(detonation velocity at radius R_0)를 의미한다. D 는 무한 변경에서의 폭굉 파속(detonation velocity at infinite radius)이고, $\langle x_e \rangle$ 는 평균 반응구간의 길이(average reaction zone length)이다. 파라미터 σ 와 반응구간의 통과하는 시간(time to cross the reaction zone) t_e 는 경험적으로 각각 다음과 같이 정의된다[9].

$$\sigma = \frac{0.4}{(1 - (U_s/D)^2)^{0.8}} \quad (9)$$

$$t_e = \frac{\langle x_e \rangle}{U_s} \quad (10)$$

앞서 제시한 Eq. 3은 미정상수로 이루어져 있는 1계 상미분 방정식이다. 이를 적분하기 위하여 F 에 관계된 항을 좌변으로 넘기고 남은 상수들과 미소 시간항을 우변으로 모아 양변에 적분을 취하면 Eq. 11과 같은 방정식을 얻는다. 여기

서 I_F 는 F 항을 포함하는 적분(integral of all F -terms)을 의미한다.

$$I_F = \int_0^{F_c} \frac{dF}{(1-F)} = G(P_D F_c)^{b t_c} \quad (11)$$

F_c 는 반응영역(reaction zone)내에서의 연소질량분율(burn fraction)을 의미하며, P_D 는 무한 반경에서의 최대 압력(maximum pressure at infinite radius)을 뜻한다. P_m 은 반경 R_0 일 때 최대 압력(maximum pressure at radius R_0)을 의미한다. 특히, F_c 는 무차원 에너지 E_0/E_D 와 무차원 압력 P_m/P_D 에 비례하는 관계에 있기 때문에 무차원 속도의 제곱과 관계한다.

$$F_c = \left(\frac{U_s}{D} \right)^2 \quad (12)$$

Equation 8, 9, 10을 Eq. 11에 나타난 I_F 에 대입하여 정리하면, Eq. 13과 같은 무차원화 된 역반지름(inverse radius) 관계식을 얻을 수 있다.

$$\frac{R_D}{R_0} = \frac{\sigma}{I} F_c^{(b-1/2)} (1 - F_c^{1/2}) \quad (13)$$

R_D 는 기준무차원반경(generalized dimensionless radius)이고, 다음의 Eq. 14로 표현된다.

$$R_D = \frac{D}{G_D (P_D)^b} \quad (14)$$

여기서 G_D 는 무한 반경에서의 반응상수(rate constant at infinite radius)이다.

따라서 Eq. 13은 U_s/D 와 R_D/R_0 의 관계가 되며, 오직 b 값만이 미정상수로 존재한다. 따라서 관계된 b 값을 조절하면서 폭굉파의 속도와 역반지름의 관계를 도출할 수 있다. 결과적으로, 상수 b 를 조절하면서 U_s/D vs. R_D/R_0 의 관계를 도출하는 것이 이론적 방법의 핵심이다.

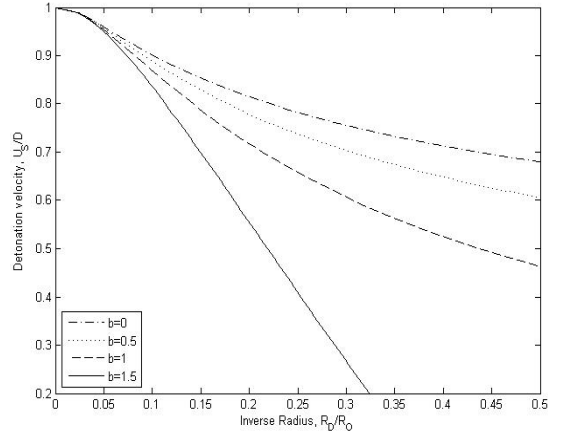


Fig. 1 Solutions of analytic model with several b values

Figure 1은 b 값 변화에 따른 폭굉 파속과 고에너지 물질의 반경의 관계를 나타낸 것이다. 상수 b 를 0.5씩 증가시켜 0부터 1.5까지 총 네 가지 경우에 대해서 적용하였다. b 가 1보다 작은 경우 폭굉 파속과 역반지름 간의 곡선이 아래로 볼록한 형태(concave-up shape)로 나타나며, 그 값이 작을수록 휘어지는 정도가 심하다. 점차 b 값이 1에 근접할수록 직선(straight line)에 가까운 형태가 되며, 다시 1보다 커지면서 위로 볼록한 형태(concave-down shape)로 나타난다.

