

Скінченноелементний аналіз електрорезистивного нагрівання апарата високого тиску для дослідження розчинності GaN у Fe

О.П. Людвіченко¹ • О.М. Анісін¹ • О.О. Лещук¹ • В.І. Щидловський¹

Received: 20 September 2021 / Accepted: 24 November 2021

Анотація. Розглянуто переваги і недоліки методів отримання кристалів нітриду галію. Досліджено збіжність рішення задачі електрорезистивного нагрівання при визначенні теплового стану комірки апарата високого тиску. Змодельовано і досліджено тепловий стан комірки апарата високого тиску, що використовують для визначення розчинності нітриду галію у залізі. Визначено, що комбінована дискретизація з використанням трикутних і чотирикутних елементів дозволяє зменшити час розв'язання зв'язаної задачі електро- і теплопровідності за даних умов. Результати розрахунків представлені стаціонарними температурними полями в різних елементах апарата. Отримано, що при температурі в контрольній точці комірки в 1800 °C осьовий її перепад в об'ємі досліджуваного зразка із армко-заліза складає 62 °C, максимальний перепад – 156 °C. Змодельована конфігурація комірки і визначені для неї умови нагрівання є прийнятними для експериментальних досліджень розчинності GaN в контакті із рідким Fe в умовах високих тисків і температур.

Ключові слова: нітрид галію, апарат високого тиску, комірка високого тиску, метод скінченних елементів.

Вступ

Нітриди III групи широко застосовують в твердотільній електроніці завдяки унікальному поєднанню фізичних характеристик: великі, в порівнянні з іншими сполуками, значення ширини забороненої зони; високі теплопровідність, хімічна і термічна стійкість; наявність спонтанної і п'єзо-поляризації. Нітрид галію є напівпровідником з шириною забороненої зони 3,4 eV при кімнатній температурі. Багато напрямків мікроелектроніки засновані на унікальних властивостях нітриду галію, зокрема, за допомогою світлодіодів на його основі можна отримати перетворення електричної енергії в світлову з високим ККД (до 45 %). У 2014 р. за винахід ефективних блакитних світлодіодів на основі GaN, що привели до появи яскравих та енергозберігаючих білих джерел світла, присуджено Нобелівську премію з фізики. Елементи силової і НВЧ електроніки на основі GaN вже зараз перевершують аналогічні

структури на основі кремнію (Si), арсеніду галію (GaAs) і карбіду кремнію (SiC) з технічних і експлуатаційних параметрів. В той же час, отримання нітриду галію є складною технічною проблемою, тому необхідний пошук найбільш простого і ефективного способу його кристалізації, що є на даний час актуальним питанням.

Сьогодні для росту кристалів GaN застосовують лише три технології: синтез у натрієвому потоці (sodium flux), амонотермічна (ammonothermal) та гідридна парофазна епітаксія (hydride vapour phase epitaxy (HVPE)). Перші дві з них представляють зростання з розчину, третя – з парової фази.

Вирощування кристалів за допомогою амонотермічної технології відбувається з використанням надкритичного аміаку (NH₃) в якості розчинника GaN при тисках 0,2–0,3 ГПа та температурах 600–800 °C. Серйозним недоліком цього методу є надзвичайно низька швидкість росту (1–2 мкм/год) та відносно низька чистота вирощених кристалів.

Парофазна епітаксія дозволяє кристалізувати GaN при атмосферному тиску та температурі 1000 °C зі швидкістю біля 100 мкм/год. Недосконалістю цього методу є висока дефектність вирощених кристалів, що

✉ О. П. Людвіченко
ludvial@ukr.net

¹ Інститут надтвердих матеріалів ім. В.М. Бакуля НАН України, Київ, Україна

виникає внаслідок залишкового напружено-деформованого стану як в кристалах, так і в підкладках, на яких вони зростають.

Вирощування структур на основі GaN, в основному, здійснюють методом гетероепітаксії на дешевих сапфірових (Al_2O_3) підкладках. Однак, через велику щільність дислокацій в таких кристалах GaN і, як наслідок, їх низьке тепловідведення зазначені процесорні пристрої мають робочі характеристики нижчі від теоретично можливих для гомоепітаксialних структур GaN-on-GaN.

Перераховані вище обмеження можна вирішити, якщо вирощувати GaN структури безпосередньо на підкладках з GaN. При реалізації такої процедури щільність дислокацій в структурах знижується і з'являється можливість виробляти процесорні пристрої на основі GaN-структур, в результаті чого вдається досягти більш високих робочих характеристик і зменшити їх площу.

