

## 425 地上及び微小重力環境における CdZnTe 結晶成長に関する数値解析

## Numerical Simulation of Crystal Growth of CdZnTe under the Microgravity and Ground

近藤宏樹(静大院)・川口幸真(静大学)・正岡野泰則(静大工)

Hiroki Kondo, Yukimasa Kawaguchi, Yasunori Okano

Department of Materials Science & Chemical Engineering, Shizuoka University,  
Johoku 3-5-1, Hamamatsu 432-8561

## 【Introduction】

$Cd_{1-x}Zn_xTe$  は  $x=0.03$  の時、赤外線検出器用  $Hg_{0.2}Cd_{0.8}Te$  との良好な格子整合性を示すため、 $Hg_{0.2}Cd_{0.8}Te$  エピタキシャル膜成長用の基板として広く研究が行われてきた。しかし近年、 $x=0.1$  程度まで Zn の比率を増大させることにより、極めて放射線阻止能が向上し、かつ高抵抗化することにより、半導体放射線検出器用材料としての期待が高まっている。これは一旦放射線を光に変換し、その光の強度より放射線強度を測定する従来のシンチレーター方式に比べ、高効率かつ小型で軽量の装置が実現しうることを意味する。この CdZnTe の作製には、垂直温度勾配凝固 (VGF) 法や垂直ブリッジマン (VB) 法などが用いられるが、物性上多結晶化及び、転移、双晶が発生しやすいのに加え、Zn の偏析によるマクロな濃度不均一が生じるなど、高品質な結晶を作製するのは非常に困難である。そこで本研究では垂直温度勾配凝固 (VGF) 法を用い、地上及び微小重力環境を模擬した数値解析を行い、より均質な結晶が得られる条件を探索した。

## 【Numerical method】

Fig.1 に解析モデル図を示した。中心軸より左側が地上、右側が微小重力環境でのモデル図を示す。解析領域は対称軸より半分のみとした。融液は非圧縮性 Newton 流体とし、Bussinesq 近似を適用し、対流は層流と仮定した。解析基礎式は以下に示す。

## Energy equation

$$\frac{\partial T}{\partial t} + U \frac{\partial T}{\partial R} + W \frac{\partial T}{\partial Z} = \left[ \frac{1}{R} \left( \frac{\partial T}{\partial R} + R \frac{\partial^2 T}{\partial R^2} \right) + \frac{\partial^2 T}{\partial Z^2} \right] \quad (1)$$

## Navier - Stokes equation

$$\frac{\partial \Omega}{\partial \tau} + U \frac{\partial \Omega}{\partial R} + W \frac{\partial \Omega}{\partial Z} - \frac{V^2}{R} \frac{\partial}{\partial Z} = Pr \left\{ \frac{\partial}{\partial R} \left[ \frac{\partial}{\partial R} (R\Omega) \right] + \frac{\partial^2 \Omega}{\partial Z^2} \right\} - Gr_r \cdot Pr^2 \frac{\partial T}{\partial R} - Gr_c \cdot Pr^2 \frac{\partial C}{\partial R} \quad (2)$$

## Diffusion equation

$$\frac{\partial C}{\partial t} + U \frac{\partial C}{\partial R} + W \frac{\partial C}{\partial Z} = \frac{Pr}{Sc} \left[ \frac{1}{R} \left( \frac{\partial C}{\partial R} + R \frac{\partial^2 C}{\partial R^2} \right) + \frac{\partial^2 C}{\partial Z^2} \right] \quad (3)$$

$$\left( \Omega = \frac{\omega W^2}{\alpha} \quad U = \frac{1}{R} \frac{\partial \Psi}{\partial Z} \quad W = -\frac{1}{R} \frac{\partial \Psi}{\partial R} \right)$$

これらの解析基礎式を、境界固定(BFC)法を用いて座標変換を施し、有限差分(FCM)法により離散化し、SOR 法により解析を行った。尚、解析は固体内拡散及び地上においては温度差及び濃度差自然対流を、微小重力環境においては坩堝側面に自由界面が存在すると仮定し、マランゴニ対流を考慮した解析も行った。また、固液界面位置及び形状の決定には、固液相図を用い濃度と温度のバランス式を連立して決定した。尚、坩堝上部は黒体(1365K)として輻射を考慮し、坩堝側面の縦方向温度勾配は 1.45K/mm、温度降下速度は 0.6K/hr、

Zn の偏析係数は 1.35 とした<sup>[1]</sup>。物性は融液及び結晶部分には  $Cd_{0.9}Zn_{0.1}Te_{0.9}$ 、坩堝には  $SiO_2$  を用いた。

