

Generic studies on diffusion-limited system for Korean spaceflight: Effects of aspect ratio and irregular temperature difference

Sung Ho Ha[†] and Geug Tae Kim[†]

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

(Received August 28, 2026)

(Revised September 3, 2026)

(Accepted September 8, 2026)

Abstract In this study, as the expectation ratio Ar increases, the internal convective velocity $|U|_{\max}$ decreases sharply due to the expansion of wall frictional resistance. This lowers the heat and mass transfer efficiency (Nu , Sh) at the crystal growth interface to its lowest level, ultimately causing an exponential decrease in the single-crystal growth rate of mercury(I) bromide (Hg_2Br_2). To efficiently manufacture high-speed and high-quality mercury(I) bromide crystals, it is essential to design low expectation ratio Ar ampoules and optimize the process to ensure appropriate convective intensity within a range that does not induce convective instability. The results of this study are expected to serve as important basic computational data for designing constricted diffusion systems under microgravity or terrestrial conditions, such as in future Korean Spaceflight.

Key words Korean spaceflight, Aspect ratio, Irregular temperature difference

한국 우주비행 응용 확산제한 시스템에 대한 일반 연구: 엑스펙트비 및 불규칙한 온도차의 영향

하성호[†], 김극태[†]

한남대학교 공과대학 화학공학과, 대전, 34054

(2026년 8월 28일 접수)

(2026년 9월 3일 심사완료)

(2026년 9월 8일 게재확정)

요약 본 연구에서 엑스펙트비 Ar 가 증가하면 벽면 마찰 저항의 확대로 인해 내부 대류 유속인 $|U|_{\max}$ 가 급감하고, 이는 결정 성장 계면에서의 열 및 물질 전달 효율(Nu , Sh)을 최저 수준으로 떨어뜨려 최종적으로 브로민화 수은(I)(Hg_2Br_2)의 단결정 성장 속도를 지수 함수적으로 감소시키는 원인이 된다. 고속·고품질의 브로민화 수은(I) 결정을 효율적으로 제조하기 위해서는 대류의 불안정성이 유발되지 않는 범위 내에서 적절한 대류 강도 ($Sh > 1$)를 보장할 수 있는 형태의 낮은 엑스펙트비 Ar 앰플 설계 및 공정 최적화가 필수적이다. 본 연구 결과는 향후 한국 우주비행(Korean Spaceflight) 등 미소중력 혹은 지상 조건에서의 제한된 확산 시스템 설계를 위한 중요한 기초 전산 데이터로 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

1. 서론

브로민화 수은(I)(Hg_2Br_2 , mercurous bromide) 단결정은 0.36~20 mm에 이르는 광범위한 광 투과 대역을 지니고 있어, 지난 반세기 동안 X-선 검출기를 비롯한 음향 광학 및 광전자 소자의 핵심 소재로 주목받아 왔습니

다. 일반적으로, 정제된 브로민화 수은(I)(Hg_2Br_2) 물질(99.999%)을 결정 성장을 위해 석영 앰플에 넣은 후, 10^{-6} Torr의 고진공 상태에서 밀봉됩니다. 최근 브로민화 수은(I)(Hg_2Br_2 , mercurous bromide)의 결정 성장 연구 [1-4]에서, 결정 성장 전에 원료 물질을 응집시키기 위해 먼저 하부 소스 영역에서는 가열로에서 330°C 로 유지하고, 상부 결정 영역에서는 하부 히터보다 20°C 낮은 온도 구배를 유지합니다. 제1 브로민화 수은 원료 분말의 이러한 첫 번째 수송 과정은 수직형 물리적 기상 증착법(physical vapor transport) 시스템에서 필수적이며, 승화

[†]Corresponding authors

E-mail: shha@hnu.kr, gtkim@hnu.kr

Copyright © 2026 The Korean Association of Crystal Growth Open Access article under the CC BY-NC 4.0 license (<https://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/>).

된 제1 브로민화 수은 분말을 석영 앰폴의 최상부 영역에 응축시킵니다. 이 단계에서 고체 Hg_2Br_2 는 기체 Hg 와 기체 HgBr_2 로 분해된 후 다시 Hg_2Br_2 와 함께 고체화됩니다. 실제 브로민화 수은(I)(Hg_2Br_2) 결정 성장은 크게 세 가지 과정으로 나눌 수 있습니다. 즉, 종자 결정의 형성 및 성장, 그리고 결정 성장입니다. 물리적 기상 증착법 공정의 핵심 메커니즘은 밀폐용기 내부의 온도 구배에 의해 제어되는 화학반응 없는 승화와 응축 현상입니다. 즉, 기상에서의 브로민화 수은(I)(Hg_2Br_2) 성분이 원료 소스 영역에서 승화하여 결정 성장 영역으로 이동한 후 재결정화되는 과정을 거칩니다. 이러한 물리적 기상 증착법은 상대적으로 저온에서 공정이 진행되므로 기존의 용융 성장법 대비 뚜렷한 장점을 가집니다. 특히, 이러한 물리적 기상 증착법(Physical Vapor Transport) 공정은 지상 조건뿐만 아니라 향후 대한민국 우주비행(Korean Spaceflight) 임무 등 미소중력(Microgravity) 환경에서의 물질 제조를 위한 핵심 공정으로 주목받고 있다. 미소중력 환경에서는 중력에 의한 열대류가 극도로 억제되어 순수 분자 확산이 지배적인 확산 율속 단계(Diffusion-limited step)에 진입하게 되므로, 시스템의 기하학적 형상이 물질 수송 효율에 미치는 영향력을 선제적으로 규명하는 전산모사 연구가 필수적이다. 종래의 PVT 수치해석 연구들은 주로 고정된 수평 앰폴 형상 내에서의 온도 구배 효과에 치중해 왔다[5-7]. 그러나 실제 단결정 성장 과정에서는 용기 벽면과의 마찰 저항 및 비대칭적 열분포로 인해 국부적인 유동 불안정성이 발생할 수 있다. 따라서 본 연구에서는 단순한 작동 조건을 넘어, 앰폴의 기하학적 특성인 엑스펙트비(Ar , 이동거리/폭)의 변화와 앰폴 양 옆벽 사이의 불규칙한 수평 온도 차이(ΔT_H)가 기상 내 최대 속도($|U|_{\max}$) 그리고 열 및 물질 전달 효율(Nusselt 수, Sherwood 수)에 미치는 복합적인 유체역학적 메커니즘을 정량적으로 분석하고자 한다.

