

Effects of the crucible shape on the temperature of sapphire crystal and the shape of melt/crystal interface in heat exchanger method

Su Jin Lim, Jong Hoe Wang[†] and Jong-In Im

KICET, Seoul 153-801, Korea

(Received June 16, 2004)

(Accepted July 14, 2004)

Abstract Numerical analysis which is based on finite element techniques, implicit Euler method and frontal solving algorithm was performed to study the effects of the crucible shape on the temperature of sapphire crystal and the shape of the melt/crystal interface in heat exchanger method. The computer simulation described here and effective to solving the heat transport phenomena with the transition of the interface shape from hemispherical to planar. In the work, various crucibles with differently shaped corners at their bottom are considered to improve the deflection of the melt/crystal interface. The shape of the crucible should be considered as one of the variables for the process optimization.

Key words Heat exchanger method, Sapphire, Crystal growth, Crucible shape, Interface, Transport phenomena, Numerical analysis, Finite element method, Implicit euler, Frontal solver, Process optimization

열교환법에서 도가니 형상 변화가 사파이어 결정 온도와 고액 계면 형태에 미치는 영향

임수진, 왕종회[†], 임종인

요업(세라믹)기술원, 서울, 153-801

(2004년 6월 16일 접수)

(2004년 7월 14일 심사완료)

요약 열교환법을 활용한 사파이어 단결정 성장 공정에서 도가니 형상 변화가 결정 온도와 고액 계면 형태에 미치는 영향에 대해 고찰하기 위해 유한요소법, implicit Euler법, frontal 해석 연산을 활용한 수치해석을 수행하였다. 개발된 컴퓨터 시뮬레이션 기법은 고액 계면의 형상이 반구 형상에서 평면 형상으로 전환되는 열전달 현상 해석에 효율적이다. 본 연구에서는 고액 계면의 휨도를 개선하기 위해, 도가니 밑면의 다양한 형상을 고려하였으며, 도가니 형상은 공정 최적화 변수로 고려되어야 한다.

1. 서론

사파이어는 기계적 성질, 내열성, 내식성이 우수할 뿐만 아니라 경도, 열전도도, 전기 저항성이 높고 큰 내충격성을 가지고 있다. 그리고 광범위한 투과성을 가지고 있어 적외선부터 근자외선까지 폭넓은 파장을 투과하기 위한 전자 부품이나 광학 부품 등 폭넓게 응용되고 있다[1].

열교환기법(Heat Exchanger Method; HEM) 공정은 성장로의 아래 부분에 열교환기를 설치하고, 이 열교환기를 통과하는 헬륨가스 유량과 히터 온도를 제어하여

단결정을 제조하는 방법이다. 이 공정은 사파이어를 상 품화한 이후 가장 큰 사파이어를 성장시킬 수 있고 그 품질도 우수하다는 것이 장점이다[2]. HEM 공정은 성장로나 결정을 이동시키지 않고 고상과 액상의 온도구배를 독립적으로 조절할 수 있는 특징이 있다[3]. HEM 성장로의 개략도를 Fig. 1에 나타내었다.

HEM 공정의 결정 성장 과정은 간단히 도가니 바닥에 종자결정과 사파이어 원재료를 장입시킨 후 히터로 가열하여 용액 상태로 녹인 후 헬륨가스로 냉각시키는 과정을 거친다.

HEM 공정의 도가니 바닥 형태를 변경하게 되면 열전달 현상이 바닥의 형태를 변경하기 전인 평평할 때와는 다르게 일어날 것이며 고액 계면의 형상이 달라지게 되고 따라서 사파이어의 결정 품질도 달라지게 될 것이다.

[†]Corresponding author
Tel: +82-2-3282-2478
Fax: +82-2-3282-2490
E-mail: jhwang@kicet.re.kr

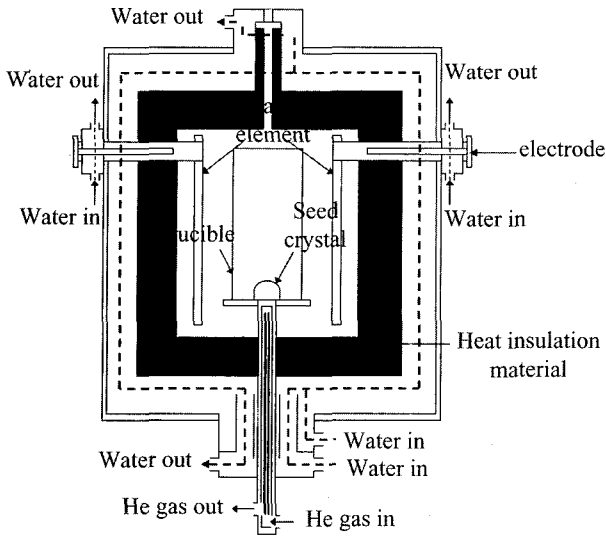


Fig. 1. The schematic diagram of a typical HEM furnace.

