

스핀 코팅에서의 액막의 흐름

김 태 성[†]

The Flow of a Liquid Film on Spin Coating

Tae-sung Kim

Key Words: Liquid film(액막), Thin film(박막), Spin coating(스핀 코팅), Thin film equations(박막근사방정식)**Abstract**

The flow of a liquid film on spin coating is investigated in the case that the fixed volume of a liquid is placed on the center of a stationary disk. Thin film equations that are well approximated when the characteristic length in the vertical direction is much smaller than that in the radial direction ($\epsilon \ll 1$) and have already been proposed in the work of T.-S. Kim & M.-U. Kim (2009), are used. The differential equation that governs the free surface of a liquid when $\epsilon \ll 1$ and $\epsilon Re \ll 1$ is also derived. The basic flow is analyzed using the thin film equations and their results are compared to the results of Navier-Stokes equations.

1. 서 론

스핀 코팅은 평평한 원판 위에 균일하고 얇은 막을 생성하는 가장 간단하고 많이 쓰이는 기술로 모니터 스크린이나 광학 기구의 코팅, 자기 기억 장치에서의 코팅, 반도체 산업에서의 photolithographic process에서의 코팅 등의 여러 가지 분야에서 응용된다^(1,2).

지금까지 스핀 코팅 유동에 관한 많은 연구가 이루어졌다. Emslie 등⁽³⁾은 Re 가 매우 작다는 가정 하에서 초기에 평평하지 않았던 액막도 원판이 돌아감에 따라 점차 평평해짐을 이론적으로 확인하였다. Higgins⁽⁴⁾는 처음에 액막이 평평하다고 가정하고, 유체가 정지 상태에서 원판이 갑자기 도는 경우에 시간에 따른 액막의 근사해를 구했다. Rehg와 Higgins⁽⁵⁾는 앞 논문⁽⁴⁾에서 넓은 범위의 Re 에 대해 스핀 코팅 유동의 해를 수치적으로 구했다. Kitamura⁽⁶⁾는 Higgins⁽⁴⁾의 논문과 달리 처

음에 액막이 평평하지 않다고 가정하고, 스핀 코팅 유동의 근사해를 구하여 기존의 연구⁽⁴⁾를 확장하였다. Reisfeld 등⁽⁷⁾은 스핀 코팅 유동에서의 증발이 있는 경우를 포함하여 액막의 두께에 관한 방정식을 유도하였고, 이를 이용하여 기본흐름을 구하고 안정성을 해석하였다.

본 연구에서는 박막근사방정식을 도입하고 이를 이용하여 기본흐름을 연구한다. 이 박막근사방정식은 T.-S. Kim & M.-U. Kim⁽⁸⁾이 돌아가는 원판의 중앙에 일정유량의 유체를 공급해 주는 경우의 액막의 흐름에 관한 연구에서 제안하였고, 액막 흐름을 근사적으로 잘 표현한다.

2. 문제의 수식화**2.1 무차원 지배방정식**

원판 위에 놓인 액적을 원판을 회전시킴으로써 펼쳐는 스핀 코팅에서의 액막의 흐름을 지배하는 방정식을 기술하는 데에는 회전좌표계에서 원통좌표계를 사용하는 것이 편리하다. 또 이 흐름을 특징짓는 무차원

(2013년 9월 10일 접수 ~ 2013년 9월 12일 심사완료, 2013년 9월 23일 게재확정)

[†]책임저자, 회원, 삼성SDI 생산기술연구팀

E-mail : extreme.kim@samsung.com

TEL : (031)288-4715 FAX : (031)288-4799

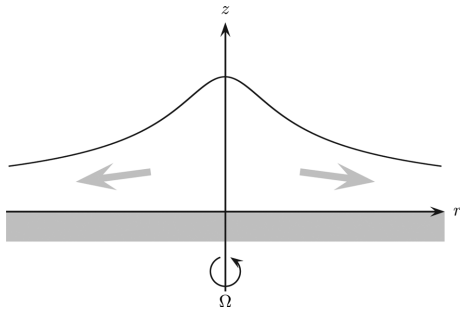


Fig. 1 Geometry

parameter를 결정하기 위하여 적절한 대표적 길이, 속도 등을 도입하여 지배방정식과 경계조건을 무차원의 형태로 쓰도록 한다.

스핀 코팅 흐름의 가장 큰 특징은 액막의 두께 (대표적 크기로 a 라 두자)가 수평방향의 대표적 길이 L (회전 원판의 반경 정도의 크기로 택한다)에 비해 대단히 작다는 것이다. 따라서 무차원 좌표는 각각의 대표적 길이를 써서

$$r^* = r/L, z^* = z/a, \epsilon \ll 1 \tag{1}$$

로 두는 것이 자연스럽다.

대표적 속도로 수평방향 속도 U 는 r -방향의 모멘텀 방정식에서 원심력 $\Omega^2 r$ 과 점성력 $\nu U/a^2$ 이 균형을 이루도록 결정하고, 수직방향의 대표적 속도 W 는 연속방정식으로부터 얻을 수 있다.

$$U = \frac{\Omega^2 L a^2}{\nu}, W = \frac{a}{L} U \tag{2}$$

이제 흐름의 대표적 시간 T 와 압력 P 를 다음과 같이 택한다.

$$T = \frac{L}{U} = \frac{\nu}{\Omega^2 a^2}, P = \rho \Omega^2 L^2 \tag{3}$$

위에서 논의한 대표적 크기를 써서 적절한 무차원 수를 도입하면 비압축성 균일유체의 흐름을 지배하는 무차원의 연속방정식 및 Navier-Stokes 방정식은 다음과 같이 주어진다.

