

ВІДГУК

офіційного опонента на дисертаційну роботу Людвіченка Олексія Петровича «Вплив умов резистивного нагрівання комірки високого тиску на кристалізацію GaN із розчин-розплавної системи Fe–Ga–N», представлену до захисту на здобуття наукового ступеня доктора філософії за спеціальністю 132 – Матеріалознавство

Актуальність теми.

Технології, що базуються на застосуванні GaN, дозволяють виготовляти електронні і оптоелектронні пристрої, що суттєво перевершують аналогічні із традиційних напівпровідникових матеріалів. Це можливо завдяки унікальним характеристикам GaN, а саме тому, що це є прямозонний напівпровідник з великою шириною забороненої зони у 3,4 еВ.

В роботі запропоновано отримувати кристали GaN в умовах високих тисків і температур методом температурного градієнта з використанням апарату високого тиску (АВТ) тороїдального типу. Передбачалось, що із застосуванням розчинників і під впливом високих тисків і температур будуть створені умови, сприятливі для перекристалізації GaN через зростання розчинності азоту в матеріалі розчинника.

Актуальність проведення комп'ютерного моделювання пов'язана з необхідністю визначення параметрів електрорезистивних ланцюгів, що забезпечують необхідне температурне поле в комірці, оскільки тепловий стан є визначальним при використанні методу температурного градієнта.

Достовірність одержаних результатів визначається застосуванням сучасного універсального програмного забезпечення ANSYS, що використовує метод скінченних елементів, публікацією статей у фахових виданнях, апробацією отриманих наукових результатів на конференціях. З практичної точки зору достовірність обчислень підтверджується підвищенням структурної досконалості вирощених кристалів GaN за рахунок зменшення розрахованого градієнта температури і, як наслідок, зменшення градієнта концентрації азоту у розчиннику.

Обґрунтованість рекомендацій визначається тим, що в спроектованій з використанням наданих згідно моделювання рекомендацій комірці були синтезовані кристали GaN із розчин-розплавної системи Fe–Ga–N в умовах високого тиску і температури.

Виконуючи роботу, здобувач виконав наступні завдання:

1. Розробив методику комп'ютерного моделювання процесу резистивного нагрівання комірок високого тиску для дослідження розчинності GaN у Fe та кристалізації GaN із розчин-розплавної системи Fe–Ga–N.

2. За результатами комп'ютерного аналізу встановив конфігурації, композиційні склади резистивних елементів комірки, що забезпечують необхідні розподіли температури для дослідження розчинності GaN у Fe та HPHT-кристалізації GaN.

3. Встановив вплив геометричних параметрів, складу композиційних елементів АВТ на розподіл температури в комірках апаратів тороїдального типу.

4. Змодельював зміни теплового стану комірки високого тиску в залежності від зростання зони кристалізації GaN.

Наукова новизна дослідження полягає у наступному:

1. Встановлено, що при значеннях градієнта температури ~ 13 °C/мм має місце агрегатний хаотичний ріст кристалів GaN; при зменшенні градієнта температури до значень ~ 8 °C/мм утворюється текстурований квазімонокристал GaN; при подальшому зменшенні градієнта температури до 1,5 °C/мм спостерігається нестиснений ріст монокристалів GaN пелюсткової форми розміром до 3 мм, які об'єднуються в кущоподібні друзи. Оптимізовано схеми резистивного нагрівання комірки АВТ типу «тороїд-40», які забезпечують зменшення величини градієнта температури і приводять до покращення структурної досконалості кристалів GaN.

2. Показано, що для забезпечення росту монокристалів GaN пелюсткової форми із системи Fe–Ga–N у температурному градієнті оптимальною є схема нагрівання комірки АВТ типу «тороїд-40» з використанням комбінованих торцевих нагрівачів з діаметром графітового диска у 10 мм. Усереднене значення осьового градієнта температури при цьому становить 1,5 °C/мм, ізолінії температури мають горизонтальну орієнтацію.

3. Показано, що в процесі зростання зони кристалізації GaN температура в кристалізаційному об'ємі зменшується незначно (максимально на 5 °C), що не потребує додаткового коригування теплового стану комірки при довготривалих режимах кристалізації GaN у температурному градієнті.

4. Встановлено, що для проведення експериментів з вивчення розчинності нітриду галію у залізі в АВТ типу «тороїд-30» оптимальною є схема нагрівання комірки, що відповідає 60 %-вій концентрації ZrO_2 в осьових нагрівачах, товщині стінки трубчастого нагрівача у 1,5 мм, за яких температура у зразку змінюється в інтервалі 1805-1842 °C. Разом з тим, варіювання товщини стінки трубчастого нагрівача від 1,0 до 2,1 мм веде до незначного (~ 2 °C) збільшення максимального перепаду температури у зразку GaN+Fe за одночасної лінійної зміни температури в центрі зразка від 1580 до 2059 °C, що забезпечує можливість його дослідження в широкому температурному інтервалі без зміни ступеня однорідності теплового стану.

Практична цінність дисертаційної роботи. Проектування комірки для дослідження розчинності GaN у Fe і кристалізації GaN методом температурного

градієнта здійснено з урахуванням результатів чисельного моделювання, проведеного автором роботи. Розроблена в дисертації розрахункова модель дозволяє проводити подальші дослідження з вирощування об'ємних монокристалів GaN в апаратах високого тиску різних типів.

Опублікування результатів дисертаційної роботи.

При виконанні роботи здобувачем із співавторами було опубліковано 13 наукових публікацій, з яких 1 стаття у виданні, що індексується наукометричними базами, 4 статті у фахових виданнях, 8 публікацій за матеріалами конференцій. Публікації підтверджують обґрунтованість та практичну цінність роботи.

