

# Comprehensive studies on thermo-solutal convection with high Prandtl numbers of mercurous bromide system of $\text{Hg}_2\text{Br}_2$ and $\text{I}_2$ during physical vapor transport

Geug Tae Kim<sup>†</sup>

Department of Chemical Engineering, Hannam University, Daejeon 34054, Korea

(Received December 5, 2024)

(Revised December 10, 2024)

(Accepted December 12, 2024)

**Abstract** During the  $\text{Hg}_2\text{Br}_2(\text{A})\text{-I}_2(\text{B})$  physical vapor transport process with high Prandtl numbers, the temperature distributions in the vapor phase are uniform except near the crystal regions. It is also concluded that for  $10^{-2}g_0 \leq g \leq 1g_0$  the thermo-solutal buoyancy driven convection is predominant in the vapor phase; near the gravitational levels of  $g = 10^{-2}g_0$ , the transition region from the convection mode to the diffusion mode occurs; for  $10^{-6}g_0 \leq g \leq 10^{-4}g_0$ , the diffusion mode is predominant. For  $10\text{ K} \leq \Delta T \leq 50\text{ K}$ , the total molar flux enlarges proportionally increasing the driving force, i.e., the temperature gradients. The total molar flux of  $\text{Hg}_2\text{Br}_2$  exponentially decays with the partial pressure of component  $\text{B}(\text{I}_2)$ ,  $P_B$  (Torr) for  $50\text{ Torr} \leq P_B \leq 200\text{ Torr}$ .

**Key words** Mercurous bromide, High Prandtl number, Iodine

## 브로민화수은(I)( $\text{Hg}_2\text{Br}_2$ )-요오드( $\text{I}_2$ ) 물리적 승화공정에서 높은 Prandtl 수의 온도-농도 대류현상에 대한 총괄적 연구

김극태<sup>†</sup>

한남대학교 화학공학과, 대전, 34054

(2024년 12월 5일 접수)

(2024년 12월 10일 심사완료)

(2024년 12월 12일 게재확정)

**요약** 높은 Prandtl수를 갖는  $\text{Hg}_2\text{Br}_2(\text{A})\text{-I}_2(\text{B})$  물리적 승화법 공정에서, 증기 상태에서 온도 분포는 결정 영역 근처를 제외하고 균일하다. 또한  $10^{-2}g_0 \leq g \leq 1g_0$ 의 경우 증기상(vapor phase)에서 온도-농도 부력에 의해 구동되는 대류가 지배적이며, 중력 수준  $g = 10^{-2}g_0$  근처에서 대류에서 확산으로의 전이 영역이 발생하고,  $10^{-6}g_0 \leq g \leq 10^{-4}g_0$ 의 경우 확산 모드가 우세하다.  $10\text{ K} \leq \Delta T \leq 50\text{ K}$ 의 경우, 총 몰 플럭스는 추진력, 즉, 온도구배에 비례하여 증가한다.  $\text{Hg}_2\text{Br}_2$ 의 총 몰 플럭스는  $50\text{ Torr} \leq P_B \leq 200\text{ Torr}$  범위에서 성분  $\text{B}(\text{I}_2)$ ,  $P_B(\text{Torr})$ 의 분압이 증가함에 따라 지수적으로 감소한다.

### 1. 서론

최근 30년 동안 브로민화 수은(I)( $\text{Hg}_2\text{Br}_2$ ) 단결정 결정 성장에 대한 연구가 주목을 받는 이유는 X-ray detector에 응용되는 광학적 특성을 가지고 있기 때문이다[1-3]. 일반적으로, 브로민화 수은(I)( $\text{Hg}_2\text{Br}_2$ ) 단결정 성장은 밀폐된 석영 튜브(closed quartz tube)에서 물리적 증착법

으로 이루어진다. 물리적 증착법은 밀폐된 반응기내에서 승화(sublimation)와 응축(condensation)에 기초하여, 온도차가 추진력(driving force)이 되는 시스템에 기초한 것이다. 다시 말하면, 밀폐된 석영 용기내에서, 소스(source) 재료와 결정(crystal)재료 사이에 형성되는 온도 구배에서의 증기상(vapor phase)의 증기 성분이 화학 반응없이 증기상에서 증기가 전달되는 승화와 응축 과정이다. 따라서, 브로민화 수은(I)의 물리적 증착법 공정에서는 기체상에서의 증기성분  $\text{Hg}_2\text{Br}_2$ 이  $\text{Hg}_2\text{Br}_2$  소스 물질에서 기체상으로 승화가 이루어진 후에,  $\text{Hg}_2\text{Br}_2$  결정상 영역

<sup>†</sup>Corresponding author  
E-mail: geugtaekim@gmail.com

으로 전달되어 재결합(recrystallization)된다. 일반적으로, 물리적 승화법(PVT)은 낮은 온도에서 수행할 수 있기 때문에 용융 결정 성장법(growth from the melt)에 비해 많은 장점을 가지고 있다: (1) 증기-고체 계면은 열 및 물질 전달의 불균일성에 대해 비교적 높은 계면 형태 안정성을 가지고 있으며, (2) 고순도 결정 성장이 가능하며, (3)  $\text{Hg}_2\text{Br}_2$ 와 같이 용융 전에 분해되는 물질을 성장시킬 수 있으며, (4) 더 낮은 점 결함 및 전위 밀도의 형성이 가능하다[4]. 최근 물리적 승화법(PVT)은 다양한 음향 광학 재료에 대한 중요한 결정성장 방법이다. 그러나, 물리적 승화법(PVT)공정의 산업적 응용 분야는 제한적인데, 이는 증기상(vapor phase)에서 발생하는 전달현상(유체, 열전달, 물질 전달)이 복잡하고 서로 커플링(coupling)되어 있기 때문에, 공정을 정확하게 설계하거나 제어하기 어렵다. 이러한 복잡성과 커플링(coupling)은 온도 및/또는 농도 차이에서 발생하는 밀도 변화율과 중력의 상호 작용으로 생성되는 온도 및/또는 농도 대류의 불가피한 발생과 관련이 있다. 일반적으로 대류는 해로운 것으로 간주되어 물리적 승화법(PVT) 성장 시스템에서 최소화해야 한다. 이러한 온도 및/또는 농도 대류의 영향은 결정 불균일성에서 구조적 불완전성에 이르기까지 많은 문제점을 초래한다. 따라서 물리적 승화법(PVT)공정을 정확하게 이해하여 공정을 최적화 내지 효율화하기 위해서는 물리적 승화법(PVT) 공정에서 대류의 역할을 조사하는 것이 중요하다.