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(ru) + \frac{1}{r} \frac{\partial v}{\partial \theta} + \frac{\partial w}{\partial z} = 0 \tag{4}$$

$$\epsilon \text{Re} \left(\frac{\partial u}{\partial t} + u \frac{\partial u}{\partial r} + \frac{v \partial u}{r \partial \theta} + w \frac{\partial u}{\partial z} - \frac{v^2}{r} \right)$$

$$= -\frac{\partial p}{\partial r} + r + 2E^{-1}v + \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} + \epsilon^2 \left(\frac{\partial^2 u}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial u}{\partial r} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 u}{\partial \theta^2} - \frac{2}{r^2} \frac{\partial v}{\partial \theta} - \frac{u}{r^2} \right) \tag{5}$$

$$\epsilon \text{Re} = \left(\frac{\partial v}{\partial t} + u \frac{\partial v}{\partial r} + \frac{v \partial v}{r \partial \theta} + w \frac{\partial v}{\partial z} + \frac{uv}{r} \right) = -\frac{1}{r} \frac{\partial p}{\partial \theta} - 2E^{-1}u + \frac{\partial^2 v}{\partial z^2} + \epsilon^2 \left(\frac{\partial^2 v}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial v}{\partial r} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 v}{\partial \theta^2} + \frac{2}{r^2} \frac{\partial u}{\partial \theta} - \frac{v}{r^2} \right) \tag{6}$$

$$\epsilon^2 \text{Re} \left(\frac{\partial w}{\partial t} + u \frac{\partial w}{\partial r} + \frac{v \partial w}{r \partial \theta} + w \frac{\partial w}{\partial z} \right) = -\frac{\partial p}{\partial z} - \epsilon \text{Fr}^{-1} + \epsilon^2 \frac{\partial^2 w}{\partial z^2} + \epsilon^4 \left(\frac{\partial^2 w}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial w}{\partial r} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 w}{\partial \theta^2} \right) \tag{7}$$

여기서 왼편은 z -축을 회전축으로 Ω 의 각속도로 회전하는 것으로 가정하였고 u, v, w 및 p 는 각각 r -방향, θ -방향, z -방향의 속도 및 유체의 압력이다.

원판 위에서의 경계조건은 no-slip조건이고, 자유표면에서의 경계조건은 운동학적 경계조건과 유체의 응력이 0이라는 조건이다. 모든 무차원의 경계조건을 써 보면 다음과 같다.

$$\text{if } z = 0, \quad u = v = w = 0 \tag{8}$$

$$\text{if } z = h(r, \theta, t), \quad \frac{\partial h}{\partial t} + u \frac{\partial h}{\partial r} + \frac{v \partial h}{r \partial \theta} = w \tag{9}$$

$$\left(\epsilon^2 \frac{\partial w}{\partial r} + \frac{\partial w}{\partial z} \right) (1 - \epsilon^2 h_r^2) + 2\epsilon^2 \left(\frac{\partial w}{\partial z} - \frac{\partial u}{\partial r} \right) h_r - \epsilon^2 \frac{h_\theta}{r} \left\{ \frac{1}{r} \frac{\partial u}{\partial \theta} + \frac{\partial v}{\partial r} - \frac{v}{r} + \left(\frac{\partial v}{\partial z} + \frac{\epsilon^2 \partial w}{r \partial \theta} \right) h_r \right\} = 0 \tag{10}$$

$$\left(\frac{\partial v}{\partial z} + \frac{\epsilon^2 \partial w}{r \partial \theta} \right) \left(1 - \epsilon^2 \frac{h_\theta^2}{r^2} \right) + 2\epsilon^2 \left(\frac{\partial w}{\partial z} - \frac{1}{r} \frac{\partial v}{\partial \theta} - \frac{u}{r} \right) \frac{h_\theta}{r} - \epsilon^2 h_r \left\{ \frac{1}{r} \frac{\partial u}{\partial \theta} + \frac{\partial v}{\partial r} - \frac{v}{r} + \left(\epsilon^2 \frac{\partial w}{\partial r} + \frac{\partial u}{\partial z} \right) \frac{h_\theta}{r} \right\} = 0 \tag{11}$$

$$-p - \epsilon^2 \text{We} \text{Re}^{-1} + 2\epsilon^2 \left\{ \frac{\partial w}{\partial z} - \left(\frac{\partial u}{\partial z} + \epsilon^2 \frac{\partial w}{\partial r} \right) h_r + \epsilon^2 \frac{\partial u}{\partial r} h_r^2 - \left(\frac{\partial v}{\partial z} + \frac{\epsilon^2 \partial w}{r \partial \theta} \right) \frac{h_\theta}{r} + \epsilon^2 \left(\frac{1}{r} \frac{\partial u}{\partial \theta} + \frac{\partial v}{\partial r} - \frac{v}{r} \right) \frac{h_\theta}{r} h_r + \epsilon^2 \left(\frac{1}{r} \frac{\partial v}{\partial \theta} + \frac{u}{r} \right) \frac{h_\theta^2}{r^2} \right\} \left(1 + \epsilon^2 h_r^3 + \epsilon^2 \frac{h_\theta^2}{r^2} \right)^{-1} = 0 \tag{12}$$

$$R^{-1} = r^{-2} \left(1 + \varepsilon^2 h_r^2 + \varepsilon^2 \frac{h_\theta^2}{r^2} \right)^{-3/2} \left\{ (r^2 + \varepsilon^2 h_\theta^2) h_{rr} + (r h_r + h_{\theta\theta}) (1 + \varepsilon^2 h_r^2) - \varepsilon^2 h_r h_\theta \left(h_{r\theta} - \frac{h_\theta}{r} \right) \right\}$$

무차원 지배방정식과 경계조건에 나타나는 무차원 parameter들의 정의는 다음과 같다.

$$Re = \frac{Ua}{\nu} = \frac{L(\Omega a^2)}{a \nu} : \text{Reynolds 수} \quad (13a)$$

$$E = \frac{\nu}{\Omega a^2} : \text{Ekman 수} \quad (13b)$$

$$Fr = \frac{\Omega^2 L}{g} : \text{Froude 수} \quad (13c)$$

$$We = \frac{\sigma}{\rho \Omega^2 L a^2} : \text{Weber 수} \quad (13d)$$

스핀 코팅 흐름은 (13)에 의해 정의된 parameter와 수평방향과 수직방향의 길이의 비 $\varepsilon = a/L$ 에 의해 완전히 특징지어진다. 또 Reynolds 수(관성력과 점성력의 비) Re와 Ekman 수(Coriolis 힘과 점성력의 비) E와는(13a,b)의 정의로부터

$$\varepsilon Re = E^{-2} \quad (14)$$

의 관계를 가짐을 알 수 있다.