본 전산모사 연구에서는 이 단계에서 고체(Hg_2Br_2)는 기체 Hg 와 기체(HgBr_2)로 분해된 후 다시 재결정화 과정[1] 보다는 소스영역과 결정영역에서 분해성 반응보다는 기체상에서의 기체 Hg 와 기체(Hg_2Br_2)의 혼합물의 유체로 가정하여, 브로민화 수은(I)(Hg_2Br_2)를 모델 연구(model study)로 선택하여, 2 존의 가열로(2-zone furnace) 시스템 내에 수평으로 배치된 원통형 밀폐 앰폴을 대상으로, 브로민화 수은(I)(Hg_2Br_2)의 기상 결정 성장 중에 발생하는 물리적 기상 증착법 공정을 확산율속단계(diffusion-limited step) 모델[8-11]에 기초하여, 2차원 정상상태에서의 뉴턴 유체에 해당하는 Navier-Stokes 방정식과 열, 농도 방정식을 수치 해석적으로 전산 모사하고자 합니다.

본 논문에서의 주요 연구 매개변수에 관한 연구는 한 쪽 측면이 다른 측면 온도보다 높았을 때, 일어나는 대

류현상을 고려합니다. 기체상에서 기체 Hg 와 기체(Hg_2Br_2)의 혼합물의 성분 간 분자량 차이는 온도 차에 의한 열 대류보다 더욱 강력한 용질 대류(Solutal Convection)를 유발하여 시스템 전체의 질량 플럭스(Molar flux) 불균일성을 초래할 수 있다. 본 연구에서는 Navier-Stokes 방정식과 열·농도 방정식을 결합하여, 열 및 용질 부력이 복합적으로 작용하는 시스템을 SIMPLER 알고리즘[12] 기반으로 정밀하게 모사하고자 한다.

2. 수학적 모델

Figure 1은 2차원 수직 직사각형 밀폐공간에서, 물리적 기상 증착법 결정 성장 시스템을 설명하고 있다. 하나의 수직면이 고온으로 유지되는 소스 영역 및 반대쪽 수직 벽이 저온으로 유지되는 결정 영역으로 지칭된다. 소스 영역의 브로민화 수은(I)(Hg_2Br_2)(성분 A)는 결정 영역으로 수송된다. 기상에서 브로민화 수은(I)(Hg_2Br_2)에 가스인 수은(성분 B)은 밀폐공간 내에서 기체 상태로 존재한다. 이중 확산 자연대류 시스템에 대한 수학적 모델

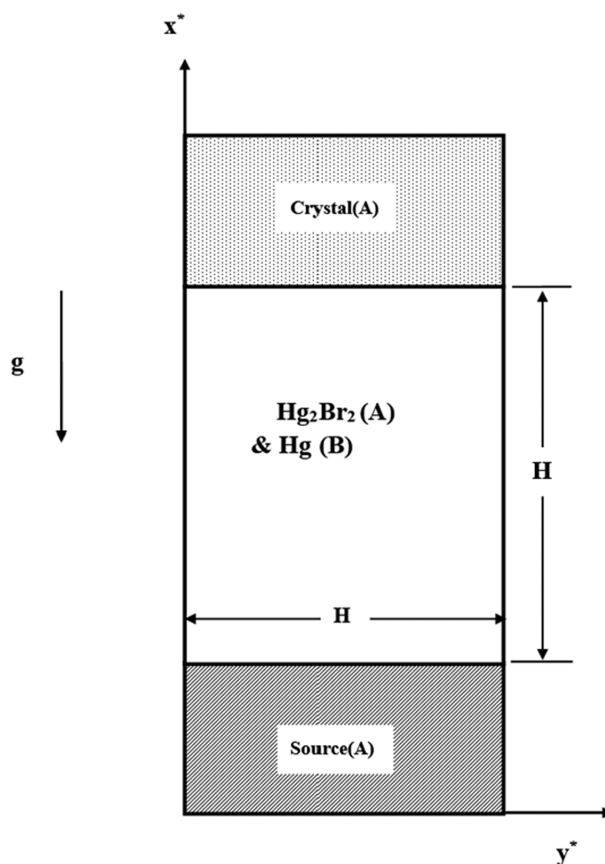


Fig. 1. Schematic descriptions and coordinates of the system for two-dimensional numerical simulations of major component Hg_2Br_2 (A) and minor component Hg (B) during physical vapor transport on earth ground.

수치해석은 SIMPLER(Semi-Implicit Method Pressure-Linked Equations Revised) 알고리즘[12]을 활용하였으며, x^* , y^* 방향으로 40×20 메시(mesh)를 사용하였다. 유체는 뉴턴(Newtonian)이며 비압축성, 층류로 2차원 차원적 유동 흐름이며, 정상상태라고 가정한다. 또한, 유체는 연속체로 거동하고 벽에서 no-slip 경계조건이라고 가정하며, 부력항의 밀도변화를 제외한 유체의 화학 물리적 특성은 상수로 간주하며, 밀도는 이상기체법칙에 따르며, 복사 및 점성 소산 효과는 무시한다.

