

Model studies in applications for fundamental research of Korean spaceflight: Diffusion-limited system during physical vapor transport

Sung Ho Ha[†] and Geug Tae Kim[†]

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

(Received August 27, 2026)

(Revised September 3, 2026)

(Accepted September 8, 2026)

Abstract Mercury bromide (Hg_2Br_2) was selected as the crystal material for the basic applied model research of Korean spaceflight. In a vertical sealed container with an aspect ratio (length/width) of 4, computational simulations of the transport phenomena of a mixture of mercurous bromide (Hg_2Br_2) and mercury (Hg) in the source and crystal regions were performed to investigate the relationships between the crystal growth rate and the maximum rate constant with respect to changes in temperature difference. It was found that both changed linearly, and in the range of $4.78 \times 10^4 \leq \text{Ra} \leq 10 \times 10^4$ corresponding to $0 \text{ K} \leq \Delta T \leq 60 \text{ K}$, the dimensionless Sherwood number in the source region was approximately 5 times larger than the dimensionless Nusselt number. The results showed that the local Nusselt number (Nu_{y^*}) and the local Sherwood number (Sh_{y^*}) for the dimensionless coordinate y^* in the y-axis direction in the source region are greater for $\Delta T = 10 \text{ K}$ ($350^\circ\text{C} \rightarrow 340^\circ\text{C}$) than for 60 K ($350^\circ\text{C} \rightarrow 290^\circ\text{C}$) over the range of $0 \leq y^* \leq 1$.

Key words Korean Spaceflight, Earth ground, Physical vapor transport

한국 우주비행 기초연구 응용 모델연구: 물리적 기상증착법 공정 확산제한 시스템

하성호[†], 김극태[†]

한남대학교 공과대학 화학공학과, 대전, 34054

(2026년 8월 27일 접수)

(2026년 9월 3일 심사완료)

(2026년 9월 8일 게재확정)

요약 한국우주비행 기초응용모델연구로 제1브로민화수은(Hg_2Br_2 , mercurous bromide) 결정소재로 선택하였다. 에스펙트 비(길이/폭) = 4인 수직형 밀폐형 용기 내에서, 소스 영역과 결정영역에서 제1 브로민화 수은(Hg_2Br_2 , mercurous bromide)과 수은(Hg)의 혼합물 전달 현상을 온도 차의 변화에 따라 결정성장 속과 최대 속도상수와 관계성에 대한 전산 모사한 결과 모두 선형적으로 변화함을 발견하게 되었고, $0 \text{ K} \leq \Delta T \leq 60 \text{ K}$ 에 해당하는 $4.78 \times 10^4 \leq \text{Ra} \leq 10 \times 10^4$ 범위에서는 소스 영역에서의 무차원 Sherwood 수가 무차원 Nusselt수보다 대략 5배 정도 더 크다는 결과를 얻었다. 소스 영역에서 y축 방향의 무차원 좌표 y^* 에 대한 무차원 국소(local) Nusselt 수(Nu_{y^*})와 무차원 국소(local) Sherwood수(Sh_{y^*}) 수치가 $\Delta T = 10 \text{ K}$ ($350^\circ\text{C} \rightarrow 340^\circ\text{C}$)의 경우가 60 K ($350^\circ\text{C} \rightarrow 290^\circ\text{C}$)보다 $0 \leq y^* \leq 1$ 에서 걸쳐 크다는 그것을 결과로 도출하였다.

1. 서론

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

적으로, 정제된 브로민화 수은(I)(Hg_2Br_2) 물질(99.999 %)을 결정성장을 위해 석영 앰플에 넣은 후, 10^{-6} Torr의 고진공 상태에서 밀봉됩니다. 최근 브로민화 수은(I)(Hg_2Br_2 , mercurous bromide)의 결정성장 연구[1-7]에서, 결정성장 전에 원료 물질을 응집시키기 위해 먼저 하부 소스 영역에서는 가열로에서 330°C 로 유지하고, 상부 결정영역에서는 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, 승화된 제1 브로민화

[†]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/>).

수는 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) 결정성장은 크게 세 가지 과정으로 나눌 수 있습니다. 즉, 종자 결정의 형성 및 성장, 그리고 결정성장입니다. 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 결정성장 영역으로 이동한 후 재결정화되는 과정을 거칩니다. 이러한 물리적 기상 증착법은 상대적으로 저온에서 공정이 진행되므로 기존의 용융 성장법 대비 뚜렷한 장점을 가집니다. 기체-고체 계면의 열 및 물질 전달 불균일성에 대한 형태학적 안정성이 우수하여, 계면이 안정되어 있으며, 고순도의 단결정을 성장시키는데 유리하다. 브로민화 수은(I)(Hg_2Br_2)처럼 용점 도달 전 분해되는 물질의 성장에 적합하며, 점 결함 및 전위 밀도가 낮은 양질의 결정을 얻을 수 있어 결함 제어가 가능하다.

