

이중확산대류계에서의 부력효과에 관한 연구(I) - 실험적 연구 -

김 양 훈* · 현 명 택** · 김 민 찬***
(98년 12월 2일 접수)

A Study on Buoyancy Effects in Double-Diffusive Convecting System

Yang-Hun Kim* · Myung-Taek Hyun** · Min-Chan Kim***

Key Words : Double-Diffusive Convecting System(이중확산대류계), Electrolysis(전기분해), Anode(양극), Cathod(음극), Limiting Current(한계전류), Diffusion(확산), Convection(대류)

Abstract

Double-diffusive convection with vertical temperature and concentration gradients in thermally stratified fluids has been investigated experimentally using an electrochemical technique. Cupric sulfate-sulfuric acid solution confined between two horizontal copper electrodes was used. The change of thermal and solutal buoyance has no influence on the range of voltage for the limiting current. Due to Soret effect, the onset time of natural convection is delayed as the stabilizing thermal buoyancy decreases. Also, it is found that the shrinkage of the unstabilizing solutal buoyancy makes the onset of natural convection retard. Multi-layered convective phenomena do not appear because cupric sulfate-sulfuric acid solution is thermally stratified, and heat diffuses faster than cupric sulfate solution.

1. 서 론

수평면에 위치한 유체층의 밑면을 가열하거나 윗면을 냉각할 때 온도차에 의한 밀도의 변화로 부력이 발생하게 되고 이는 유체의 유동을 유발

시키는 자연대류로 나타나게 된다. 부력의 발생요인은 매우 다양한데 두 부력인자의 복합에 의해 유발되는 대류 불안정성 문제를 이중확산대류(double-diffusive convection)이라 하며 이중확산에 의한 자연대류는 고전적인 Benard 문제보다

* 제주대학교 대학원 기계공학과

** 정회원, 제주대학교 기계공학과

*** 제주대학교 화학공학과

훨씬 다양한 유형의 유동이 생기게 된다¹⁾. Turner²⁾는 이중확산 현상을 규정짓는 최소한의 두가지 조건을 제시하였는데, 첫째는 밀도변화를 일으키기 위해서는 확산계수가 다른 두가지 이상의 성분이 있어야 한다는 것이고, 둘째는 그 성분들이 수직 밀도구배에 서로 반대되는 영향을 일으켜야 한다는 것이다. 이 때의 이중확산대류는 온도에 대한 Rayleigh 수, 농도에 대한 용질 Rayleigh 수와 Lewis 수에 의존하게 되며, 이러한 무차원수들이 이중확산대류 발생요인을 규명하는데 있어서 중요한 역할을 하게 된다.

일반적으로 자연대류는 열교환 및 저장, 전기도급, 기체흡수, 용매추출, 증류 등의 재래적인 공정에서는 물론 태양연못(solar pond)의 설계, 대기 및 해수의 유동현상에서도 중요한 역할을 한다. 특히 산업발전의 영향으로 점진적으로 고급화, 미세화, 균질화, 순수화를 요하는 전자재료 프로세싱을 비롯한 신공정의 설계 및 제어에 있어서 이중확산대류의 영향이 심각히 거론되고 있으나 발생요인, 특성 그리고 이를 제어하는 방법에 대해서는 아직까지 정확히 밝혀지지 않고 있다.

이중확산유동에 관한 연구를 살펴보면 성층화된 용액내의 수평방향 온도구배에 의한 유동에 대한 연구는 이중확산대류의 가장 큰 특성인 대류층의 생성과 소멸 현상을 살필 수 있어서 많은 연구가 진행되어 왔다³⁾⁻⁷⁾. 특히 최근에는 실험방법의 발달로 수평방향 온도 및 농도구배에 의한 자연대류에 관한 연구가 활발하다⁸⁾⁻¹²⁾. 이중확산대류의 또 다른 유형으로는 중력과 평행한 방향으로 밀도에 영향을 미치는 각 인자가 작용하는 경우이다. 일반적으로 농도가 성층화된 유체의 밀면을 가열하는 문제에 대해 많은 연구¹³⁾⁻¹⁶⁾가 진행되었는데 시간이 경과하여 가해진 열량이 많아질수록 점차적으로 새로운 층이 생성되는 반면 하부층에서부터 인접한 층들이 서서히 합쳐지는 현상이 관찰된다.