2.1. 무차원 형태의 방정식

무차원 변수:

$$x^* = \frac{x}{H}, y^* = \frac{y}{H}, u = \frac{v_x}{U}, v = \frac{v_y}{U},$$

$$p^* = \frac{p}{\rho_0 U^2}, T^* = \frac{T - T_c}{T_s - T_c},$$

$$\omega_A^* = \frac{\omega_A - \omega_{A,c}}{\omega_{A,s} - \omega_{A,c}}, U = \frac{\alpha}{H}.$$

여기서 U 는 특성 속도, H 는 가로 폭(width), x , y 는 각각 공동길이와 밀폐공간의 폭에 따른 직각좌표이고, p 는 압력이다. 지배방정식(governing equation)서 사용된 무차원 매개변수(Rayleigh 수, Prandtl 수, Lewis 수, Peclet 수; C_v (농도 매개변수))는 참고문헌[6-8]에서 찾을 수 있다. β 는 열 부피팽창계수이다. 질량 물분율 ω_A 는 다음과 같이 정의된다:

$$\omega_A = \frac{x_A M_A}{x_A M_A + x_B M_B}.$$

여기서 x 는 성분 A의 물분율이며, M 은 성분의 몰 분자량이다.

무차원 변수로 적용하면 지배방정식을 무차원 형식으로 다음과 같이 표현된다:

$$\nabla \cdot \vec{V}^* = 0, \quad (1)$$

$$\vec{V}^* \cdot \nabla \vec{V}^* = -\nabla^* p^* + Pr \nabla^{*2} - Ra \cdot Pr \frac{(1 - \rho^*)}{\beta \Delta T}, \quad (2)$$

$$\vec{V}^* \cdot \nabla T^* = \nabla^{*2} T^* \quad (3)$$

$$\vec{V}^* \cdot \nabla \omega_A^* = \frac{1}{\text{Le}} \nabla^{*2} \omega_A^*. \quad (4)$$

관련 경계조건은 다음과 같다.

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

$$u(x^*, 0) = u(x^*, 1) = v(x^*, 0) = v(x^*, 1), \quad (5)$$

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

$$T^*(x^*, 0) = -x^* + 1.$$

소스 영역($x^* = 0$, $0 \leq y^* \leq 1$):

$$u(0, y) = -\frac{1}{(C_v - 1)} \frac{\partial \omega_A^*(0, y^*)}{\partial x^*}, \quad (6)$$

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

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

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

결정영역($x^* = L/H$, $0 \leq y^* \leq 1$):

$$u(1, y) = -\frac{1}{(C_v - 1)} \frac{\partial \omega_A^*(1, y^*)}{\partial x^*}, \quad (7)$$

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

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

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

3. 결과 및 고찰

Figure 2는 $Ar = 4$, $L = 8$ cm, $H = 2$ cm, 그리고 소스 영역의 온도 $T_s = 350^\circ\text{C}$ 조건에서 양 옆벽 사이의 수평 온도 차이 ΔT_H 가 10 K에서 50 K로 증가함에 따른 브로민화 수은(I)(Hg_2Br_2)의 결정 성장 속도(cm/day)

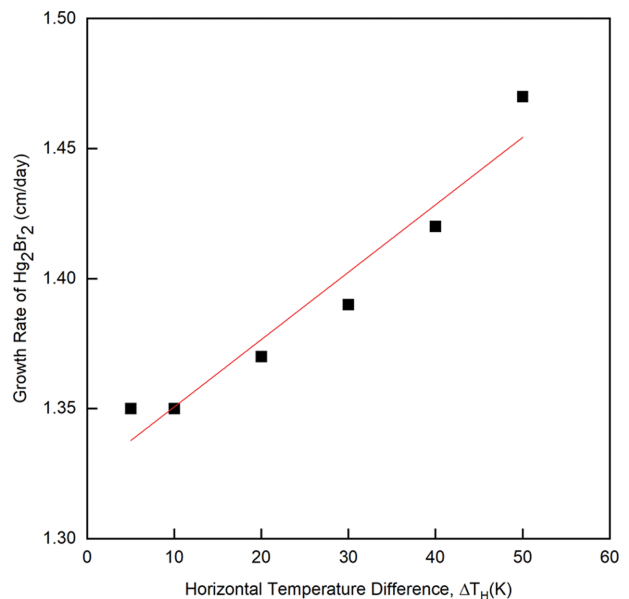


Fig. 2. The growth rate of Hg_2Br_2 as a function of the horizontal temperature difference between two side walls, ΔT_H (K), for $10 \text{ K} \leq \Delta T_H \leq 50 \text{ K}$, $Ar = 4$, $L = 8$ cm, $H = 2$ cm, and $T_s = 350^\circ\text{C}$.

