

수평브리츠만법에 의한 갈륨비소 과도기 성장의 유한요소 해석

김도현, 민병수*

한국과학기술원 화학공학과, 대전, 305-701

*현대중공업 산업기술연구소, 울산, 682-792

Finite element analysis of transient growth of GaAs by horizontal Bridgman method

Do Hyun Kim and Byeong-Su Min*

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

*Hyundai Industrial Research Institute, Hyundai Heavy Industries Co., Ulsan 682-792, Korea

요 약 갈륨 비소 반도체 결정을 성장시키는 데 많이 사용되는 수평브리츠만법에 의하여 성장된 갈륨비소 단결정 내에서 불순물 분포를 알아보기 위하여 액상에서 열전달, 물질전달, 유체흐름과 고상에서 열전달을 묘사하는 과도기 모델을 수립하였고 유한요소법과 음함수 적분법에 의하여 수치모사를 행하였다. 그 결과 Gr이 작은 경우에는 확산조절성장의 특성을 보였으며 Gr이 1,700 정도만 되어도 농도의 최소값이 계면 근처로 이동하였다. 응고가 진행됨에 따라 계면의 곡률이 증가하였고, 흐름에 의한 혼합이 안정될 때까지 수직편석이 증가하였다. 수평편석은 응고가 진행됨에 따라 증가하였지만 흐름의 강도가 강한 경우에는 곧 일정하게 유지되었다. Gr이 아주 작거나 큰 경우에는 Smith식과 Scheil식의 경우와 잘 일치하였다.

Abstract To investigate the impurity distribution in GaAs crystal grown by horizontal Bridgman method, we constructed the mathematical model describing heat transfer, mass transfer and fluid flow in transient growth of GaAs. Galerkin finite element method and implicit time integration were used to solve the equations and simulate the transient growth. The concentration distribution is similar to the case of diffusion controlled growth when $Gr = 0$. With the increase of Gr the concentration profile is distorted and the minimum solute concentration appears near the interface. As solidification proceeds, interface deflection increases steadily and transverse

segregation increases until mixing by flow becomes steady. The axial segregation increases with solidification. But, with high intensity of flow axial segregation becomes steady after short transient. At small and large Gr the result showed a good agreement with the prediction of Smith and Scheil.

1. 서 론

갈륨비소 결정성장에서는 갈륨과 비소의 구성비 조절이 중요하며 이의 조절이 용이하고 저결함의 결정을 얻을 수 있는 수평브릿지만법이 갈륨비소 결정성장법으로 널리 사용되고 있다. 결정성장 공정에서는 노에 의하여 가해지는 온도 기울기가 결정성장을 위한 구동력으로 작용하는데 수평브릿지만법에서는 이를 위해 고온과 저온의 두 온도 영역을 갖는 노를 사용한다. 저온 영역은 비소의 과압력을 얻는 데 필요한 정도의 온도로 유지되며 고온 영역은 갈륨비소의 용점 이상으로 유지된다. 보트 속의 다결정 갈륨비소와 결정의 방향성을 위한 종결정의 일부를 용융시킨 후 노 안의 보트를 움직이기 시작하면 이에 따라 결정성장이 진행된다.

결정성장 시스템에서 용융액 내의 유동은 회전과 같이 외부에서 가하는 운동의 결과로 나타나는 것과 온도 대류, 용질 대류, 마랑고니 대류 등 용융액 내부나 표면에서 물리화학적 성질의 국부적인 기울기에 따른 것으로 나눌 수 있다. 수평브릿지만 시스템에서와 같이 측면에서 가열되어 보트 양단에 온도 기울기가 형성되고 이 온도 기울기가 중력의 방향과 일치하지 않은 경우에는 항상 온도 대류에 의한 유체 순환을 유발한다. 용융액 내의 유체의 흐름은 용융액 내의 용질의 분포를 변화시키며 이 변화는 성장된 결정 내의 편석을 가져온다. 따라서, 용융액 내의 유체의 유동구조 분석은 결정 내의 용질분포를

이해, 예측하기 위하여 매우 필요하다.

결정성장이 진행됨에 따라 유한한 길이의 보트 안에서 용융액의 부피가 꾸준히 줄기 때문에 수평브릿지만 시스템에서 일어나는 이동현상은 원천적으로 과도기 현상을 보일 수 밖에 없다. 그러나, 이동하는 고-액 계면의 존재 아래 용융액의 흐름, 온도장, 농도장을 포함하는 수평브릿지만 시스템의 모델링에 대한 연구는 보고된 바 없다. Crochet 등 [1,2]은 과도기 모델을 수립하였으나 갈륨비소가 액상으로만 존재할 때 2차원으로 해석하였거나 3차원 모델[3]로 확장하였으며 결정상과 고-액 계면이 존재하는 경우에 2차원 과도기 모델[4]로 용융액의 속도장과 온도장을 해석하였다. 그러나, 이들은 농도장은 고려하지 않아 용융액 내의 흐름이 결정의 편석에 미치는 영향은 분석하지 않았다. 1988년에 열린 GAMM Workshop[5]에서는 장방형 용기 내에서 금속 혹은 반도체 용융액을 대표하는 Prandtl 수가 작은 유체에 수평 온도 구배가 가해질 때 발생하는 진동 대류 현상을 여러가지 수치해석 방법을 사용하여 얻은 결과들이 발표되었다. 이들 역시 진동 대류의 발생을 수치적으로 보여주었지만 물질 전달은 고려되지 않았고 시스템 전체가 액체인 경우에 한하였다.

본 연구에서는 수평브릿지만 시스템에서의 결정성장 과정을 수치 모사하기 위하여 결정성장 공정의 2차원 과도기 모델을 수립하고 모델의 미분방정식들을 유한요소법과 음함수 시간적분법을 사용하여 속도, 온도, 농도, 고

-액 계면의 위치를 해로 구하였다.