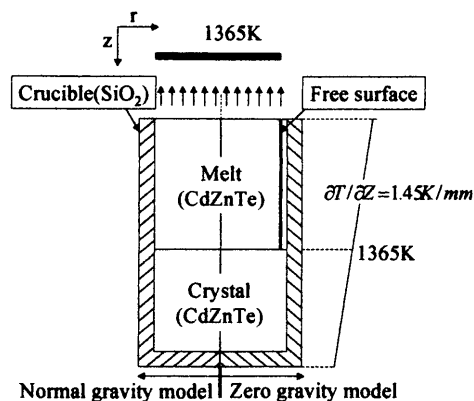
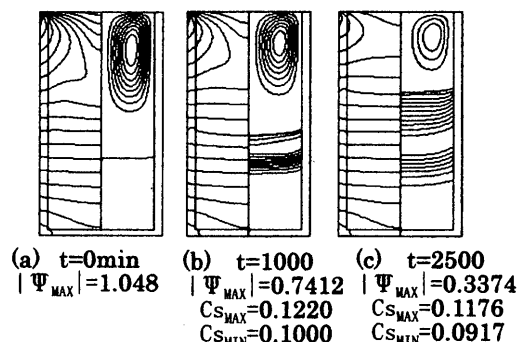


Fig.1 Configuration of analysis.

## 【Results and Discussion】

Fig.2 に地上と微小重力環境(自由表面無し)を模擬した解析結果を示す。0、1000、2500min 後の地上での解析結果を(a)、(b)、(c)に、微小重力環境での解析結果を(d)、(e)、(f)に示した(左：温度分布、右融液領域：流関数、右結晶領域：濃度)。

## Under normal gravity



## Under zero gravity

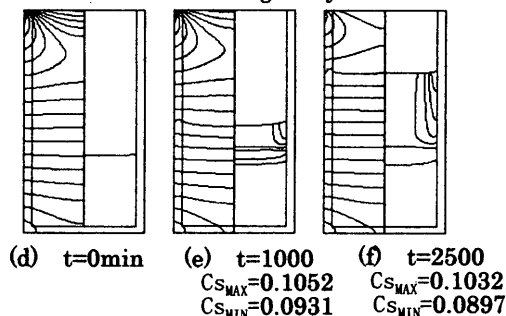


Fig.2 Time dependence of temperature (left half), concentration (crystal zone in right half) distributions and stream function (melt zone in right half), under normal and zero gravity fields.  $\Delta T=5[K]$ ,  $\Delta C=0.002$ ,  $\Delta \Psi=0.1$ .

これらを比較すると地上の解析においては時間が経過するにつれて融液内の自然対流が弱くなっていることがわかる。これは結晶の成長とともに融液領域が狭まり融液内の温度差が小さくなるためと考えられる。尚、濃度差自然対流の影響はほとんど見られなかった。次に、地上と微小重力環境の固体内濃度分布を比較すると、分布にかなりの違いがあることが分かる。そこで、この結果を詳しく検討するために、結晶の品質に大きく影響する中心軸及び固液界面上の濃度分布に着目した。Fig.3に2500分後の中心軸上の結晶内濃度分布を示す。この図より微小重力環境で作製した場合、多くの部分で望まれる Zn 濃度 0.1 付近が得られている事が分かる。これは拡散支配の状態で成長したため、固体内に取り込まれる Zn 濃度が常に一定だったためと考えられる。一方、地上で作製した場合は Zn 濃度 0.1 付近の領域が少ないことが分かる。これは自然対流により融液全体が攪拌され Zn 濃度が均一となるため、固体内に取り込まれる Zn 濃度が結晶の成長に従い異なってしまうためと考えられる。Fig.4に2500分後の固液界面上の濃度分布を示す。この図より地上よりも微小重力環境の濃度分布が不均一になっていることが分かる。これは中心軸側と坩堝壁側の成長速度の差によって生じる半径方向の濃度不均一が拡散支配の時は対流により攪拌されないためと考えられる。次に、地上と微小重力環境での結晶成長速度を比較するために2500minまでの結晶成長速度の時間変下をFig.5に示した。この図より、結晶の成長速度は地上で作製した方が遅くなっていることが分かる。これは自然対流による下向きの流れが結晶の成長を妨げているためと考えられる。最後に、微小重力環境での結晶成長において坩堝側面部分に自由界面を想定し、表面張力差によって起きるマランゴニ対流(マランゴニ数=100)を考慮した解析を行った。Fig.6に600分成長後の(a)自由界面無しの微小重力環境、(b)地上、(c)自由界面有りの微小重力環境の流関数(左)、融液内濃度分布(右)を示した。これより、坩堝側面部分に自由界面が存在するとマランゴニ対流が発生し、(c)の左側に示すような坩堝側面に沿った流れになっていることが分かる。また融液内濃度は(b)の地上に比べ融液下部まで全体的に攪拌されていることが分かる。よって、微小重力環境で坩堝側面に自由界面が存在する場合はマランゴニ対流により、地上で自然対流が存在する時と同様な成長(対流支配)になると考えられる。