를 나타내고 있다. 모사 Fig. 2에서, ΔT_H 가 10 K에서 50 K로 증가함에 따라 브로민화 수은(I)(Hg_2Br_2)의 결정 성장 속도는 약 1.35 cm/day에서 1.47 cm/day까지 거의 선형적으로 증가하는 경향을 나타낸다. 이러한 양의 상관관계는 밀폐 앰플 내부의 온도 구배가 물질 수송 메커니즘을 제어하는 핵심 추진력(Driving Force)임을 명확히 보여준다. 물리적 기상 증착법 시스템에서 소스 영역과 결정 영역 간의 온도 차이(ΔT_H)가 벌어질수록, 기상 영역 내 온도 및 농도 구배에 따른 밀도 차이가 심화한다. 이는 증력가속도와 결합하여 시스템 내부의 열 및 농도 부력을 동시에 강화한다. 활성화된 자연대류 유동은 소스 영역에서 승화된 브로민화 수은(I)(Hg_2Br_2) 기상 성분이 결정 영역으로 이동하는 질량 수송 과정을 촉진하며, 결과적으로 계면에서의 재결정화 속도(즉, 성장 속도)를 상승시킨다. 본 연구가 확산 유효단계(Diffusion-limited Step) 모델에 기초하고 있음에도 불구하고, ΔT_H 증가에 따라 성장 속도가 유의미하게 상승하는 것은 유동 흐름의 발달이 단순 분자 확산(Pure Diffusion) 장벽을 효과적으로 완화하고 있음을 시사한다. 즉, ΔT_H 가 높은 영역에서는 대류에 의한 열 및 물질 수송 기여도가 확연히 증가하여, 확산 저항으로 인해 정체될 수 있는 수송 효율을 보완하고 결정 성장 성능을 향상하게 시키는 구실을 한다. 실제 브로민화 수은(I)(Hg_2Br_2) 단결정 성장 공정에서 과도한 온도 차이는 열적 응력이나 다결정 핵생성과 같은 결함을 유발할 수 있으므로 무작정 높일 수 없다. 그러나 본 Fig. 2의 전산모사 결과는 확산 및 대류가 복합적으로 작용하는 수평형 PVT 시스템에서 적절한 수평 온도 구배 설계(ΔT_H)를 통해 결정의 성장 생산성을 안정적으로 선형 제어할 수 있음을 실증하는 중요한 정량적 근거를 제공한다.

Figure 3은 $Ar = 4$, $L = 8$ cm, $H = 2$ cm, and $T_s = 350^\circ\text{C}$ 조건에서 양 옆벽 사이의 무차원 수평 온도 차이의 제곱근 $\sqrt{\Delta T_H^*}$ 변화에 따른 기상 영역 내 차원 최대 속도(cm/sec)의 관계를 보여주고 있다. Figure 3은 Fig. 2에서 확인된 결정 성장 속도 변화의 유체역학적 메커니즘을 규명하는 핵심적인 정량적 근거를 제공한다. 무차원 온도 구배의 제곱근 $\sqrt{\Delta T_H^*}$ 가 0.3에서 1.0으로 증가함에 따라 기상 영역 내의 차원 최대 속도, $|U|_{\max}$ 는 약 5×10^{-2} cm/sec에서 24×10^{-2} cm/sec까지 매우 뚜렷한 선형적 증가 경향을 보여주고 있다. 이러한 차원 속도 유동 경향은 $|U|_{\max} \propto \sqrt{\Delta T_H^*}$ 이다[10]. 일반적인 사각형 밀폐공간 내부에서 부력에 의해 발생하는 안정된 층류 자연대류의 이론적 거동과 정확히 일치한다. 온도 차이 ΔT_H 가 커질수록 시스템 내 열 및 농도 부력이 강화되며, 이 추진력이 유체의 점성 저항을 극복하고 대류 순환형 셀(cell)의 강도를 정밀하게 조절하고 있음을 보여준다. Figure 3에서의 최대 속도 $|U|_{\max}$ 의 증가 경향은 앞서 고

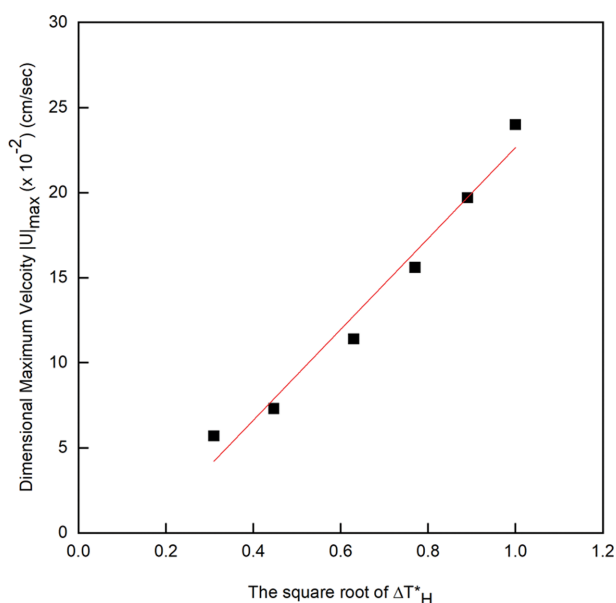


Fig. 3. The $|U|_{\max}$ as a function of the square root of between two side walls, $\Delta T_H(K)$, for $0.31 \leq \Delta T_H^* \leq 1$, $Ar = 4$, $L = 8$ cm, $H = 2$ cm, and $T_s = 350^\circ\text{C}$, corresponding to Fig. 2.

찰한 Fig. 2의 브로민화 수은(I)(Hg_2Br_2) 결정 성장 속도 상승을 완벽하게 설명하고 있다. 양 옆벽 간의 온도 구배가 커질수록 앰플(ampoule) 내부 유동의 최대 속도가 빨라지며, 이는 소스 영역 부근의 고농도 브로민화 수은(I)(Hg_2Br_2) 성분을 저온의 결정 영역 계면으로 더욱 빠르게 전달 하는 역할을 한다. 즉, 대류 강도의 증가가 경계면 주변의 질량 확산 경계층을 감소시킴으로써 전체적인 물질 수송 효율을 극대화하는 것이다. 본 연구가 수평형 밀폐 앰플(ampoule) 내 확산 유효단계(Diffusion-limited step) 모델을 기본으로 하고 있으나, Fig. 3의 결과는 순수 확산 외에 대류 유동 속도의 발달이 시스템 내 질량 전달 속도를 결정짓는 지배적 인자로 작용하고 있음을 의미한다. 따라서 고품질 단결정을 균일하게 성장시키기 위해서는 대류가 불안정한 유동으로 전이되지 않도록 억제하면서도, 물질 수송을 원활하게 유도할 수 있는 $\sqrt{\Delta T_H^*}$ 영역의 정밀한 온도 제어 설계가 요구된다. Figure 3은 이론적 유체역학적 해석(부력과 속도의 관계)을 증명하는 매우 중요한 그래프이다.