그러나 이러한 형태의 이중확산대류에 관한 연구는 농도가 성층화된 유체에 수직방향으로 온도구배가 가해지는 경우이고, 온도가 안정되게 성층화되고 농도가 불안정하게 작용하는 경우에 대한 연구결과는 거의 없다. 따라서 본 연구에서는 열

적으로 안정되게 성층화되어 있는 수평유체층에서 급격한 농도 경계조건의 변화로 발생하는 이중확산대류의 발생조건 및 특성들을 실험적으로 구명하고자 한다. 이러한 연구는 해양, 기상, 지각내의 맨틀 등에서 관찰되는 특이한 자연현상을 이해하고, 열 및 물질전달이 수반된 각종 공정과 기술에 있어서 전달량을 예측하는 등 널리 활용될 수 있을 것으로 본다.

2. 실험장치 및 방법

2.1 실험장치

Fig. 1은 본 연구에서 사용된 실험장치를 나타낸 것이다. 먼저 실험부위(test section)를 살펴보면 수직방향으로 온도 및 농도구배를 가해주기 위해서 상·하 경계면을 두께 10mm(가로 7cm × 세로 7cm)인 구리판을 사용하였다. 온도구배를 일정하게 유지시켜 주기 위해 구리판에 깊이 8mm, 폭 10mm의 홈을 'ㄷ'자 형태로 가공하여 베이클라이트판에 부착시켜 상하 수평면을 제작하였다. 또한 농도구배를 가해주기 위해서 전기분해 방법을 이용하였는데 이를 위해 전해질 용액은 황산구리용액(CuSO₄)을 실험조건에 따라 농도를 적절히 제조하여 주었으며 전기영동에 의한 효과를 제거하기 위해 다량의 황산(1.5mol H₂SO₄)을 섞어 사용하였다(Fig. 1(a)). 이를 통해 전기장 내에서 전극반응에 의해 양극에서 생성된 Cu²⁺ 이온이 음극으로 이동하여 음극표면에 도금이 되는 구리 전극반응 물질전달계를 설정할 수 있었다.

상·하 벽면을 제외한 실험부위의 다른 부분은 두께 1cm의 투명한 아크릴판을 사용하여 제작하였는데 상·하부 구리판과 접촉시켜 밀폐용기를 만들기 때문에 실제로 전기분해가 일어나는 구리판의 전극면은 5cm×5cm이다. 아크릴로 제작된 밀폐용기와 구리판 사이에서 전해질이 새는 것을 방지하기 위해 가스킷(두께 0.3mm)을 그 사이에 집어넣었고 Fig. 1(b)에서와 같이 베이클라이트판과 판 사이에 긴 볼트를 끼울 수 있도록 하여 단단히 체결하였다.