Markham, Greenwell 및 Rosenberger[5]는 시간에 독립적인 시스템에 대한 수직 원통형 밀폐 내부의 PVT 공정 중 온도 및 온도-농도 대류의 영향을 연구했으며 무중력 상태 하에서도 대류가 존재하여 불균일한 농도 구배를 일으킬 수 있음을 수치해석적으로 발표했다. 그들은 대류 효과 분석에서 기하학의 역할을 강조하였다. 따라서, 이는 근본적으로 정상 상태 2차원 모델이며, 정상 상태 모델은 흐름장의 진동이 무차원 Reynolds 수가 증가함에 따라 발생하기 때문에 낮은 Reynolds 수 응용 프로그램에만 적용된다. 물리적 승화법(PVT) 공정에서 비정상 흐름 문제를 해결하기 위해 Duval[6]은 Reynolds 수가 최대 106인 단일 온도 경계 조건을 갖는 수직 직사각형 밀폐시스템에 대해 브로민화 수은(I)( $\text{Hg}_2\text{Br}_2$ )과 매우 유사한  $\text{Hg}_2\text{Cl}_2$ 의 물리적 승화법(PVT)에서 과도 온도 대류에 대한 수치 연구를 수행하였다.

본 전산 모사 연구에서는 2차원 모델을 사용하여 2개의 존(zone)으로 구성된 가열로(furnace) 시스템에서 수평으로 배치된 원통형 폐쇄 앰플(ampoule)에서 브로민화 수은(I)( $\text{Hg}_2\text{Br}_2$ )의 증기 성장 중 물리적 승화(PVT)공정을 전산 모사한다. 이 논문에서는 확산 율속 단계(diffusion-limited step)에 기초한 모델을 택한다. 본 연구에서는  $\text{Hg}_2\text{Br}_2$  증기(vapor)와 요오드( $\text{I}_2$ ) 불순물의 혼

합물에 대해 온도 및 농도 부력에 의해 구동되는 대류(thermal and/or solutal buoyancy-driven convection)를 고려한다.

본 논문의 목적은 (1) 소스와 결정 영역 간의 온도 차이, (2) 성분 B 요오드( $\text{I}_2$ ) 불순물의 분압, (3) 중력 수준의 공정 매개 변수가 총 몰플럭스(total molar flux)와 최대속도의 크기, 계면에서의 총 몰플럭스(total molar flux)에 영향을 미치는 정도에 대하여 전산 모사를 통하여 물리적 승화법 공정에서 일어나는 전달현상을 심도있게 연구하는 데 있다.

## 2. 물리적 및 수학적 모델

Figure 1은 소스와 결정면 사이에서 증기상에서의 전달 길이  $L$ , 높이  $H$ 이고, 에스펙트 비율(aspect ratio,  $L/H$ ) = 1인 정사각형 밀폐 용기에서,  $\text{Hg}_2\text{Br}_2$  성분의 전달현상이 일어나는 영역을 간단하게 도식화한 것을 나타낸다. 소스 영역에서는 높은 온도  $T_s$ 에서 유지되며, 결정 영역에서는 낮은 온도  $T_c$ 에서 유지되고 있다, 즉,  $T_s > T_c$ 이다.  $\text{Hg}_2\text{Br}_2$  성분의 밀도를 제외하고는  $\text{Hg}_2\text{Br}_2$  성분의 물리 화학적 물성치는 일정하다고 가정한다.  $\text{Hg}_2\text{Br}_2$  성분의 밀도는 이상기체의 법칙으로부터 구하며,  $\text{Hg}_2\text{Br}_2$  성분의 증기 분압은 달톤(Dalton) 분압의 법칙으로부터 구한다. 2차원 정사각형 밀폐공간 결정성장 용기내에서  $\text{Hg}_2\text{Br}_2$  증기 성분의 전달현상은 질량보존의 법칙, 운동량보존의 법칙, 에너지 보존의 법칙, 물질전달의 법칙, 그리고 이에 상응하는 경계조건(boundary condition)에 의하여 수학적으로 표시된다.  $v_x, v_y$ 는  $x, y$  직교좌표에서  $x$  및  $y$  좌표에 해당하는 속도성분을 나타내고  $T, \omega_A, p$ 는 각각 온도, 성분 A( $\text{Hg}_2\text{Br}_2$ )의 질량 분율(mass fraction or mass concentration) 및 압력(pressure)을 나타낸다. 무차원(dimensionless) 변수(variables)는 식(1)~(3)에서 정의되며, 무차원 지배방정식(dimensionless governing equations)은 식(4)~(7)로, 경계조건(boundary conditions)은 식(8)~

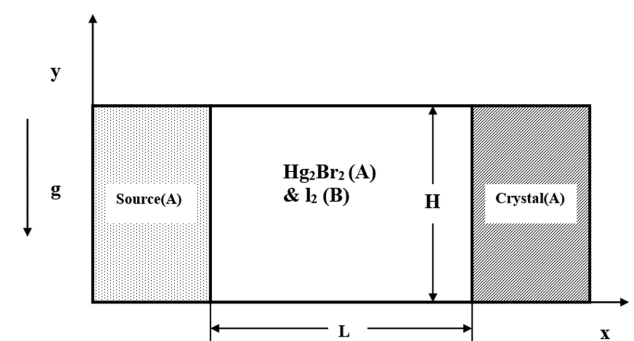


Fig. 1. Schematic of  $\text{Hg}_2\text{Br}_2$  (A)- $\text{I}_2$  (B) PVT growth reactor in a 2-dimensional rectangular system.

(10)으로 표현된다.

$$x^* = \frac{x}{H}, y^* = \frac{y}{H},$$

$$u = \frac{u_x}{U_c}, v = \frac{v_y}{U_c}, p = \frac{p}{\rho_c U_c^2},$$

$$T^* = \frac{T - T_c}{T_s - T_c}, \omega_A^* = \frac{\omega_A - \omega_{A,c}}{\omega_{A,s} - \omega_{A,c}}.$$

$$\nabla^* \cdot \mathbf{V}^* = 0,$$

$$\vec{\nabla}^* \cdot \nabla^* \vec{V}^* = -\nabla^* p^* + \text{Pr} \nabla^* \vec{\nabla}^* - \text{Ra} \cdot \text{Pr} \cdot T^* \cdot \mathbf{e}_g,$$

$$\vec{\nabla}^* \cdot \nabla^* T^* = \nabla^{*2} T^*$$

$$\vec{\nabla}^* \cdot \nabla^* \omega_A^* = \frac{1}{\text{Le}} \nabla^{*2} \omega_A^*$$

용기 벽면( $0 < x^* < L/H, y^* = 0 \ \& \ 1$ ):

$$u(x^*, 0) = u(x^*, 1) = v(x^*, 0) = v(x^*, 1)$$

$$\frac{\partial \omega_A^*(x^*, 0)}{\partial y^*} = \frac{\partial \omega_A^*(x^*, 1)}{\partial y^*} = 0,$$

$$\frac{\partial T^*(x^*, 0)}{\partial y^*} = \frac{\partial T^*(x^*, 1)}{\partial y^*} = 0.$$