본 연구에서 다양한 도가니 바닥 형태에 관해 컴퓨터 시뮬레이션을 해 봄으로써 바닥 형태 변화가 고/액 계면의 형태와 열전달 현상에 미치는 영향을 파악하고자 한다.

2. 수학적 모델과 수치해법

열교환법을 사용한 사파이어 결정성장 공정에서 도가니 바닥형태 변화가 열전달 현상에 미치는 영향을 고찰하기 위한 HEM 공정에 관한 수학적 모델의 기하학적

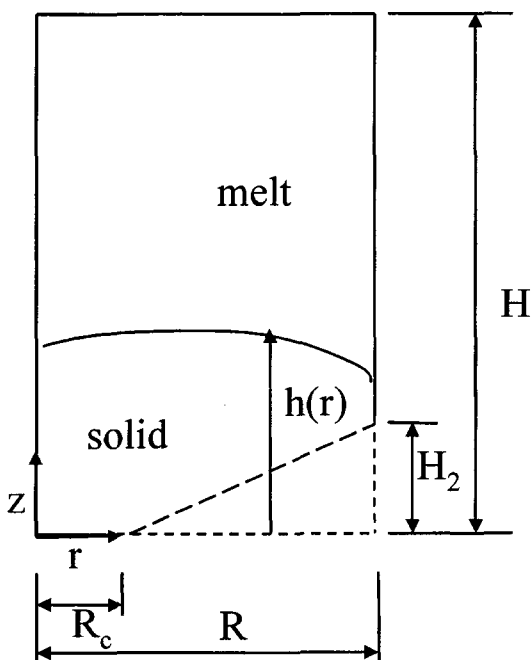


Fig. 2. Numerical domain of the mathematical model.

Table 1
Characteristic variables

Characteristic variables	Symbol	Definition
Time	τ	$\frac{t^*}{\frac{\rho C_p R^2}{k}}$
Radial position	r	$\frac{r^*}{R}$
Axial position	z	$\frac{z^*}{R}$
Temperature	θ	$\frac{T-T_0}{T_m-T_0}$

구조를 Fig. 2에 나타내었다. 계산영역은 용융액과 결정을 모두 포함하는 도가니 영역이다. 여기서 $h(r)$ 은 고/액 계면의 형태 함수이며, H_2 는 도가니 형태 변화를 고려하기 위한 특성변수이다.

시스템내 열전달 현상을 해석하기 위한 지배 방정식은 다음과 같으며 [4] 고/액 계면의 위치는 열역학적 평형조건으로부터 구하였다 [5-8].

(A) 결정상 에너지 수지식

$$\frac{\partial \theta}{\partial \tau} = \left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial \theta}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 \theta}{\partial z^2} \right] \quad (1)$$

(B) 용융상 에너지 수지식

$$\frac{\partial \theta}{\partial \tau} = \left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial \theta}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 \theta}{\partial z^2} \right] \quad (2)$$

위의 식들은 무차원식들이고 무차원화에 사용된 특성상수들은 Table 1에 나타내었다. 차원 변수를 나타내기 위해 *를 사용하였다. T_0 는 열교환기 온도로 본 연구에서는 1000°C 로 가정하였다. 계산함에 있어서 성장 변수와 사파이어의 물성은 Table 2에 정리하였다.

HEM 공정에서 결정성장이 시작되는 시간에 도가니 내의 용융액은 균일한 온도($T_m + \Delta T$)를 유지한다고 가정하였으며, 본 연구에서는 $\Delta T = 200^\circ\text{C}$ 을 사용하였다.