На сьогоднішній день відомі приклади виробництва об'ємних кристалів GaN з малим числом структурних дефектів [1]. Однак, через труднощі виробництва і малу поширеність технології їх вартість висока.

Перші високоякісні кристали GaN, які можуть бути використані для епітаксialного вирощування та виготовлення процесорних пристроїв, були отримані при температурі 1500 °C і тиску азоту 1 ГПа в газостатичній установці в Інституті фізики високих тисків Польської академії наук.

Новим підходом в отриманні нітриду галію при високих тисках (~ 6 ГПа) і температурах (~ 1800 °C) є його кристалізація в багатокомпонентній розчин-розплавній системі Fe-Ga-N, що було продемонстровано в останні роки з використанням апаратів високого тиску (АВТ) типу "тороїд". В результаті таких досліджень синтезовано ряд кристалів GaN розміром до 50 мкм. Основною проблемою при розробці комірки високого тиску (КВТ) є конструювання схеми її резистивного нагрівання, що забезпечує необхідний розподіл температури в кристалізаційному об'ємі.

Постановка задачі

Для дослідження процесу електронагріву АВТ широко використовують математичне моделювання, так як експериментальне визначення необхідних форм, складів та розмірів нагрівачів і елементів теплоізоляції КВТ є надзвичайно трудомістким та довготривалим. Зокрема застосовують метод скінченних елементів. Виділимо роботу [2], в якій розраховані теплові режими в АВТ типу "белт".

Нагрів АВТ проводять прямим пропусканням електричного струму, а заданий температурний режим в комірці досягається балансом потужності джерел джоулевого тепла і тепловідводом в системі охолодження апарата. Тепловий стан комірки в такому випадку моделю-

ється розв'язанням зв'язаної задачі електро- і теплопровідності, яка для стаціонарного випадку в припущенні про відсутність електричних зарядів описується системою нелінійних рівнянь:

$$\operatorname{div}[\gamma(T) \operatorname{grad} \varphi] = 0, \quad (1)$$

$$\operatorname{div}[\lambda(T) \operatorname{grad} T] + \gamma(T) |\operatorname{grad} \varphi|^2 = 0, \quad (2)$$

де γ – коефіцієнт електропровідності, T – температура, φ – потенціал електричного поля, λ – коефіцієнт теплопровідності, $\gamma(T) |\operatorname{grad} \varphi|^2$ – питома потужність джерел джоулевого тепла. Рівняння (1, 2) доповнюються граничними умовами першого та другого роду (на поверхнях S_φ , S_T та S_i , S_h відповідно), а також умовою конвективного теплообміну на поверхні S_a ($S_j + S_i = S_T + S_h + S_a$):

$$\varphi = \varphi_{S_\varphi}, \quad (3)$$

$$\mathbf{n} \cdot \gamma(T) \operatorname{grad} \varphi = -\mathbf{i}_{S_i}, \quad (4)$$

$$T = T_{S_T}, \quad (5)$$

$$\mathbf{n} \cdot \lambda(T) \operatorname{grad} T = -\mathbf{h}_{S_h}, \quad (6)$$

$$\mathbf{n} \cdot \lambda(T) \operatorname{grad} T = -\alpha_{S_a} (T - \theta), \quad (7)$$

де \mathbf{i}_{S_i} і \mathbf{h}_{S_h} – щільність струму і тепловий потік по нормалі \mathbf{n} до відповідних поверхонь, α_{S_a} – коефіцієнт тепловіддачі, θ – температура зовнішнього середовища.

Із доступних джерел інформації [3–7] були отримані відповідні температурні залежності коефіцієнтів теплопровідності і електроопору. Електро- і теплофізичні властивості композиційних матеріалів елементів КВТ (графіт + оксид цирконію, хлорид цезію + оксид цирконію) визначали за теорією стохастичних неоднорідних матеріалів [8]. Такий підхід є достатньо виправданим з огляду на попередній досвід з моделювання температурних полів в АВТ, що використовують для технологій отримання надтвердих матеріалів і виробів на їх основі [9–10]. Згідно з цією моделлю коефіцієнт теплопровідності N -компонентної суміші визначається наступним чином:

$$\lambda^* = \left[\sum_{i=1}^N x_i^V (\lambda_i + 2\langle \lambda \rangle)^{-1} \right]^{-1} - 2\langle \lambda \rangle,$$