2. 수학적 모델

결정성장이 진행됨에 따라 계면이 움직이게 되면 유한한 크기의 보트 안에서는 액상의 부피가 변하게 되고 용질의 편석에 의하여 액상내의 용질의 양이 또한 변하게 된다. 따라서 속도, 압력, 온도, 농도와 계면 형태도 시간에 따라 계속 변하게 된다. 본 연구의 모델에서는 액상과 고상이 공간을 완전히 채우고 있어서 빈 공간이 존재하지 않는다고 가정하며 재용융이나 역용융은 고려하지 않았다.

위와 같은 가정 아래 Fig. 1과 같은 시스템의 액상에서의 연속식, 운동량식, 에너지식 및 물질식은 다음과 같다.

$$\nabla \cdot v = 0 \text{ where } v = (u, v) \quad (1)$$

$$\frac{\partial v}{\partial \tau} + v \cdot \nabla v = -\nabla p + \nabla^2 v - Gr\theta e_x \quad (2)$$

$$Pr \left(\frac{\partial \theta}{\partial \tau} + v \cdot \nabla \theta \right) = \nabla^2 \theta \quad (3)$$

$$Sc \left(\frac{\partial C}{\partial \tau} + v \cdot \nabla C \right) = \nabla^2 C \quad (4)$$

고상에서는 에너지 수지식만 고려한다.

$$Pr \frac{\partial \theta}{\partial \tau} = \gamma \nabla^2 \theta \quad (5)$$

이때 사용한 무차원 변수의 정의를 Table 1에 실었다.

고-액 계면에서 온도와 농도에 대한 경계 조건은 다음과 같이 열 및 물질 flux의 수지에 의하여 주어진다.

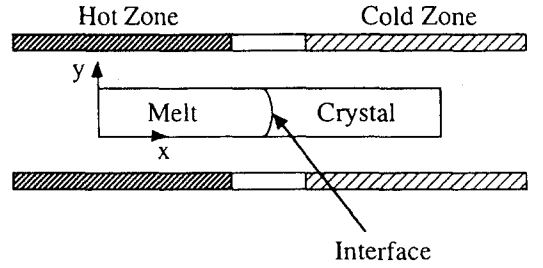


Fig. 1. The simplified diagram of HB furnace.

Table 1

Dimensionless groups

Dimensionless group	Definition
Grashof number	$Gr = \beta_g \Delta T H^3 / \nu^2$
Peclet number	$Pe = V_g \Delta H / \alpha_m$
Prandtl number	$Pr = \nu / \alpha_m$
Schmidt number	$Sc = \nu / D$
Stefan number	$St = \Delta H / C_{pm} \Delta T$

$$[N \cdot \nabla \theta]_m - K_c [N \cdot \nabla \theta]_c$$

$$= -St Pr \frac{\partial H}{\partial \tau} (N \cdot e_x) \quad (6)$$

$$[N \cdot \nabla C]_m - Sc \frac{\partial H}{\partial \tau} (N \cdot e_x) (1-k) C \quad (7)$$

여기서 $\partial H / \partial \tau (N \cdot e_x)$ 는 계면 속도의 수직 성분을 나타낸다.

고-액 계면과 보트의 벽면에서는 안미끄러짐 조건이 적용되어 속도에 대한 경계 조건은 다음과 같다.

$$v = 0 \text{ for } 0 \leq y \leq 1, x = 0, H(y, \tau) \quad (8)$$

$$\text{and } y = 0, 1, 0 \leq x \leq H(y, \tau)$$

보트와 노의 상대적인 위치가 변함에 따라 보트를 기준으로하면 열전달계수 $Bi(x, \tau)$ 와 노의 온도 $\theta_\infty(x, \tau)$ 가 시간에 따라 계속 변하며 보트 외벽의 온도 경계 조건은 다음과 같이 주어진다.

$$\frac{\partial \theta}{\partial y} = Bi(x, \tau)[\theta_\infty(x, \tau) - \theta(y, x, \tau)]$$

$$\text{at } y = 0, 1, 0 \leq x \leq L \quad (9)$$

보트의 양 끝에서는 보트의 온도와 노의 온도가 평형 상태에 있다고 가정하면 다음의 조건을 만족한다.

$$\theta |_{x=0} = \theta_\infty(0, \tau), \theta |_{x=L} = \theta_\infty(L, \tau)$$

$$\text{at } 0 \leq y \leq 1 \quad (10)$$

용질은 아래와 위에서 사라지거나 생성되지 않는다고 가정하여 아래와 위에서 flux가 0인 조건을 사용하였다.

$$\frac{\partial C}{\partial y} \Big|_{y=0} = \frac{\partial C}{\partial y} \Big|_{y=1} = 0, \frac{\partial C}{\partial x} \Big|_{x=0} = 0 \quad (11)$$

고-액 경계면의 위치와 형태는 미지수로 시간에 따라 계속 변하게 되는데 시간에 따라 이동하는 경계면을 결정하기 위하여 고-액 계면에서의 온도가 갈륨비소의 녹는점과 일치한다는 조건을 사용하였다.

$$\theta = \theta_m \quad (12)$$

3. 수치 해법

설계와 제어를 최적화하기 위한 결정 성장 시스템의 자세한 해석은 용질의 이동이 수반

되는 응고 과정을 묘사하는 복잡한 이동경계 문제를 위한 효율적이고 정확한 수치해법을 필요로 한다. 뉴턴 반복법과 결합된 Galerkin 유한 요소법은 응고 과정의 여러 가지 변수(속도, 온도, 농도, 압력)와 계면 모양을 동시에 알아내기 위해서 사용된 바 있다[6]. 본 연구에서는 앞에서 수립된 편미분방정식들을 풀기 위하여 Galerkin 유한요소법, 뉴턴 반복해법, 음함수 시간 적분법 등에 기초한 수치 해법을 사용하였다.