2.2 박막근사방정식

스핀 코팅의 특징인 수평방향의 크기에 비해 수직방향 두께가 대단히 얇을 때의 흐름을 잘 근사시키는 근사 방법을 구성하도록 한다. 이를 위해 T.-S. Kim & M.-U. Kim⁽⁸⁾의 연구에서 사용한 박막근사를 도입하기로 한다.

먼저 다음의 평균량을 도입한다.

$$\bar{f} = \bar{f}(r, \theta, t) = \frac{1}{h} \int_0^h f dz \quad (15)$$

평균화된 속도를 지배하는 방정식을 얻기 위해 서는 경계층 흐름의 근사해를 구하는 Karman-Pohlhausen 방법과 마찬가지로 T.-S. Kim & M.-U. Kim⁽⁸⁾의 연구에서와 같이 $\zeta = z/h$ 의 4차식의 속도분포로 가정하고, 위 연구에서 박막근사방정식을 얻을 때와 똑같은 과정을 거치면 다음의 닫힌 방정식계를 얻을 수 있다.

$$\frac{\partial \bar{h}}{\partial t} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r \bar{u} h) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial \theta} (\bar{v} h) = 0 \quad (16)$$

$$\varepsilon Re \left\{ \frac{\partial}{\partial t} (\bar{u} h) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (k_A r \bar{u}^2 h) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial \theta} (k_B \bar{u} v h) - \frac{k_C \bar{v}^2 h}{r} \right\} = 2E^{-1} \bar{v} h + \beta_1 \left(r - \varepsilon \frac{\partial P}{\partial r} \right) h - \beta_2 \frac{\bar{u}}{h}, \quad \beta_1 = \frac{5}{6}, \quad \beta_2 = \frac{5}{2} \quad (17)$$

$$\varepsilon Re \left\{ \frac{\partial}{\partial t} (\bar{v} h) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (k_B r \bar{u} v h) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial \theta} (k_C \bar{v}^2 h + \frac{k_B \bar{u} v h}{r}) \right\} = -2E^{-1} \bar{u} h - \frac{5}{6} \varepsilon \frac{1}{r} \frac{\partial P}{\partial \theta} h - \frac{5 \bar{v}}{2h}, \quad (18)$$

$$k_A = \frac{6}{5}, \quad k_B = \frac{17}{14}, \quad k_C = \frac{155}{126} \\ P = Fr^{-1} h - \hat{W} e \Delta_2 h, \quad (19)$$

$$\hat{W} e = \varepsilon^2 We = \frac{\sigma}{\rho \Omega^2 L^3}$$

$$\Delta_2 = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2}{\partial \theta^2}$$

이 계는 $\varepsilon \ll 1$ 일 때 좋은 근사가 될 것으로 기대되며 스핀 코팅에서의 박막근사방정식(thin film equations)이라 칭하도록 한다. 여기서 r -방향의 속도 u 를 4차식 대신에 흘러내리는 액막흐름 등을 고찰할 때 사용된 근사와 닮은 2차식으로 가정할 수 있는데 (2차식근사; quadratic approximation) 그 경우에는 $\beta_1 = 1, \beta_2 = 3$ 이다.

앞으로는 표기를 간단히 하기 위해 평균량을 나타내는 overbar(-)를 생략하기로 한다. 위에서 논의한 근사방정식의 타당성을 평가하기 위해 흐름의 엄밀한 (수치)해와 비교하여 그 타당성을 평가할 수 있다.

$\varepsilon \ll 1$ 이고 $\varepsilon Re \ll 1$ 인 흐름을 생각할 수 있다. 이 흐름에서는 앞에서 논의한 근사방정식들을 훨씬 간단한 모양으로 만들 수 있게 된다.

먼저 (17), (18)을 바꾸어 써보면

$$u = \frac{1}{3} r h^2 + \frac{4}{5} (\varepsilon Re)^{1/2} v h^2 - \varepsilon \frac{h^2}{3} \frac{\partial P}{\partial r} \\ - \frac{2}{5} (\varepsilon Re) / h \left\{ \frac{\partial}{\partial t} (u h) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (k_A r u^2 h) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial \theta} (k_B u v h) - \frac{k_C v^2 h}{r} \right\} \quad (20)$$

$$v = -\frac{4}{5} (\varepsilon Re)^{1/2} u h^2 - \varepsilon \frac{h^2}{3} \frac{1}{r} \frac{\partial P}{\partial \theta}$$

$$-\frac{2}{5} (\varepsilon Re) h \left\{ \frac{\partial}{\partial t} (v h) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (k_B r u v h) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial \theta} (k_C v^2 h) + \frac{k_B r u v h}{r} \right\} \quad (21)$$

를 얻게 되고, 가장 간단한 근사로

$$u \approx \frac{1}{3} r h^2,$$

$$v \approx -\frac{4}{5} (\epsilon \text{Re})^{1/2} u h^2 \approx -\frac{4}{15} (\epsilon \text{Re})^{1/2} r h^4$$

이라 쓸 수 있으므로 약간의 계산 결과에 k_A, k_B, k_C 값을 대입하면

$$u = \frac{1}{3} r h^2 + \epsilon \text{Re} \left\{ -\frac{8}{75} r h^6 + \frac{2}{15} r^2 h^5 \frac{\partial h}{\partial r} - (\epsilon \text{Re})^{1/2} \frac{52}{225} r h^7 \frac{\partial h}{\partial \theta} \right\} - \epsilon \frac{h^2}{3} \frac{\partial P}{\partial r} + O[\epsilon^2, (\epsilon \text{Re})^{3/2}] \quad (22)$$

$$v = (\epsilon \text{Re})^{1/2} \left[-\frac{4}{15} r h^4 + \epsilon \text{Re} \left\{ -\frac{256}{2625} r h^8 - \frac{76}{225} r^2 h^7 \frac{\partial h}{\partial r} + (\epsilon \text{Re})^{1/2} \frac{24576}{7875} r h^9 \frac{\partial h}{\partial \theta} \right\} \right] - \epsilon \frac{h^2}{3} \frac{1}{r} \frac{\partial P}{\partial \theta} + O[\epsilon^2, (\epsilon \text{Re})^{3/2}] \quad (23)$$