Figure 4는 소스 영역의 온도 350°C 조건에서 앰플의 기하학적 형상을 나타내는 주요 매개변수인 엑스펙트비 Ar 가 1에서 5까지 증가할 때, 브로민화 수은(I)(Hg_2Br_2)의 결정 성장 속도(cm/day)의 변화를 보여주고 있다. 엑스펙트비 Ar 가 1에서 5까지 증가함에 따라 브로민화 수은(I)(Hg_2Br_2)의 결정 성장 속도는 약 7.9 cm/day에서 1.6 cm/day 부근까지 지수 함수적(Exponentially)으로 급격히 감소하는 거동을 나타낸다. 특히 $Ar = 1$ 에서 $Ar = 2$ 사이의 구간에서 성장 속도의 낙폭이 가장 크게 발생

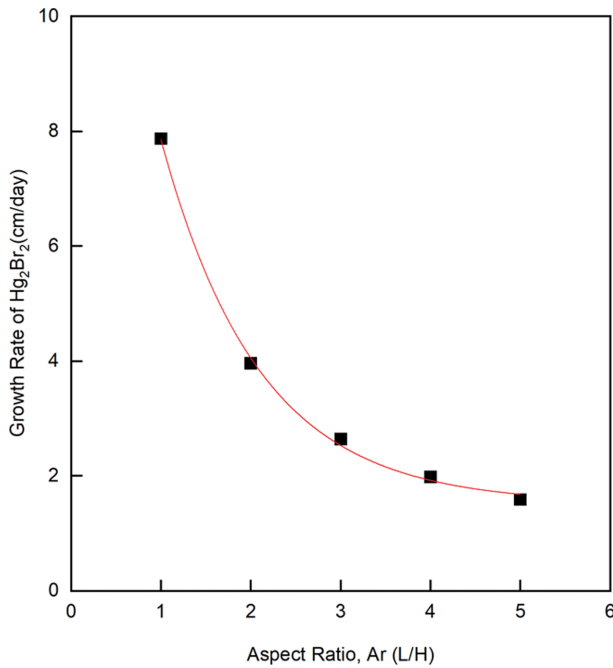


Fig. 4. The growth rate of Hg_2Br_2 as a function of the aspect ratio, Ar (L/H), $1 \leq Ar \leq 5$ and $T_s = 350^\circ\text{C}$.

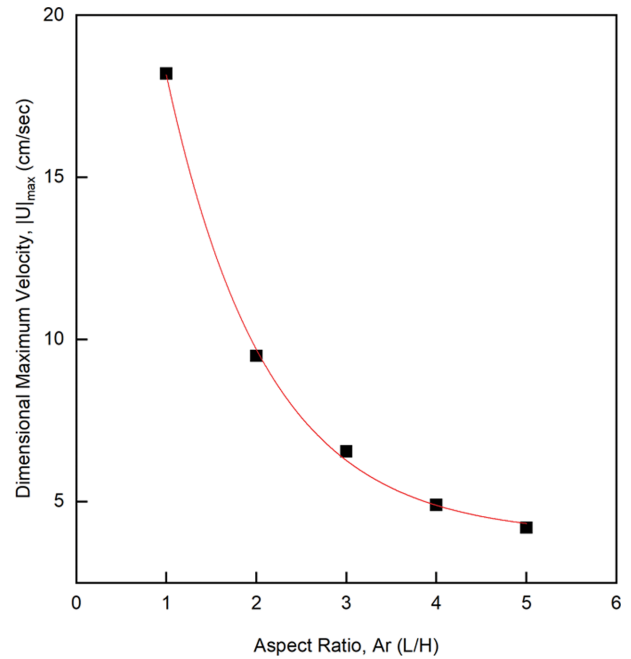


Fig. 5. Dimensionless maximum velocity, $|U|_{\max}$ (cm/sec) as a function of the aspect ratio, Ar (L/H), $1 \leq Ar \leq 5$ and $T_s = 350^\circ\text{C}$, corresponding to Fig. 4.

하며, 엑스펙트비가 더 커질수록 감소율이 둔화하면서 특정 값에 수렴하는 경향을 보인다. 이러한 감소 거동은 밀폐 앰플의 기하학적 형태 변화에 따른 내부 유체역학적 특성으로 설명할 수 있다. 엑스펙트비 Ar 가 커진다는 것은 앰플의 높이 H 에 비해 길이 L 가 상대적으로 길어짐을 의미한다. 이 경우, 수평 방향으로 길어진 유동 경로로 인해 앰플 상·하부 및 측면 벽면에서 발생하는 점성 저항과 전단 마찰(Shear Friction)이 많이 증가하게 된다. 결과적으로 밀도 차이에 의해 유도된 자연대류 유동 순환(cell)이 강하게 억제되며, 기상 영역 내 유체 흐름이 크게 약화한다. 엑스펙트비 Ar 가 작은 단형 앰플 구조, 즉, $Ar \rightarrow 1$ 에서는 강력한 부력 구동형 대류가 지배적인 수송 메커니즘으로 작용하여, 소스 영역의 브로민화 수은($\text{I}(\text{Hg}_2\text{Br}_2)$) 성분을 결정 영역으로 신속하게 수송하므로 높은 성장 속도를 기록한다. 반면, 엑스펙트비 Ar 가 큰 장형 앰플 구조($Ar \rightarrow 5$)에서는 대류의 기여도가 극도로 제한되고 분자 확산이 물질 수송을 지배하는 확산 유효속단계로 완전히 진입하게 된다. 이에 따라 질량 유속저항이 심화하여 최종 결정 성장 속도가 현저히 감소하는 결과를 초래한다. Figure 4의 결과는 브로민화 수은($\text{I}(\text{Hg}_2\text{Br}_2)$) 단결정의 수송 효율과 생산성을 결정하는 데 있어 앰플의 외형적 비율 설계가 매우 결정적인 인자임을 보여주고 있다. 무조건적인 확산율속 상태의 공정정보는 대류와 확산이 적절한 균형을 이루어 고속 성장을 유도할 수 있는 최적의 엑스펙트비 Ar 설정이 필수적이다. 다만, 대류가 지나치게 강할 경우($Ar \rightarrow 1$)