이러한 이점 덕분에 물리적 기상 증착법은 다양한 음향 광학 재료 성장의 핵심 기술로 자리 잡았습니다. 그러나 기상 내에서 발생하는 유체 흐름, 열전달, 물질 전달 등의 현상이 매우 복잡하고 상호 결합(coupling)되어 있어, 정밀한 공정 설계와 제어가 까다롭다는 점이 산업적 활용을 제한하는 걸림돌이 되고 있습니다. 특히 온도 및 농도구배에 따른 밀도 차이가 중력과 상호작용하면서 발생하는 열-농도 대류는 피하기 어려운 내재적 특성입니다. 일반적으로 이러한 대류현상은 브로민화 수은(I)(Hg_2Br_2) 결정의 불균일성과 구조적 결함을 유발하는 원인으로 작용하므로, 시스템 내에서 최소화해야 할 요소로 간주합니다. 따라서 물리적 기상 증착법 공정의 효율성을 개선하고 정밀 제어하기 위해서는 시스템 내 대류의 역할을 명확히 규명하는 연구가 필수적입니다. 기상 성장 시스템 내 대류현상을 규명하기 위해 다양한 수치 해석적 연구가 수행되었습니다. Markham 등[8]은 수직 원통형 밀폐용기 내의 정상상태에서의 물리적 기상 증착법 공정에서 열 및 열-농도 대류의 영향을 조사하였습니다. 이들은 무중력 환경에서도 대류가 남아 있어 불균일한 농도구배를 형성할 수 있다는 연구 결과를 발표하였다.

최근 발표된 연구[9]는 염화수은(I)(Hg_2Cl_2) 물리적승화 공정에서의 결정성장과 Nusselt/Sherwood수의 상관관계에 대한 것으로서, 수평적 형상에 관한 것이었으며, 본 연구에서는 수직적 형상에서 발생하는 물리적승화공정에 관한 것으로, 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 결정성장 중에 발생하는

물리적 기상 증착법 공정을 확산 제한 단계(diffusion-limited step) 모델에 기초한 것이다. 2차원 정상상태에서의 뉴턴 유체에 해당하는 Navier-Stokes 방정식과 열, 농도 방정식을 수치 해석적으로 전산 모사하고자 한다. 본 논문에서의 주요 연구 매개변수에 관한 연구는 한 쪽 측면이 다른 측면 온도보다 높았을 때, 일어나는 대류현상을 고려한다.

2. 수학적 모델

Figure 1은 2차원, 종횡비(aspect ratio, Ar)가 4인 수직 직사각형 밀폐공간에서, 물리적 기상 증착법 결정성장 시스템을 설명하고 있다. 하나의 수직면이 고온으로 유지되는 소스 영역 및 반대쪽 수직 벽이 저온으로 유지되는 결정영역으로 지정된다. 소스 영역의 브로민화 수은(I)(Hg_2Br_2)(성분 A)는 결정영역으로 수송된다. 기상에서 브로민화 수은(I)(Hg_2Br_2)에 불용성인 불활성 운반 기체인 아르곤(성분 B)은 밀폐공간 내에서 기체 상태로 존재한다. 이중 확산 자연대류 시스템에 대한 수학적 모델에

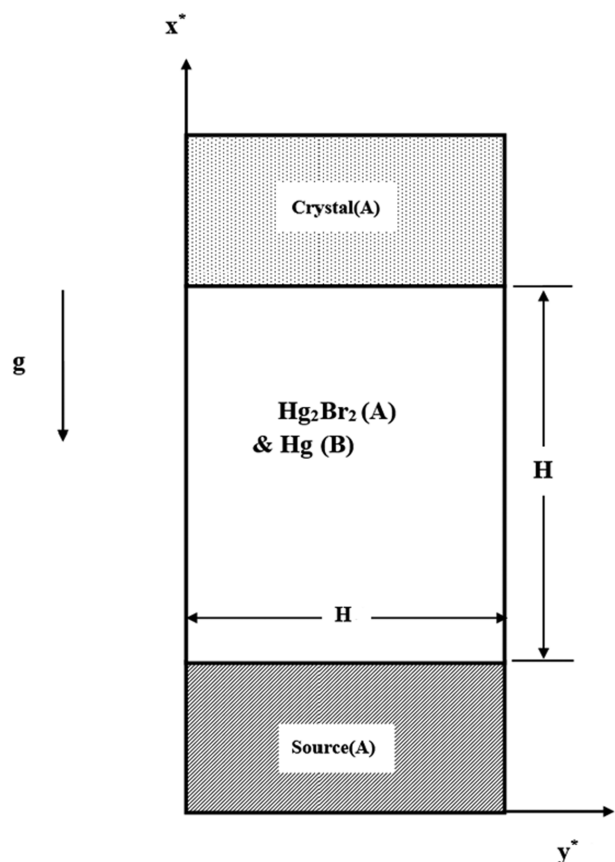


Fig. 1. Schematic descriptions and coordinates of the system for two-dimensional numerical simulations of of major component Hg_2Br_2 (A) and minor component Hg (B) during physical vapor transport on earth ground, aspect ratio (length-to-width) = 4.