시스템 내 온도분포를 결정하기 위한 경계조건은 다음

Table 2
The thermo-physical properties and the growth parameters

Symbol	Meaning	Values
ρ	Density of sapphire	3.96 g/cm^3
T_m	Melting point of sapphire	2054°C
C_p	Specific heat of sapphire	$0.85 \text{ J/g}\cdot\text{K}$
k	Thermal conductivity of solid or melt	0.30 W/cmK
R	Crucible radius	5.50 cm
R_c	Cooling zone radius	$0.55\text{--}2.815 \text{ cm}$
H	Crucible height	11.00 cm

과 같다.

$$\theta(r, 0, t) = 0, \quad 0 \leq r \leq R_c \quad (3)$$

중심선과 열교환기 영역 이외에서는 단열조건을 사용하였다.

결정성장시 발생하는 잠열은 고/액 계면에서의 경계조건으로 고려 되어야 하며, 본 연구에서는 다음의 열에너지 수지식을 사용하였다.

$$\vec{n} \cdot (\nabla\theta)_s + \vec{n} \cdot (\nabla\theta)_m = 0 \quad (4)$$

여기서 \vec{n} 는 고/액 계면에 대한 단위 법선 벡터이다.

열교환법을 사용한 사파이어 결정성장 공정에 관한 열전달 현상 및 고/액 계면 형상 해석을 위해 수립된 수학적 모델식에 수치해석 방법을 활용하였다. 본 연구에서 수치해석 방법으로 Galerkin 유한요소법[9, 10], implicit Euler법[11], 효율적인 연산을 위한 frontal 해법[12, 13]을 사용하였다. 이동경계 문제를 해석하기 위해 본 연구에서는 수치해석 방법으로 유한요소 9마디 Lagrangian

유한요소를 사용하였으며 수치 적분법으로는 Gauss 수치적분을 사용하였다. 부피적분을 위하여 9점 Gauss 적분법을 사용하였으며 표면적분은 3점 Gauss 적분법을 사용하였다[9, 10].

3. 결과 및 고찰

본 연구의 계산에 사용된 사파이어 물성치, 성장변수를 Table 2에 나타내었으며, 열교환법을 사용한 사파이어 결정 성장 공정에서 열전달 현상 및 고/액 계면 형상 해석을 수치해법을 활용해 얻은 계산 결과를 Fig. 3과 Fig. 4에 나타내었다. Fig. 3은 기존 공정에서 사용하고 있는 도가니의 H_2 가 0인 경우의 해석 결과이며, Fig. 4는 본 연구에서 제안하고 있는 도가니 형상 변화가 있는 경우로 도가니의 H_2 가 0.4인 경우에 관한 결과이다.

Fig. 3과 Fig. 4에서 볼 수 있듯이 결정화 초기에 반구

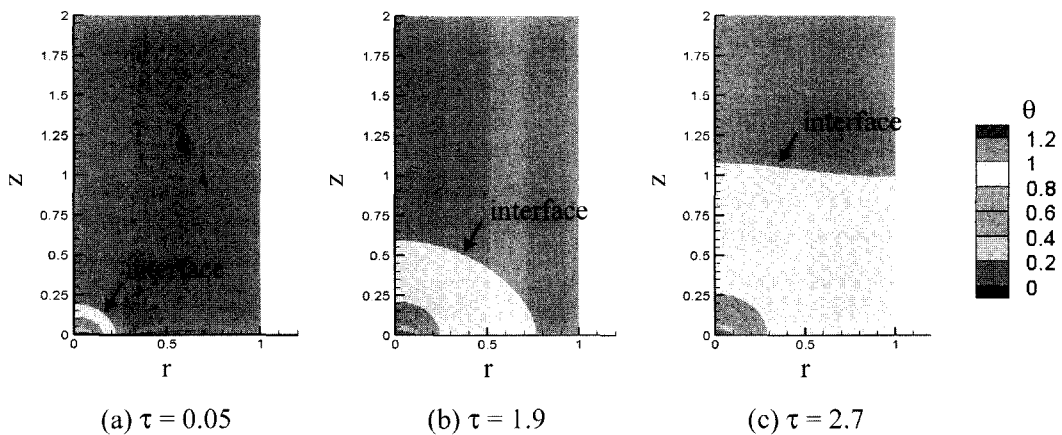


Fig. 3. Transient temperature field in the crucible and the melt/crystal interface location in case of $H_2 = 0.0$.