유동의 불안정성으로 인해 결함이 발생할 수 있으므로, 균일한 고품질 결정을 확보하기 위해서는 안정적인 대류 제어가 가능한 엑스펙트비 Ar 영역을 선택하는 기하학적 최적화가 요구된다.

Figure 5는 소스 영역의 온도 $T_s = 350^\circ\text{C}$ 조건에서 주요 매개변수인 엑스펙트비 Ar 가 1에서 5까지 증가할 때, 앰플 내부 기상 영역에서 발생하는 최대 속도 $|U|_{\max}$ 의 변화를 나타내고 있다. 본 그래프는 Fig. 4에서 관찰된 엑스펙트비 Ar 증가에 따른 결정 성장 속도 저하 현상을 유체역학적 관점에서 정량적으로 뒷받침한다. 엑스펙트비 Ar 가 1에서 5로 증가함에 따라 기상 내 최대 속도 $|U|_{\max}$ 는 약 18.5 cm/sec에서 4.2 cm/sec 부근까지 급격하게 감소하는 거동을 보인다. 특히 결정 성장 속도의 경향(Fig. 4)과 동일하게 엑스펙트비 Ar 가 1에서 2 사이의 구간에서 유속의 낙폭이 가장 가파르며, 엑스펙트비 Ar 가 가로로 길어질수록 대류 유동의 강도가 심각하게 위축됨을 알 수 있다. 이러한 유속의 감소는 밀폐공간의 기하학적 형상 변화로 인해 유체의 흐름 경로가 길어지면서, 앰플의 상·하부 고체 벽면과 유체 간의 마찰 저항이 지배적으로 작용하기 때문이다. 엑스펙트비 Ar 가 작은 정방형 구조($Ar \rightarrow 1$)에서는 부력에 의해 구동된 자연대류 셀(cell)이 강하고 빠르게 순환하지만, 장형 구조($Ar \rightarrow 5$)에서는 전단 마찰 저항이 발달하여 유동의 중심부 속도마저 크게 저하한다. 이는 앰플의 물리적 구조 변형이 내부 자연대류의 강도를 직접적으로 제어·억제하는 메커니즘으로 작용함을 입증한다[10].

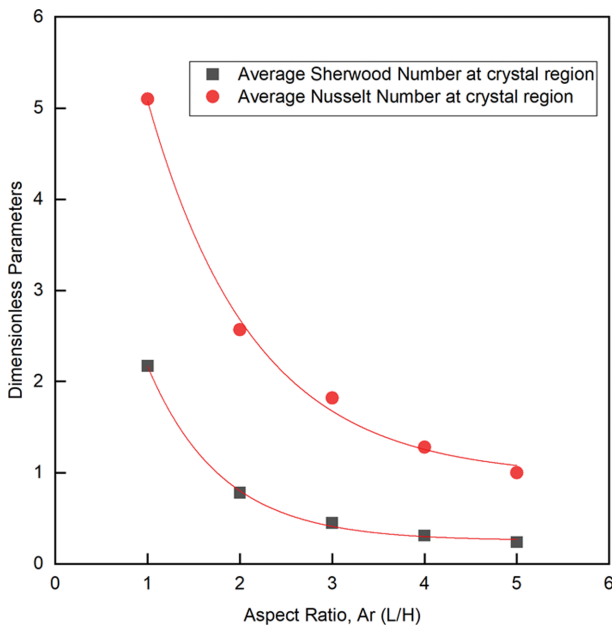


Fig. 6. Dimensionless parameters as a function of the aspect ratio, Ar (L/H), $1 \leq Ar \leq 5$ and $T_s = 350^\circ\text{C}$: the average Nusselt number, Nu and the average Sherwood number, Sh at the crystal region.