대한 분석은 다음과 같은 가정을 기반으로 이루어진다. 수치해석은 SIMPLER(Semi-Implicit Method Pressure-Linked Equations Revised) 알고리즘[10]을 활용하였으며, x^* , y^* 방향으로 40×20 메시(mesh)를 사용하였다. 유체는 비압축성이면서, 뉴턴(Newtonian)유체이라 가정하며, 층류 흐름이라 가정하며, 정상상태의 2차원적 유동 흐름이라 가정한다. 유체는 연속체로 거동하고 벽에서 no-slip 경계조건이라고 가정한다. 부력항의 밀도변화를 제외한 유체의 화학 물리적 특성은 상수로 간주하며, 밀도는 이상기체법칙에 따른다. 또한, 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 (농도매개변수))는 참고문헌[11,12]에서 찾을 수 있다. β 는 열 부피팽창계수이다. 질량 몰분율 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 몰분율이며, M 은 성분의 몰 분자량이다.

무차원 변수를 적용하면 지배방정식을 무차원 형식으로 다음과 같이 표현된다:

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

3. 화학 물리적 물성값 계산

할로젠화 제1수은(Hg_2X_2) 계열 물질의 승화 평형상수(또는 증기압)는 온도 $T(K)$ 에 대한 실험식인 Clausius-Clapeyron 형태로 주어진다. Hg_2Br_2 의 경우에는 증기압의 식은

$$\log_{10} P = 9.956 - \frac{4563}{T}$$

여기에서 압력 P 의 단위는 Torr이며, 온도 T 의 단위는 K이다.

$Hg(g)$ 의 점성계수는 Chapman-Enskog 이론으로 계산할 때 쓰이는 대표적인 Lennard-Jones(6-12) potential parameter: collision diameter, $\sigma = 2.969 \text{ \AA}$, Lennard-Jones(6-12) potential parameter: energy parameter, $\frac{\epsilon}{K} = 750 \text{ K}$ 이다.

Table 1은 본 연구에서 사용된 제1브롬화수은(Hg_2Br_2 , mercurous bromide)의 분자량($M_A = 560.988 \text{ g/gmol}$)과 수은(Hg)의 화학 물리적 특성을 계산하는 데 사용된 화학 물리적 파라미터 및 물성값을 요약하였다.

$$\mu = 2.66693 \times 10^{-5} \frac{\sqrt{M \cdot T}}{\sigma^2 \cdot \Omega_\mu}$$

$$\frac{\epsilon}{K} = 1.15 T_b, \sigma = 1.166 \widetilde{V}_{b, liq}^{1/3}$$

Table 1

Thermo-physical properties of mercury (Hg) and mercurous bromide (Hg_2Br_2) at mean temperature of 320°C between 290°C and 350°C

Gas	Hg(g)	$\text{Hg}_2\text{Br}_2(\text{g})$
Vapor pressure (Torr) (350°C)	673.5	430.06
Molar Heat Capacity (C_p) ($\text{J mol}^{-1}\text{K}^{-1}$)	20.79	61.15
Molecular weight (g/mol)	200.59	560.988
Boiling point ($^\circ\text{C}$)	356.7	340~392.5
Lennard-Jones (6-12) potential parameter: collision diameter, $\sigma(\text{\AA})$	2.969	5.080
Lennard-Jones (6-12) potential parameter: energy parameter, $\frac{\epsilon}{K}$	750	686.2
Collision integral, Ω	1.8019 (viscosity and thermal conductivity) 1.6224 (diffusivity)	1.7371 (viscosity and thermal conductivity) 1.5647 (diffusivity)
Partial pressure (Torr) at source region (350°C)	122.50	122.50
Mass Fraction at source region (350°C)	0.3576	0.923
Partial pressure (Torr) at crystal region (290°C)	224.64	20.36
Mass Fraction at crystal region (290°C)	0.8354	0.303
Total operating pressure, P_T	530.06 Torr	
Partial pressure of component B, P_B	100 Torr	
Lewis number, Le	0.86	
Prandtl number, Pr	0.79	
Schmidt number, Sc	0.68	
Peclet number, Pe	2.2	
Concentration parameter, C_v	1.1	
Thermal Rayleigh number, Ra	1.0×10^5	
Solutal Rayleigh number, Ra_s	6.8×10^6	

첨자 b는 normal boiling point(K)이고, $\frac{\epsilon}{K}$ 의 단위는 K이고, σ 의 단위는 $\text{\AA}$ 이다.

$\tilde{\nu}$ 의 단위는 $\text{cm}^3\text{g} \cdot \text{mol}^{-1}$ 이다. Ω_μ 는 무차원 온도 $\frac{\kappa T}{\epsilon}$ 의 함수이다[13].

4. 결과 및 고찰

Kim[1]의 연구논문에서는 제1 브로민화 수은 (Hg_2Br_2 , mercurous bromide)가 다음과 같은 화학반응이 진행되어, 즉, 해리 승화 반응에 따라 진행된다고 발표하였다. 물리적 기상에서는 분해성 반응을 반영하여, 브로민화 수은(HgBr_2)과 수은(Hg)의 혼합물을 고려해야 한다. Zhou와 그의 연구자들[14]에 의하여 ZnTe 의 물리적 기상 증착법에서의 해리 승화 공정에 관하여 전산모사 연구가 행하여졌다: $\text{Hg}_2\text{Br}_2(\text{s}) \rightleftharpoons \text{Hg}(\text{g}) + \text{HgBr}_2(\text{g})$. 본 논문에서는, 유체의 거동 경향에 중점을 두기 때문에, 제1브로민화수은(Hg_2Br_2 , mercurous bromide)의 분자량($M_A = 560.988 \text{ g/gmol}$)과 수은(Hg)의 분자량($M_B = 200.59 \text{ g/gmol}$)을 고려하여, $M_A \neq M_B$ 인 경우의 기체상에서 일어나는 전달 현상을 연구 규명하고자 한다. 기상에서는 온도 및/또는 농도에 의하여, 중력가속도와 결합하여 생