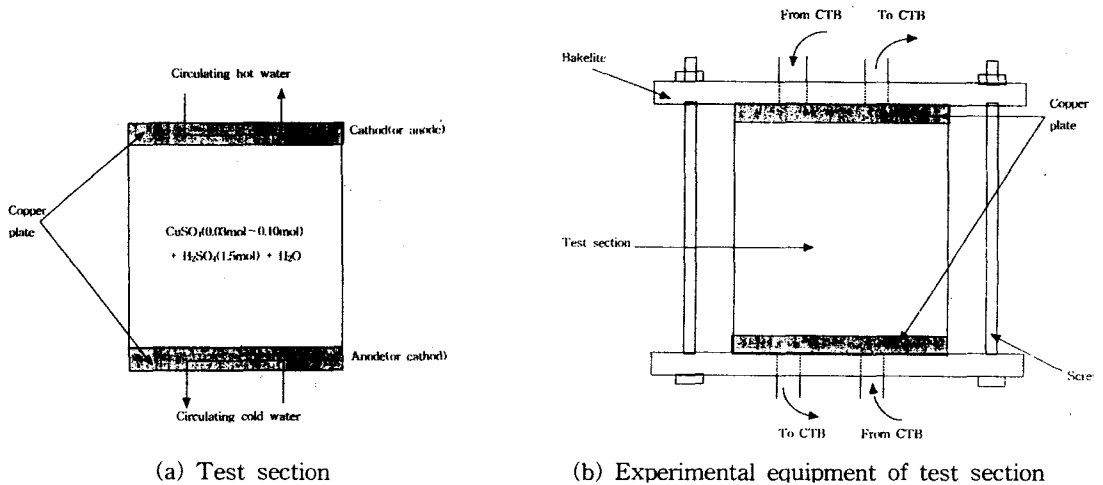
Fig. 1(c)는 본 실험장치의 전체적인 구성도이

다. 수직방향 온도구배를 가해주기 위해 상·하 수평면에 다른 온도의 물을 공급하기 위한 2개의 항온조와 농도차를 유발시킬 전위차를 걸어주기 위한 potentiostat(VersaStat사 제품) 그리고 실험 조건의 설정 및 측정 데이터의 저장을 위한 컴퓨터로 이루어져 있다.

2.2 실험방법

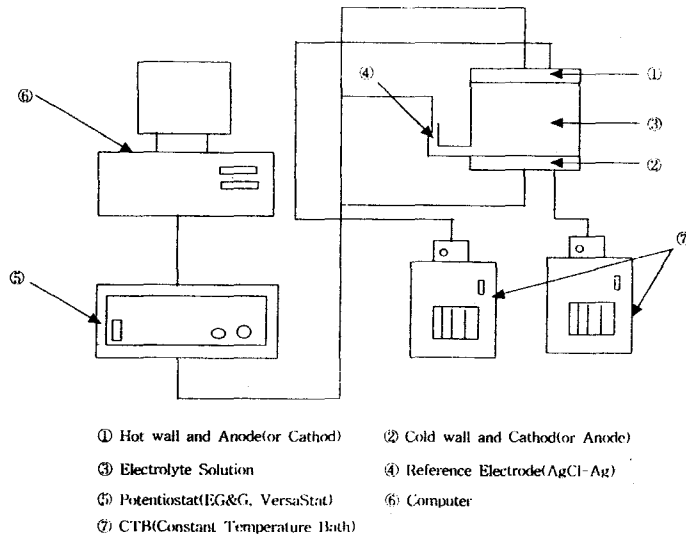
실험은 우선 한계전류(limiting current)를 측정

한 후, 확산(diffusion) 및 대류(convection)에 의한 물질전달 실험의 순서로 진행하였다. 한계전류는 실험조건에 맞는 $\text{CuSO}_4 + \text{H}_2\text{SO}_4$ 용액을 채운 다음 본 실험에서 의도한 바와 같이 열적으로 안정된 온도분포를 위해 상부 구리판에는 고온의 물을 하부 구리판에는 저온의 물을 항온조로부터 순환시켜 준다. 온도분포가 선형화 될 때까지 1시간 정도 기다린 다음 컴퓨터 상에서 potentiostat을 조작하여 전위차를 계속 증가시켜 음극 표면에서



(a) Test section

(b) Experimental equipment of test section



(c) Schematic diagram of experimental set-up

Fig. 1 Experimental set-up

수소기체가 발생할 때까지 측정하였다.

임의의 농도하에서의 한계전류가 측정되면, 한계전류에 해당되는 전위차 하에서의 물질전달 실험을 수행할 수가 있다. 확산 및 자연대류에 의해서 이루어지는 물질전달 실험은 한계전류 측정에 의해 얻어진 한계전류를 전위차로 채택하여, 컴퓨터 상에서 일정 전위차(한계전류)를 부여한 후, 전류를 측정하면 되는데 확산실험을 위해서는 상부면을 음극으로 하부면을 양극으로 설정해주고, 자연대류 실험을 위해서는 상부면을 양극으로 하부면을 음극이 되도록 전극을 형성해 주어야 한다 (Fig. 1(a)).

즉 양극에서는 다음과 같은 산화반응을 거쳐, 구리이온이 용액중으로 녹아 나온다.



한편, 음극에서는 양극의 역반응인 다음과 같은 환원반응이 일어나, 구리 이온이 음극표면에 도금된다.



이때 유체층 상부의 전극이 음극으로 설정되면 농도분포가 안정되어 확산에 의한 물질전달이 발생하나, 상부의 전극이 양극으로 설정되면 녹아나온 무거운 구리이온이 상부에 위치하게 되어 불안정한 농도분포를 띤다. 따라서 초기의 전극반응에서는 확산에 의하여 도금이 되지만, 구리이온들은 하부의 음극으로 도금되기 때문에 점차 농도차가 생기고, 역밀도 구배가 생성되어 어느 시점에서 자연대류가 발생하게 된다.