를 얻게 된다. 마지막으로 (22), (23)을 (16)에 대입하면 다음의 h 에 관한 한 개의 미분방정식이 만들어진다.

$$\begin{aligned} & \left[\frac{\partial h}{\partial t} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[\frac{1}{3} r^2 h^3 + \epsilon \text{Re} \left\{ -\frac{8}{75} r^2 h^7 + \frac{2}{15} r^3 h^6 \frac{\partial h}{\partial r} - (\epsilon \text{Re})^{1/2} \frac{52}{225} r^2 h^8 \frac{\partial h}{\partial \theta} \right\} \right] \right. \\ & \left. + (\epsilon \text{Re})^{1/2} \frac{\partial}{\partial \theta} \left[-\frac{4}{15} h^5 + \epsilon \text{Re} \left\{ -\frac{256}{2625} h^9 - \frac{76}{225} r h^8 \frac{\partial h}{\partial r} + (\epsilon \text{Re})^{1/2} \frac{24576}{7875} h^{10} \frac{\partial h}{\partial \theta} \right\} \right] \right] \\ & - \frac{1}{3} \epsilon \left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r h^3 \frac{\partial P}{\partial r} \right) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(h^3 \frac{1}{r} \frac{\partial P}{\partial \theta} \right) \right] = 0, \quad (24) \\ & P = Fr^{-h} - \hat{W} \epsilon \Delta_2 h \end{aligned}$$

Reisfeld 등⁽⁷⁾은 $\epsilon \rightarrow 0$ 의 극한에서 정상 회전하는 축대칭 흐름의 경우 Navier-Stokes 방정식 (4)~(7)의 접근해를 구하고, 이를 자유경계 면에서의 운동학적 경계조건 (9)에 대입하여 액막의 두께 h 를 지배하는 다음의 미분방정식을 얻었다.

$$\begin{aligned} & \left[\frac{\partial h}{\partial t} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[\frac{1}{3} r^2 h^3 + \epsilon \text{Re} \left(-\frac{34}{315} r^3 h^7 + \frac{2}{15} r^3 h^6 \frac{\partial h}{\partial r} \right) \right] \right. \\ & \left. - \frac{1}{3} \epsilon Fr^{-1} \frac{\partial}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r h^3 \frac{\partial h}{\partial r} \right) + \frac{1}{3} \epsilon \hat{W} \epsilon \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r h^3 \frac{\partial}{\partial r} \left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial h}{\partial r} \right) \right] \right) \right] = 0 \quad (25) \end{aligned}$$

흐름이 축대칭이라고 가정할 때, (24)는 (25)와 비교하면 단지 ϵRe 를 포함하는 한 항이

$$-\frac{8}{75} r^2 h^7 = -\frac{84}{85315} r^2 h^7$$

의 차이를 갖고 그 오차가 약 1% 정도로 대단히 작다. 그러나 2차식 근사방정식의 경우 ϵRe 를 포함하는 항들이

$$-\frac{4}{45} r^2 h^7 + \frac{1}{9} r^3 h^6 \frac{\partial h}{\partial r} = \frac{5}{6} \left(-\frac{8}{75} r^2 h^7 + \frac{2}{15} r^3 h^6 \frac{\partial h}{\partial r} \right)$$

으로 ϵRe 의 계수가 약 17% 작게 주어지고, 다시 말하면 관성항을 상당한 오차로 저평가함을 알 수 있다.

위의 논의에서 알 수 있듯이 2차식 근사방정식은 ϵRe 가 비교적 작을 때에도 박막근사방정식에 비해 좋지 않은 결과를 줄 것으로 생각된다.

2.3 박막근사방정식의 Rescaling

박막근사방정식 (16)~(19)에서 무차원 변수의 rescaling을 통해 방정식을 간단한 모양으로 만들어 기본흐름을 편리하게 구할 수 있다.

우선 새로운 무차원 변수는 대표적 시간을 Ω^{-1} , 수직 방향의 대표적 길이를 점성침투깊이 $\delta_0 = (\nu/\Omega)^{1/2}$ 로 택한다. 이 경우

$$\underline{\epsilon \text{Re}} = \left(\frac{\Omega \delta_0^2}{\nu} \right) = 1$$

이 된다. 이제 대표적 속도를 ΩL (L : 수평방향의 대표적 길이)로 취하고 ϵFr^{-1} 과 $\epsilon \hat{W} \epsilon$ 를 각각 새로운 무차원수 F^{-1} 와 W 로 변환하면, rescaling한 박막근사방정식에서 ϵ 이 나타나지 않게 된다. 따라서 수평방향의 대표적 길이 L 을 점성침투깊이 δ_0 로 택하여 $\underline{\epsilon} = 1$ 로 생각해도 일반성을 잃지 않게 된다. 위의 변환에 의한 새로운 무차원 변수는 다음과 같다 [여기서 밑첨자 (*)는 차원이 있다는 것을 의미한다].

$$\begin{aligned} \underline{t} &= \Omega t_* \\ (\underline{r}, \underline{h}) &= \frac{1}{\delta_0} (r_*, h_*) \\ (\underline{u}, \underline{v}) &= \frac{1}{\Omega \delta_0} (u_*, v_*) \quad (26) \end{aligned}$$

새로운 무차원 변수를 사용하여 간단화된 박막근사방정식을 다시 써보면 [표기를 간단히 하기 위해 underbar ()를 생략한다]

$$\frac{\partial h}{\partial t} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(ruh) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial \theta}(vh) = 0 \quad (27)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}(uh) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(k_A r u^2 h) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial \theta}(k_B uvh) - \frac{k_C v^2 h}{r} \\ = 2vh + \frac{5}{6} \left(r - \frac{\partial \hat{p}}{\partial r} \right) h - \frac{5u}{2h} \end{aligned} \quad (28)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial r}(vh) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(k_B r uvh) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial \theta}(k_C v^2 h) + \frac{k_B uvh}{r} \\ = -2uh - \frac{5}{6} \frac{\partial \hat{p}}{\partial \theta} h - \frac{5v}{2h} \end{aligned} \quad (29)$$

$$\hat{p} = F^{-1}h - W\Delta_2 h, \quad (30)$$

$$F^{-1} = \frac{g}{\Omega^2 \delta_0} = \frac{g}{v^{1/2} \Omega^{3/2}}$$

$$W = \frac{\sigma}{\rho \Omega^2 \delta_0^3} = \frac{\sigma}{\rho v^{3/2} \Omega^{1/2}} \quad (31)$$

를 얻는다.