기는 부력이 추진력(driving force)이 되어 대류가 복합적으로 작용하고, Hg_2Br_2 의 물리적 수송 과정에서 공급원과 결정 계면에서의 $\text{Hg}_2\text{Br}_2(\text{A})$ 질량 유속을 반영하는 Stefan 흐름인 경계조건이 매우 중요하게 고려해야 한다.

본 연구는 소스 영역(source region)과 결정영역(crystal region)에 걸쳐 전체압력이 일정하다고 가정하였다: $P_{total} \cong P_{\text{Hg}_2\text{Br}_2}(0) + P_{\text{Hg}}(0) = P_{\text{Hg}_2\text{Br}_2}(L) + P_{\text{Hg}}(L)$.

수은(Hg)의 부분 압력(P_B)으로 100 Torr니, 가정하였다.

Figure 1에서 고려된 시스템은 Ar(중형비, 수송 길이 대 폭) = 4, T_s (소스 온도) = 350°C , P_B (성분 B, 수은의 부분 압력) = 100 Torr이며, 지상 환경조건 하에서 중력 가속도 $1g$ 을 고려하고 있다. Figure 2에서 볼 수 있듯이, $\text{Hg}_2\text{Br}_2(\text{A})$ 의 결정성장 속도(cm/day)는 $10 \text{ K} \leq \Delta T \leq 60 \text{ K}$, $4.78 \times 10^4 \leq Ra \leq 10 \times 10^4$ 범위에서 온도 차에 따라 선형적으로 직접 증가하는 것이 분명하다. $\Delta T = 10 \text{ K}$, 60 K일 때, 해당 무차원 온도 레이히(Rayleigh) 수(Ra)는 각각 4.78×10^4 , 10×10^4 이다. Figure 2에서 결정성장 속도와 온도 차의 직선 기울기는 $0.0207 \text{ cm} \cdot \text{day}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ 이다. $20 \text{ K} \leq \Delta T \leq 50 \text{ K}$ 범위에서는 결정성장속도와 온도 차의 관계가 분명하지만, $\Delta T = 10 \text{ K}$, 60 K일 때는, $\text{Hg}_2\text{Br}_2(\text{A})$ 의 결정성장 속도와 온도 차의 변화에 민감하게 변화하지 않음을 알 수 있다. 이러한 차이는 $\text{Hg}_2\text{Br}_2(\text{g})$ 와 $\text{Hg}(\text{g})$ 의 혼합물 밀도변화 때문일

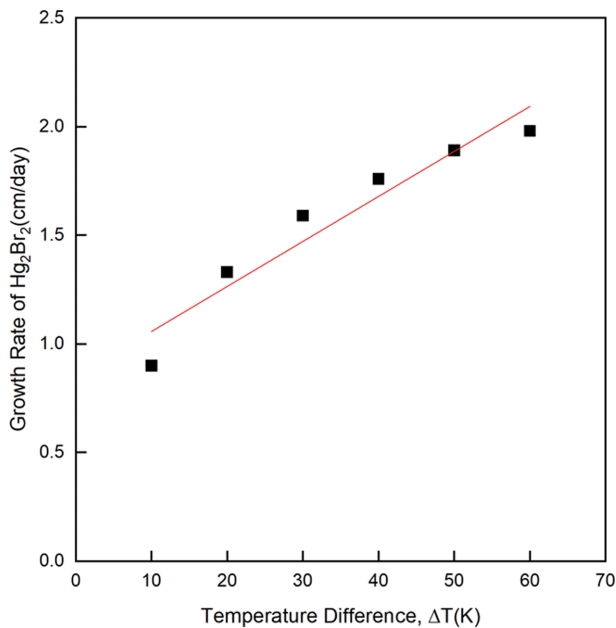


Fig. 2. The growth rate of Hg_2Br_2 as a function of the temperature difference between the source and the crystal region, $\Delta T(\text{K})$, for $10 \text{ K} \leq \Delta T \leq 60 \text{ K}$, $\text{Ar} = 4$, $L = 8 \text{ cm}$, $H = 8 \text{ cm}$, and $T_s = 350^\circ\text{C}$.

가능성이 높다. 소스 영역에서의 $\text{Hg}_2\text{Br}_2(\text{g})$ 질량 분량은 0.923이며, 결정영역에서의 $\text{Hg}_2\text{Br}_2(\text{g})$ 질량 분량은 0.303이다. 소스 영역에서 Hg 의 질량 분량이 0.077이지만, 저온 결정영역으로 가면서 Hg 의 질량 분량이 0.697까지 치솟게 된다. 이러한 질량 분량의 차이에 의해 기상 내부에서 명백한 물질 확산(Diffusion) 구배가 형성되며, Stefan flux 경계조건과 맞물려 완벽한 물리 기상 운송 전사 모사가 완전히 수행될 수 있게 된다. 각 성분의 농도 차이는 $\text{H}_2(\text{g})$ 는 결정면에서 높고, $\text{Hg}_2\text{Br}_2(\text{g})$ 는 소스면에서 높은 구배에 의해 물질 확산 방정식을 풀어내어 정확한 Stefan Flow의 속도와 결정성장 속도를 계산하여 결정성장 속도를 구한다.