Galerkin 유한 요소법에 의해서 공간에 대한 차분화를 행하면 비정상상태식들은 아래와 같은 형태의 상미분방정식으로 간단히 나타낼 수 있다.

$$M(x) \frac{\partial x}{\partial \tau} = F(x) \quad (13)$$

여기서 x 는 모든 미지수를 나타내고 $M(x)$ 은 유한 요소법에서 무게 행렬(mass matrix)이라고 한다. F 는 Galerkin residual식의 정상 상태 부분이다. 연속식과 고-액 계면을 풀기 위한 residual식에는 양함수적인 시간 미분이 없기 때문에 무게 행렬은 특이(singular)하다. 특이 무게 행렬이 있는 식들은 미분-대수식에 속하고 그 식들은 매우 강하기(stiff) 때문에 수치적으로 풀기가 매우 어렵다[7,8]. 특이성(singularity)은 전통적인 양함수적인 시간 적분의 사용을 어렵게 한다. 양함수 시간 적분은 시간 스텝이 빠르게 진행되지만 수치적인 안정성을 위한 조건에 의해서 시간 스텝의 크기가 엄격히 제한된다. 본 연구에서는 음함수시간 적분의 하나인 backward Euler 시간적분법을 사용했다. (13)식을 backward Euler 시간 적분식의 형태로 적으면 다음과 같다.

$$M(x_{n+1}) \frac{x_{n+1} - x_n}{\Delta \tau} = F(x_{n+1}) \quad (14)$$

이 식은 대개 비선형 대수방정식이므로 Newton 반복법에 의하여 해를 구한다.

액상에서의 연속식, 운동량식, 에너지식 및 물질식에 Galerkin 유한 요소법을 적용하면 다음과 같다.

$$\int_{D_m(\tau)} \Phi^i (\nabla \cdot v) dS = 0 \quad (15)$$

$$\int_{D_m(\tau)} \Phi^i \left[\frac{\partial v}{\partial \tau} + v \cdot \nabla v + \nabla p - \nabla^2 v - Gr\theta e_x \right] dS = 0 \quad (16)$$

$$\int_{D_m(\tau)} \Phi^i \left[Pr \left(\frac{\partial v}{\partial \tau} + v \cdot \nabla v \right) - \nabla^2 \theta \right] dS = 0 \quad (17)$$

$$\int_{D_m(\tau)} \Phi^i \left[Sc \left(\frac{\partial C}{\partial \tau} + v \cdot \nabla C \right) - \nabla^2 C \right] dS = 0 \quad (18)$$

윗 식에 divergence 정리를 적용하고 경계 조건을 적용하면 다음과 같은 식을 얻는다.

$$\int_{D_m(\tau)} \left[\Phi^i \left(\frac{\partial v}{\partial \tau} + \Phi^i v \cdot \nabla v + (\nabla \cdot \Phi^i) v \right) + \nabla \Phi^i \cdot \nabla v - \Phi^i Gr\theta e_x \right] dS = 0 \quad (19)$$

$$\int_{D_m(\tau)} \left[\Phi^i Sc \Phi^i \left(\frac{\partial C}{\partial \tau} + v \cdot \nabla C \right) - \nabla \Phi^i \cdot \nabla C \right] ds + \int_{D_1(\tau)} \left[\Psi^i Sc \Phi^i \frac{\partial H}{\partial \tau} (N \cdot e_x) C(1-k) \right] dL = 0 \quad (20)$$

$$\int_{D_m(\tau)} \left[\Phi^i Pr \Phi^i \left(\frac{\partial \theta_m}{\partial \tau} + v \cdot \nabla \theta_m \right) - \nabla \Phi^i \cdot \nabla \theta_m \right] ds + \int_{D_k(\tau)} \left[\Psi^i Pr \Phi^i \frac{\partial \theta_k}{\partial \tau} - \alpha \nabla \Phi^i \cdot \nabla \theta_k \right] dS$$

$$\begin{aligned} & + \int_{D_1(\tau)} \left[\Psi^i St Pr \frac{\partial T}{\partial \tau} (N \cdot e_x) \right] dL \\ & + \int_{\partial D_m} Bi(x, \tau) [\theta_\infty(x, \tau) - \theta(x, y, \tau)] dL \\ & = 0 \end{aligned} \quad (21)$$

고-액 경계면이 이동함에 따라 전체 유한 요소 메시가 변형되므로 각 유한요소에서 정의되는 기본함수는 시간의 함수다. 레지듀얼(residual)식에서 속도, 온도, 농도의 기본함수와 각 마디에서의 값이 시간에 의존하기 때문에 시간 미분항의 해석적 표현은 간단하지 않다. 한 예로 에너지 식에서 시간 미분항을 수식화하기 위해 온도의 시간 미분항을 유한 요소식의 형태로 전개하면 다음과 같다.

$$\begin{aligned} \frac{\partial \theta}{\partial \tau} &= \frac{\partial}{\partial \tau} \left(\sum_{j=1}^9 \theta^{(j)} \phi^j \right) \\ &= \sum_{j=1}^9 \left(\frac{\partial \theta^{(j)}}{\partial \tau} \phi^j + \theta^{(j)} \frac{\partial \phi^j}{\partial \tau} \right) \end{aligned} \quad (22)$$

시간 미분항 $\partial \phi^j / \partial \tau$ 를 구하기 위해서 Lynch와 Gray[9]가 개발한 방법을 적용하였다. 총괄 좌표 (x, y) 의 모요소(parent element)에서 국부 좌표 (ξ, η) 로 등매개변수 매핑(isoparametric mapping)을 하면 Φ^i 의 ξ 와 η 에 대한 값은 불변치이므로

$$\left. \frac{\partial \Phi^i}{\partial \tau} \right|_{\xi, \eta} = 0 \quad (23)$$

이 된다. Φ^i 에 대해서 등매개변수 좌표 변환을 하면

$$\left. \frac{\partial \Phi^i}{\partial \tau} \right|_{\xi, \eta} = \nabla \Phi^i \cdot \frac{\partial x}{\partial \tau} \Big|_{\xi, \eta} + \frac{\partial \Phi^i}{\partial \tau} \Big|_x = 0 \quad (24)$$

이 되는데 여기서 x 는 전체 좌표의 벡터 x

$= (x, y)$ 이고 $\nabla \equiv \left(\frac{\partial}{\partial x}\right) e_x + \left(\frac{\partial}{\partial y}\right) e_y$ 는 고정된 좌표계 (x, y) 에 대한 미분 연산자이며 (24)식으로부터 다음의 관계를 얻는다.

