

## 열교환법 공정에서 고/액 계면의 형태에 미치는 자연대류의 영향

왕종희, 김도현

한국과학기술원 화학공학과, 대전, 305-701

## Effects of natural convection on the melt/solid interface shape in the HEM process

Jong Hoe Wang and Do Hyun Kim

*Department of Chemical Engineering, Korea Advanced Institute of Science and Technology, Taejeon 305-701, Korea*

요 약 열교환법에 의한 결정 성장에서 용융액 내에서의 유동장의 변화와 대류 열전달이 고/액 계면의 형태와 위치에 미치는 영향에 대해 고찰하였다. 비록 도가니 내의 온도분포가 안정한 구조라도 고/액 계면이 반구형태를 가지기 때문에 안정화가 깨어지게 되고, 반경방향 온도 기울기에 의한 용융액 내에서의 자연대류 흐름이 무시할 수 없을 정도로 발생한다. 대류 열전달이 존재하는 경우에 최대 휨도는 대류 열전달이 존재하지 않은 경우에 비해 감소하며, 열교환법에서의 정확한 열전달 공정모사를 위해 대류 열전달이 고려되어야 한다.

Abstract. The change of flow field and the effects of convective heat transfer on the shape and location of melt/crystal interface has been studied during the crystal growth by the heat exchanger method. Although the thermal structure is stable in the crucible, the flow due to the natural convection driven by radial temperature gradient is significant, because the thermal stability is broken by the hemispherical melt/crystal interface shape. The maximum interface deflection with convection is smaller than without and the convective heat transfer should be considered to simulate the heat transfer process of heat exchanger method rigorously.

1. 서론

고에너지 X선, 감마선, 양자, 전자에 대한 정지력과 큰 핵상호작용길이(nuclear interaction length), 낮은 afterglow, 흡습성(hygroscopicity)이 없기 때문에 bismuth germanium oxide( $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ )는 고에너지 물리, 핵물리 등의 분야에서 scintillator 재료로 널리 사용되어 왔다[1]. 응용성이 넓은 이러한 BGO 결정은 여러 가지 방법[1-5]에 의해 성장되었다.

열교환법(heat exchanger method)은 본래 사파이어 결정을 성장시키기 위해 개발된 방법[6, 7]으로 열의 주입과 추출의 독립적인 제어가 용이하다. 열교환법에서는 원형의 도가니 하부에 헬륨으로 냉각하는 열교환기가 있어 열의 추출에 의하여 결정성장에 필요한 온도 기울기를 제공한다. Seed는 원형 도가니 바닥의 열교환기에 접하는 부분에 위치하

고 원료는 도가니 안에 장입하여 도가니 주변의 가열장치에 의하여 녹인 후 열교환기로 흐르는 헬륨의 유량 조절에 의하여 결정성장이 진행된다. 이러한 공정에 사용되는 노(furnace)의 개략도를 Fig. 1(a)에 나타내었다.

대부분의 결정성장 시스템에서 결정성장시의 고/액 계면의 모양과 안정성은 용융액 내에서의 유동장에 의해 크게 영향을 받게 되며 이는 결정질에 영향을 미치게 된다[3-5, 8, 9]. 기존의 연구[10]를 통해 열교환법에 의한 BGO 결정 성장시 열전달 공정을 모사할 수 있는 모델을 수립하였으며, 고/액 계면의 모양이 반구형태에서 도가니의 밑면에 평행한 평면모양으로 성장해 나가는 경우의 이동경계문제(moving boundary problem)를 해석할 수 있는 수치해석 방법을 개발하였다. 그러나, BGO 용융액 내에서의 유동장을 고려하지 않았고 열전달 모델에 대류 열전달을 포함시키지 않았다. 본 연구에서는 열교환법에 의해 결정을 성장시킬 때 용융액 내에서의 유동장의 변화와 대류 열전달이 고/액 계면의 형태와 위치에 미치는 영향에 대해 고찰하였다.