де x_i^V – об'ємна концентрація i -ї фази, λ_i – коефіцієнт теплопровідності i -ї фази, $\langle \lambda \rangle = \sum_{i=1}^N x_i^V \lambda_i$. Ефективне

значення питомого електроопору композита підраховується як обернене значенню його питомої електропровідності $\rho^* = 1 / \gamma^*$, де

$$\gamma^* = \left[\sum_{i=1}^N x_i^V (\gamma_i + 2\langle \gamma \rangle)^{-1} \right]^{-1} - 2\langle \gamma \rangle.$$

Систему зв'язаних нелінійних рівнянь (1)–(7) вирішували методом скінченних елементів при покроковій корекції властивостей матеріалів і досягненні заданого критерію збіжності ($T_i - T_{i-1} < 1$ °С, де i – номер ітераційного наближення). В якості програмного забезпечення використовували власну розробку [9] та пакет ANSYS, що забезпечувало достовірність розрахунків.

Розрахункова схема АВТ показана на рис. 1. З огляду на осьову симетрію розглядали 1/2 частину апарата.

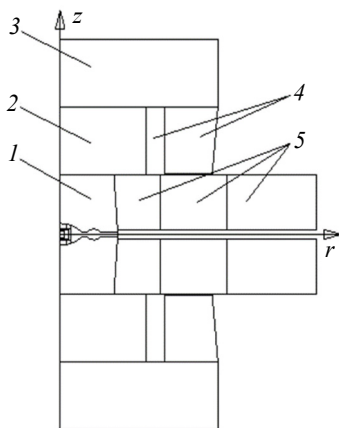


Рис. 1. Розрахункова схема АВТ типу “тороїд”: 1 – матриця (ВК6); 2 – опорна плита (ВК15); 3 – підкладна плита (35ХГСА); 4, 5 – скріплюючі кільця (35ХГСА)

Результати обчислень

Досліджували збіжність рішення задачі електро-резистивного нагрівання при визначенні теплового стану КВТ апарата типу “тороїд” методом скінченних елементів (рис. 2). Сітка елементів і граничні умови представлені на рис. 3. Відзначимо, що на поверхнях 23, 45, 67, 89 задавалися умови конвективного теплообміну апарата з повітрям, а на поверхнях 34, 78 – з водою.

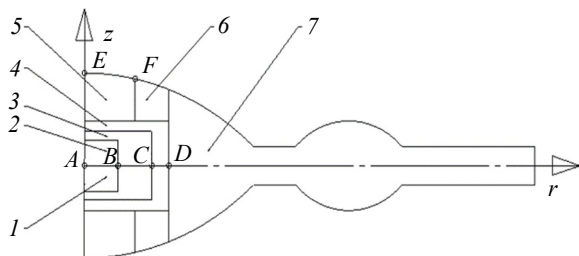


Рис. 2. Комірка для проведення експериментів з визначення розчинності нітриду галію у розплаві армо-заліза: 1 – армо-залізо, 2 – GaN, 3 – $\text{CzCl} + \text{ZrO}_2$, 4 – графіт МГ-1, 5 – графіт+ ZrO_2 , 6 – пірофіліт, 7 – літографський камінь; A – F – характеристичні точки

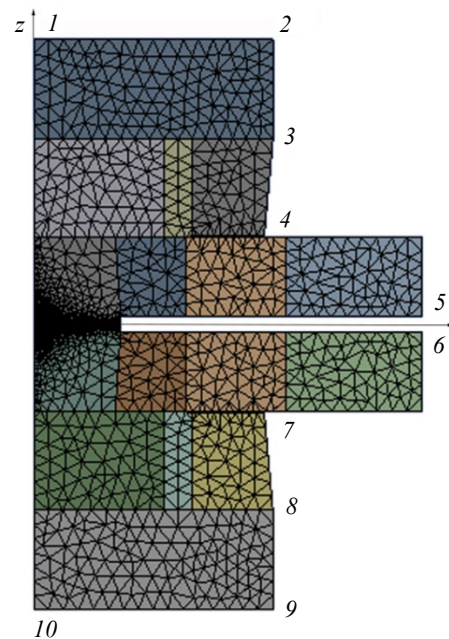


Рис. 3. Скінченноелементна сітка і граничні умови для задачі електро- і теплопровідності: $\varphi_{12} = 3,48$ В, $\varphi_{78} = 0$ В, $T_{12} = T_{910} = 40$ °С, $\alpha_{23} = \alpha_{45} = \alpha_{67} = \alpha_{89} = 50$ Вт/(м²·°С), $\alpha_{34} = \alpha_{78} = 7600$ Вт/(м²·°С), $\theta = 20$ °С, $h_{56} = 0$