소스 영역( $x^* = 0, 0 < y^* < 1$ ):

$$u(0, y^*) = -\frac{1}{\text{Le}(1 - \omega_{A,s})} \frac{\partial \omega_A^*(0, y^*)}{\partial x^*},$$

$$v(0, y^*) = 0,$$

$$T^*(0, y^*) = 1,$$

$$\omega_A(0, y^*) = 1.$$

결정 영역( $x^* = L/H, 0 < y^* < 1$ ):

$$u(L/H, y^*) = -\frac{1}{\text{Le}(1 - \omega_{A,c})} \frac{\partial \omega_A^*(L/H, y^*)}{\partial x^*}$$

$$v(L/H, y^*) = 0,$$

$$T^*(L/H, y^*) = 0,$$

$$\omega_A(L/H, y^*) = 0.$$

식(9) 및 (10)의 계면 속도(승화 및 응축 속도)는 다음과 같이 무차원 Peclet 수와 질량 분율의 매개변수(parameter)로 표현할 수도 있다:

$$u(0, y^*) = -\frac{1}{\text{Pe} \cdot \text{Ar}(C_v - 1)} \frac{\partial \omega_A^*(0, y^*)}{\partial x^*},$$

$$u(L/H, y^*) = -\frac{1}{\text{Pe} \cdot \text{Ar} C_v} \frac{\partial \omega_A^*(L/H, y^*)}{\partial x^*}.$$

여기서 무차원 Peclet 수와 농도 매개변수  $C_v$ 는 다음

과 같이 정의된다.

$$(1) \quad \text{Pe} = \frac{U_{\text{adv}} L}{D_{AB}}, C_v = \frac{1 - \omega_{A,c}}{\Delta \omega}. \quad (13)$$

Peclet 수는 열역학적 변수에 의해서도 추정될 수 있다:

$$\text{Pe} = \ln \left( \frac{p_B(L)}{p_B(0)} \right). \quad (14)$$

$U_{\text{adv}}$ 는 물리적 증기 수송 과정의 열역학, 즉 온도의 함수인  $\text{Hg}_2\text{Br}_2$ 의 증기압에 따라 달라지는 특성 속도(characteristic velocity)이다. 고체-증기 계면에서의 질량 분율은 해당 온도에서 고정된다. 따라서, 주어진 조건 집합에 대해 질량 분율을 독립적으로 변경할 수 없다. 식(11) 및 (12)의 농도 매개변수  $C_v$ 는 질량 분율의 비율을 나타낸다. Peclet 수가 증가함에 따라  $C_v$ 는 감소한다. 지배 방정식의 무차원 매개변수에서  $\text{Hg}_2\text{Br}_2$  증기와 혼합물의 열 물리적 특성은 Chapman-Ensko 공식을 사용하여 낮은 밀도에서 전달계수(transport coefficient)를 분자간의 상호작용 포텐셜 에너지(potential energy)운동 이론으로부터 계산한다[7].  $\text{Hg}_2\text{Br}_2$ 의 증기압  $p_A$ (Pascal 단위)는 온도의 함수로서 다음 공식으로부터 계산된다:

$$p_A = e^{(a-b/T)}, \quad (15)$$

여기서  $a = 9.956, b = 4563$ .

비선형 결합 지배 편미분 방정식(nonlinear, coupled governing partial differential equations) 시스템에 대한 이산화 방정식(discretization equations)을 풀기 위한 자세한 수치 구성표는 문헌[8]에 자세히 설명되어 있다.

### 3. 결과 및 고찰

본 연구의 목적은 결정성장속도와 직접적인 연관성 있는 총 몰플럭스(total molar flux)와 대류 강도를 나타내는 최대 속도벡터(maximum magnitude of velocity vector),  $|U|_{\text{max}}$ 를 (1) 소스와 결정 영역 간의 온도 차이, (2) 성분  $B(I_2)$ 의 분압, (3) 중력 수준 등 공정 매개변수와 상관시켜 물리적 승화법 공정에서 일어나는 증기상(vapor phase)에서 일어나는 온도-농도 대류에 대한 성분  $B(I_2)$ 의 효과를 전산 모사를 통하여 심도있게 연구하는 데 있다. 물리적 승화법 공정에 해당하는 무차원 지배 방정식 및 경계 조건에서, 6개의 무차원 매개변수인  $\text{Gr}, \text{Ar}, \text{Pr}, \text{Le}, C_v$  및  $\text{Pe}$ 는 자연스럽게 발생한다. 본 연구의 공정조건(operating process)에 대한 무차원 매개변수와 물리적 특성은 Table 1에 요약되어 있다.

물리적 승화법 공정중에 분자량이 매우 큰 원소( $I_2$ (성분 B)는 불순물로서, 결정 성분( $\text{Hg}_2\text{Br}_2$ )의 분자량( $M_A$ )과

Table 1  
Typical thermo-physical properties ( $M_A = 560.988$ ,  $M_B = 253.82$ )

Transport length, $L$	5 cm
Height, $H$	5 cm
Source temperature, $T_s$	320°C
Crystal temperature, $T_c$	270°C
Density, $\rho$	0.0034 g/cm <sup>3</sup>
Dynamic viscosity, $\mu$	0.00065 g/(cmsec)
Diffusivity, $D_{AB}$	0.098 cm <sup>2</sup> /s
Thermal expansion coefficient, $\beta$	0.0016 K <sup>-1</sup>
Prandtl number, $Pr$	139.9
Lewis number, $Le$	0.015
Peclet, $Pe$	0.9
Concentration number, $C_v$	1.68
Total operating pressure, $P_T$	383.3 Torr
Partial pressure of component B(I <sub>2</sub> ), $P_B$	200 Torr
Thermal Grashof number, $Gr$	$2.84 \times 10^5$
Solutal Grashof number, $Gr_s$	$1.16 \times 10^6$

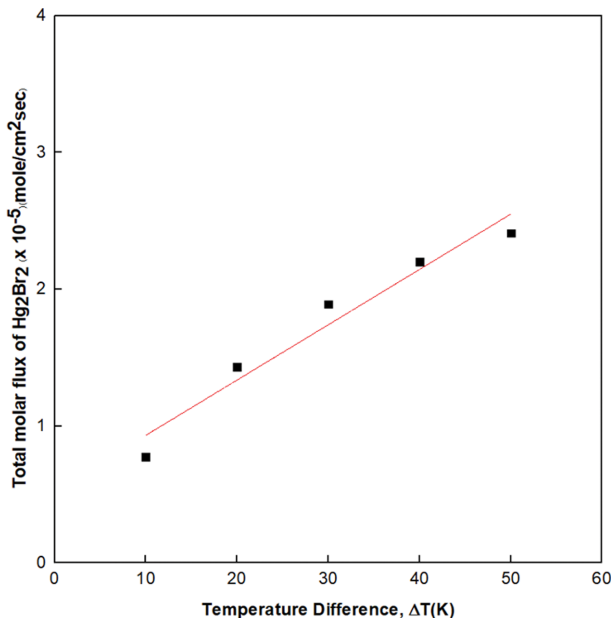


Fig. 2. The total molar flux of  $Hg_2Br_2$  as a function of the temperature difference between the source and the crystal region,  $\Delta T$ (K), for  $10 \text{ K} \leq \Delta T \leq 50 \text{ K}$ ,  $Ar = 1$ ,  $P_B = 200 \text{ Torr}$ ,  $L = 5 \text{ cm}$  and  $T_s = 320^\circ\text{C}$ , with the adiabatic walls.