새로운 무차원 변수를 사용하여 쓴 박막근사방정식 (27)-(30)은 무차원 parameter (Froude 수), F^{-1} (Weber 수)에만 의존하고 ϵRe 와는 무관한 것처럼 보인다. 그러나 무차원 두께 h 의 $t=0$ 때의 초기치는 초기두께를 균일두께 a 라 할 때

$$h(t=0) = \frac{a}{\delta_0} = \left(\frac{\Omega a^3}{v} \right)^{1/2} = (\epsilon Re)^{1/4}$$

가 되어 parameter ϵRe 가 음적으로 흐름의 결정에 관여한다.

앞서 $\epsilon \ll 1$ 이고 $\epsilon Re \ll 1$ 인 흐름인 경우 액막두께 hr 에 관한 하나의 방정식 (24)가 얻어졌는데 이 방정식도 똑같이 rescaling할 수 있다. 식 (24)를 새로운 무차원 변수 (26)을 사용하여 rescaling하면

$$\begin{aligned} \frac{\partial h}{\partial t} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[\frac{1}{3} r^2 h^3 - \frac{8}{75} r^2 h^7 + \frac{2}{15} r^3 h^6 \frac{\partial h}{\partial r} - \frac{52}{225} r^2 h^8 \frac{\partial h}{\partial \theta} \right] \\ + \frac{\partial}{\partial \theta} \left[-\frac{4}{15} h^5 - \frac{256}{2625} h^9 - \frac{76}{225} r h^8 \frac{\partial h}{\partial r} + \frac{4576}{7875} h^{10} \frac{\partial h}{\partial \theta} \right] \\ - \frac{1}{3} \left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r h^3 \frac{\partial P}{\partial r} \right) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(h^3 \frac{1}{r} \frac{\partial P}{\partial \theta} \right) \right] = 0 \quad (32) \\ P = F^{-1}h - W\Delta_2 h \end{aligned}$$

가 되고, 이 식은 $h = O[(\epsilon Re)^{1/4}] \ll 1$ 인 경우에 만족하는 방정식이다.

3. 기본 흐름

이제 앞 장에서 제안된 박막근사방정식을 사용하여 스핀 코팅의 기본흐름을 구한다. 또 이 박막근사방정식의 정밀도를 추정하기 위해 박막근사방정식으로부터 얻은 결과를 Navier-Stokes 방정식의 수치해와 비교하기로 한다.

3.1 균일두께의 액막

액막의 두께가 균일할 때 즉 $h = h(t)$ 일 때는 흐름이 축대칭이라고 생각해도 좋고, 박막근사방정식 (16)-(18)의 해는 다음과 같이 구할 수 있다.

$$\bar{u} = rU(t), \quad \bar{v} = rV(t) \quad (33)$$

$$P = 0$$

$$\frac{dh}{dt} + 2Uh = 0 \quad (34)$$

$$\frac{d}{dt}(Uh) + 3k_A U^2 h - k_C V^2 h = 2Vh + \frac{5}{6} h - \frac{5U}{2h} \quad (35)$$

$$\frac{d}{dt}(Vh) + 4k_B UVh = -2Uh - \frac{5V}{2h} \quad (36)$$

위의 방정식에서 흐름에 관여하는 parameter가 보이지 않음에 유의하도록 한다. 균일두께의 액막의 경우 오로지 액막두께와 속도의 초기치에 의해서만 기본흐름이 결정되게 된다.

무한히 큰 회전원판 위의 균일두께의 액막흐름에 대해서는 Rehg와 Higgins⁽⁵⁾에서 보는 바와 같이 Navier-Stokes 방정식의 수치해도 쉽게 구할 수 있다. Fig. 2에 초기조건

$$h(0) = H_0, \quad U(0) = V(0) = 0 \quad (37)$$

의 경우 [균일두께의 액막이 강체 회전을 하고 있는 경우에 해당한다], 여러 액막두께의 초기치 H_0 에 대한 해를 도식하고 대응하는 Navier-Stokes 방정식의 수치해와 비교한다. 그림에서 2차식 근사방정식을 사용한 해도 표시하였다.

Fig. 2에서 액막의 두께 h 를 살펴 보면 $H_0 = 1/\sqrt{10}$, 일 때는 모든 시간에서 박막근사방정식의 해와 Navier-Stokes 방정식의 수치해가 그림에서 구별할 수 없을 정도로 거의 일치한다. H_0 가 클 때 ($H_0 = \sqrt{10}$, 10)에는