Вирішували зв'язану задачу в осесиметричній постановці. Використовували набір з 10 сіток, що генеруються при рівномірному зростанні параметра згущення. Для розбиття на скінченні елементи центральної частини КВТ застосовували три- і чотирикутні елементи (трикутні і чотирикутні), при цьому кількість вузлів сітки змінювали від 6307 до 60407 при використанні трикутних елементів і від 6168 до 46531 при використанні комбінації трикутних і чотирикутних елементів. Розмір скінченного елемента в центральній частині КВТ змінювався від 0,9 мм до 0,09 мм. Характер розбиття на скінченні елементи показано на рис. 4. Вплив густоти сітки на збіжність рішення показано на рис. 5.

Як видно з рис. 5, для досягнення прийнятної збіжності рішення необхідно близько 20000 вузлів (розмір скінченного елемента в центральній частині КВТ задавали рівним 0,2 мм) при дискретизації на трикутні скінченні елементи (а, б) і близько 14000 вузлів (розмір скінченного елемента – 0,2 мм) при комбінованій дискретизації (в, з).

Результати розрахунків стаціонарних температурних полів в різних зонах КВТ представлені на рис. 6. Метою розрахунку було отримання в центрі комірки температури 1800 °С із одночасним забезпеченням якомога меншого перепаду температури в зоні досліджуваних зразків Fe і GaN. Осьовий перепад температури у зразку армо-заліза складав 62 °С, максимальний перепад – 156 °С, відповідні перепади у зразку нітриду галію – 64 °С і 118 °С (див. рис 6, б).

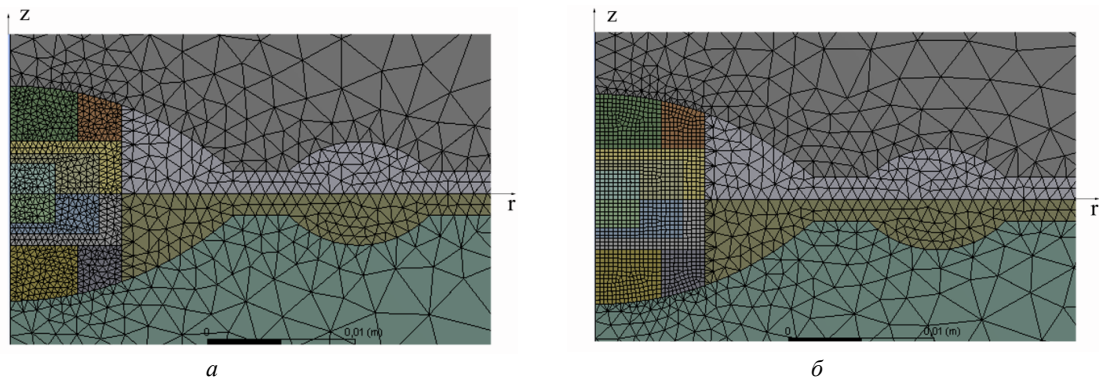


Рис. 4. Схема дискретизації КВТ на трикутні (а) і комбіновані (трикутні з чотирикутними) (б) скінченні елементи