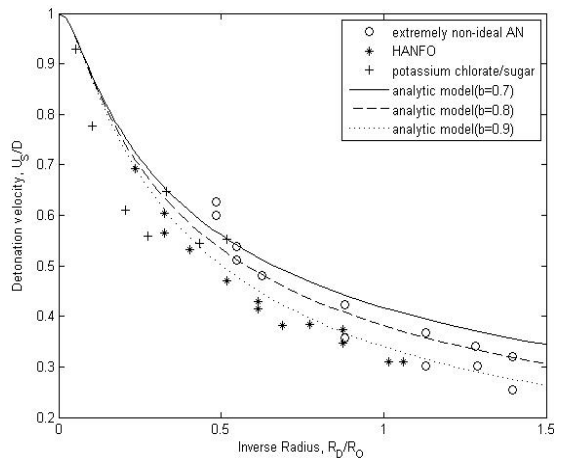


Fig. 2 Concave-up shapes for extremely non-ideal AN(circles), potassium chlorate/sugar(cross) and HANFO(star) with $b=0.7, 0.8, 0.9$

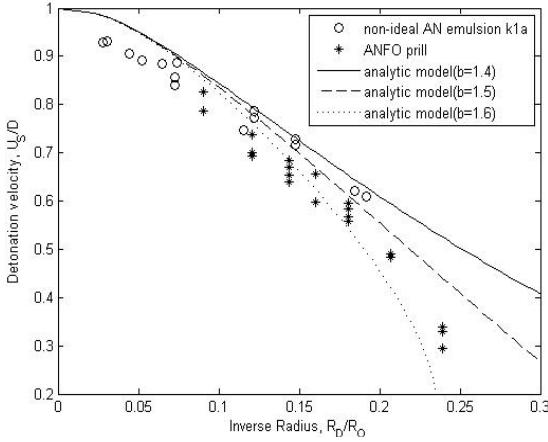


Fig. 3 Concave-down shapes for non-ideal AN emulsion k1a(circle) and ANFO prill(star) with $b=1.4, 1.5, 1.6$

폭션을 아래로 볼록한 형태를 갖는 고에너지 물질로는 AN계열, potassium계열의 화약 그리고 HANFO 등이 대표적이며, 위로 볼록한 형태를 갖는 고에너지 물질로는 PBX계열, AN-k1a계열과 ANFO 화약이 있다.

Figure 2와 3은 각각 b 값이 0.8과 1.5일 때, 폭굉 파속과 역반지름의 관계가 실험으로 측정된 값들과 매우 근접하게 도출된 이론적 방법의 결과를 나타낸 것이다. Fig. 2와 3에서 비교된 고에너지 물질들이 갖는 폭굉 파속의 특성을 본 연구에서 제안한 이론적 방법론에 의해 도출된 결과와 비교함으로써 용이하게 결정할 수 있음을 확인할 수 있다.

또한, Eq. 3에서 GP^b 는 dF/dt 와 비례관계에 있고, 0부터 1 사이의 값을 갖는 F 의 평균값은 1/2이다. 무한반경에서 GP^b 는 $G_D P_D^b$ 이고, 이는 시간에 따른 질량분율의 변화량의 평균에 비례한다. 따라서 다음과 같은 관계식을 얻는다.

$$G_D(P_D)^b = 2 \left\langle \frac{dF}{dt} \right\rangle_D \quad (15)$$

Equation 15의 관계를 Eq. 14에 나타난 무차원 반경 R_D 에 대입하고 이를 G_D 에 관한 식으로 정리하면 각각 Eq. 16, 17과 같다.

$$R_D = \frac{D}{G_D(P_D)^b} = \frac{D}{2 \left\langle \frac{dF}{dt} \right\rangle_D} \quad (16)$$

$$G \simeq G_D = \frac{2}{(P_D)^b} \left\langle \frac{dF}{dt} \right\rangle_D \quad (17)$$

앞서 이론적으로 도출한 폭굉 파속과 고에너지 물질의 무차원 반경 간의 관계를 통해 미정상수 b 를 결정할 수 있고, 고에너지 물질의 크기 효과가 무시될 수 있는 이상적인 경우에서 G 가 G_D 와 같다고 가정하면, Eq. 17을 구성하는 매개변수들은 모두 실험적으로 도출될 수 있는 상수이기 때문에 반응미정상수 G 를 결정할 수 있다.