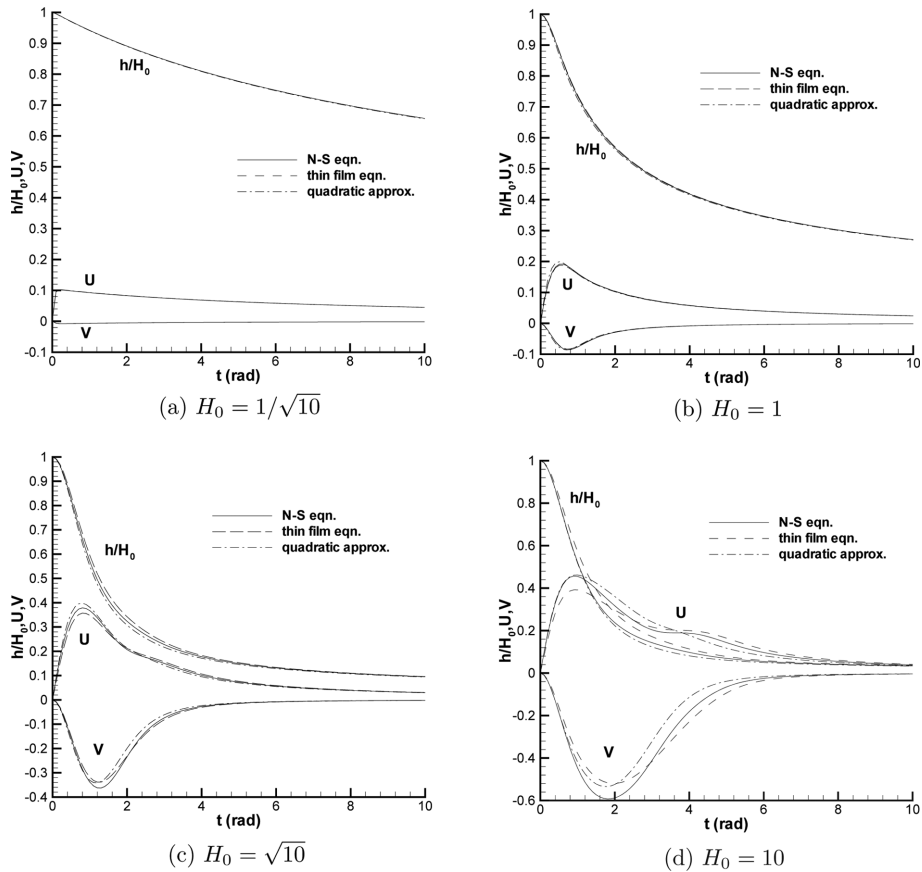


Fig. 2 The comparison of the solution of thin film equations with the numerical one of Navier-Stokes equations when a liquid film is uniform

Navier-Stokes 방정식의 수치해와 박막근사방정식의 해가 초기시간에 약간의 차이를 보인다. 그러나 $H_0 = 10$ 일 때에도 원판이 1.2회전($t \geq 2.4\pi$)에는 두 해는 구별되지 않을 정도로 거의 일치한다. 하지만 2차식근사방정식의 해는 H_0 가 그리 작지 않을 때($H_0 \geq 1$)에도 수치해와 차이를 보인다.

제안된 근사방정식이 회전원판 위의 액막흐름을 잘 기술하고 있는지는 가정한 수평방향의 속도분포가 실제 흐름을 얼마나 잘 근사시키고 있는가에 달려 있다. Fig. 3에 Navier-Stokes 방정식의 수치해에서 구한 수평방향의 속도분포와 박막근사방정식에 사용된 속도분포를 비교한다.

그림을 보면 초기시간($t = 0.5, 1$ rad)에는 박막근사방정식에 사용된 속도분포와 2차식 근사방정식에서 사용된 속도분포가 모두 Navier-Stokes 방정식의 속도분포와 상당한 차이를 보인다. 그러나 시간이 지남에 따라

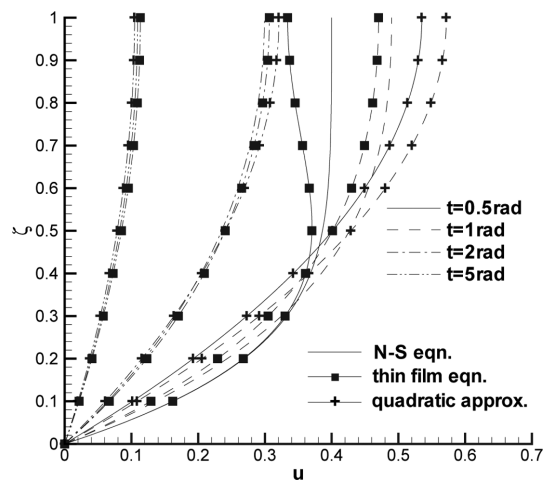


Fig. 3 The comparison of velocity distributions with time between thin film equations and Navier-Stokes equations in case of $H_0 = \sqrt{10}$ when a liquid film is uniform

$t = 5 \text{ rad}$ 이 되면 별로 차이가 나지 않게 된다. 여기서 모든 시간에 있어서 박막근사방정식에 사용된 속도분포가 2차식 근사방정식에 사용된 속도분포보다 Navier-Stokes 방정식의 속도분포를 더 잘 예측함에 주목할 필요가 있다.

H_0 가 클 때 초기시간에 이들 해가 차이가 나는 것은 최초의 짧은 시간에는 실제흐름의 속도분포가 박막근사방정식의 속도분포와는 완전히 달라 수평방향의 평균속도 \bar{u}, \bar{v} 의 값이 서로 다르다는 데에 기인한다. 이것은 원판회전에 의한 경계층이 액막 전체로 자라는데 H_0 가 커질 수록 긴 시간을 필요로 하기 때문이라 생각된다. 실제로 H_0 가 작을 때에도 최초의 극히 짧은 시간 동안에는 (34)~(36)의 해로써 구해진 평균속도와 Navier-Stokes 방정식의 수치해에서 구한 평균속도는 매우 작기는 하나 차이를 보인다. 그러나 어느 정도 시간이 지나면 박막근사방정식의 속도분포가 실제흐름을 대단히 잘 모사할 뿐 아니라 액막의 두께가 얇아지는 등의 이유로 박막근사방정식이 회전원판 위의 액막흐름을 더욱 잘 근사시키게 되는 것으로 생각된다.

3.2 비균일두께의 액막

액막의 두께가 균일하지 않을 때에는 Navier-Stokes 방정식의 수치해를 직접 구성하는 것은 대단히 어려우나, 박막근사방정식 (27)~(30)의 수치해를 구하는 것은 그렇게 어렵지 않다.

액막의 두께, 속도분포 등이 변화하는 길이의 크기가 $O(1)$ 즉

$$\frac{\partial}{\partial r} = O(1)$$

이라 가정하도록 한다. 액막의 두께가 균일하지 않을 때에는 중력과 표면장력 즉 Froude 수 F^{-1} 와 Weber 수의 영향이 나타나게 된다.

Fig. 4에 $\varepsilon = H_0/L = 0.1$, $H_0 = \sqrt{10}$, $F^{-1} = 3.10$, $W = 0$ [여기서 L 은 원판의 반지름이고, H_0 는 $r = 0$ 에서의 액막두께의 초기치를 나타낸다. 즉 $h(r=0, t=0)$]이고, $t = 0$ 일 때 초기조건

$$u(r, 0) = v(r, 0) = 0$$

$$h(r, 0) = H_0[1 - 0.7959(\varepsilon^{-1}r)^{2.127}]$$

의 축대칭의 액막흐름을 FLUENT로 계산한 결과와 박막근사방정식에 의한 결과를 비교한다.