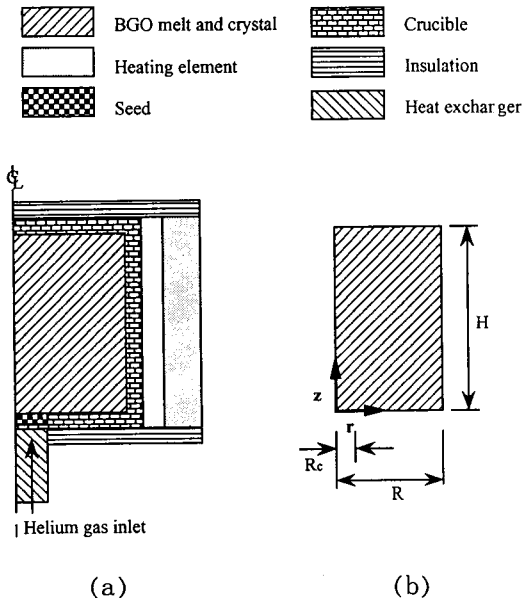


Fig. 1. A typical HEM furnace and the numerical domain of the model.

2. HEM 모델과 수치해법

열교환법을 사용하여 BGO 결정성장에 대한 수학적 모델의 기하학적 구조를 Fig. 1(b)에 나타내었다[10]. 계산영역은 용융액과 결정을 모두 포함하는 도가니(crucible) 영역이다.

용융액 내에서의 유동장과 온도장을 결정하기 위한 지배방정식은 다음과 같다.

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (ru) + \frac{\partial v}{\partial z} = 0 \tag{1}$$

$$\rho \left( \frac{\partial u}{\partial t} + u \frac{\partial u}{\partial r} + v \frac{\partial u}{\partial z} \right) = -\frac{\partial P}{\partial r} + \mu \left[ \frac{\partial}{\partial r} \left( \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (ru) \right) + \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} \right] \quad (2)$$

$$\rho \left( \frac{\partial v}{\partial t} + u \frac{\partial v}{\partial r} + v \frac{\partial v}{\partial z} \right) = -\frac{\partial P}{\partial z} + \mu \left[ \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial v}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 v}{\partial z^2} \right] - \rho g \quad (3)$$

$$\rho C_p \left( \frac{\partial T}{\partial t} + u \frac{\partial T}{\partial r} + v \frac{\partial T}{\partial z} \right) = k_m \left[ \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial T}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right] \quad (4)$$

여기서  $k_m$ 은 BGO 용융액의 열전달계수이며, 용융액은 Boussinesq 유체로 가정하였다 [11]. 계산에 사용한 변수들의 의미와 값들을 Table 1에 정리하였다.

결정영역에서의 온도장을 결정하기 위한 지배방정식은 다음과 같다.

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = k_s \left[ \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial T}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right] \quad (5)$$

고/액 계면의 위치는 열역학적 평형조건으로부터 구해진다[10,12].

HEM공정에서 결정성장이 시작되는 시간에 도가니 내의 용융액은 균일한 온도분포 ( $T_i$ )를 가지고, 자연대류는 존재하지 않는다고 가정하였다. 온도분포를 결정하기 위한 경계조건은 다음과 같다.

$$T(r, 0, t) = T_o, \quad 0 \leq r \leq R_c \quad (6)$$

여기서  $T_o$ 는 열교환기의 온도이다. 중심선과 열교환기 영역이외에서는 단열조건을 사용하였다. 속도장을 결정하기 위해서는 중심선을 제외하고 안미끄러짐 경계조건을 사용하였다. 중심선에서는 대칭조건을 사용하였다. 결정성장시 발생하는 잠열을 고/액 계면에서의 경계조건으로 고려하였다. 이를 수식으로 나타내면 다음과 같다.