본 실험에서 전극간 거리는 5cm로 하였고, 전극면은 전술한 바와 같이 5cm×5cm로 하였다. 셀의 내부에 채워질 CuSO₄-H₂SO₄ 용액은 H₂SO₄의 농도는 1.5mol로 고정시키고 CuSO₄를 농도별(0.03, 0.05, 0.07, 0.10mol)로 제조하여 사용하였다. 또한 온도의 경우 저온벽면(하부면)의 온도를 15°C로 일정하게 유지시키고 고온벽면의 온도를 상승시켜 온도차(ΔT)가 0, 10, 20, 30°C가 되도록 하였다. 하나의 실험이 끝날 때마다 구리판 전극은 No. 1500 사포로 닦은 후 증류수로 세척하였고, 아크릴로 제작된 밀폐용기 내부는 아세톤으로 세

척하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 한계전류의 측정

전기도금을 이용한 자연대류 실험은 한계전류 하에서 실험이 이루어져야 한다. 이를 위해 실험 방법 및 절차에서 언급한 순서에 의해 전해질 용액으로 H₂SO₄ 1.5mol, 상·하부의 온도차가 0~30°C(상부가 고온, 하부가 저온), 그리고 CuSO₄의 농도가 0.03 ~ 0.10mol일 때의 구리 전극 도금에서의 전위차와 전류와의 관계를 0.1초 간격으로 측정하였다. 그중 대표적으로 H₂SO₄의 농도가 1.5mol, CuSO₄의 농도가 0.05mol인 경우에 있어서 상하 수평면의 온도차에 따른 전류밀도와 전위차를 조사하여 Fig. 2에 제시하였다. 이 그림에서 살펴보면 전위차가 증가할수록 두 전극간에 흐르는 전류는 초기에 빠르게 증가하다가 전위차가 어느 한도를 넘게되면 전류의 변화가 거의 없는 영역이 생겨난다. 이러한 영역을 한계전류라 하며, 한계전류를 벗어나면 전위차가 증가함에 따라 다시 전류밀도는 급격히 상승하게 된다. 이 영역에서는 그

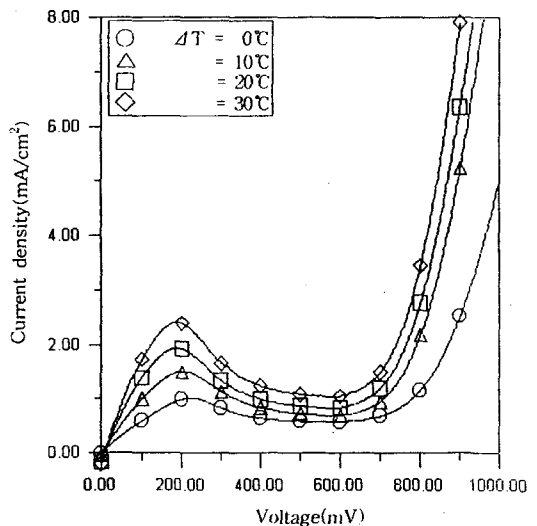


Fig. 2 Limiting current curve with temperature difference (H₂SO₄ : 1.5mol, CuSO₄ : 0.05mol)

동안 불활성물질로 고려되어 왔던 수소이온이 충분한 활성화에너지를 얻어 반응에 참가하여, $H_2SO_4 + CuSO_4$ 수용액에서 전극표면 근처에 있는 물이 전기분해되면서 수소와 산소가 발생되기 때문이다. Fig. 2에서 살펴보면 본 실험 영역에서의 한계전류는 온도차에 관계없이 전위차가 400~700mV임을 알 수 있다. 또한 이 영역은 $CuSO_4$ 의 농도가 0.03mol, 0.07mol, 0.10mol일 때 농도가 높을수록 전류량이 증가할 뿐 거의 유사하게 나타났다.

3.2 자연대류에 관한 결과

본 실험에서는 열적으로 안정된 유체층에 농도 구배가 가해지는 경우 이중확산대류의 특성을 살펴보기 위해 상부 수평경계면이 고온이고 하부 수평경계면이 저온인 상태로 실험장치를 오랜 시간 동안 유지시켜 열적으로 안정화시킨 다음 전기화학 기법을 도입하여 확산(상부 수평경계면이 음극, 하부 수평경계면이 양극) 또는 대류(상부 수평경계면이 양극, 하부 수평경계면이 음극)조건을 만들어 주었다. 이 때 전압차는 수소가 발생하지 않고 음극의 표면농도가 0에 가까운 한계전류 영역인 400~700mV 하에서 실험을 수행하였다.