결정성장 플럭스 = 확산 플럭스 + 대류 플럭스

$$V_c \rho_c \omega_{A,c} = \rho_f D_{AB} \frac{\partial \omega_A}{\partial x} + V_c \rho_c \omega_A$$

$$V_c = \frac{\rho_f}{\rho_c} \frac{D_{AB}}{(1 - \omega_A)} \frac{\partial \omega_A}{\partial x}$$

여기에서, V_c 는 결정성장 속도, c , f 는 결정, 유체를 의미하며, ω 는 질량 분량을 의미한다. Dalton의 부분압 법칙에 따라, 기체상에서의 농도는 부분 압력/전체압력으로 표시된다.

Figure 3은 Rayleigh 수와 차원의 최대 속 도치, $|U|_{\max}$ 의 관계를 설명하고 있으며, 온도 차가 증가함에 따라 기울기($|U|_{\max}/Ra$)의 값 0.5848로 선형적 변화한다.

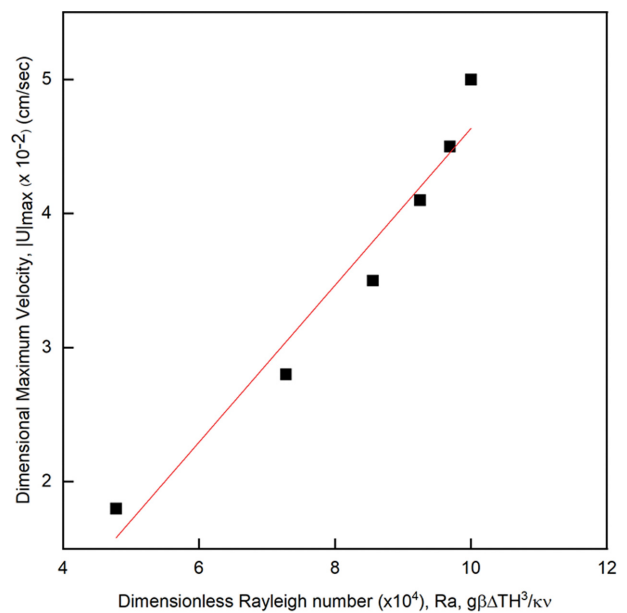


Fig. 3. The $|U|_{\max}$ as a function of dimensionless Rayleigh number between the source and the crystal region, $\Delta T(\text{K})$, corresponding to Fig. 2.

$Ra = \frac{g\beta\Delta TH^3}{\kappa\nu}$ 는 부력/관성력의 물리적 의미가 있으며, 부력의 크기가 온도 차와 직접적인 관계가 있으므로,

온도 차가 증가함에 따라, 즉 무차원 Rayleigh 수가 증가한다. 본 연구에서 고려되는 결정성장 밀폐용기인 앰플이 수직 방향의 geometry를 갖는다. 고온 영역이 하부(bottom) 영역이고, 저온 영역이 상부(top)인 영역에서는 자연 대류현상에서는 Grashof 수대신에 Rayleigh 수를 사용한다. $|U|_{\max}$ 의 값을 도입하는 이유는 용기 내에서의 최대 대류현상의 크기를 잘 나타내고 있어서 Fig. 4와 5는 소스 영역에서 Rayleigh 수와 무차원 평균 Nusselt 수(Nu), 무차원 평균 Sherwood 수(Sh)의 관계를 각각 나타내고 있다. $0 \text{ K} \leq \Delta T \leq 60 \text{ K}$ 에 해당하는 $4.78 \times 10^4 \leq Ra \leq 10 \times 10^4$ 범위에서, Ra 수가 증가함에 따라, 선형적으로 감소하고 있다. Nusselt 수는 대류 열전달 대 전도 열전달의 비(ratio)를 의미하며, 고체 표면에서 유체로 일어나는 대류 열전달 속도가, 동일 유체 두께에서의 순수 열전도 속도보다 얼마나 더 큰지를 나타내고 있다. Nu 값이 클수록 고체 표면에서의 대류 열전달 효과가 지배적이고 강력함을 나타내고 있다. Sherwood 수는 대류 물질 전달 대 확산 물질 전달의 비(ratio)를 의미하며, 고체 표면과 유체 사이에서 유체의 흐름에 의한 대류 물질 전달 속도가, 농도구배에 의한 분자 확산 속도보다 얼마나 더 큰지를 나타낸다. Sh 값이 클수록 확산에 의한 이동보다 유동 대류에 의한 물질(질량) 교환이 훨씬 활발하게 일어남을 의미한다. Sh 수보다 Nu