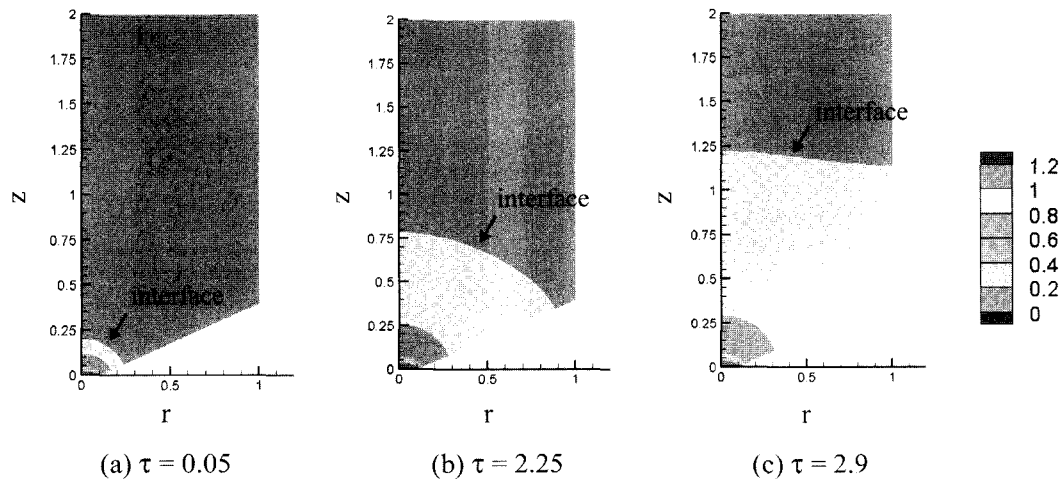


Fig. 4. Transient temperature field in the crucible and the melt/crystal interface location in case of $H_2 = 0.4$.

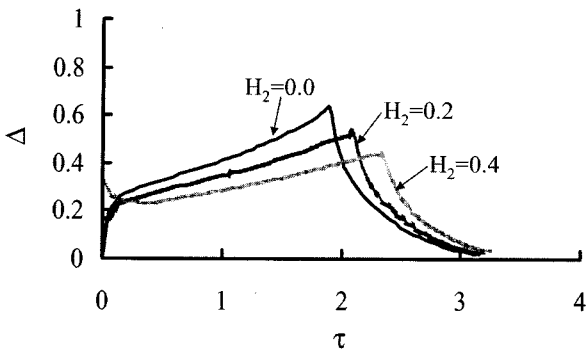


Fig. 5. Effects of crucible shape on Δ .

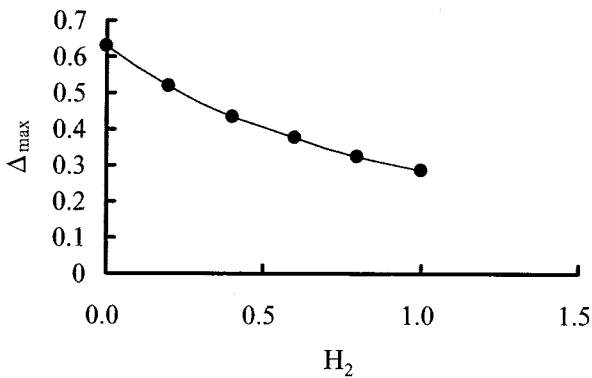


Fig. 6. Effects of crucible shape on Δ_{max} .

형태의 고액 계면 모양에서 도가니 밑면에 평행한 평면 모양의 계면 형상으로 고액 계면 모양이 변화함을 본 모델을 통해 모사할 수 있다.

고액 계면의 곡률변화를 고찰하기 위해 매 시간에서의 계면 휨도(Interface Deflection), Δ 을 다음과 같이 정의하였다.

$$\Delta \equiv h_{max} - h_{min} \quad (5)$$

도가니의 H_2 변화가 Δ 에 미치는 영향을 Fig. 5에서 나타내었다.

H_2 변화가 최대 계면 휨도에 미치는 영향을 고찰하기 위해, 사파이어 결정 직경 변화가 완료되는 고화시점 이후의 최대 계면 휨도를 Δ_{max} 로 정의하여, Fig. 6에 나타내었다.

Fig. 6에서 볼 수 있듯이 H_2 가 증가함에 따라 Δ_{max} 가 단조적으로 감소하였다. 도가니 형상 변화를 통해 시스템 내 열전달 현상과 고액 계면 형상을 최적화 할 수 있다.

Fig. 7에 도가니의 열교환기 영역 크기 변화에 따른 Δ_{max} 변화를 나타내었다.