온도변화와 농도변화에 따른 특성을 조사하기 위해 상·하 경계면의 온도차를 10℃, 20℃, 30℃로 변화시켜 실험하는 한편 황산구리 용액의 농도도 0.03mol, 0.05mol, 0.07mol, 0.10mol로 다양화시켰다. 이때 전기영동효과를 무시하기 위해 H_2SO_4 의 농도를 1.5mol로 하였다.

Fig. 3은 전기분해기법을 이용한 전형적인 확산과 자연대류현상을 조사하여 제시한 것으로서 $CuSO_4$ 의 농도 0.03mol이고 상·하 수평면간의 온도차는 없는 경우이다. 우선 전극셀 상부가 음극, 하부가 양극인 확산조건일 때를 살펴보면 초기에는 전류가 거의 무한대였다가 급속히 감소함을 알 수 있다. 이러한 결과는 열전달에서 열전도에 의한 전달현상과 같은 특성을 보인다. 반면에 전극셀 상부가 양극, 하부가 음극인 자연대류 조건일 때에는 초기에는 확산만에 의한 물질전달 특성과 마찬가지로 급격히 감소하다가 그 후 증가에 의한 오버슈트(over-shoot)가 발생한 후 정상상태에 이르는 현상을 보이고 있다. 이러한 현상은 온도

차에 의한 자연대류와 같은 현상이며 $CuSO_4$ 용액의 농도가 높을수록 전류량도 크게 증가함을 알 수 있었다.

자연대류의 발생시점은 두 가지 관점에서 고려되는데 Fig. 3에서 보듯이 확산특성곡선과 대류특성곡선이 분리되는 시점으로 고려하는 방법과 분리 후 전류밀도값이 최저값을 나타내는 시점으로 해석하는 방법이다. 이에 대해 Patrick과 Wragg¹⁷⁾는 분리점보다는 최저값을 나타내는 시점이 유동에 필요한 추진력을 고려할 때 더 물리적으로 의미가 있다고 설명하고 있다.

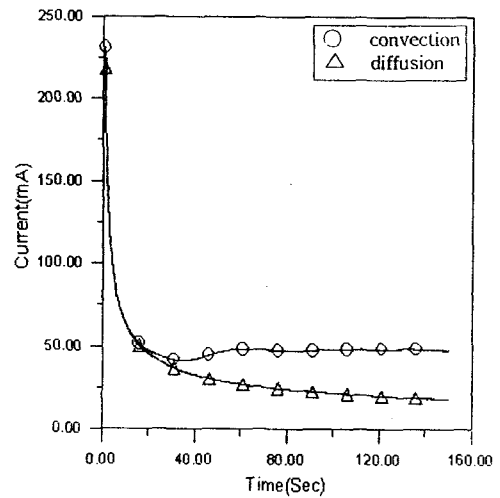


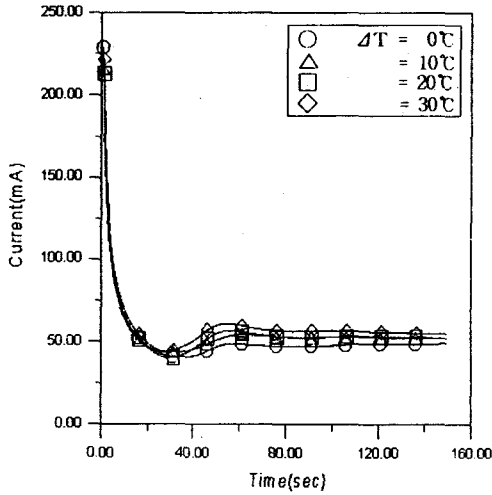
Fig. 3 Current-time behavior under condition of both convection and diffusion ($H_2SO_4 : 1.5mol$, $CuSO_4 : 0.03mol$)

Fig. 4는 H_2SO_4 의 농도 1.5mol, $CuSO_4$ 의 농도가 0.03mol(a), 0.05mol(b), 0.07mol(c)일 때 온도차에 따른 전류량-시간 관계를 도식한 것이다. 온도차에 관계없이 Fig. 3의 대류현상과 같은 특성을 보여 자연대류 초기에는 급격히 전류량이 감소하다가 대류가 유발되면서 증가하고 있는 특성을 볼 수 있다. 또한 온도차가 증가할수록 자연대류 발생시점이 다소 빨라지고 전류량은 증가하고 있다. 이러한 현상은 $CuSO_4$ 의 농도차가 클수록 분명하게 관찰되고 있음을 Fig. 4(b)와 (c)에서 알 수 있다.