따라서 화약의 크기효과(size effect)를 고려한 고에너지 물질의 연소 시험(unconfined rate stick)에서 도출된 폭굉파의 속도와 고에너지 물질의 반지름간의 관계를 안다면, 개선된 I&G 모델의 화염발달항을 의미하는 JWLL++ 모델의 이론적 분석을 통하여 미정상수인 b 와 G 를 용이하게 결정할 수 있다. 일반적으로 b 는 폭굉과 반지름 관계의 곡률을 결정하고, G 는 폭굉 파속의 절편(intercept)을 의미하기 때문에 이 두 상수는 고에너지 물질의 화학반응 특성을 기술하는 중요한 물리적 의미를 갖는다.

3.3 점화 모델의 미정상수 결정법(x, I)

고에너지 물질에 가해지는 여러 형태의 충격 및 열적 자극으로부터 화약의 기폭반응 여부를 판단할 수 있는 모델을 개선된 I&G 반응식의 점화항으로 구성하였다. 이 점화 모델은 x 와 I 의 두 개의 미정상수와 압축항 η 로 구성되어 있다.

화약의 폭발 모델중 하나인 SDT(shock to detonation) 현상은 충격파(shock wave)와 고에너지 물질 간의 상호 작용(interaction)에 의해 에너지가 한 지점에 응축되어 폭굉(detonation)으로 발전하는 현상을 말하는데, 응축에 의한 에너지가 활성화 에너지(activation energy)보다 클 경우 생성된 hotspot이 고에너지 물질의 점화원이 된다. 이러한 hotspot의 생성은 충격에 의한 가스 기포(또는 고체 분말 사이의 내부 공간)의 단열 압축이 원인이다.

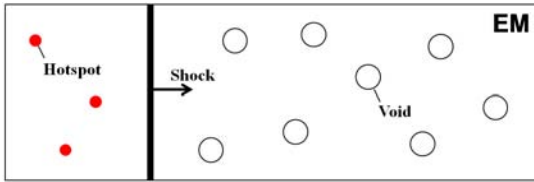


Fig. 4 Illustration of shock-to-detonation phenomena (shock propagation through an EM for hotspot formation and void collapse)

즉, Fig. 4에 나타난 것과 같이 충격파가 고에너지 물질 내부를 통해 진행하면서 국부적으로 존재하는 공극(void)을 붕괴(collapse)시킴으로써 에너지 응축을 야기하고 이렇게 생성된 hotspot이 고에너지 물질을 점화시키는 원인이 된다. 아래의 Fig. 5는 외부 충격에 의한 공극붕괴(void collapse) 현상을 도식한 것이다.

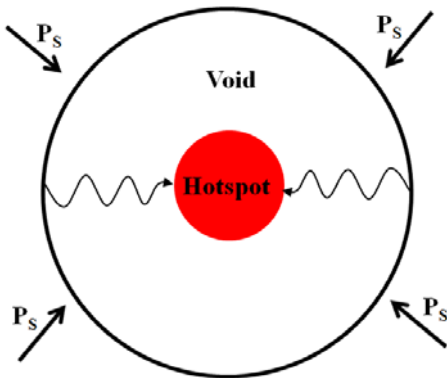


Fig. 5 Illustration of hotspot formation due to void collapse induced by shock

따라서 국부적으로 발생하는 hotspot이 고에너지 물질의 점화원으로 작용하여 화염을 형성하고 화학반응을 수반함으로써 연소반응이 발생한다. Wackerel[10, 11] 등은 충격에 의한 점화 모델이 갖는 물리적 현상들을 실험적으로 연구하였는데, PBX-9404(plastic-bonded HMX-9404)와 PETN(pentaerythritol tetranitrate) 화약의 화학반응 속도가 충격파의 세기(shock strength)와 밀접한 관련이 있고, 실험을 통해 화약의 반응속도식이 충격파의 압력의 제곱에 비례함(shock-pressure-squared dependence)을 규명하

였다. 즉, Arrhenius 형태로 표현되는 고에너지 물질의 화학반응속도의 기울기는 온도와 관계하고, 절편에 해당하는 지수앞자리인자(pre-exponential factor)는 압력의 제곱과 관계한다는 것이다. 또한 랭킨-위고니오(Rankine-Hugoniot) 관계식으로부터 불연속적 파동인 충격파의 세기를 압축부와 팽창부의 압력비로 나타낼 수 있고, 이를 밀도와 함께 도식하였을 때 압력은 비체적과 포물선(parabola) 관계를 갖는다.