같지 않기 때문에,  $M_A \neq M_B$ , 본 연구에서는 농도 및/또는 온도 효과를 모두 고려해야 한다. 또한, 농도 대류가 구성 요소 B(I<sub>2</sub>)의 분자량을 식(5)의 밀도 항에서 구성 요소 A인  $Hg_2Br_2$ 와 같게 설정하여 무시할 수 있다고 가정할 때만 온도 대류를 반영할 수 있다. 본 연구에서는 주로 단열 벽 경계 조건을 고려한다. 실제로 단열 벽 경계 조건을 얻는 것은 어렵고 대부분의 결정성장의 증기 성장(vapor crystal growth) 실험에서 더욱 그러하다.

Figure 2는 절연 경계벽이 있는  $10 \text{ K} \leq \Delta T \leq 50 \text{ K}$ 에 대해 소스와 결정 영역 사이의 온도 차이  $\Delta T$ (K)에 따른 브로민화 수은(I)( $Hg_2Br_2$ ) 총 몰플럭스(total molar

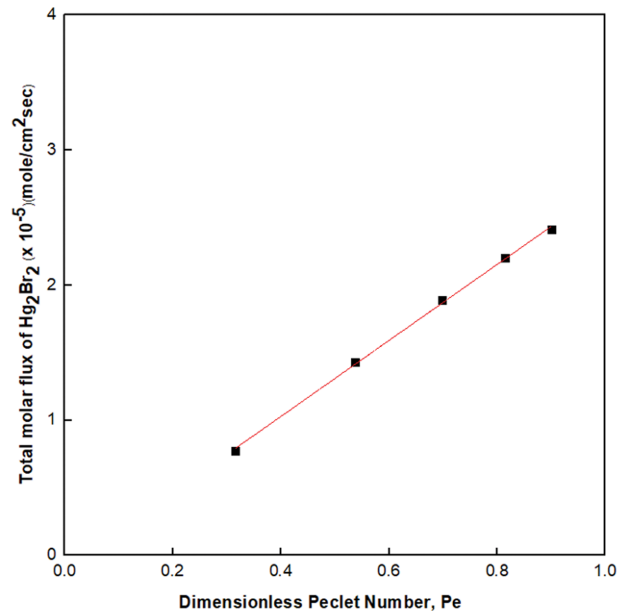


Fig. 3. Relationship between the total molar flux of  $Hg_2Br_2$  and the dimensionless Peclet number,  $Pe$ , corresponding to Fig. 2.

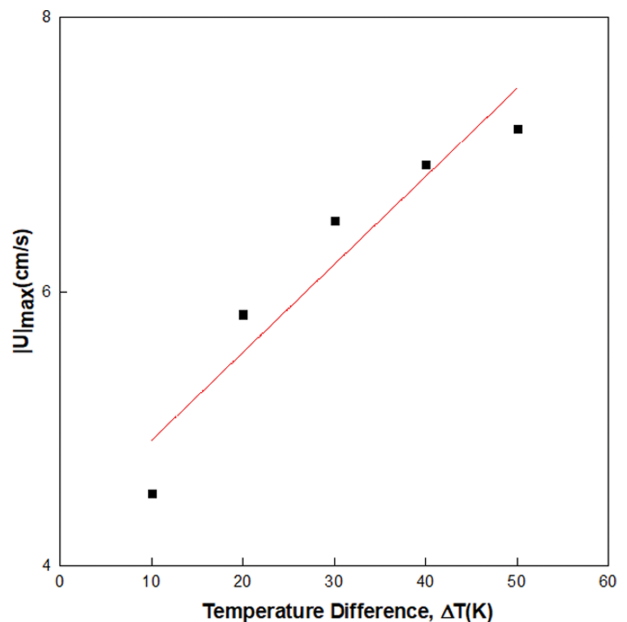


Fig. 4. The  $|U|_{max}$  as a function of the temperature difference between the source and the crystal region,  $\Delta T$ (K), corresponding to Fig. 2.

flux) 변화를 나타내고 있다. 브로민화 수은(I)( $Hg_2Br_2$ )의 총 몰플럭스(total molar flux)는 소스와 결정 영역 사이의 온도 차이  $\Delta T$ (K)와 직접적인 선형적 관계성을 나타내고 있다. 이것은 물리적 승화법의 기본적인 추진력이 소스와 결정 영역 사이의 온도 차이  $\Delta T$ (K)에 있기 때문이다. 여기에서, 기본적인 공정조건은  $Ar = 1$ ,  $P_B = 200 \text{ Torr}$ ,  $L = 5 \text{ cm}$ ,  $T_s = 320^\circ\text{C}$ , 벽면에서 단열 경계조건이다.