H_2 가 0.0, 0.4인 경우 열교환기 영역의 직경변화에 따른 Δ_{max} 변화를 나타낸 결과 H_2 가 0.4인 경우의 Δ_{max} 값이 H_2 가 0.0인 경우보다 적게 나타났다. 열 교환기 영역

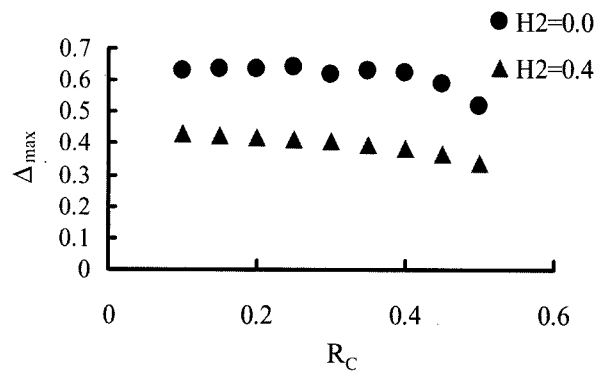


Fig. 7. Effects of cooling zone radius on Δ_{max} .

의 크기 변화보다 도가니 형상 변화가 고액 계면 휨도에 미치는 영향이 보다 큰 것을 알 수 있으며, 도가니 형상은 공정 최적화 변수로 고려되어야 한다.

4. 결 론

HEM 공정의 도가니의 형상 변화가 시스템 내 열전달 현상과 형태에 미치는 영향에 관해 고찰하였다. 본 연구에서는 도가니 형태 변화를 위해 H_2 길이 변화와 열교환기 영역의 크기를 변화시켰다. 도가니의 H_2 가 증가함에 따라 고액 계면의 휨도가 감소함을 수치해석을 통해 확인하였다.

도가니의 열교환기 영역의 영향성을 고찰하기 위해 H_2 가 0.0인 경우와 H_2 가 0.4인 경우, 열교환기 영역의 직경변화에 따른 Δ_{max} 변화를 컴퓨터 시뮬레이션을 수행하였으며 H_2 가 0.4인 경우의 고액 계면의 휨도가 H_2 가 0.0인 경우보다 적게 나타났으며 도가니 형상을 공정 최적화 변수로 고려해야 한다.

참 고 문 헌

- [1] F. Schmid, C. Khattak and D. Felt, "Producing large sapphire for optical application", Am. Ceram. Soc. Bull. 73 (1994) 39.
- [2] C.P. Khattak and F. Schmid, "Growth of the world's largest sapphire crystals", J. Crystal Growth 225 (2001) 572.
- [3] D. Viechnicki and F. Schmid, "Crystal growth using the heat exchanger method (HEM)", J. Crystal Growth 26 (1974) 162.
- [4] R.B. Bird, W.E. Stewart and E.N. Lightfoot, "Transport phenomena" (Wiley, New York, 2002) Chap. 10, p. 292.
- [5] J.H. Wang, D.H. Kim and D.-S. Chung, "Analysis of moving boundary problem of growth of bismuth germanate crystal by heat exchanger method", Korean J.

- Chem. Eng. 13 (1996) 503.
- [6] J.H. Wang and D.H. Kim, "Effects of natural convection on the melt/solid interface shape in the HEM process", *J. Kor. Ass. Crystal Growth* 7 (1997) 41.
- [7] J.H. Wang, D.H. Kim and J.-S. Huh, "Modelling of crystal growth process in heat exchanger method", *J. Crystal Growth* 174 (1997) 13.
- [8] C.-W. Lu and J.-C. Chen, "Numerical computation of sapphire crystal growth using heat exchanger method", *J. Crystal Growth* 225 (2001) 274.
- [9] R.B. Becker, G.F. Carey and J.T. Oden, "Finite elements an introduction", Vol. 2 (Prentice-Hall, New Jersey, 1981) p. 12.
- [10] G. Strang and G.J. Fix, "An analysis of the finite element method" (Prentice-Hall, New Jersey, 1973) p. 9.
- [11] D.R. Poirier and G.H. Geiger, "Transport phenomena in materials processing" (TMS, Pennsylvania, 1994) p. 571.
- [12] P. Hood, "Frontal solution program for unsymmetric matrices", *Int. J. Num. Meth. Eng.* 10 (1977) 379.
- [13] P. Hood, "Note on frontal solution program for unsymmetric matrices", *Int. J. Num. Meth. Eng.* 11 (1977) 1055.