Характеристика змісту роботи.

До дисертаційної роботи входить: анотація, вступ, 5 розділів, загальні висновки, додаток, 213 літературних посилань. Загальний обсяг роботи складає 161 сторінку.

У вступі наведені актуальність роботи, мета, задачі дослідження, наукова новизна, практична цінність, дані щодо апробації і публікації автора.

У розділі 1 зроблено огляд літературних джерел, присвячених GaN як напівпровіднику, методам його одержання, тиску, призначених для синтезу матеріалів в умовах екстремальної термобаричної дії, чисельному моделюванню теплового стану. Обґрунтовано важливість комп'ютерного моделювання для проєктування конструкцій комірок високого тиску.

В розділі 2 проведено аналіз і узагальнення літературних даних з електро- і теплофізичних властивостей матеріалів, що використовують в апаратах високого тиску. Наведені рівняння для розрахунку ефективних значень коефіцієнтів електроопору і теплопровідності композиційних матеріалів елементів комірки високого тиску згідно з моделлю узагальненого сингулярного наближення теорії випадкових функцій.

В розділі 3 наведена математична модель процесу електрорезистивного нагрівання. Виконана постановка зв'язаної стаціонарної задачі електро- і теплопровідності з урахуванням граничних умов. Дослідження вплив ступеня скінченноелементної дискретизації на точність її рішення. В результаті була розроблена методика чисельного моделювання процесу резистивного нагрівання АВТ типу «тороїд».

В розділі 4 наведено результати моделювання теплового стану апаратів високого тиску для дослідження розчинності GaN у залізі і кристалізації GaN в досліджуваній системі. Розглянуті такі питання:

- для апарату АВТ «тороїд-30» для дослідження розчинності GaN у Fe: вплив товщини стінки трубчастого нагрівача і вплив концентрації ZrO_2 в осьовому нагрівачі;
- для апарату АВТ «тороїд-40» для дослідження кристалізації GaN в розчин-розплавній системі Fe–Ga–N: вплив концентрації ZrO_2 в торцевих нагрівачах,

зміна теплового стану ростового об'єму при кристалізації GaN, застосування комбінованих торцевих нагрівачів однакового діаметра і різного діаметрів для зменшення градієнта температури в кристалізаційному об'ємі.

Визначено склади нижнього і верхнього торцевих нагрівачів, за яких забезпечуються значення осьового градієнта температури у 13,5 і 8,2 °C/мм. Обґрунтовано необхідність пошуку схеми спорядження комірки з мінімальними значеннями градієнтів температури. Для модернізованої комірки АВТ типу «тороїд-40» визначено розміри комбінованих торцевих нагрівачів, що забезпечують осьовий градієнт температури у 1,5 °C/мм.

У розділі 5 наведено результати експериментальних досліджень, отриманих в комірках, спроектованих згідно комп'ютерної симуляції.

При проведенні дослідів з розчинності GaN у Fe з'ясовано, що залізо є ефективним розчинником для нітриду галію в умовах високих тисків і температур, так як забезпечує розчинність ~ 15 ат.% GaN у залізі при температурах 1500-1700 °C в діапазоні тисків 6-9 ГПа.

Проведені експерименти з кристалізації GaN засвідчили, що зменшення градієнта в ростовому об'ємі приводить до створення умов, за яких стає можливим ріст більш структурно досконалих кристалів.

Перелік зауважень:

1. Із тексту дисертації не зрозуміло, чому для дослідження розчинності GaN у Fe і кристалізації GaN із розчин-розплавної системи Fe–Ga–N використовувались різні апарати високого тиску «тороїд-30» і «тороїд-40».
2. Не зрозуміло, як саме визначали провідні властивості кристалізаційного середовища Fe–Ga–N.
3. Температурні інтервали в роботі визначені із високою точністю, наприклад 1779-1815 °C, тоді як на графіках (наприклад, рис. 4.6) шкала температури має значно більший крок.
4. Теж саме стосується і інших характеристик. Зокрема в експериментальній частині (стр.125) наведена середня швидкість росту GaN 85,2 мкм/год і повідомляється про зменшення величини градієнта температури з 13,4 до 8,2 °C/мм. Було б доречно вказати точність визначення цих величин.

Наведені зауваження до дисертаційної роботи не зменшують її загальну позитивну оцінку.

Висновки щодо дисертаційної роботи. За актуальністю, ступенем новизни, обґрунтованістю дисертація Людвіченка Олексія Петровича «Вплив умов резистивного нагрівання комірки високого тиску на кристалізацію GaN із розчин-розплавної системи Fe–Ga–N» відповідає нормативному змісту та напрямку наукового дослідження освітньо-наукової програми Інституту надтвердих матеріалів ім. В.М. Бакуля НАН України зі спеціальності 132 – Матеріалознавство та «Вимогам до оформлення дисертацій», затвердженим наказом Міністерства

освіти і науки України від 12 січня 2017 року № 40, а також «Порядку присудження та скасування рішення про присудження ступеня доктора філософії», затвердженого Постановою Кабінету Міністрів України від 12 січня 2022 року № 44 зі змінами і рекомендується до захисту у спеціалізованій вченій раді, а її автор заслуговує на присудження наукового ступеня доктора філософії зі спеціальності 132 – Матеріалознавство.

Опонент:

професор кафедри хімії Київського
національного університету
будівництва і архітектури,
д.т.н., доцент



Артем КОЗИРЄВ

Підпис д.т.н. Козирєва Артема В'ячеславовича засвідчую.

Вчений секретар
Київського національного університету
будівництва і архітектури,
к.т.н., доцент



Микола КЛИМЕНКО