$$\frac{\partial \Phi^i}{\partial \tau} = -V^e \cdot \nabla \Phi^i \quad (25)$$

여기서 요소 속도 벡터 V^e 는 각각의 요소가 변형하는 속도를 나타내며

$$V^e = \sum_{k=1}^9 \frac{\partial x^k}{\partial \tau} \Phi^k = \sum_{k=1}^9 V^k \Phi^k \quad (26)$$

로 정의되는데 $V^k = \partial x^k / \partial \tau$ 로써 요소에서 k 번째 마디의 좌표 속도이다. (25)식을 (22)식에 대입하면 결국 시간 미분항은 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$\begin{aligned} \frac{\partial \theta}{\partial \tau} &= \sum_{j=1}^9 \left[\frac{\partial \theta^{(j)}}{\partial \tau} - V^e \cdot (\theta^{(j)} \nabla \Phi^j) \right] \\ &= \sum_{j=1}^9 \left(\Phi^j \frac{\partial \theta^{(j)}}{\partial \tau} \right) - V^e \cdot \nabla \theta \end{aligned} \quad (27)$$

움직이는 메쉬(mesh)의 영향은 식 (27)의 마지막 항으로 요약된다. 이 항은 계면 위치에 대한 메쉬의 함수적 의존성을 통해서 움직이는 고-액 경계면의 속도와 지배방정식을 연계시킨다. 온도의 시간 미분항에 대한 이런 보정은 속도성분과 농도에도 온도와 같은 방법으로 적용된다.

본 연구의 모델 시스템의 메쉬에 대해서 생각하면 보정항은 더욱 간단하게 된다. 여기서는 각각의 요소에서 마디의 x 성분만이 움직이는 계면과 함께 변화한다. 요소속도의 y 성분은 마디 위치의 y 성분이 고정되어 있기 때문에 변하지 않는다. 그래서 요소 속도 벡터 V^e 가 V_x^e 로 되고 (27)식은

$$\frac{\partial \theta}{\partial \tau} = \sum_{j=1}^9 (\Phi^j \frac{\partial \theta^{(j)}}{\partial \tau}) - V_x^e \cdot \frac{\partial \theta}{\partial x} \quad (28)$$

로 간단하게 된다.

계면의 위치를 결정하기 위한 잉여식은 고-액 계면을 따라 온도가 녹는점과 일치해야 한다는 조건에 Galerkin의 방법을 적용하여 세운다.

$$\int_{D_i} \Phi_i(y) [\theta(H(y, \tau), y, \tau) - \theta_m] dl = 0 \quad (29)$$

여기서 계면을 따른 미소 길이 $dl = \sqrt{1 + H_y^2} dy$ 가 된다.

4. 결 과

본 연구에서 사용한 GaAs의 열물리학적 성질은 Table 2에서와 같은 성질을 사용하였다. 보트 주위의 온도 분포를 Fig. 2 (a)와 같이 주었을 때 정상상태에서 얻은 유체흐름과 온도장에 대한 결과를 초기 조건으로 사용하였고 이때 액상에서 불순물 농도는 균일하다고 가정하였다. 보트의 이동에 따라 보트 주위의 온도와 열전달계수가 변하며 결정성장이 진행됨에 따라 계면이 이동한다. 시간이 지난 후의 온도 및 열전달계수 분포는 Fig. 2 (b)에 나타내었다.

결정성장에 대한 유체흐름 강도의 영향을 살펴보기 위하여 $Gr = 0, 170, 1700$ 의 경우에 대하여 수치모사를 행하였다. 먼저, $Gr = 0$ 일 경우에 얻은 온도와 농도 분포에 대한 결과는 Fig. 3에서와 같으며 응고가 각각 0, 10, 20, 25% 진행되었을 때의 결과다. $Gr = 0$ 에서는 자연 대류가 일어나지 않기 때문에 액상에서 흐름은 나타내지 않았다. 흐름이 없기 때문에 액상에서 농도 변화는 계면에서

Table 2
Thermophysical properties of GaAs

Quantity	Symbol(units)	Value
Thermal conductivity of the melt	$K_m(W/^{\circ}C \cdot cm)$	0.18
Thermal conductivity of the solid	$K_s(W/^{\circ}C \cdot cm)$	0.071
Density of the melt	$\rho_m(g/cm^3)$	5.7
Density of the solid	$\rho_s(g/cm^3)$	5.2
Specific heat of the melt	$C_{p,m}(J/^{\circ}C \cdot g)$	0.44
Specific heat of the solid	$C_{p,s}(J/^{\circ}C \cdot g)$	0.42
Melting temperature	$T_m(^{\circ}C)$	1238.0
Kinematic viscosity	$\nu(cm^2/sec)$	0.0042
Heat of solidification	$\Delta H_s(J/g)$	726
Thermal expansion coefficient	$\beta_T(^{\circ}C^{-1})$	1.9×10^{-4}
Diffusion coefficient of Se in GaAs	$D(cm^2/sec)$	1×10^{-4}
Equilibrium distribution coefficient of Se	k	0.1

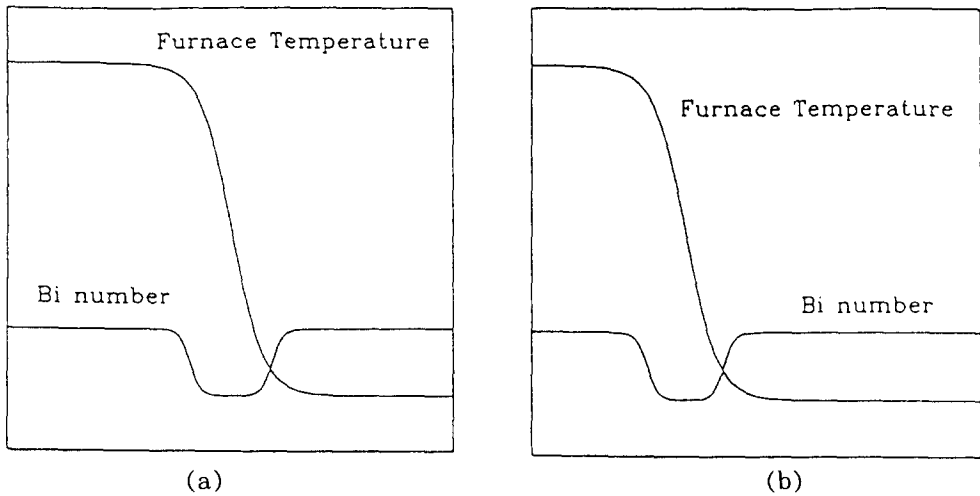


Fig. 2. Furnace temperature and Biot number profiles (a) at the start and (b) at the end.