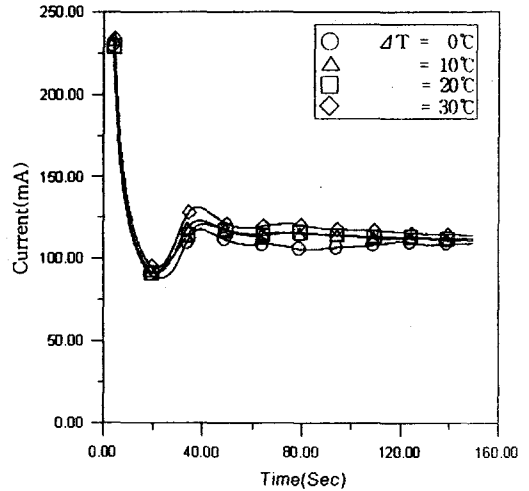
일반적으로 상·하 수평면간의 온도차가 커 열적으로 성층화된 정도가 증가할수록 안정되어 같은 불안정한 농도조건하에서는 대류가 지연될 것으로 생각되나 온도차에 의한 성층화가 클수록 대류발생시간이 빨라지는 것은 Soret효과에 의한 현상으로 생각되며 이에 대한 이론적 연구가 추후

필요할 것으로 생각된다.

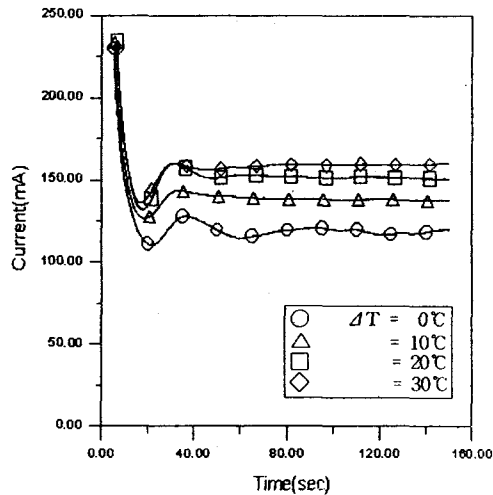
농도차의 변화에 의한 영향을 살펴보기 위해 H_2SO_4 의 농도 1.5mol, 온도차가 10°C(a), 20°C(b), 30°C(c)일 때 $CuSO_4$ 의 농도변화에 따른 전류량-시간 관계의 결과를 Fig. 5에 제시하였다. Fig. 5에서 살펴보면 $CuSO_4$ 의 농도가 증가할수록 실험



(a) $CuSO_4$: 0.03mol



(b) $CuSO_4$: 0.05mol



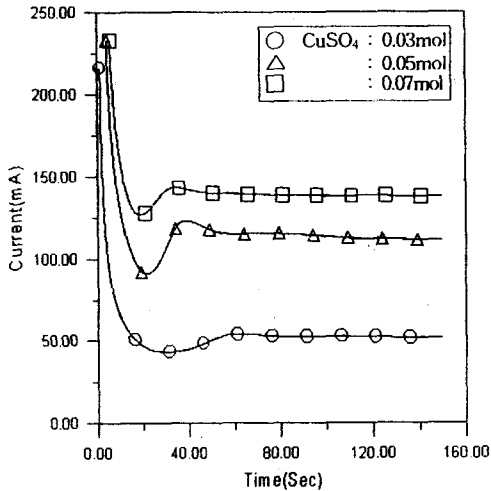
(c) $CuSO_4$: 0.07mol

Fig. 4 Current-time behavior depending on temperature difference for various concentration of $CuSO_4$ (H_2SO_4 : 1.5mol)