Table 1  
Thermophysical properties and the system parameters

	Growth parameters	Values
$\rho$	Density	7.12 g/cm <sup>3</sup>
$C_p$	Specific heat	0.28 J/g K
$k_s$	Thermal conductivity of crystal	0.019 W/cmK
$k_m$	Thermal conductivity of melt	0.019 W/cmK
$T_m$	Melting temperature	1050°C
$h_f$	Latent heat	150.37 J/g
$\beta$	Thermal expansion coefficient	$0.8 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$
$\mu$	Viscosity	0.9256 g/cm·sec
$H$	Crucible height	3 cm
$k$	Crucible radius	1.5 cm
$k_c$	Cooling zone radius	0.375 cm
$T_i$	Initial melt temperature	1150°C
$T_o$	Heat exchanger temperature	0°C

$$-k_m \vec{n} \cdot \nabla T + k_s \vec{n} \cdot \nabla T + \rho h_f \frac{\partial h}{\partial t} (\vec{n} \cdot \vec{e}) = 0 \quad (7)$$

여기서  $\vec{n}$ 는 고/액 계면에 대한 단위 법선 벡터이며,  $\vec{e}$ 는 고/액 계면의 형태함수  $h$ 에 평행한 단위 벡터이다.

전체계에서의 온도장과 함께 고/액 계면의 형태와 위치를 구해야 하는 이동경계문제를 해석할 수 있는 수치해석기법은 기존의 연구에 나타내었다[10]. 용융액 내에서 속도에 대해 biquadratic 기초함수를 사용하였으며, 압력에 대해서는 discontinuous piecewise linear 기초함수를 사용하였다. 고/액 계면의