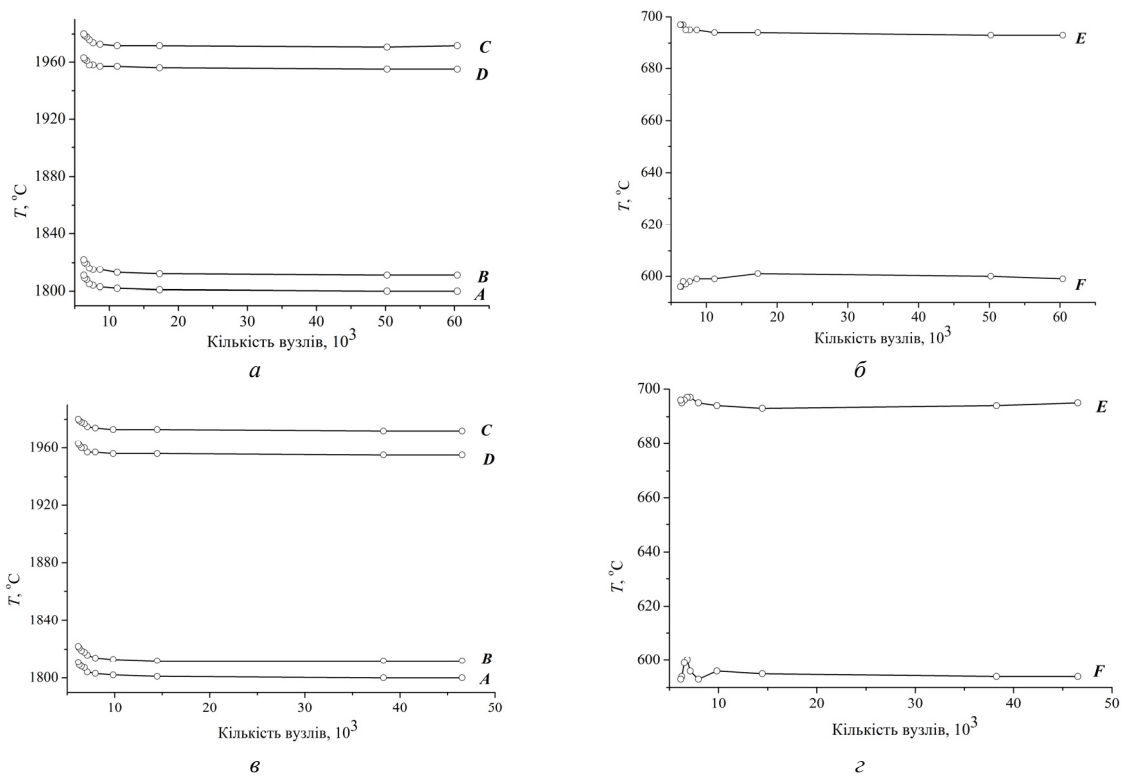


Рис. 5. Вплив ступеня дискретизації на збіжність рішення зв'язаної задачі електро- і теплопровідності в характеристичних точках КВТ при дискретизації на трикутні (а, б) і комбіновані (в, г) елементи

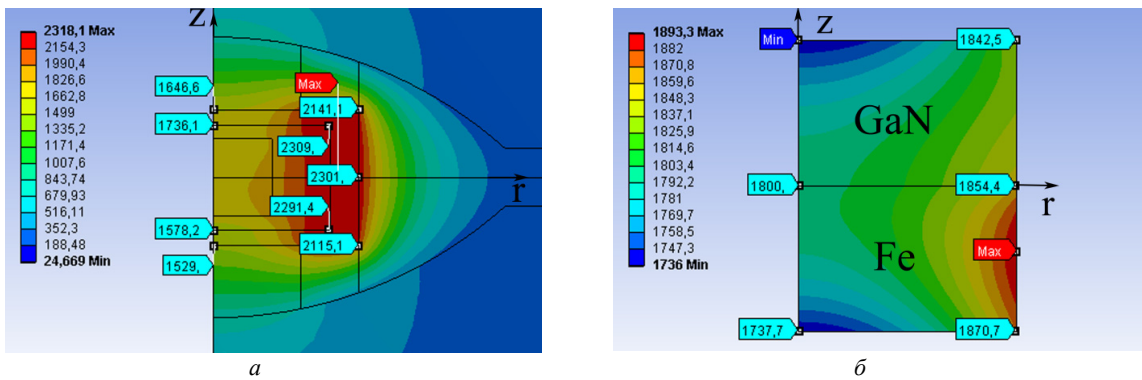


Рис. 6. Поля температури в КВТ (а), та досліджуваному зразку GaN + Fe (б)

Висновки

1. Розроблено скінченноелементну методику моделювання процесу електрорезистивного нагрівання АВТ, що використовують при дослідженні розчинності GaN в рідкому залізі.

2. Знайдено оптимальне згущення скінченноелементної сітки та вибрано форми елементів при дискретизації елементів АВТ. Комбінована дискретизація з

використанням трикутних і чотирикутних елементів дозволила зменшити час розв'язання зв'язаної задачі електро- і теплопровідності в порівнянні із дискретизацією на трикутні елементи.

3. Змодельована конфігурація комірки і визначені для неї умови нагрівання є прийнятними для експериментальних досліджень розчинності нітриду галію в контакті із армо-залізом в умовах високих тисків і температур.