【Conclusions】

VGF法によるCdZnTe結晶成長の数値解析を行い、以下の事を明らかにした。

- ・微小重力環境で結晶成長を行うと、中心軸付近では望まれる Zn 濃度 0.1 付近の結晶を多く得ることができる。一方地上で結晶成長を行うと、Zn 濃度 0.1 付近の結晶がほとんど得られない。
- ・微小重力環境で結晶成長を行うと、半径方向の濃度分布は地上よりも不均一になる。
- ・微小重力環境で結晶成長を行うと、自然対流による下向きの流れが存在しないために結晶の成長速度が速くなる。
- ・側面に自由界面が存在するとマランゴニ対流により、地上で作製する時よりも融液下部まで濃度が攪拌され、融液内は対流支配となる。

【Reference】

[1] A.Yeckel, F.P. Doty, J. J. Derby, J. Crystal Growth 203 (1999) 87-102

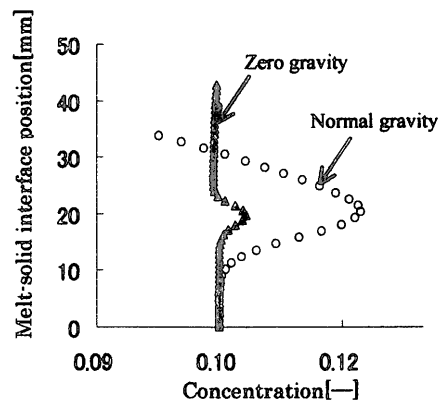


Fig.3 Axial concentration distributions of zinc in the crystal along the centeraxis, when t=2500 min under normal and zero gravity fields.

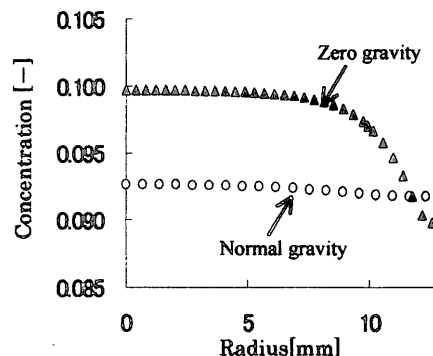


Fig.4 Radial concentration distributions of zinc in the crystal along interface, when t=2500 min under normal and zero gravity fields.

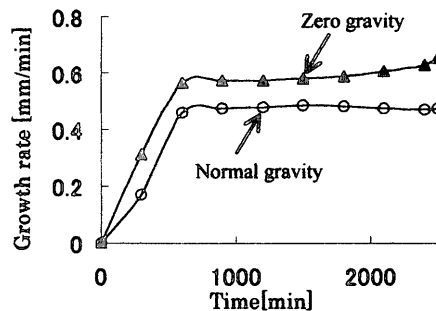


Fig.5 Crystal growth rate along center axis under normal and zero gravity fields.

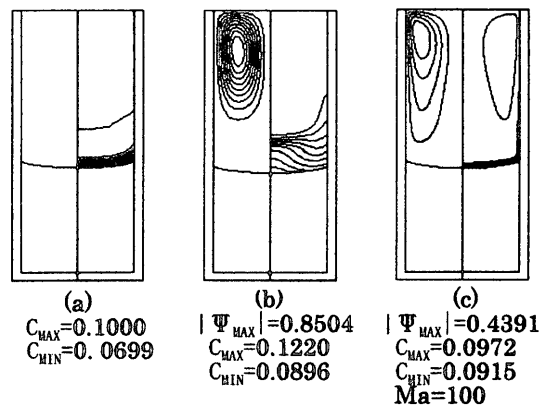


Fig.6 Stream function (light half) and concentration in melt(right half) when t=600 min. (a) under zero gravity, (b) under normal gravity (c) under zero gravity with free surface.  $\Delta \Psi=0.1$ ,  $\Delta C=0.0007$ .