Figure 3는 Fig. 2에 해당하는 총 몰플럭스(total molar

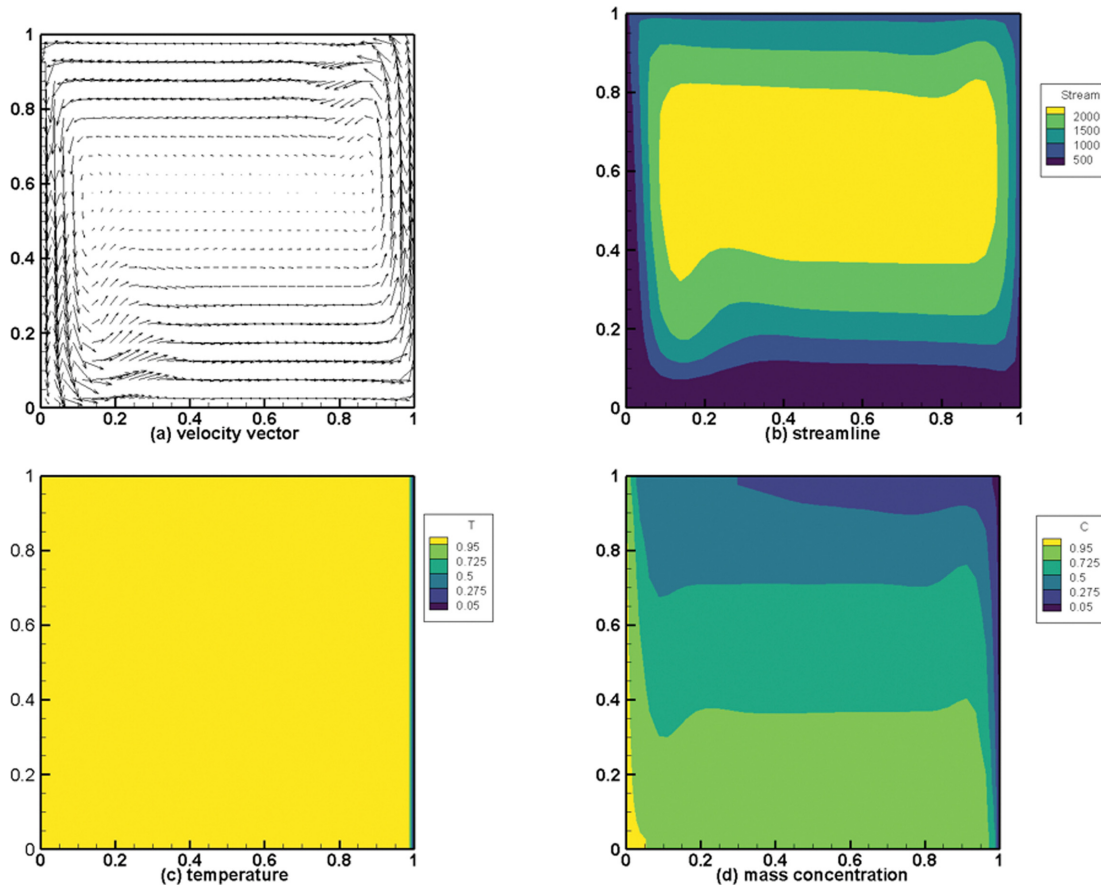


Fig. 5. Adiabatic walls: (a) velocity vector, (b) streamline, (c) temperature, (d) mass concentration profile for the case of  $P_B = 200$  Torr, aspect ratio = 1. Maximum magnitude of velocity vector,  $|U|_{\max} = 7.19$  cm/sec, vector length = relative  $5.67 \times 10^{-5}$  cm/magnitude, maximum streamline = 2,309, minimum streamline = 0. Prandtl number = 139.9,  $\Delta T = 50^\circ\text{C}$ , Peclet number = 0.9, thermal Grashof number =  $2.84 \times 10^5$ , solutal Grashof number =  $1.55 \times 10^6$ . The total molar flux of  $\text{Hg}_2\text{Br}_2 = 2.41 \times 10^{-5}$  mole  $\text{cm}^{-2}\text{sec}^{-1}$ , kinematic viscosity =  $0.19$   $\text{cm}^2\text{sec}^{-1}$ , thermal diffusivity =  $0.013$   $\text{cm}^2\text{sec}^{-1}$ , binary diffusivity =  $0.089$   $\text{cm}^2\text{sec}^{-1}$ , total operating pressure = 383.3 Torr.

flux)와 무차원 Peclet 수,  $Pe$ 와 직접적인 상관 관계를 보여준다. Figure 2와 Fig. 3를 비교하면, 소스와 결정 영역 사이의 온도 차이  $\Delta T(\text{K})$ 와 무차원 Peclet 수,  $Pe$ 에 대한 상관 관계성이 동일한 패턴과 거동이 나타나고 있다. 다시 말하면, 온도 차이  $\Delta T(\text{K})$ 가 무차원 Peclet 수,  $Pe$ 와 직접적이고 선형적인 관계성이 있음을 의미한다. 무차원 Peclet 수,  $Pe$ 는 식(13) 및 (14)으로 정의된다. Figure 4는 Fig. 2에 해당하는 총 몰플럭스(total molar flux)와  $|U|_{\max}$ 와 직접적인 상관 관계를 보여준다. 결정성장 공정조건의 하나인  $\Delta T$  범위는  $10 \text{ K} \leq \Delta T \leq 50 \text{ K}$ 이며, 정량적 상관관계를 나타내는 기울기는  $0.0409$  mole  $\text{cm}^{-2}\text{sec}^{-1}\text{K}^{-1}$ 이다.  $|U|_{\max}$ 는 무차원적 최대 속도 크기로서, 물리적 증기 전달현상에서 나타내는 온도 / 또는 농도 대류 강도를 정량적으로 나타내는 지표이다.

Figure 5는 단일 벽조건에서, (a) 속도 벡터(velocity vector), (b) 유선(streamline), (c) 온도(temperature), (d) 질량농도(mass concentration)분포를 나타내고 있다. 고려되는 공정조건은 성분 B의 분압  $P_B = 200$  Torr, 에스

펙트 비율(aspect ratio) = 1이다. 최대속도크기  $|U|_{\max} = 7.19$  cm/sec, 벡터길이는 상대크기(relative)  $5.67 \times 10^{-5}$  cm/크기(magnitude), 최대 유선(maximum streamline) = 2309, 최소 유선(minimum streamline) = 0. 무차원 Prandtl 수 = 139.9, 온도차  $\Delta T = 50^\circ\text{C}$ , 무차원 Peclet 수 = 0.9, thermal Grashof 수 =  $2.84 \times 10^5$ , solutal Grashof 수 =  $1.55 \times 10^6$ . 총 몰플럭스(total molar flux of  $\text{Hg}_2\text{Br}_2 = 2.41 \times 10^{-5}$  mole  $\text{cm}^{-2}\text{sec}^{-1}$ , 동점도(kinematic viscosity) =  $0.19$   $\text{cm}^2\text{sec}^{-1}$ , 열확산계수(thermal diffusivity) =  $0.013$   $\text{cm}^2\text{sec}^{-1}$ , 이성분계 확산계수(binary diffusivity) =  $0.089$   $\text{cm}^2\text{sec}^{-1}$ , 총 공정압력(total operating pressure) = 383.3 Torr. Figure 5(a)와 5(b)는 밀폐된 결정성장 용기내에서 1개의 셀(cell)이 존재하는 것을 보여주면, 이는 대류현상이 지배적임을 나타내고 있다. Figure 5(c)의 온도분포에서는 비교적 온도의 변화가 없는 것을 있는데, 종래의 연구 논문에서 나타나지 않는 온도 분포도의 결과이다. 이러한 결과는 높은 무차원 Prandtl 수에서 나타나는, 즉, 대류속도와 관계되는 동점도가 온도와 관계는 온도 확산