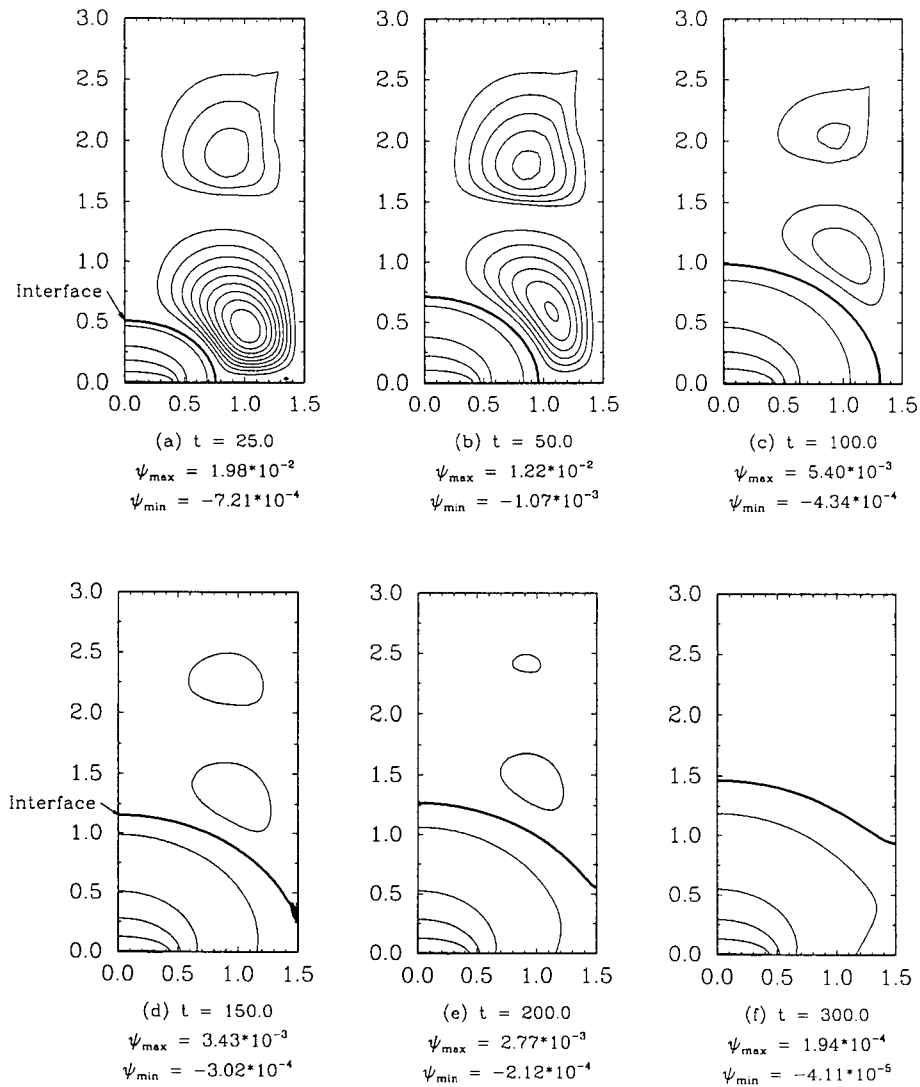


Fig. 2. Transient temperature fields in the crystal, flow fields in the melt and the melt/crystal interface location ( $\Delta T = 250^\circ\text{C}$ ,  $\Delta\psi_{\max} = 2.0 \times 10^{-3}$  and  $\Delta\psi_{\min} = 2.0 \times 10^{-5}$ ).

위치는 one-dimensional quadratic 기초함수를 사용하였다. 유한요소는 9마디 Lagrangian 유한요소를 사용하였다.

### 3. 결과 및 고찰

본 연구의 계산에 사용된 BGO 물성치, 성장변수와 공정변수를 Table 1에 실었으며, 이 값들을 사용하여 얻은 계산결과를 Fig. 2에 나타내었다. 여기에 결정영역에서의 온도 분포, 용융액 내에서의 유동장 그리고 이동 경계면의 위치를 각 시간에 따라 나타내었다. Fig. 2에서 볼 수 있듯이 결정화 초기에는 반구 형태의 고/액 계면모양에서 도가니 밑면에 평행한 평면모양의 계면으로 고/액 계면 모양이 변화함을 볼 수 있다.

결정화가 진행됨에 따른 흐름강도의 변화를 Fig. 3에 나타내었다. 흐름함수( $\Psi$ )는 다음과 같이 정의되었다.

$$u = \frac{1}{r} \frac{\partial \Psi}{\partial z}, \quad v = -\frac{1}{r} \frac{\partial \Psi}{\partial r} \quad (8)$$

경계면에서 흐름함수의 값은 기준값으로 0을 사용하였다. 결정화 초기에 흐름강도가 급격히 증가하는 것을 볼 수 있다. Fig. 2에서 볼 수 있듯이 이러한 현상은 결정화 초기에 계면 모양이 반구 형태임에 의해 안정한 열적 구조가 깨어짐에 따른 결과이다. 후에 더욱 결정화가 진행됨에 따라 결정의 모양이 편평해지면서 안정한 열적구조를 되찾게 되고 점차 흐름강도가 작아짐을 볼 수 있다.

고/액 계면의 곡률변화를 관찰하기 위해 매 시간에서의 휨도(deflection)를 다음과 같이 정의하였다.

$$\Delta = \max h_z - \min h_z \quad (9)$$

여기서  $h_z$ 는 계면 형태 함수  $h$ 의  $z$ 방향으로의 거리이다.

대류 열전달이 존재하는 경우와 대류 열전달이 존재하지 않는 경우의 휨도를 Fig. 4에 함께 나타내었다. Fig. 4에서 볼 수 있듯이 대류 열전달이 존재하는 경우에 최대 휨도는 대류 열전달이 존재하지 않는 경우에 비해 감소한다. HEM 공정을 통해 결정을 성장시

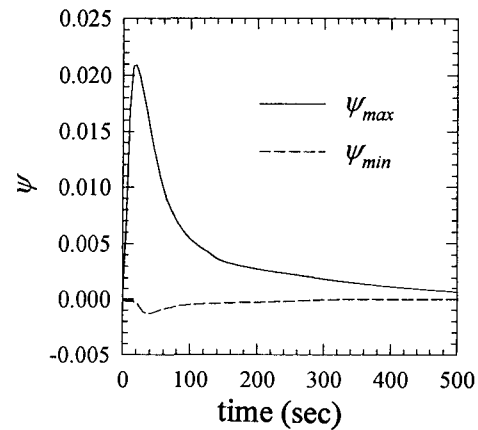


Fig. 3. The maximum and minimum values of stream function as a function of time.