References

- [1] H. Fujikura *et al.*, “Recent progress of high-quality GaN substrates by HVPE method”, in *Proc. of SPIE*, San Francisco, California, United States. 2017, 10104–1010403. <https://doi.org/10.1117/12.2257202>
- [2] A.A. Leshchuk, “Raschet raspredelenii temperatury v reakcionnoi yacheike AVT pri kristallizatsii nitrida galliya”, *Sintez, spekanie i svoystva sverkhkhtverdykh materialov*, Kyiv: In-t sverkhkhtv. materialov im. V.N. Bakulya NAN Ukrainy, pp. 158–171, 2000.
- [3] A.S. Okhotina, *Teploprovodnost' tverdykh tel: Sprav*, Moscow: Energoatomizdat, 1984.
- [4] V.P. Sosedov, *Svoystva konstruktsionnykh materialov na osnove ugleroda: Sprav*, Moscow: Metallurgiya, 1975.
- [5] V.I. Tumanov, *Svoystva splavov sistemy karbid vol'frama – kobal't: Sprav*, Moscow: Metallurgiya, 1971.
- [6] G.V. Samsonova, *Fiziko-khimicheskie svoystva okislov: Sprav*, Moscow: Metallurgiya, 1978.
- [7] Cui He, Cui-E Hu, Tian Zhang *et al.*, “Lattice dynamics and thermal conductivity of cesium chloride via first-principles investigation”, *Solid State Commun*, 2017, Vol. 254, pp. 31–36. <https://doi.org/10.1016/j.ssc.2016.12.004>
- [8] L.P. Khoroshun and B.P. Maslov, *Metody avtomatizirovannogo rascheta fiziko-mekhanicheskikh postoyannykh kompozitsionnykh materialov*, Kyiv: Nauk. dumka, 1980.
- [9] O. Lyeshchuk, “Computational modeling of superhard materials synthesis”, *Comp. Mater. Sci.*, 2010, Vol. 49, Issue. 1, pp. 85–94. <https://doi.org/10.1016/j.commatsci.2010.01.047>
- [10] O.O. Lyeshchuk, S.B. Polotniak, M.V. Novikov, Thermomechanical approach to the modeling of HP–HT material processing *J. Phys. Conf. Ser.* 2012. 377. Art. 012095. <https://doi.org/10.1088/1742-6596/377/1/012095>

Finite element analysis of electroresistive heating of a high pressure apparatus for studying the solubility of GaN in Fe

O.P. Liudvichenko, O.M. Anisin, O. O. Lyeshchuk, V. I. Shchydlovskyi

Abstract. The advantages and disadvantages of methods for gallium nitride crystals production are considered. The convergence of the solution of the problem of electroresistive heating at determination of a thermal condition of the high pressure apparatus cell is investigated. The thermal state of the high pressure apparatus cell used to determine the solubility of gallium nitride in iron has been modeled and investigated. It is determined that the combined discretization with the use of triangular and quadrangular elements allows to reduce the time of solving the coupled problem of electrical and thermal conductivity under these conditions. The results of calculations are presented by steady temperature fields in various elements of the device. It was obtained that at the temperature in the cell control point of 1800 °C its axial difference in the volume of the investigated sample of iron was 62 °C, the maximum difference was 156 °C. The simulated cell configuration and the heating conditions defined for it are acceptable for experimental studies of the solubility of GaN in contact with Fe under conditions of high pressures and temperatures.

Keywords: gallium nitride, high pressure apparatus, high pressure cell, finite element method.

Конечноэлементный анализ электрорезистивного нагрева аппарата высокого давления для исследования растворимости GaN в Fe

А.П. Людвиченко, А.М. Анисин, А.А. Лещук, В.И. Щидловський

Аннотация. Рассмотрены преимущества и недостатки методов получения кристаллов нитрида галлия. Исследована сходимость решения задачи электрорезистивного нагрева при определении теплового состояния ячейки аппарата высокого давления. Смоделировано и исследовано тепловое состояние ячейки аппарата высокого давления, используемой для определения растворимости нитрида галлия в железе. Определено, что комбинированная дискретизация с использованием треугольных и четырехугольных элементов позволяет уменьшить время решения связанной задачи электро- и теплопроводности при данных условиях. Результаты расчетов представлены стационарными температурными полями в различных элементах аппарата. Получено, что при температуре в контрольной точке ячейки 1800 °C осевой ее перепад в объеме исследуемого образца из железа составил 62 °C, максимальный перепад – 156 °C. Смоделированная конфигурация ячейки и определенные для нее условия нагрева являются приемлемыми для экспериментальных исследований растворимости нитрида галлия в контакте с жидким железом в условиях высоких давлений и температур.

Ключевые слова: нитрид галлия, аппарат высокого давления, ячейка высокого давления, метод конечных элементов.