따라서 밀도의 변화에 의한 점화 기폭 모델인 hotspot 생성 메커니즘은 개선된 I&G 모델의 점화항에 포함되어 있는 압축항 η 와 물리적 의미가 상통하고, 압축항에서의 밀도는 압력의 이차함수로서 제곱에 비례하며, 공극붕괴현상(void collapse)이 점화원으로 작용하는 고에너지 물질에서는 화학반응속도의 절편이 압력의 제곱에 관계하므로 밀도의 지수는 4승이 된다. 즉, 압축항 η 의 지수인 x 는 공극붕괴로 생성된 hotspot 형성에 의한 점화가 지배적인 메커니즘으로 작용하는 문제에 대해서는 4의 값을 갖는 것이 타당하다고 할 수 있다. 이 외에 정체된 마이크로 제트(stagnation of micro jets)에 의한 점화인 경우에는 3의 값을, 충격에 의한 변형 속도(strain rate in the shocked)가 점화 속도와 비례한다고 가정하는 경우에는 1의 값을 가질 수 있다. 하지만 대부분의 고에너지 물질에 대해서 공극붕괴로 인한 hotspot 형성이 물리적으로 타당한 것으로 알려져 있다[12, 13].

최종적으로 4개의 미정상수를 포함하는 1개의 반응속도식이 b, G, x 를 결정하는 방법론에 따라 3개의 미정상수가 결정된 경우 1개의 미지수를 포함하는 문제가 된다. 따라서 수학적으로 닫힌 문제가 되며, 최종 미정상수 I 를 변수로 하여 시간에 따른 연소질량분율(dF/dt)을 계산하면 시간과 연소질량분율의 관계를 얻을 수 있다.

Table 1. LX-17 explosive parameters

parameters	I	G	b	x
case1	3.0×10^6	550	0.8	4
case2	4.0×10^6	550	0.8	4
case3	5.0×10^6	550	0.8	4

Table 1은 LX-17 화약에 대한 b, G, x 의 값을 사용하여 미정상수 I 를 변화시켰을 때 질량분율이 시간에 따라 어떻게 나타나는지 비교하기 위해 사용한 값들을 나타낸 것이고, Fig. 6은 개선된 I&G 모델에 Table 1의 주어진 값들을 사용하여 질량분율의 시간에 따른 변화량을 나타낸 것이다.

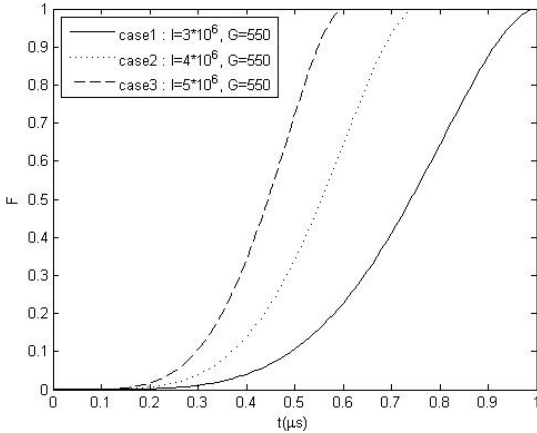


Fig. 6 Time trace of the burn fraction of LX-17 explosive using modified I&G model

점화미정상수 I 가 큰 값을 가질수록 반응속도가 빨라지기 때문에 case1에서부터 case3으로 갈수록 곡선의 기울기가 증가하고 이는 더욱 빠른 시간 안에 연소 될 수 있음을 의미한다. 만약, 어떤 특정한 고에너지 물질의 시간에 따른 연소 질량분율의 정보를 실험을 통해 알 수 있다면, 다음과 같은 비용 함수(cost function)를 통해 최적화 된 미정상수 값 I 를 결정할 수 있다.

$$Z = \frac{\sum_i c_i |F_{c,i} - F_{e,i}|}{n} \quad (18)$$

여기서 Z 는 비용 함수이며, c_i 는 가중 인자(weight factor), $F_{c,i}$ 는 이론적 모델을 사용한 개선된 I&G 모델의 시간에 따른 질량분율(calculated burn fraction history datum), $F_{e,i}$ 는 실험적으로 측정된 시간에 따른 질량분율

(experimental burn fraction datum), 그리고 n 은 총 비교 데이터 포인트의 개수(total number of data points)를 의미한다. 실험 측정값과 이론적 모델로 도출된 질량분율의 데이터를 비교하여 비용 함수인 Z 가 0으로 수렴하는 점화미정상수 I 를 결정하는 것이 최적화 기법의 핵심이다.