입구에서 유입된 불순물의 90%(편석 계수 $k=0.1$)가 축적되는 현상만 나타난다. 여기 형성되는 농도 경계층은 흐름에 의한 교란이 없기 때문에 1차원 거동을 보인다. 그림을 자세히 보면 응고가 진행됨에 따라 계면의

힘에 의한 영향이 아주 미미하게 나타남을 알 수 있다. 농도의 최대값은 액상에서 가장 오른쪽 휘어진 계면 안쪽에서 생긴다. 최소값은 왼쪽 끝 위에 표시되어 있지만 왼쪽 끝의 $0 < y < 1$ 영역이 모두 동일한 값을 가진

다.

두 번째로 $Gr = 170$ 의 경우는 실제 지구상의 중력의 1/1000 정도되는 중력에 해당하는 경우로 Fig. 4에 흐름 함수, 농도, 온도 분포를 나타내었다. Fig. 4 (a)의 온도 변화는 $Gr = 0$ 의 경우와 거의 비슷하다. 이것은 운동량 확산과 열확산의 비를 나타내는 Pr 이 0.059로 아주 작아 흐름의 영향을 거의 받지 않기 때문이다. Fig. 4 (b)의 흐름 함수

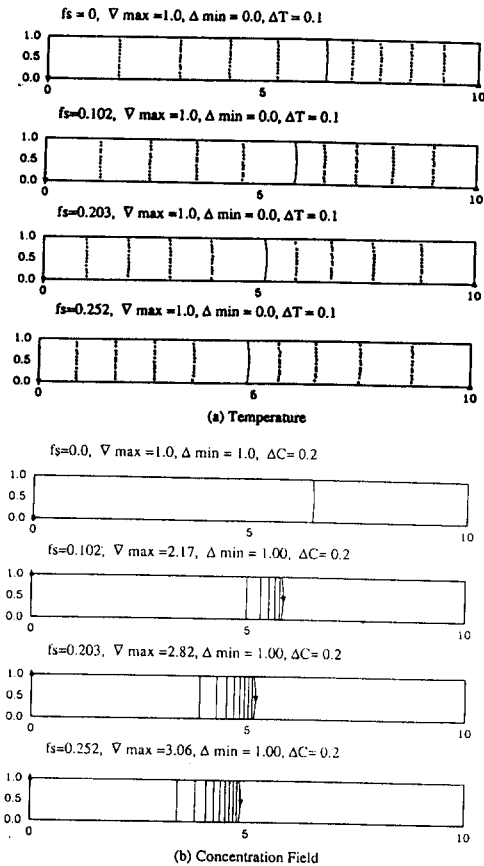


Fig. 3. (a) Temperature profiles and (b) solute distribution profiles with thermal boundary condition of $Bi_{max} = 0.035$ at $Gr = 0$, $Pr = 0.059$, $St = 8.25$. The thick lines in the melt phase correspond to $c = 1.6$.

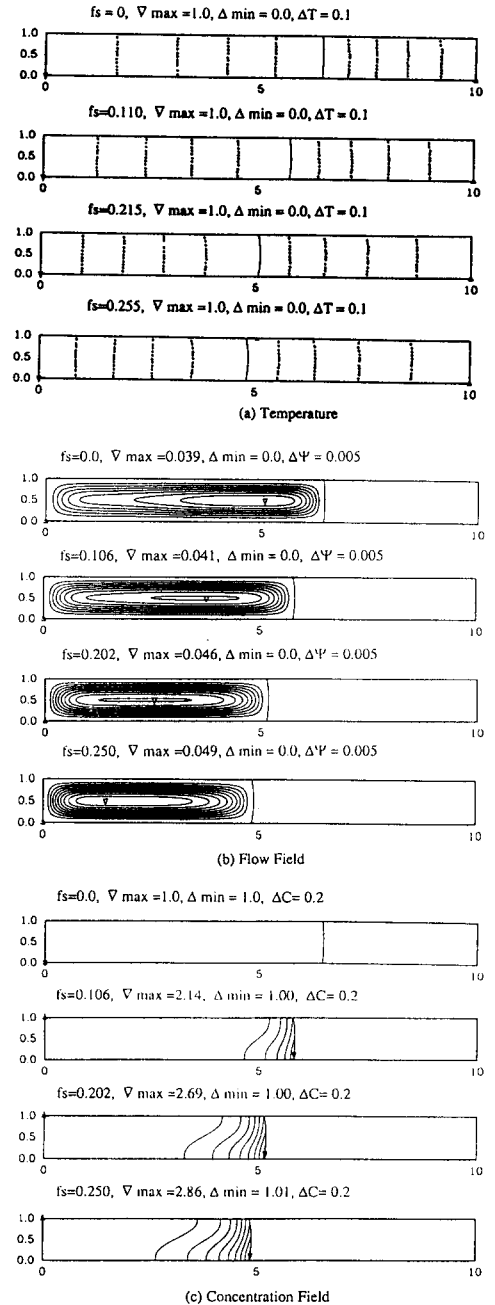


Fig. 4. (a) Temperature profiles, (b) streamlines and (c) solute distribution profiles with thermal boundary condition of $Bi_{max} = 0.035$ at $Gr = 170$, $Pr = 0.059$, $St = 8.25$.