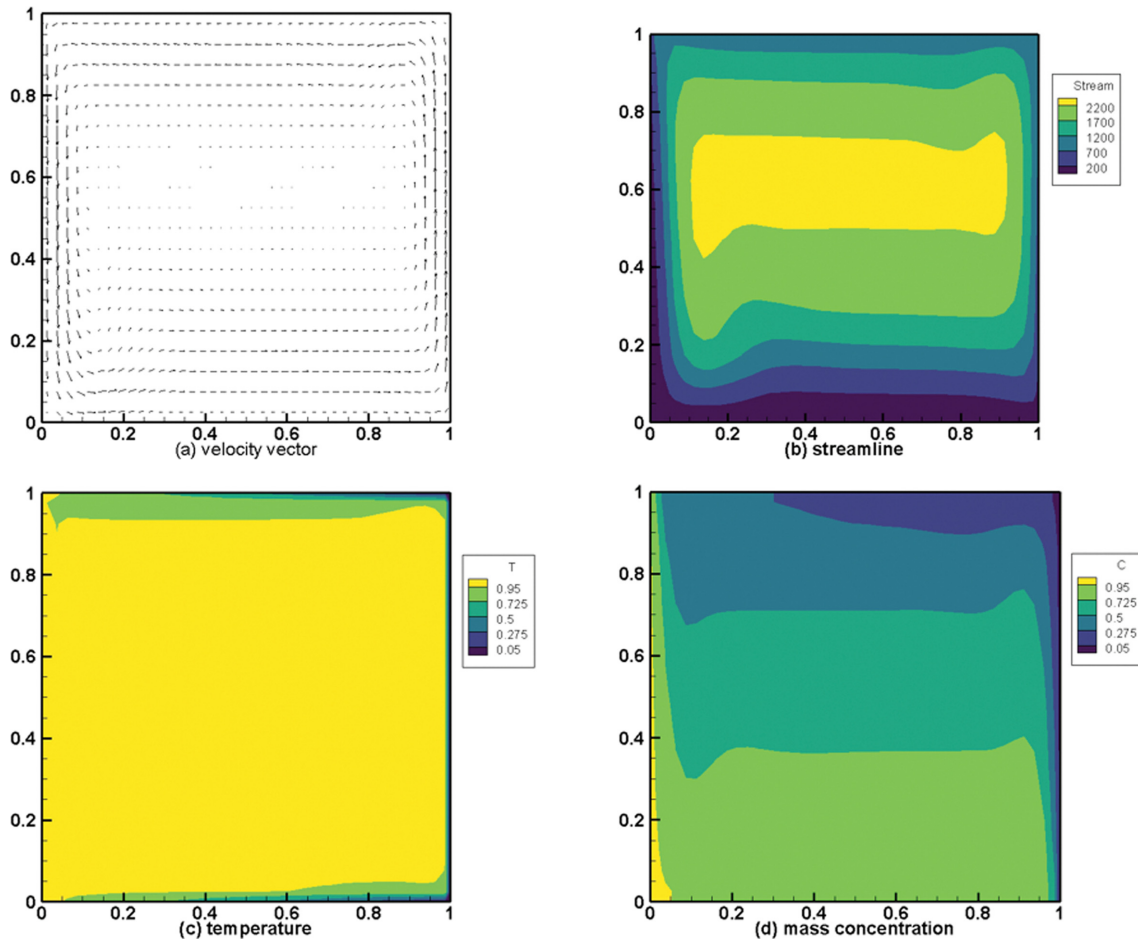


Fig. 6. Linear temperature profile: (a) velocity vector, (b) streamline, (c) temperature, (d) mass concentration profile for the case of  $P_B = 200$  Torr, aspect ratio = 1. Maximum magnitude of velocity vector,  $|U|_{max} = 7.20$  cm/sec, vector length = relative  $1.49 \times 10^{-5}$  cm/magnitude, maximum streamline = 2,315, minimum streamline = 0, corresponding Fig. 5.

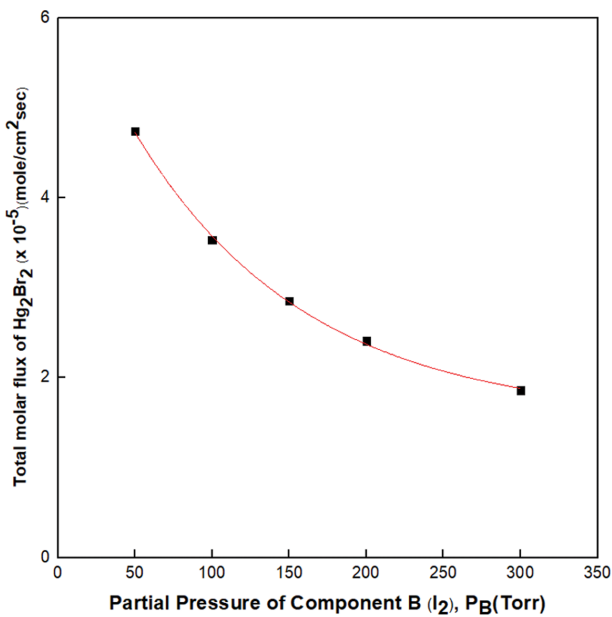


Fig. 7. The effects of the partial pressure of component B,  $P_B$  (Torr) on the total molar flux of  $Hg_2Br_2$ , based on  $\Delta T = 50$  K,  $Ar = 1$ ,  $L = 5$  cm, and  $T_s = 320^\circ C$ , with adiabatic walls.

계수에 비하여  $10^2$ 의 크기를 가지고 있기 때문이다. 이에 대한 연구는 차후의 연구를 통하여 전산 모사를 통하여 증명해야 연구 과제로 남는다.

Figure 6는 Fig. 5와 동일한 결정성장 공정조건에서, 벽면 경계 조건을 선형적 온도 분포로 바꾸었을 때 나타나는 현상을 서로 비교하기 위해서 전산 모산 한 결과를 나타낸 것이다. 대류현상의 패턴은 동일하며, 즉 1개의 대류 셀(cell)이며,  $|U|_{max}$ 의 값도 크게 차이가 없다. 이는 벽면의 경계조건은 전달현상 측면에서는 큰 의미가 없으나, 결정성장시키는 물성치에는 영향을 줄 수가 있다.

Figure 7는 성분 B의 분압  $P_B$ (Torr)가 총 몰플럭스(total molar flux)에 미치는 영향을 나타내고 있으며, 고려되는 공정조건은  $\Delta T = 50$  K,  $Ar = 1$ ,  $L = 5$  cm,  $T_s = 320^\circ C$ , 단열 벽면 조건이다.  $50 \text{ Torr} \leq P_B \leq 300$  Torr 범위에서, 총 몰플럭스(total molar flux)는 성분 B의 분압  $P_B$ (Torr)이 증가함에 따라 지수함수적으로 감소하고 있다. Figure 8는 성분 B의 분압  $P_B$ (Torr) = 50 Torr인 경우인데, 이는  $P_B$ (Torr) = 200 Torr인 경우인