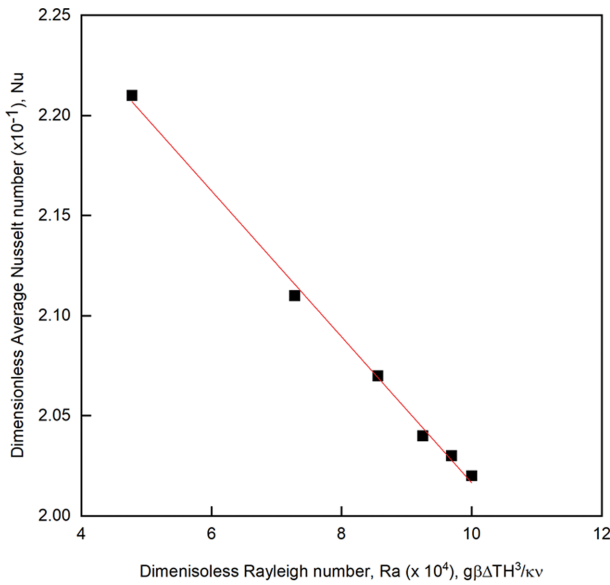


Fig. 4. Dimensionless average Nusselt number, Nu at the source region as a function of dimensionless Rayleigh number between the source and the crystal region, $\Delta T(K)$, corresponding to Fig. 2.

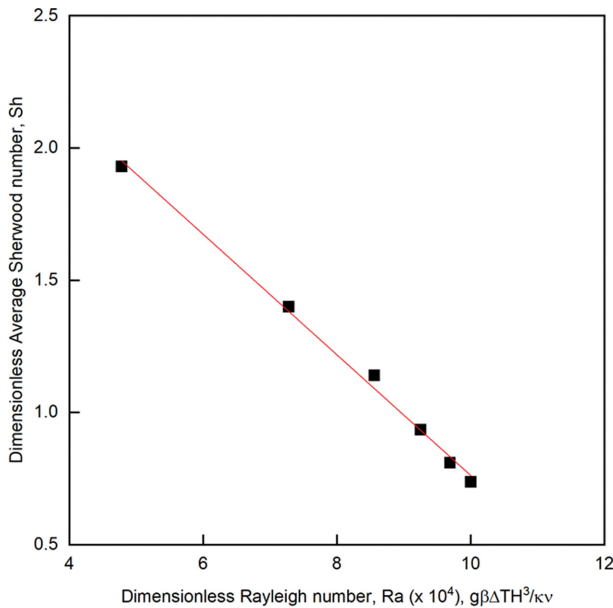


Fig. 5. Dimensionless average Sherwood number, Sh at the source region as a function of dimensionless Rayleigh number between the source and the crystal region, $\Delta T(K)$, corresponding to Fig. 2.

수가 대략 5배 더 크다. Nusselt 수(Nu)와 Sherwood 수(Sh)를 비교 상호 변환(유사성 적용)할 때, Lewis 수이다. Lewis(Le) 수는 열확산도 계수와 물질 확산계수의 비로 정의 된다. Table 1에서 $Le = 0.86$ 을 나타내므로, 물질 확산계수가 더 강함을 나타내고 있다. Nu 수와 Sh 수는 유체의 경계층 특성에 의해 지배받기 때문에, 질량-열전달 유사성(Chilton-Colburn analogy)에 따르면 $Le = 0.86$ 일 때 두 무차원수의 크기는 수 퍼센트 내외로 거의

비슷해야 정상이다, 왜냐하면 $Sh = Nu \cdot 0.86^{1/3} \approx 0.95 \cdot Nu$ 이기 때문이다. 그런데도, 본 연구에서 $Hg_2Br_2(A)$ 소스 영역($350^\circ C$)과 결정영역($290^\circ C$) 사이의 온도 차이(ΔT)를 10 K, 60 K 설정하였을 때, $Sh \approx 1.1$ 가 $N = 0.2$ 더욱 약 5.5배 높게 관찰되었다. 일반적으로 Lewis 수 = 0.86 조건 아래의 일반 대류에서는 두 무차원수가 유사한 범위를 가져야 하나, 본 시스템에서는 심각한 불균형이 발생한 이유는 소스 영역에서 일어나는 강한 승화 현상으로 인해 발생하는 Stefan 유동(blowing effect)이 열적 유입을 물리적으로 차단하여 Nu 를 극도로 감소시켰기 때문으로 판단된다. 또한, 표면 공급 열량의 대부분이 Hg_2Br_2 의 승화 잠열로 전환됨에 따라 현열 전달(Nu)이 억제됐지만, 용질 부력에 의한 물질 전달(Sh)은 상대적으로 활발히 유지되어 이와 같은 유사성 붕괴(analogy breakdown)가 나타난 것으로 해석된다. $Hg_2Br_2(g)$ PVT 공정은 온도 차이에 의한 열적 부력(thermal buoyancy)과 승화된 기체분자의 농도 차이에 의한 용질 부력(solvent buoyancy)이 동시에 작용하는 시스템이다. Sh 가 Nu 보다 5배 이상 크다는 것은, 시스템 내의 대류(convection)를 촉진하고 물질을 수송하는 주된 구동력이 열적 구동력보다는 승화에 의한 ‘농도구배(용질 부력)’에 현저히 치우쳐 있음을 의미한다. 또한, 소스 영역($350^\circ C$)에서 강력한 승화가 일어나면서 고체 표면으로부터 앰플 내부를 향해 수직으로 밀어내는 질량 플럭스(Blowing/Stefan Flow)가 발생한다. 이 분출 흐름은 결정영역 방향에서 소스 영역으로 유입되려는 열 흐름을 물리적으로 차단하는 막을 형성합니다. 이에 따라 실제 대류 열전달 계수가 극도로 낮아져 Nu 가 순수 전도 기준선(1.0)보다 훨씬 낮은 0.2 수준으로 억제되는 반면, 물질 전달은 승화 압력에 의해 $Sh = 1.1$ 수준을 유지하므로 격차가 벌어집니다. Nu 수는 오직 온도 차이에 의해 이동하는 현열(sensible heat)을 기준으로 계산된다. 소스 영역 표면에서 외부 유동으로부터 공급받은 열량 대부분이 유체의 온도를 높이는 대신 $Hg_2Br_2(g)$ 의 승화 잠열로 전부 흡수된다. 따라서 기체 내부에서 온도 구배에 의한 순수 현열 전달 플럭스가 급감하여 Nu 가 0.2까지 떨어지게 됩니다. 또한, ΔT 가 10 K에서 60 K로 변했음에도 비율이 5.5배로 ‘일정하게’ 유지되었다는 결과는 온도 차가 커지면 열적 부력(Thermal Grashof number)이 커져서 Nu 가 증가할 것 같지만, 온도 차가 커진 만큼 승화 속도(Mass Flux)도 선형/지수적으로 함께 증가하여 블로잉 효과와 잠열 소비량도 동시에 비례하여 커졌기 때문입니다.