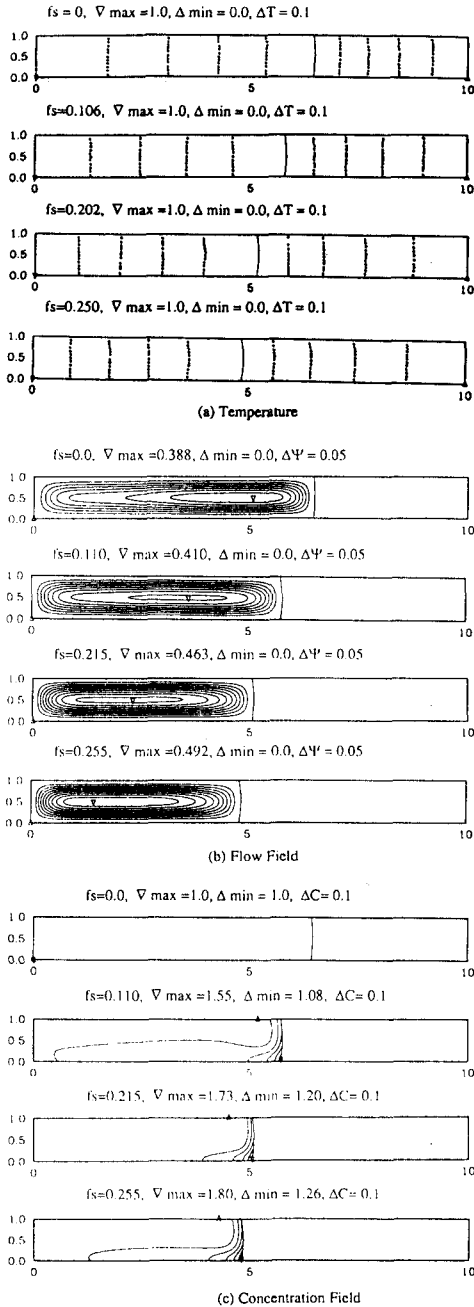


Fig. 5. (a) Temperature profiles, (b) streamlines and (c) solute distribution profiles with thermal boundary condition of $Bi_{max} = 0.035$ at $Gr = 1,700$, $Pr = 0.059$, $St = 8.25$.

의 분포를 보면 응고가 진행되면서 무차원 온도가 1인 왼쪽 끝과 무차원 온도 0.5인 계면이 가까워짐에 따라 액상에서 단위 길이마다 온도차가 증가하기 때문에 대류의 강도가 커짐을 최대 흐름 함수 값으로 알 수 있다. Fig. 4 (c)의 액상에서의 농도 분포는 흐름의 영향으로 $Gr = 0$ 의 경우와는 달리 많이 휘어져 나타난다. 그리고, 흐름 때문에 농도의 최대값이 액상의 오른쪽 아래에, 최소값이 왼쪽 위에서 생김을 알 수 있다. 농도 분포는 흐름의 영향이 지배적인데 이는 운동량 확산과 용질 확산의 비를 나타내는 Sc 가 42로 매우 크기 때문이다.

Fig. 5에는 중력이 10배 증가한 $Gr = 1,700$ 의 경우에 흐름 함수, 농도, 온도 분포를 나타내었다. Fig. 5 (a)에서 보면 온도 분포는 Pr 이 작기 때문에 흐름이 강해져도 $Gr = 170$ 이나 $Gr = 1700$ 의 경우가 거의 차이 나지 않는다. Fig. 5 (b)에서 $Gr = 1700$ 의 경우가 $Gr = 170$ 의 경우보다 흐름의 강도를 나타내는 흐름 함수의 최대값이 10배 정도 증가하였고 이로부터 흐름의 강도가 대체로 Gr 에 비례함을 알 수 있다. 농도 분포는 $Gr = 170$ 의 경우보다 흐름이 더 강해졌기 때문에 훨씬 더 복잡하여졌다. 여기서 농도의 최대값은 계면 아래에서 생기지만, 최소값은 왼쪽 위가 아닌 계면 근처 위쪽에서 나타난다.

4.1. 계면 만곡

Fig. 6에 결정이 성장함에 따라 계면이 휘어지는 정도를 나타내었다. 계면의 차이는 응고가 진행됨에 따라 전체적으로 증가함을 알 수 있다. 그림에서 $Gr = 170$, 1700 의 경우에 $Gr = 0$ 보다 계면 차이가 약간 더 크게 나타나는 이유는, Pr 이 작음에도 불구하고

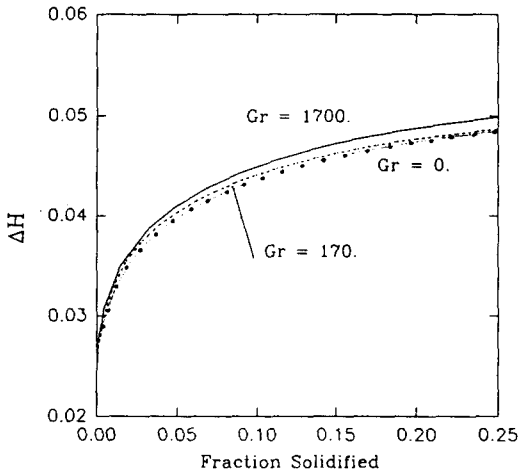


Fig. 6. Interface deflection.

대류에 의한 열 전달의 기여 때문이다. 응고가 진행되면서 계면 차이가 전체적으로 증가하는 이유는 계면이 왼쪽으로 이동할수록 왼쪽 끝의 고온부에서 전달되는 열 때문이다. 왜냐하면 응고가 25% 정도 진행될 때까지 왼쪽 끝의 고온부는 무차원 온도 1로 고정되기 때문에 무차원 온도 0.5인 계면이 왼쪽으로 진행할수록 왼쪽 끝 고온부의 영향이 강해지기 때문이다.