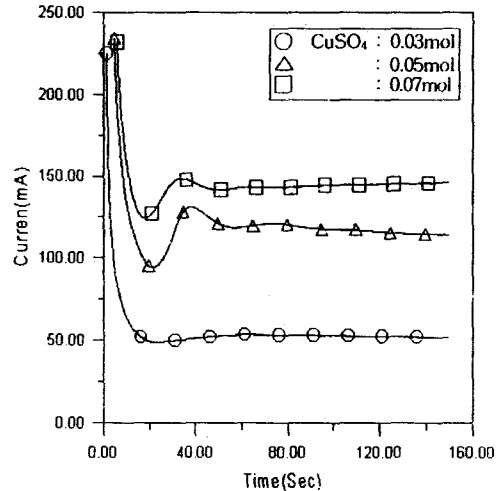
계의 밀도분포가 불안정해지기 때문에 대류발생 시간이 빨라지고 정상상태에서의 전류량이 현저히 증가함을 알 수 있다.

일반적인 이중확산대류의 유동형태는 여러개의 층을 이룬 유동의 생성과 소멸과정으로 특징지어진다. 특히 본 실험에서와 유사한 형태인 농도가

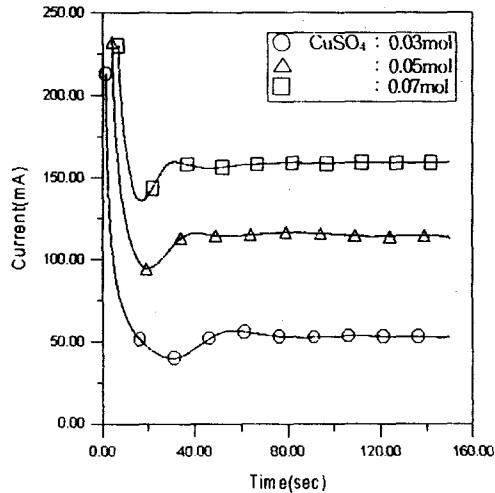
안정되게 성층화된 유체내의 하부가열로 인한 유동 특성에서는 밀폐용기 하부에서 유동층이 생성되고 인접면에서 연속적으로 새로운 층이 형성되는 한편 하부경계면에서부터 소멸되는 특성이 일반적으로 보고¹⁴⁾⁻¹⁶⁾되고 있다. 그러나 본 실험에서는 이러한 층을 이룬 유동형태가 전혀 관찰되지



(a) $\Delta T=10^{\circ}\text{C}$



(b) $\Delta T=20^{\circ}\text{C}$



(c) $\Delta T=30^{\circ}\text{C}$

Fig. 5 Current-time behavior depending on concentration difference for various temperature difference($\text{H}_2\text{SO}_4 : 1.5\text{mol}$)

않고 있는데 이는 CuSO_4 용액-열 확산계에서의 확산물이 차가 크고(Lewis 수가 약 300) 확산물이 큰 온도에 의해 열적으로 성층화되어 있기 때문에 유체층 사이에서의 밀도차가 형성되기 어렵기 때문으로 사료된다.

4. 결 론

본 논문에서는 열적으로 안정된 유체내에서 수직방향 농도가 불안정하게 작용할 때 발생하는 이중확산대류에 대한 연구로 $\text{H}_2\text{SO}_4 + \text{CuSO}_4$ 용액을 사용한 전기분해법을 이용하였다. 본 연구의 실험 범위는 전극면의 크기가 $5\text{cm} \times 5\text{cm}$, 전극간 거리는 5cm 이며 상·하 수평면의 온도차는 $0^\circ\text{C} \sim 30^\circ\text{C}$ 이고, CuSO_4 용액의 농도차는 $0.03\text{mol} \sim 0.10\text{mol}$ 이다. 또한 전기영동에 의한 효과를 무시할 수 있게 하기 위해 H_2SO_4 의 농도는 1.5mol 로 하였다. 본 연구결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 1) 온도차나 농도차가 증가할수록 전류밀도는 증가하지만 한계전류를 얻을 수 있는 전압의 범위는 거의 일정하였으며 본 실험범위에서는 $400 \sim 700\text{mV}$ 로 나타났다.
- 2) 열적으로 성층화된 정도가 증가할수록 Soret 효과의 발생으로 대류발생시점이 빨라지고 정상상태의 전류량은 증가하였다.
- 3) 불안정한 밀도분포를 위해 CuSO_4 의 농도차를 증가시킬수록 대류가 빨리 발생하고 정상상태의 전류량은 크게 증가하였다.
- 4) CuSO_4 용액-열 이중확산계에서 확산물이 큰 온도에 의해 열적으로 성층화되어 있고 확산물이 작은 CuSO_4 에 의해 밀도분포가 불안정하게 분포되기 때문에 층을 이룬 유동형태는 형성되지 않는다.