4. 결 론

개선된 I&G 모델은 기존의 반응속도식이 갖던 문제점들을 효과적으로 극복하면서 동시에 중요한 물리적 의미를 내포하는 형태로 제안되었다. 이는 공극붕괴로 인한 hotspot의 생성으로 점화가 발생하는 모델과 폭굉으로의 전이를 의미하는 화염 발달 모델의 합으로 구성되어 있다. 제안된 반응속도식은 b, G, x, I 의 총 4가지 미정상수를 갖는 질량분율방정식을 의미한다.

각각의 고에너지 물질에 따라 화학반응 속도가 다르기 때문에 미정상수의 값도 달라진다. 따라서 모든 화약에 대하여 화학반응 특성을 결정할 수 있는 방법론이 함께 제안되었다. 시간에 따라 연소되는 연료의 질량 분율의 관계식으로부터 폭굉파의 속도와 고에너지 물질의 반지름간의 관계식을 유도하였고, 이 방정식에 관계된 미정상수 b 값을 조절하면서 특정 고에너지 물질의 연소 특성을 규정하였다. 이후 화약의 크기효과를 통해 폭굉 파속의 절편을 의미하는 G 를 추출하고, hotspot 형성 메커니즘에 기반한 압축항의 지수 x 를 결정하였다. 최종적으로 점화상수 I 는 실험과 이론적 방법의 질량 분율 비교를 통해 도출할 수 있다. 이러한 방법은 기존의 고에너지 물질의 연소 시험을 모사한 수치해석적 방식보다 훨씬 빠르고 정확한 결과를 제공하므로 진일보 된 방법이라고 할 수 있다.

후 기

본 연구는 고압충격 폭발현상 해석기법 특화연구실의 HH-5과제와 ADD 위탁과제에 지원을 받아 수행된 것이며, 지원에 대하여 감사드립니다.

참 고 문 헌

1. Tarver, C. M., Kury, J. W. and Don, B. R., "Detonation waves in triaminotrinitro benzene," *Journal of applied physics*, Vol. 82, No. 8, 1997, pp.3771-3782
2. Kim, C. H. and Yoh, J. J., "Surface chemical reaction of LASER ablated aluminum sample for detonation initiation," *Journal of applied physics*, 109, 093510, 2011
3. Bdzil, J. B. and Stewart, D. S., "Modeling two-dimensional detonation with detonation shock dynamics," *Physics of Fluids*, A1. 3, 1989, pp.1261-1267
4. Lee, E. L. and Tarver, C. M., "Phenomenological model of shock initiation in heterogeneous explosives," *Physics of Fluids*, Vol. 23, No. 12, 1980, pp.2362-2372
5. Souers, P. C., Anderson, S., Mercer, J., McGuire, E. and Vitello, P., "JWL++: A Simple Reactive Flow Code Package for Detonation," *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, Vol. 25, 2000, pp.54-58
6. Guilkey, J. E., Harman, T. B. and Banerjee, B., "An Eulerian-Lagrangian approach for simulating explosions of energetic devices," *Computers and Structures*, Vol. 85, 2007, pp.660-674
7. Kim, K. H. and Yoh, J. J., "Shock Compression of Condensed Matter using Eulerian Multi-material Method," *Journal of Applied Physics*, Vol. 103, 113507, 2008
8. Eyring, H., Powell, R. M., Duffey, G. E. and Parlin, R. B., "The Stability of Detonation," *Chem. Rev.* Vol. 45, No. 144, 1949
9. Souers, P. C. and Vitello, P., "Analytic Model of Reactive Flow," *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, Vol. 30, No. 5, 2005, pp.381-385
10. Wackerle, J., Johnson, J. O. and Halleck, P. M., "Shock Initiation of High-Density PETN," 6th Symposium on Detonation, ACR-221, LA-UR-76-1201, 1976, pp.20-29
11. Wackerle, J., Rabie, R. L., Ginsberg, M. G. and Anderson, A. B., "A Shock Initiation Study of PBX-9404," in *Proceedings of the Symposium on High Dynamic Pressures*, LA-UR-78-1219, 1978, pp.127-139
12. Cooper, S. R., Benson, D. J. and Nesterenko, V. F., "A numerical exploration of the role of void geometry on void collapse and hot spot formation in ductile materials," *International Journal of Plasticity*, Vol. 16, 2000, pp.525-540
13. Jones, D. A., Kemister, G. and Borg, R. A. J., "Numerical simulation of detonation in condensed phase explosives," DSTO-TR-0705, AR-010-605, 1998