4.2. 계면 이동 속도

Fig. 7에서 계면 이동속도는 온도 분포의 이동속도 0.046에 미치지 못하는데 이는 보트와 노와의 열교환 정도를 나타내는 Bi 가 작기 때문이다. 응고가 진행됨에 따라 증가하다가 감소하는 이유는 왼쪽 끝의 높은 온도 영역에 가까워졌기 때문으로 생각된다. 이것은 앞에서 본 계면 차이의 결과와 관계가 있는데, 응고가 진행됨에 따라 계면이 휘어지는 것은 계면의 아래와 위는 온도 분포를 따라가려고 하지만, 왼쪽 끝의 온도 조건 영향으로 중심에서는 왼쪽으로 이동하기가

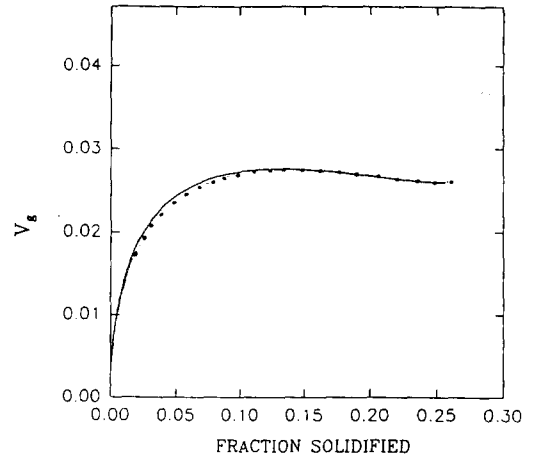


Fig. 7 Interface moving velocity.

어렵기 때문이다. 즉 결정성장에 따라 계면의 이동이 어려워지며 이동 속도가 줄어드는 것이다.

4.3. 편 석

액상에서의 대류는 용질의 혼합에 기여하며 대류전달에 의하여 용질의 물질전달 속도에 영향을 미친다. 이러한 영향은 결정내로 혼입되는 용질의 양에 영향을 미쳐서 결정내의 용질 분포를 변화시키며 따라서 결정의 편석 프로파일은 액상에서 흐름의 강도와 구조에 의해서 결정된다. 이와 같은 대류의 영향에 의한 편석의 정도는 결정내에서 수직 방향과 수평 방향의 편석에 의하여 나타낼 수 있다.

수직 방향으로 용질 분포의 불균일한 정도는 수직 편석(vertical segregation)이라고 하고, 결정의 수직 방향으로 농도의 최대치와 최소치의 차이를 국부 평균치 $\langle C \rangle$ 로 나누어 정의한다.

$$\Delta C(\%) \equiv \frac{(C_{S, max} - C_{S, min})}{\langle C_S \rangle_I} \times 100 \quad (30)$$

$$= \frac{(C_{max} - C_{min})_{interface}}{\langle C_S \rangle_I} \times 100 \quad (31)$$

결정내에서 용질의 확산을 무시하면 계면에서 액상쪽의 수직 방향 용질 분포가 결정내에서도 보존되므로 본 연구에서는 수치 모사에서 구한 액상의 용질 분포로부터 (31) 식을 사용하여 수직 편석을 구하였다.

결정에서 용질의 수평 편석에 대한 대류의 영향은 유효분배계수(effective distribution coefficient) k_{eff} 로 나타낼 수 있다. 이 계수는 계면의 결정쪽 농도와 액상에서 전체 농도의 비로 나타낸다[10].

$$k_{eff} \equiv \frac{\langle C_S \rangle_I}{\langle\langle C \rangle\rangle} = k \frac{\langle C \rangle_I}{\langle\langle C \rangle\rangle} \quad (32)$$

여기서 $\langle\langle C \rangle\rangle$ 는 액상에서의 부피 평균 농도이다.

Fig. 8에 위에서 정의한 수직 편석을 나타내었다. 수직 편석 거동의 경향성을 살펴보면 세 가지 경우 모두 응고가 진행됨에 따라 증가함을 나타내어 계면 근방에서 농도의 불균일성이 증가함을 알 수 있다. 계면 근처 액상에서 농도의 불균일성이 일어나는 이유는 액상의 Sc 가 매우 커서, 응고가 진행됨에 따라 강해진 흐름 때문에 계면 근처에서 불균일화가 더 심해졌을 것이다. 그렇지만 흐름의 강도가 어느 정도 이상이 되면 흐름에 의한 불균일화보다 흐름에 의한 혼합이 더 강해져서 수직 편석 값이 다시 줄어든다. 이 사실은 $Gr = 1700$ 의 경우에 응고가 10%를 넘어서면서 수직 편석값이 줄어드는 사실에서 알 수 있다. Fig. 6에서 응고가 진행됨에 따라 계면의 휨이 증가하였고 이것도 수직 편석값이 증가하는 데에 기여한다. 그림에서

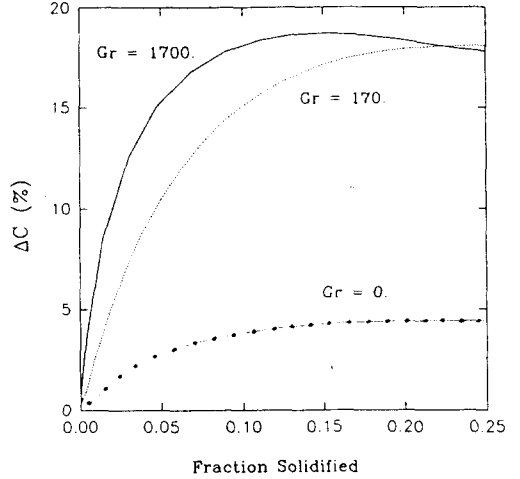


Fig. 8. Transverse segregation.

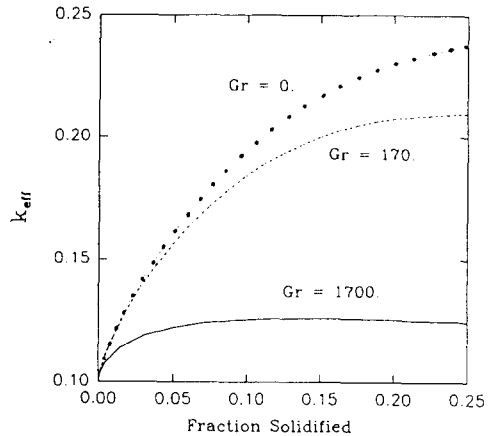


Fig. 9. Axial segregation.