Figure 6은 엑스펙트비 Ar 의 변화가 결정 영역 계면에서의 무차원 열전달 계수인 평균 Nusselt(Nu) 수와 무차

원 물질전달계수인 평균 Sherwood(Sh) 수에 미치는 영향을 고찰한 결과이다. Nusselt(Nu) 수 및 Sherwood(Sh) 수의 동시 감소 경향을 보여주고 있다. 엑스펙트비 Ar 가 1에서 5로 증가함에 따라 결정 계면에서의 Nusselt(Nu) 수와 Sherwood(Sh) 수는 일관되게 감소하는 특성을 나타낸다. 구체적으로 Nusselt(Nu) 수는 약 5.1에서 1.0 부근으로, Sherwood(Sh) 수는 약 2.2에서 0.2 부근으로 급격히 저하된다. 유체역학적으로 Nusselt(Nu) 수와 Sherwood(Sh) 수가 1.0 또는 그 이하의 낮은 값에 근접한다는 것은 시스템 내 열 및 물질 수송 메커니즘이 대류의 영향권에서 벗어나 순수 전도(Conduction) 및 분자 확산(Molecular Diffusion)으로 지배받기 시작함을 의미한다. 엑스펙트비 Ar 가 작을 때($Ar = 1$) 높은 Nu 및 Sh 값을 보여, 강한 대류 유동이 열과 브로민화 수은($\text{I}(\text{Hg}_2\text{Br}_2)$) 질량 성분을 계면으로 빠르게 수송하는 대류 지배 영역임을 나타낸다. 반면 엑스펙트비 Ar 가 커질수록($Ar \rightarrow 5$), Fig. 5에서 확인된 대류 유속 $|U|_{\max}$ 의 급감으로 인해 계면 주변의 경계층(Boundary Layer) 두께가 두꺼워진다. 결과적으로 대류 수송 기여도가 소멸하고 시스템 전체가 확산 유효단계(Diffusion-limited step)로 완전히 전이된다[11,13].

Figure 7은 단일 대류 셀 형성을 보여주고 있다. (a) 속도 벡터와 (b) 유선 분포를 보면, 열 및 용질 부력에

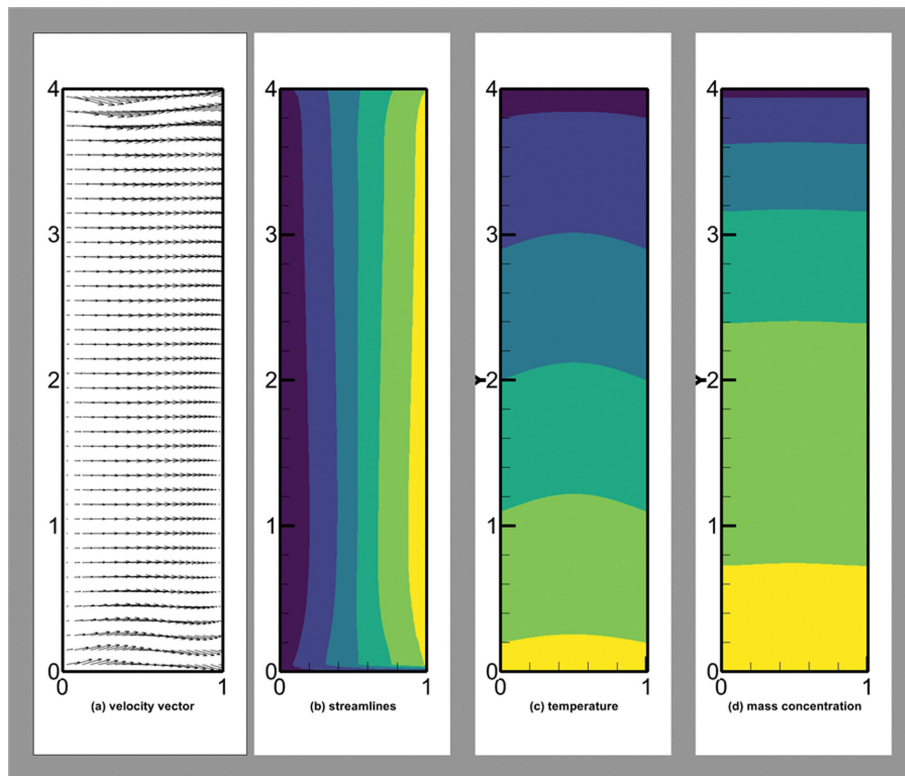


Fig. 7. (a) velocity vector, (b) streamline ($\Delta\Psi = 0.7$), (c) temperature ($\Delta T^* = 0.2$), (d) mass concentration ($\Delta\omega_{A_s}^* = 0.025$) profile, based on $P_B = 100$ Torr, thermal Rayleigh number (Ra_t) = 1.0×10^5 , solutal Rayleigh number (Ra_s) = 6.87×10^5 , Prandtl number (Pr) = 0.79, Lewis number (Le) = 0.86, Peclet number (Pe) = 2.2 concentration parameter (Cv) = 1.12, $\Delta T = 60$ K ($290^\circ\text{C} \rightarrow 350^\circ\text{C}$).

의해 구동되는 강한 단일 대류 셀(single convective cell)이 반시계 방향으로 형성되어 있다. Thermal Rayleigh 수(thermal Rayleigh number(Ra_t) = 1.0×10^5)보다 Solutal Rayleigh number(Ra_s) = 6.87×10^5 수가 약 7 배 더 크다. 이는 온도 차이에 의한 열대류보다 성분 격차(분자량 차이)에 의한 용질 대류(solvent convection)가 시스템 전체 유동을 강력하게 지배하고 있음을 보여주고 있다. Pe (Peclet) 수가 2.2로 확산보다 대류에 의한 물질 수송 속도가 우세하게 작용하고 있다. (c) 온도 분포도는 대류 유동의 영향으로 등온선이 수평을 유지하지 못하고 크게 왜곡되어 있습니다. 대류에 의해 열이 순환하면서 벽면 및 계면 근처에 비대칭적인 열 구배가 형성됩니다. (d) 농도 경계층 강한 대류 셀 내부 유동으로 인해 중심부는 비교적 균일한 농도를 유지하지만, 원료 영역(source)과 결정 성장 영역(crystal)의 계면 부근에서는 농도가 급격하게 변화하는 얇은 농도 경계층(concentration boundary layer)이 형성되고 있다. 따라서, 유동이 한쪽(반시계 방향)으로 쏠려 흐르기 때문에 결정 성장 계면에 도달하는 브로민화 수은(I)(Hg_2Br_2)의 질량 플럭스(molar flux)가 위치별로 달라진다. 이는 실제 결정 성장할 때 계면의 평탄도를 저하하고 국부적인 성장 속도 불균일성(non-uniformity)을 유발하는 주요 원인이 된다. 에스펙트 비율 효과[14,15]에 따라 높이와 폭의 비율($Ar = 4$)이 큰 수직 구조 환경에서 대류 유동이 약해지지 않고 완전한 순환 셀을 유지하고 있으므로, 안정적인 고품질 단결정을 얻기 위해서는 중력을 제어(미소중력 환경)하거나 앰플의 기하학적 구조(에스펙트 비율) 변화를 통해 대류의 강도를 억제할 필요가 있다.