FLUENT에 의한 수치계산은 매우 긴 시간을 필요로

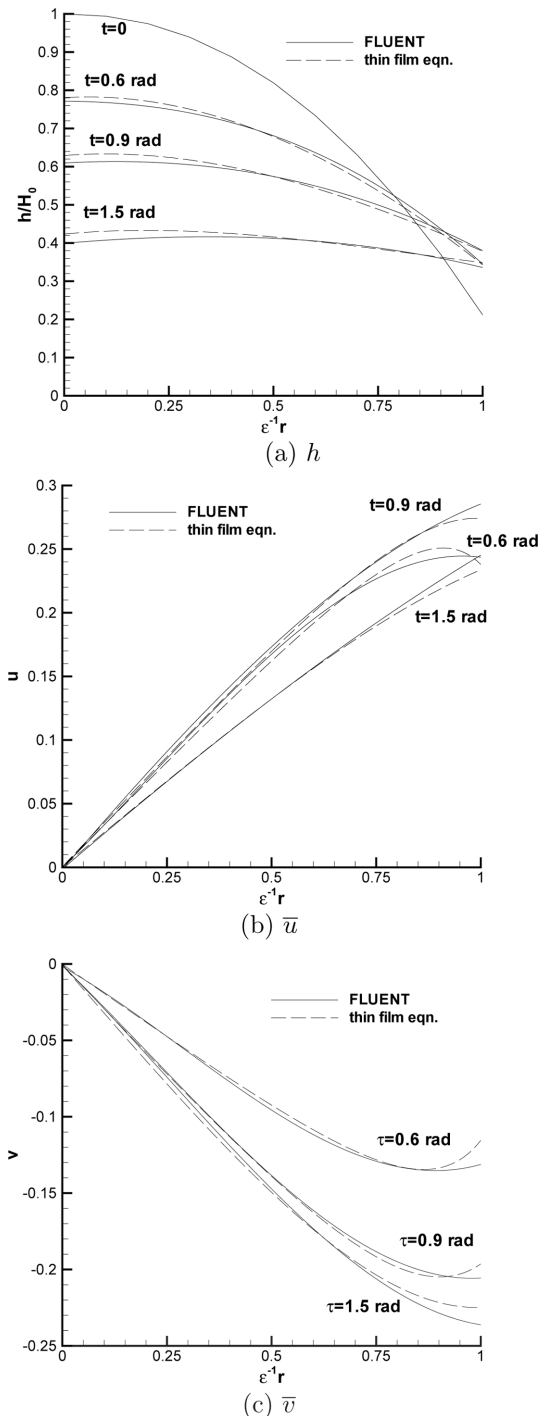


Fig. 4 The comparison with FLUENT simulation when

할 뿐만 아니라 시간이 흘러 액막의 두께가 얇아지면 잘 수렴하지 않아 비교적 짧은 초기시간 동안의 해 박

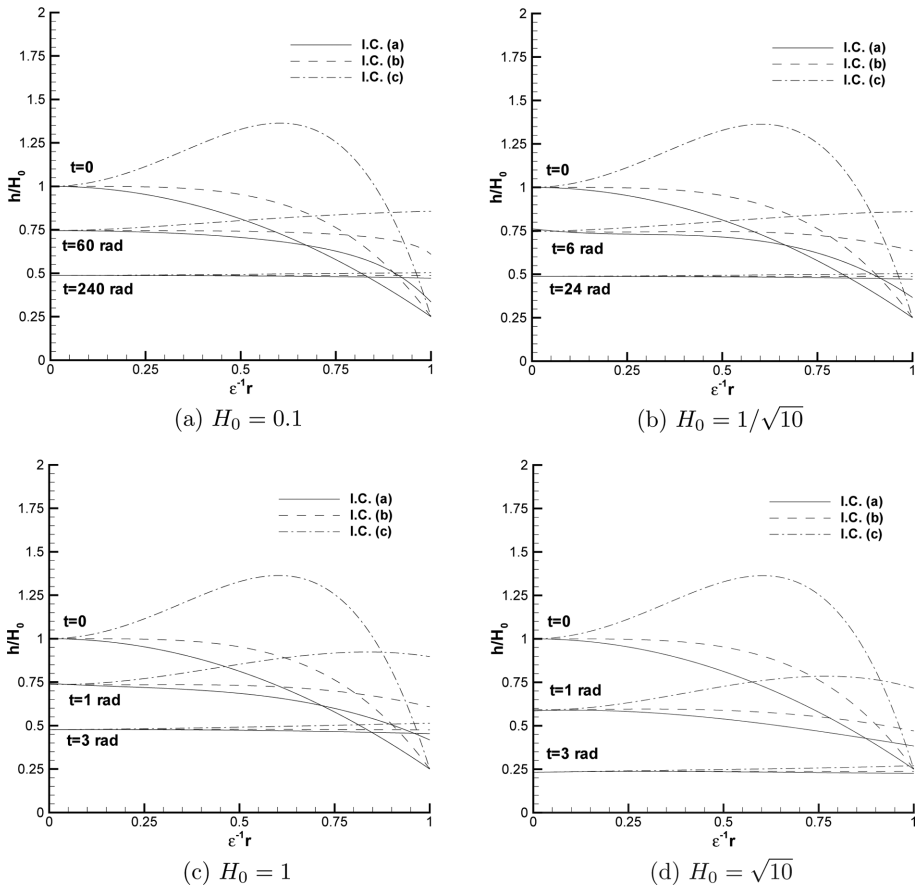


Fig. 5 The behavior of some non-uniform film thicknesses for some

에 구할 수 없었다. FLUENT의 결과와 박막근사방정식의 결과는 그 차이가 그림에서 확인될 수 있을 정도이나(그러나 오차는 5% 이하이다) 시간이 지남에 따라 두 결과는 일치하는 방향으로 나타난다. 이것은 H_0 의 값이 아주 작지 않다는 것과 결과를 비교하는 시간이 비교적 초기 (균일두께의 액막의 경우에도 $H_0 = \sqrt{10}$ 때 초기시간에는 Navier-Stokes 방정식의 수치와 박막근사방정식의 해가 약간의 차이를 보이고 있다)라는 점에 기인하는 것으로 생각된다. 또 같은 $H_0 = \sqrt{10}$ 일 때 비균일두께의 액막의 경우가 균일액막의 경우에 비해 박막근사방정식의 오차가 크다. 이것은 초기에는 박막근사방정식의 속도분포의 가정이 비균일액막의 경우 실제흐름과 보다 큰 차이를 갖기 때문이라 생각된다. 그러나 시간이 지나면서 액막의 두께가 점점 균일하게 되고 얇아지므로 비균일두께의 액막흐름도 박막근사방정식으로 잘 근

사될 것으로 기대된다.