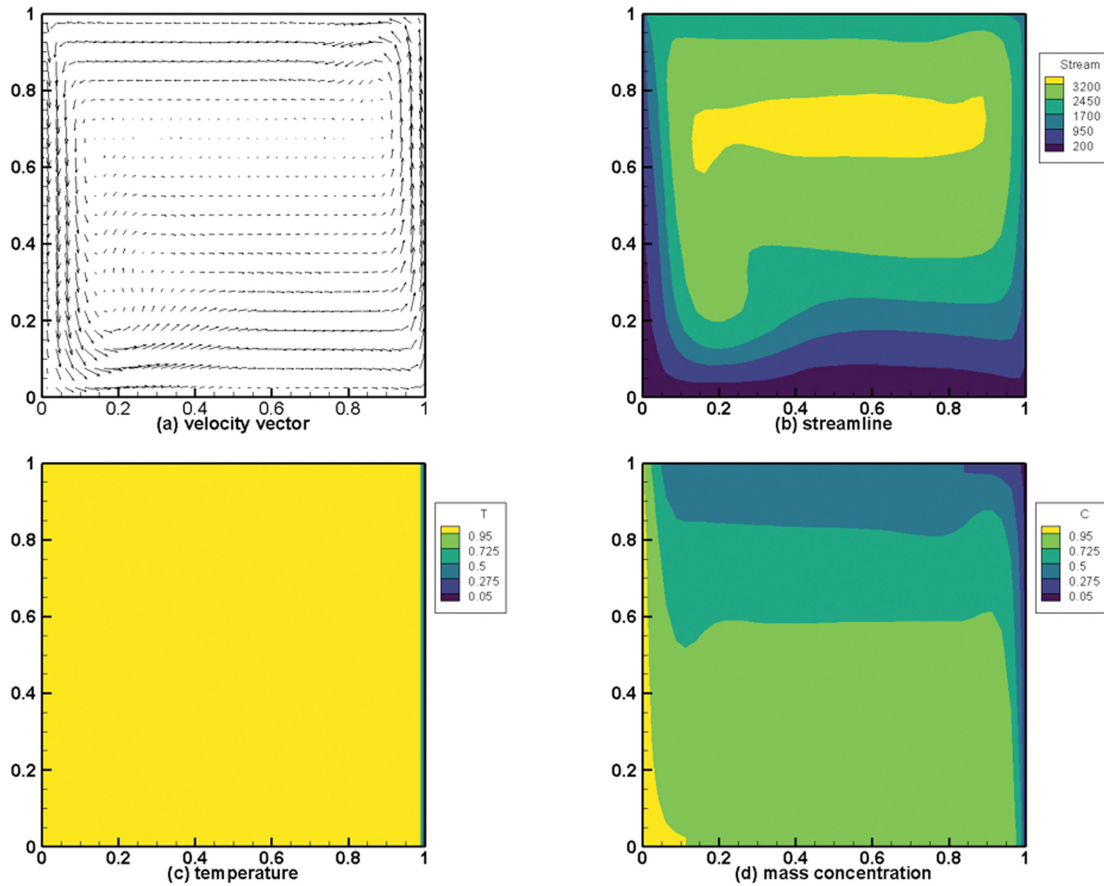


Fig. 8. Adiabatic walls: (a) velocity vector, (b) streamline, (c) temperature, (d) mass concentration profile for the case of  $P_B = 50$  Torr, aspect ratio = 1. Maximum magnitude of velocity vector,  $|U|_{max} = 10.9$  cm/sec, vector length = relative  $2.48 \times 10^{-5}$  cm/magnitude, maximum streamline = 3,283, minimum streamline = 0. Prandtl number = 102.6,  $T = 50^\circ\text{C}$ , Peclet number = 1.87, thermal Grashof number =  $2.69 \times 10^5$ , solutal Grashof number =  $1.16 \times 10^6$ . The total molar flux of  $\text{Hg}_2\text{Br}_2 = 4.74 \times 10^{-5}$  mole  $\text{cm}^{-2}\text{sec}^{-1}$ .

Fig. 5와 비교하기 위해서 전산 모사한 결과를 이미지화 하였다.  $P_B(\text{Torr}) = 50$  Torr인 경우에 해당하는 Fig. 8(b) 유선 분포와  $P_B(\text{Torr}) = 200$  Torr인 경우에 해당하는 Fig. 5(b)의 유선분포를 서로 비교해 보면 같은 유동 흐름의 패턴을 가지고 있으며, 성분 B의 분압  $P_B(\text{Torr}) = 50$  Torr인 경우의 유선 흐름 값이 Fig. 5(b)의 유선분포의 경우에 최대치 유선값의 비율이 1.6에 해당한다. 즉,  $P_B(\text{Torr}) = 50$  Torr인 경우의 최대 유선값이 3,200이며,  $P_B(\text{Torr}) = 200$  Torr인 경우의 최대 유선값이 2,000이다. Figure 5(a) 속도벡터의 최대 크기인,  $|U|_{max} = 7.19$  cm/sec이고, Fig. 8(a) 속도벡터의 최대 크기인,  $|U|_{max} = 10.9$  cm/sec이므로 성분 B의 낮은 분압  $P_B(\text{Torr})$ 에서 보다 대류의 강도가 더 크다고 볼 수 있다.

Figure 9는 중력가속도( $g$ )가  $\text{Hg}_2\text{Br}_2$  총 몰플럭스(total molar flux)에 미치는 영향을 나타내고 있다. 중력가속도를  $1g_0$ 에서  $1.0 \times 10^{-6}g_0$ 까지 변화시켜 보면서,  $\text{Hg}_2\text{Br}_2$  총몰플럭스(total molar flux)의 변화크기를 확인하였다.  $10^{-6}g_0 \leq g \leq 10^{-4}g_0$  영역에서는 확산영역(diffusion region)이고,  $10^{-4}g_0 \leq g \leq 10^{-2}g_0$  영역에서는 전이 영역에

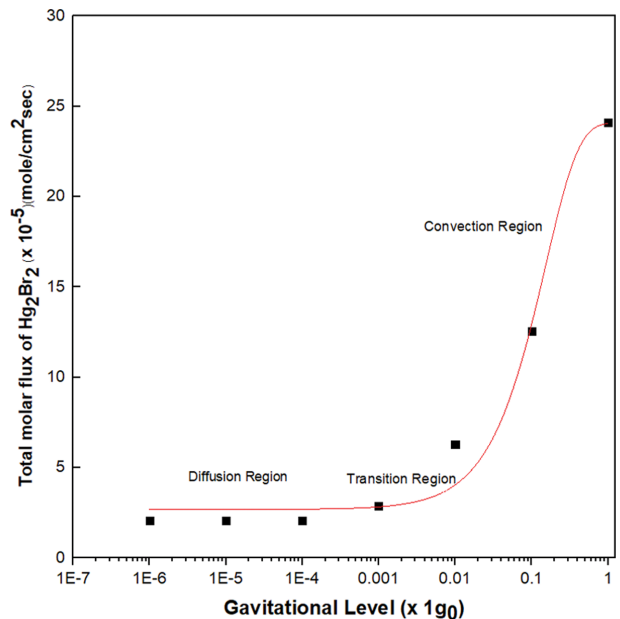


Fig. 9. The effects of various gravitational levels,  $g$  on the total molar flux of  $\text{Hg}_2\text{Br}_2$ , for  $1.0 \times 10^{-6}g_0 \leq g \leq 1g_0$ , based on  $P_B = 200$  Torr,  $\Delta T = 50$  K,  $\text{Ar} = 1$ ,  $L = 5$  cm, and  $T_s = 320^\circ\text{C}$ , with the adiabatic temperature walls.