Figure 6은 소스 영역에서 y 축 방향의 무차원 좌표 y^* 에 대한 무차원 국소(local) Nusselt 수(Nu_{y^*})를 나타내고 있다. $0 \leq y^* \leq 1$ 에서, 무차원 국소(local) Nusselt 수

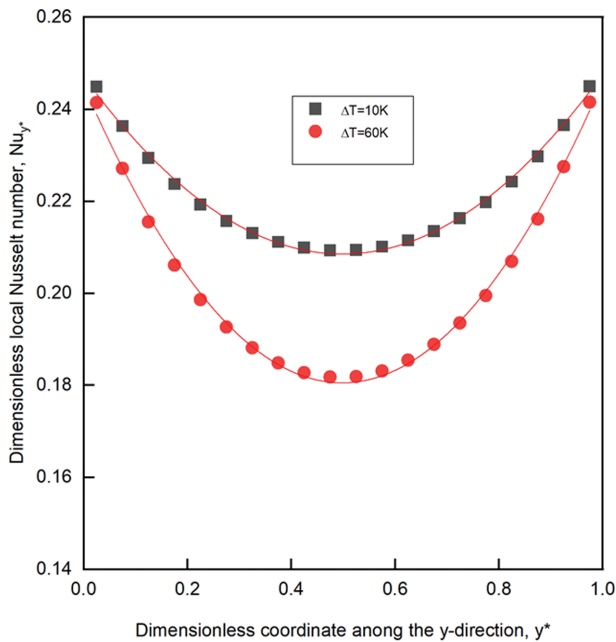


Fig. 6. Dimensionless average Nusselt number, Nu at the source region as a function of dimensionless Rayleigh number between the source and the crystal region, $\Delta T(K)$, corresponding to Fig. 4.

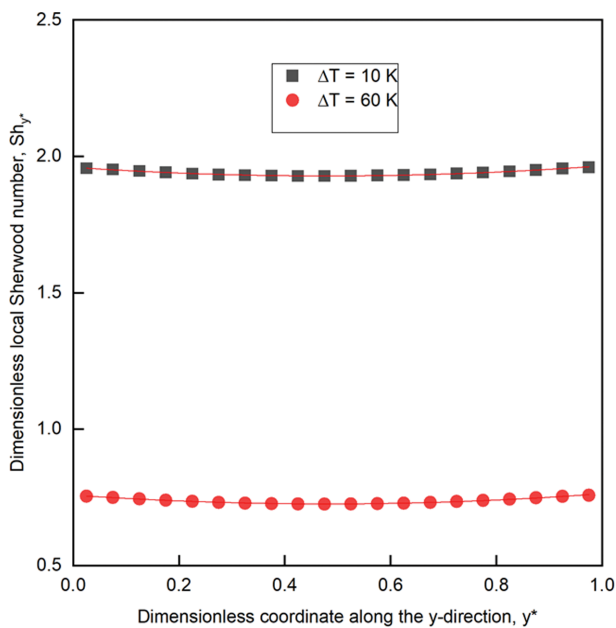


Fig. 7. Dimensionless average Sherwood number, Sh at the source region as a function of dimensionless Rayleigh number between the source and the crystal region, $\Delta T(K)$, corresponding to Fig. 5.