$Gr = 0$ 인 경우에는 흐름이 일어나지 않기 때문에 계면의 휨만이 수직 편석의 원인이 된다. $Gr = 170$ 의 경우에는 흐름에 의한 불균일화와 계면의 휨, 두 가지 모두 수직 편석 값의 증가에 영향을 미쳤음을 알 수 있다.

Fig. 9에서 응고가 진행됨에 따라 세 경우 모두 유효분배계수가 증가함을 알 수 있다. $Gr = 0$ 에서 증가가 두드러지게 나타남을 알 수 있다. 이것은 액상에서 혼합이 일어나지 않기 때문에 입구에서 유입된 불순물의 10

%만 고상에 혼입되고 90 %가 계면에 계속 쌓이기 때문이다. 응고가 진행되면서 증가하나 보트의 유한한 길이 때문에 1까지는 증가하지 못한다. 대류가 있을 때는 액상에서 혼합 때문에 계면 근처 액상의 농도 증가가 잘 되지 않아 수평 편석값의 증가가 둔화된다. 이러한 경향은 그림에서 $Gr = 170$ 과 $Gr = 1700$ 인 경우의 증가 경향으로 알 수 있다. 이 둘 중에서 $Gr = 1700$ 에서는 강한 혼합 때문에 응고가 5 % 이상된 경우에는 거의 일정하다.

4.4. 극한 식과의 비교

성장된 결정 내에서 불순물의 농도를 대류가 없다고 가정한 Smith식과 액상에서 완전한 혼합을 가정한 Scheil, 두 가지 극한 식의 경우와 비교해서 Fig. 10에 나타내었다. 대류가 없는 Smith식의 결과와 $Gr = 0$ 의 결과가 거의 일치함을 알 수 있다. 완전히 일치하지 않는 이유는 Smith식은 1차원 가정이지만, $Gr = 0$ 의 결과는 1차원 거동이었지만 계면

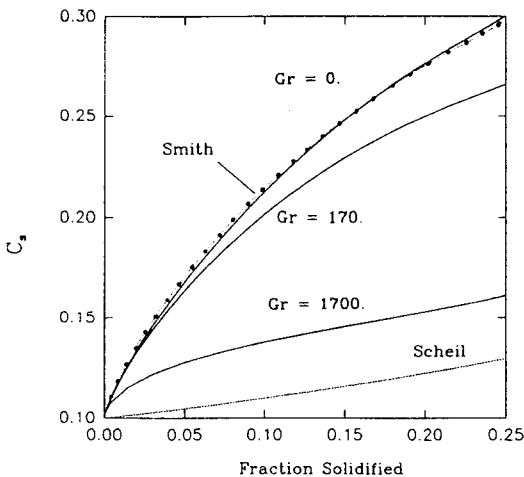


Fig. 10. Comparison of axial segregation with Smith and Scheil model.

이 뒤였기 때문에 완전한 1차원은 아니었기 때문이다. $Gr = 170, 1700$ 의 경우에 얻은 결과는 두 극한 식에서 나온 결과 사이에 존재함을 알 수 있다. 그리고, $Gr = 1700$ 의 경우에 대류가 더 강하게 일어나기 때문에 Scheil식에 더 근접해 있다. 이러한 결과에서 Scheil식과 Smith식이 수평브릿지만 결정성장법의 극한적인 상황에도 잘 맞을 수 있음을 알 수 있다.

5. 결 론

수평브릿지만법에 의하여 갈륨비소 결정을 성장시킬 때 용융액에서의 대류가 결정의 편석에 미치는 영향을 살펴보기 위하여 2차원 과도기 모델을 수립하고 유한요소법에 의하여 수치모사를 행하였다. 대류의 강도를 나타내는 Grashof수가 증가함에 따라 수직 편석은 증가하였으며 Gr 이 1700인 경우에는 결정성장이 진행됨에 따라 수직 편석이 최대치를 보였다. 유효분배계수는 Gr 이 증가할수록 감소하였고 결정의 불순물 농도 프로파일은 $Gr = 0$ 인 경우에는 Smith식과 일치하였고 Gr 이 증가함에 따라 완전혼합을 가정한 Scheil식으로 접근함을 보였다.

감사의 글

본 연구는 한국과학재단의 연구비 지원 (과제번호 : 923-1000-002-2)에 의한 것으로 한국과학재단에 감사드립니다.

참 고 문 헌

- [1] M.J. Crochet, F.T. Geyling and J.J. Van Schaftingen, *J. Crystal Growth* 65 (1983) 166.
- [2] M.J. Crochet, F.T. Geyling and J.J. Van Schaftingen, *Int. J. Num. Meth. Fluids* 7 (1987) 29.
- [3] S. Dupont, J.M. Marchal, M.J. Crochet and F.T. Geyling, *Int. J. Num. Meth. Fluids* 7 (1987) 49.
- [4] P. Wouters, J.J. Van Schaftingen, and M.J. Crochet, *Int. J. Num. Meth. Fluids* 7 (1987) 131.
- [5] B. Roux, ed., *Numerical Simulation of Oscillatory Convection in Low-Pr Fluids*, (Friedr. Vieweg & Sohn, Braunschweig, 1990).
- [6] D.H. Kim and R.A. Brown, *J. Crystal Growth* 114 (1991) 411.
- [7] C.W. Gear, *IEEE trans. Circuit Theory Ct-18* (1971) 89.
- [8] L.R. Petzold, *SIAM, J. Stat. Comput.* 3 (1982) 367.
- [9] D.R. Lynch and W.G. Gray, *J. Comput. Phys.* 36 (1980) 135.
- [10] J.A. Burton, R.C. Prim and W.P. Slichter, *J. Chem. Phys.* 21 (1953) 1987.