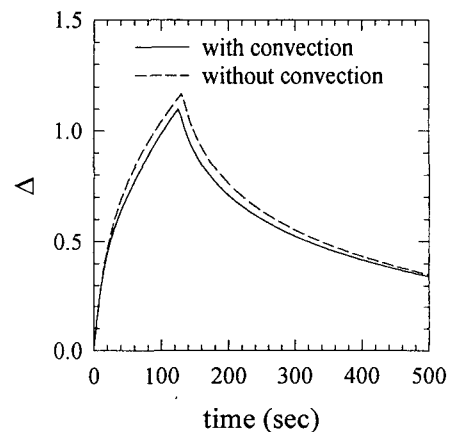


Fig. 4. The interface deflection in case with and without convection. The solid line and the dotted line are the results of the model with and without convection, respectively.

킬 때 보다 정확한 열전달공정을 모사하기 위해서는 대류 열전달을 고려해야 한다.

#### 4. 결 론

열교환법에 의해 결정 성장시 용융액 내에서의 유동장의 변화와 대류 열전달이 고/액 계면의 형태와 위치에 미치는 영향에 대해 고찰하였다. 비록 도가니 내의 온도분포가 안정한 구조라도 고/액 계면이 반구형태를 가짐에 따라 안정화가 깨어지게 되고 용융액 내에서의 자연대류에 의한 흐름이 무시할 수 없을 정도로 발생하였다. 대류 열전달이 존재하는 경우에 최대 휨도는 대류 열전달이 존재하지 않은 경우에 비해 감소하며, 보다 정확한 공정모사를 위해서는 대류 열전달이 고려되어야 한다.

#### 참 고 문 헌

- [ 1 ] S. Fan, G. Shan, J. Li and W. Wang, *Crystal Properties and Preparation*, 36-38 (1991) 42.
- [ 2 ] K. Kawano, T. Yoshida, R. Nakata, N. Yamada and M. Sumita, *Jpn. J. Appl. Phys.* 32 (1993) 1736.
- [ 3 ] K. Takagi and T. Fukazawa, *J. Crystal Growth* 76 (1986) 328.
- [ 4 ] M. Berkowski, K. Iliev, V. Nikolov, P. Peshev and W. Piekarczyk, *J. Crystal Growth* 108 (1991) 225.
- [ 5 ] D.H.H. Quon, S. Chehab, J. Aota, A.K. Kuriakose, S.S.B. Wang, M.Z. Saghir and H.L. Chen, *J. Crystal Growth* 134 (1993) 266.
- [ 6 ] F. Schmid and D. Viechnicki, *J. Am. Ceram. Soc.* 53 (1970) 528.
- [ 7 ] D. Viechnicki and F. Schmid, *J. Crystal Growth* 26 (1974) 162.
- [ 8 ] V. Nikolov, K. Iliev and P. Peshev, *J. Crystal Growth* 89 (1988) 313.
- [ 9 ] V. Nikolov, K. Iliev and P. Peshev, *J. Crystal Growth* 89 (1988) 324.
- [ 10 ] J.H. Wang, D.H. Kim and D.S. Chung, *Korean J. Che. E.* 13 (1996) 503.
- [ 11 ] J.S. Turner, *Buoyancy Effects in Fluids*, (Cambridge University, New York, 1973) p. 9.
- [ 12 ] H.M. Ettouney and R.A. Brown, *J. Comput Phy.* 49 (1983) 118.