4. 결 론

본 연구에서 가정한 “벽면에서의 No-slip 경계조건”과 Stefan 흐름 효과가 에스펙트비 Ar 가 커질 때(즉, 벽면이 유동 흐름에 더 가까워질 때) 유속과 수송 계수를 더 강하게 억제하는 원인이 됩니다. 앰플의 기하학적 에스펙트비 Ar 가 증가하면 벽면 마찰 저항의 확대에 의해 내부 대류 유속인 $|U|_{max}$ 가 급감하고, 이는 결정 성장 계면에서의 열 및 물질 전달 효율(Nu , Sh)을 최저 수준으로 떨어뜨려 최종적으로 브로민화 수은(I)(Hg_2Br_2)의 단결정 성장 속도를 지수 함수적으로 감소시키는 원인이 된다. 고속·고품질의 브로민화 수은(I) 결정을 효율적으로 제조하기 위해서는 대류의 불안정성이 유발되지 않는 범위 내에서 적절한 대류 강도($Sh > 1$)를 보장할 수 있는 형태의 낮은 에스펙트비 Ar 앰플 설계 및 공정 최적화가 필수적임을 시사한다. 본 연구 결과는 향후 한국 우주비행(Korean Spaceflight) 등 미소중력 혹은 지상 조

건에서의 제한된 확산 시스템 설계를 위한 중요한 기초 전산 데이터로 활용될 수 있을 것으로 기대된다. 열 및 용질 부력에 의해 구동되는 강한 단일 대류 셀(single convective cell)이 반시계 방향으로 형성되어 있다.

감사의 글

이 논문은 2025학년도 한남대학교 학술연구비 지원에 의하여 연구되었습니다.

References

- [1] T.H. Kim, H.T. Lee, Y.M. Kang, G.E. Jang, I.H. Kwon and B. Cho, “In-depth investigation of Hg_2Br_2 crystal growth and evolution”, Materials 12 (2019) 4224.
- [2] O. Kwon, K. Kim, S.-G. Woo, G.-E. Jang and B. Cho, “Comparative analysis of Hg_2Br_2 and $Hg_2Br_xCl_{2-x}$ crystals grown via PVT”, Crystals 10 (2020) 1096.
- [3] A.A. Kaplyanskii, V.V. Kulakov, Yu.F. Markov and Ć. Barta, “The soft mode properties in Raman spectra of improper ferroelastics Hg_2Cl_2 and Hg_2Br_2 ”, Solid State Commun. 21 (1977) 1023.
- [4] L. Liu, R. Li, L. Zhang, P. Zhang, G. Zhang, S. Xia and X. Tao, “Long wavelength infrared acousto-optic crystal Hg_2Br_2 : Growth optimization and photosensitivity investigation”, J. Alloys Compd. 874 (2021) 159943.
- [5] G.T. Kim and J. K. Park, “Studies on correlations of crystal growth and Nusselt/Sherwood number during physical transport of Hg_2Cl_2 ”, J. Korean Cryst. and Cryst. Tech. 35 (2025) 131.
- [6] G.T. Kim and M.H. Kwon, “Studies on Nusselt and Sherwood number for diffusion-advective convection during physical vapor transport of Hg_2Br_2 ”, J. Korean Cryst. Growth and Cryst. Tech. 31 (2021) 127.
- [7] G.T. Kim, “Comprehensive studies on thermo-solutal convection with high prandtl numbers of mercurous bromide system of Hg_2Br_2 and I_2 during physical vapor transport”, J. Korean Cryst. Growth and Cryst. Tech. 34 (2024) 236.
- [8] D.W. Greenwell, B.L. Markham and F. Rosenberger, “Numerical modeling of diffusive physical vapor transport in cylindrical ampoules”, J. Crystal Growth 51 (1981) 413.
- [9] W.M.B. Duval, “Convective effects during the physical vapor transport process-- I: Thermal convection”, J. Mater. Processing Manu. Sci. 1 (1992) 83.
- [10] W.M.B. Duval, “Convective effects during the physical vapor transport process-- II: Thermosolutal convection”, J. Mater. Processing Manu. Sci. 1 (1993) 295.
- [11] W.M.B. Duval, “Transition to chaos in the physical transport process - I”, the Proceeding of the ASME-WAM Winter Annual meeting, Symposium in fluid mechanics phenomena in microgravity, ASME-WAM, Nov. 28 -Dec. 3, New Orleans, Louisiana (1993).
- [12] S.V. Patankar, “Numerical Heat Transfer and Fluid

- Flow", (Hemisphere Publishing Corp., Washington D. C., 1980) p. 131.
- [13] H. Zhou, A. Zebib, S. Trivedi and WM.B, "Physical vapor transport of zinc-telluride by dissociative sublimation", J. Cryst. Growth 167 (1996) 534.
- [14] G.T. Kim, W. M. B. Duval and M.E. Glicksman, "Effects of asymmetric temperature profiles on thermal convection during physical vapor transport of Hg_2Cl_2 ", Chem. Eng. Comm. 162 (1997) 45.
- [15] I. Catton, "Effect of wall conducting on the stability of a fluid in a rectangular region heated from below", J. Heat Transfer 94 (1972) 446.