후 기

이 논문은 1997년 한국학술진흥재단의 공모과제 연구비에 의하여 연구되었음.

참 고 문 헌

- 1) Ostrach, S., "Natural Convection with

Combined Driving Forces", PhysicoChemical Hydrodynamics, Vol. 1, pp. 233-247, 1980

- 2) Turner, J.S., "Buoyancy Effects in Fluids", Cambridge University Press, Cambridge, 1973
- 3) Thorpe, S.A., Hutt, P.K. and Soulsby, R., "The Effect of Horizontal Gradients on Thermohaline Convection", Journal of Fluid Mechanics, Vol. 38, pp. 375-400, 1969
- 4) Bergman, T.L. and Ungun, A., "A Note on Lateral Heating in a Double-Diffusive System", Journal of Fluid Mechanics, Vol. 194, pp. 343-355, 1988
- 5) Lee, J., Hyun, M.T. and Moh, J.H., "Numerical Experiments on Natural Convection in a Stably Stratified Fluid Due to Side-Wall Heating", Numerical Heat Transfer, Vol. 18, pp. 343-355, 1990
- 6) Kamakura, K. and Ozoe, H., "Numerical Analysis of Transient Formation and Degradation Process of Multilayered Roll Cells with Double-Diffusive Natural Convection in an Enclosure", Numerical Heat Transfer, Vol. 23, pp. 61-77, 1993
- 7) Hyun, M.T. and Bergman, T.L., "Direct Simulation of Double-Diffusive Layered Convection", Journal of Heat Transfer, Vol. 117, pp. 334-337, 1995
- 8) Lee, J. and Hyun, M.T., "Experiments on Thermosolutal Convection in a Shallow Rectangular Enclosure", Experimental Thermal and Fluid Science, Vol. 1, pp. 259-265, 1988
- 9) Hyun, J.M. and Lee, J.W., "Double-Diffusive Convection in a Rectangle with Cooperating Gradients of Temperature and Concentration", International Journal of Heat and Mass Transfer, Vol. 33, pp. 449-459, 1990
- 10) Han, H. and Kuehn, T.H., "Double-Diffusive Natural Convection in a Vertical Rectangular Enclosure-I. Experimental

- Study", International Journal of Heat and Mass Transfer, Vol. 34, pp. 449-459, 1991
- 11) Jiang, H.D., Ostrach, S. and Kamotani, Y., "Unsteady Thermosolutal Transport Phenomena Due to Opposed Buoyancy Forces in Shallow Enclosures", Journal of Heat Transfer, Vol. 113, pp. 135-140, 1991
- 12) Hyun, M.T., Kuo, D.C., Bergman, T.L. and Ball, K.S., "Direct Simulation of Double Diffusion in Low Prandtl Number Liquids", Numerical Heat Transfer, Vol. 27, pp. 639-650, 1995
- 13) Shirtcliffe, T.G.L., "Transport of the Diffusive Interface in Double-Diffusive Convection with Similar Diffusivity", Journal of Fluid Mechanics, Vol. 57, pp. 27-43, 1973
- 14) Huppert, H.E. and Linden, P.F., "On Heating a Salinity Gradient From Below", Journal of Fluid Mechanics, Vol. 95, pp. 431-464, 1979
- 15) Lewis, W.T., Incropera, F.P. and Viskanta, R., "Interferometric Study of Mixing Layer Development in a Laboratory Simulation of Solar Pond Conditions", Solar Energy, Vol. 28, pp. 389-401, 1982
- 16) Bergman, T.L., Incropera, F.P. and Viskanta, R., "Interaction of External and Double-Diffusive Convection in a Linearly Salt-Stratified System", Experimental Fluids, Vol. 5, pp. 49-58, 1987
- 17) Patrick, M.A. and Wragg, A.A., "Optical and Electrochemical Studies of Transient Free Convection Mass Transfer at Horizontal Surface", International Journal of Heat and Mass Transfer, Vol. 18, pp. 1397-1407, 1975