(Nu_{y*}) 는 y 축 방향의 무차원 좌표 y^* 에 따라 $y^* = 0.5$ 를 기준으로 보면 대칭적인 2차원 포물선 형태를 보인다. $Ar(\text{길이/폭}) = 4$, $\Delta T = 10\text{ K}(350^\circ\text{C} \rightarrow 340^\circ\text{C})$, $60\text{ K}(350^\circ\text{C} \rightarrow 290^\circ\text{C})$, 성분 B(Hg)의 부분 압력 $P_B = 100\text{ Torr}$ 에 기초로 한 것이다. $\Delta T = 60\text{ K}(350^\circ\text{C} \rightarrow 290^\circ\text{C})$ 의 경우에는, 열 Rayleigh 수(Ra_s) = 1.0×10^5 , 용질

Rayleigh 수(Ra_s) = 6.8×10^5 , Prandtl (Pr) 수 = 0.79, Lewis(Le) 수 = 0.86, Peclet(Pe) 수 = 2.2, Concentration parameter(농도 매개변수)(C_v) = 1.1이다. $\Delta T = 10\text{ K}(350^\circ\text{C} \rightarrow 340^\circ\text{C})$ 의 경우가 $60\text{ K}(350^\circ\text{C} \rightarrow 290^\circ\text{C})$ 보다 $0 \leq y^* \leq 1$ 에서 걸쳐 무차원 국소(local) Nusselt 수(Nu_{y*}) 수치가 더 크다. Figure 7은 소스 영역에서 y 축 방향의 무차원 좌표 y^* 에 대한 무차원 국소(local) Sherwood 수(Sh_{y*})를 나타내고 있다. $0 \leq y^* \leq 1$ 에서, 무차원 국소(local) Sherwood 수(Sh_{y*})는 y 축 방향의 무차원 좌표 y^* 에 따라 $y^* = 0.5$ 를 기준으로 보면 대칭적인 거의 변화가 없는 포물선이라기보다는 직선에 거의 가깝다. $\Delta T = 10\text{ K}(350^\circ\text{C} \rightarrow 340^\circ\text{C})$ 의 경우가 $60\text{ K}(350^\circ\text{C} \rightarrow 290^\circ\text{C})$ 보다 $0 \leq y^* \leq 1$ 에서 걸쳐 무차원 국소(local) Sherwood 수(Sh_{y*}) 수치가 약 2.5배 정도로 더 크다.

5. 결 론

본 연구에서는 aspect ratio = 4인 수직형 밀폐형 용기 내에서, 소스 영역과 결정영역에서 제1 브로민화 수은(Hg_2Br_2 , mercurous bromide)과 수은(Hg)의 혼합물 전달 현상을 온도 차의 변화에 따라 결정성장 속도와 최대 속도상수와의 관계성에 대한 전산 모사한 결과 모두 선형적으로 변화함을 발견하게 되었고, $0\text{ K} \leq \Delta T \leq 60\text{ K}$ 에 해당하는 $4.78 \times 10^4 \leq Ra \leq 10 \times 10^4$ 범위에서는 소스 영역에서의 무차원 Sherwood 수가 무차원 Nusselt 수보다 대략 5배 정도 더 크다는 결과를 얻었다. 소스 영역에서 y 축 방향의 무차원 좌표 y^* 에 대한 무차원 국소(local) Nusselt 수(Nu_{y*})와 무차원 국소(local) Sherwood 수(Sh_{y*}) 수치가 $\Delta T = 10\text{ K}(350^\circ\text{C} \rightarrow 340^\circ\text{C})$ 의 경우가 $60\text{ K}(350^\circ\text{C} \rightarrow 290^\circ\text{C})$ 보다 $0 \leq y^* \leq 1$ 에서 걸쳐 크다는 것을 결과로 도출하였다.

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 $\text{Hg}_2\text{Br}_x\text{Cl}_{2-x}$ crys-

- tals 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] M. Dalmon, S. Nakashima, S. Komatsubara and A. Mitsushishi, "Softening of acoustic and optical modes in ferroelstic phase in Hg_2Br_2 ", *Solid State Commun.* 28 (1978) 815.
 - [5] J.S. Kim, S.B. Trivedi, J. Soos, N. Gupta and W. Palosz, "Growth of Hg_2Cl_2 and Hg_2Br_2 single crystals by physical vapor transport", *J. Cryst. Growth* 310 (2008) 2457.
 - [6] P.M. Amarasinghe, J.S. Kim and S. Trivedi "Mercurous Bromide (Hg_2Br_2) Acousto-Optic Tunable Filters (AOTFs) for the Long Wave length Infrared (LWIR) Region", *J. Electron. Mater.* 50 (2021)5774.
 - [7] 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.
 - [8] D.W. Greenwell, B.L. Markham and F. Rosenberger, "Numerical modeling of diffusive physical vapor transport in cylindrical ampoules", *J. Cryst. Growth* 51 (1981) 413.
 - [9] 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.
 - [10] S.V. Patankar, "Numerical Heat Transfer and Fluid Flow", (Hemisphere Publishing Corp., Washington D. C., 1980) p. 131.
 - [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] 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.
 - [13] R.B. Bird, W.E. Stewart and E.N. Lightfoot, *Transport Phenomena* (New York, NY: John Wiley and Sons, 1960).
 - [14] H. Zhou, A. Zebib, S. Trivedi and WM.B. Duval, "Physical vapor transport of zinc-telluride by dissociative sublimation", *J. Cryst. Growth* 167 (1996) 534.