초기의 액막두께가 균일하지 않은 몇가지 경우에 대하여 시간이 지남에 따라 액막의 두께가 어떻게 변화하는가를 살펴보기로 한다. 축대칭의 정상회전일 때 H_0 를 parameter로 하여 다음의 초기조건에 대해 박막근사방정식을 사용하여 비균일두께의 액막흐름을 수치적으로 해석한 결과를 Fig. 5에 도시한다.

이때 $\epsilon = 10^{-4}$, $H_0^3 F^{-1} = 3.70 \times 10^{-3}$ 이고 $W = 0$ 이다. 초기조건은

$$t = 0; \bar{u} = \bar{v} = 0$$

$$h = H_0 [1 + \alpha(\epsilon^{-1}r)^2 + \beta(\epsilon^{-1}r)^4]$$

이고, 그림에서 각각 세가지의 다른 비균일액막의 경우에 여러 $h(r, t=0)$ 에 따른 액막 두께의 변화를 나타내었다. 세가지 비균일액막의 경우는 다음과 같다.

$$(a)h(r,0) = H_0[1 - 0.75(\varepsilon^{-1}r)^2]$$

$$(b)h(r,0) = H_0[1 - 0.75(\varepsilon^{-1}r)^4]$$

$$(c)h(r,0) = H_0[1 + 2(\varepsilon^{-1}r)^2 - 2.75(\varepsilon^{-1}r)^4]$$

그림을 보면 처음에 비균일했던 액막이 시간이 지남에 따라 점차 균일해지는 것을 확인할 수 있다. 또 같은 H_0 일 때 초기조건이 (b)의 경우가 가장 빨리 균일해지고, 초기에 가장 비균일했던 (c)의 경우가 역시 가장 늦게 균일해짐을 알 수 있다. 또 같은 초기조건일 때 H_0 가 커짐에 따라 처음에 비균일했던 액막의 두께가 균일해지는 시간이 점차 감소함을 알 수 있다.

Kitamura⁽⁶⁾은 처음에 액막이 평평하지 않을 때 스핀 코팅유동의 근사해를 구하였다. Fig. 5에 그의 결과도 도시하였다. 그의 근사해는 $\varepsilon^{-1}r$ 이 작을 때 $\varepsilon^{-1}r$ 의 2차 함수로 액막두께를 근사한다. 따라서 그림을 보면 우리의 결과는 Kitamura의 결과와 $\varepsilon^{-1}r$ 가 작은 곳에서는 잘 맞지만, $\varepsilon^{-1}r=1$ 근방으로 오게 되면 잘 맞지 않게 됨을 확인할 수 있다.

4. 결 론

지금까지 스핀 코팅에서의 액막흐름에 관해 논의하였다. 먼저 T.-S. Kim & M.-U. Kim⁽⁸⁾의 연구에서 제안된 액막이 대단히 얇을 때, 즉 수평방향의 대표적 길이에 비해 액막의 두께가 대단히 작을 때의 흐름을 잘 기술할 수 있는 박막근사방정식을 도입하였다.

이 박막근사방정식을 사용하여

(1) 균일두께의 액막

(2) 액막의 두께가 균일하지는 않으나 반경과

액막두께의 비가 비교적 큰 경우에 대해 스핀 코팅의 기본흐름을 구하고, Navier-Stokes 방정식의 수치해와 비교함으로써 제안된 근사방정식이 비교적 큰 초기 액막두께에 이르기까지 만족할 만한 결과를 줌을 확인하

였다.

또 초기 액막두께가 매우 작은 경우 액막두께의 시간적, 공간적 변화를 기술하는 두께방정식을 박막두께 방정식을 사용하여 유도하였다. 이 두께방정식도 초기 액막두께가 매우 작을 때 균일액막에 대한 Navier-Stokes 방정식의 해와 대단히 좋은 일치를 보이는 결과를 제공한다.

참고문헌

- (1) B. D. Washo, "Rheology and modeling of the spin coating process", IBM J. Res. Dev., Vol. 21, 1977, pp. 190-198.
- (2) Taku Ohara, Yochiro Matsumoto and Hideo Ohashi, "The film formation dynamics in spin coating", Phys. Fluids A, Vol. 1, No. 12, 1989, pp. 1949-1959.
- (3) A. G. Emslie, F. T. Bonner and L. G. Peck, "Flow of a viscous liquid on a rotating disk", J. Appl. Phys., Vol. 29, No. 5, 1957, pp. 858-862.
- (4) B. G. Higgins, "Film flow on a rotating disk", Phys. Fluids, Vol. 29, No. 11, 1986, pp. 3522-3529.
- (5) T. J. Rehg and B. G. Higgins, "The effects of inertia and interfacial shear on film flow on a rotating disk", Phys. Fluids, Vol. 31, No. 6, 1988, pp. 1360-1371.
- (6) A. Kitamura, "Asymptotic solution for film flow on a rotating disk", Phys. Fluids, Vol. 12, No. 8, 2000, pp. 2141-2144.
- (7) B. Reisfeld, S. G. Bankkoff and S. H. Davis, "The dynamics and stability of thin liquid film during spin coating. I. Films with constant rates of evaporation or absorption", J. Appl. Phys., Vol. 70, No. 10, 1991, pp. 5258-5266.
- (8) T.-S. Kim and M.-U. Kim, "The flow and hydrodynamic stability of a liquid film on a rotating disc", Fluid Dyn. Res., Vol. 41, No. 3, 2009, pp. 035504.