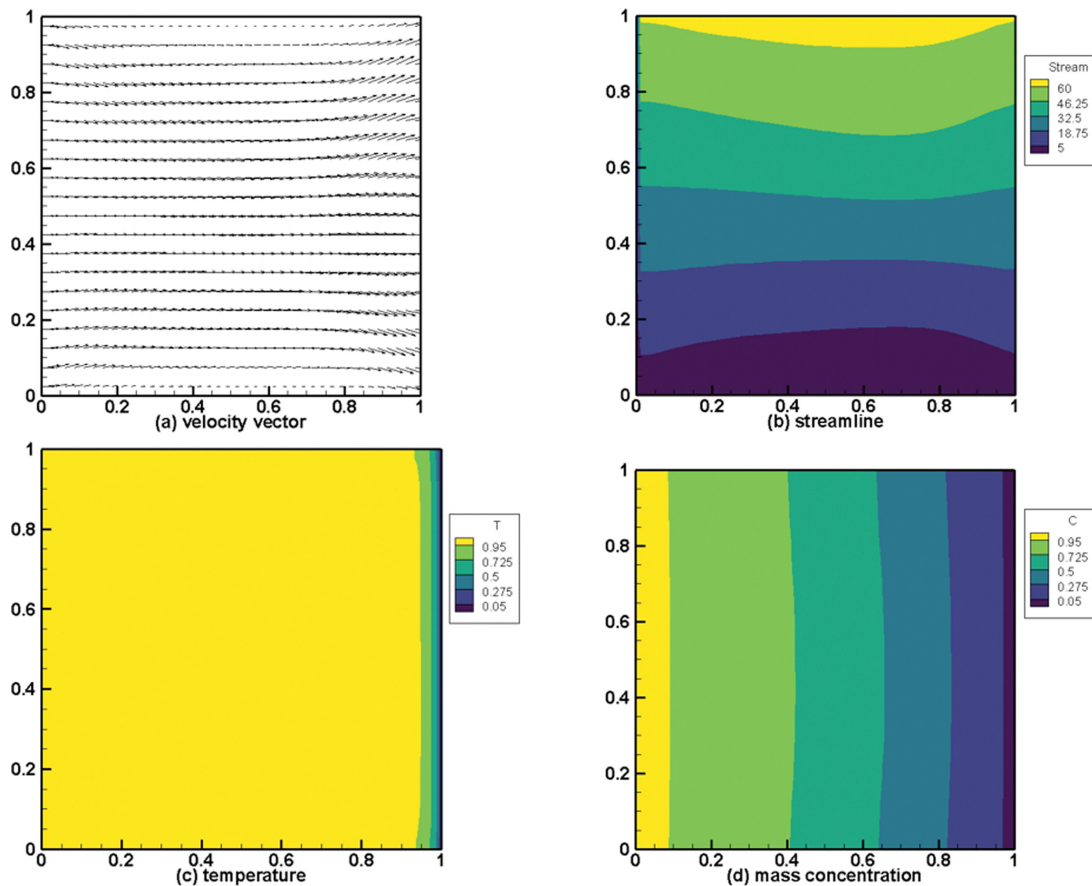


Fig. 10. Adiabatic walls: (a) velocity vector, (b) streamline, (c) temperature, (d) mass concentration profile for the case of  $P_B = 200$  Torr, aspect ratio = 1, gravitational level =  $1.0 \times 10^{-6}g_0$ . Maximum magnitude of velocity vector,  $|U|_{\max} = 0.024$  cm/sec, vector length = relative 0.002 cm/magnitude, maximum streamline = 62.19, minimum streamline = 0. Prandtl number = 139.9,  $\Delta T = 50^\circ\text{C}$ , Peclet number = 0.9, thermal Grashof number =  $2.84 \times 10^5$ , solutal Grashof number =  $1.16 \times 10^6$ . The total molar flux of  $\text{Hg}_2\text{Br}_2 = 2.05 \times 10^{-6}$  mole  $\text{cm}^{-2}\text{sec}^{-1}$ .

해당한다.  $10^{-2}g_0 \leq g \leq 1g_0$ 에서는 대류영역(convection region)이다. 여기서 고려된 공정 조건은 단열 벽조건에서,  $P_B = 200$  Torr,  $\Delta T = 50$  K,  $Ar = 1$ ,  $L = 5$  cm,  $T_s = 320^\circ\text{C}$ . Figure 10는 단열 벽면 경계 조건에서, 중력가속도( $g$ )가  $1.0 \times 10^{-6}g_0$ 인 경우에, 단열 벽조건에서, (a) 속도 벡터(velocity vector), (b) 유선(streamline), (c) 온도(temperature), (d) 질량농도(mass concentration)분포를 나타내고 있다.  $g = 1.0 \times 10^{-6}g_0$ 인 경우에  $|U|_{\max} = 0.024$  cm/sec이며, 이 값은 확산영역(diffusion region)에 해당하는  $10^{-6}g_0 \leq g \leq 10^{-4}g_0$  범위에 대하여, 변하지 않고 동일하다. 확산영역(diffusion region)에서는 대류의 셀(cell)이 나타나지 않고 오로지, 확산에 의한 물질이동현상을 나타내는 advection flow만 나타내고 있다.

#### 4. 결 론

본 연구에서 무차원 매개변수인  $Gr$ ,  $Ar$ ,  $Pr$ ,  $Le$ ,  $C_v$  및  $Pe$ 는 자연스럽게 발생한다. 본 연구의 공정조건(operating

process)에  $Gr = 2.84 \times 10^5$ ,  $Gr_s = 1.16 \times 10^6$ ,  $Ar = 1.0$ ,  $Pr = 139.9$ ,  $Le = 0.015$ ,  $C_v = 1.68$ ,  $Pe = 0.9$ 이다. 높은 Prandtl 수를 갖는  $\text{Hg}_2\text{Br}_2(\text{A})-\text{I}_2(\text{B})$  물리적 승화법 공정에서, 증기 상태에서 온도 분포는 결정 영역 근처를 제외하고 균일하다. 또한  $10^{-2}g_0 \leq g \leq 1g_0$ 의 경우 증기상(vapor phase)에서 온도-농도 부력에 의해 구동되는 대류가 지배적이며, 중력 수준  $g = 10^{-2}g_0$  근처에서 대류에서 확산으로의 전이 영역이 발생하고,  $10^{-6}g_0 \leq g \leq 10^{-4}g_0$ 의 경우 확산 모드가 우세하다.  $10 \text{ K} \leq \Delta T \leq 50 \text{ K}$  범위에서, 총 몰 플럭스는 소스와 결정 영역 사이의 온도 차이에 따라 선형적이고 직접적으로 증가한다.  $\text{Hg}_2\text{Br}_2$ 의 총 몰 플럭스는  $50 \text{ Torr} \leq P_B \leq 200 \text{ Torr}$  범위에서 성분 B( $I_2$ ),  $P_B(\text{Torr})$ 의 분압에 따라 지수적으로 감소한다.

#### 감사의 글

이 논문은 2024학년도 한남대학교 학술연구비 지원(과

제번호 2024A202, 연구기간 2024.10.01~2025.09.30)에 의하여 연구되었습니다.

## References

- [ 1 ] N.B. Singh, M. Gottlieb, G.B. Brandt, A.M. Stewart, R. Mazelsky and M.E. Glicksman, "Growth and characterization of mercurous halide crystals: mercurous bromide system", *J. Crystal Growth* 137 (1994) 155.
- [ 2 ] N.B. Singh, R.H. Hopkins, R. Mazelsky and J.J. Conroy, "Purification and growth of mercurous chloride single crystals", *J. Crystal Growth* 75 (1970) 173.
- [ 3 ] N.B. Singh, M. Gottlieb, A.P. Goutzoulis, R.H. Hopkins and R. Mazelsky, "Mercurous Bromide acousto-optic devices", *J. Crystal Growth* 89 (1988) 527.
- [ 4 ] F. Rosenberger, "Fluid dynamics in crystal growth from vapors", *Physico-Chemical Hydro-dynamics* 1 (1980).
- [ 5 ] B.L. Markham, D.W. Greenwell and F. Rosenberger, "Numerical modeling of diffusive-convective physical vapor transport in cylindrical vertical ampoules", *J. Crystal Growth* 51 (1981) 426.
- [ 6 ] W.M.B. Duval, "Convection in the physical vapor transport process-- I: Thermal", *J. Chemical Vapor Deposition* 2 (1994) 188.
- [ 7 ] R.B. Bird, W.E. Stewart and E.N. Lightfoot, "Transport Phenomena", (John Wiley and Sons, New York, NY, 1960).
- [ 8 ] S.V. Patankar, "Numerical heat transfer and fluid flow", (Hemisphere Publishing Corp., Washington D.C., 1980).