

氮化镓/石墨烯/碳化硅异质界面热输运特性的分子动力学研究*

刘东静[†] 周福 陈帅阳 胡志亮

(桂林电子科技大学机电工程学院, 桂林 541004)

(2023年4月6日收到; 2023年5月9日收到修改稿)

为了探究氮化镓/石墨烯/碳化硅异质界面热输运特性, 采用非平衡分子动力学方法从温度、尺寸以及空位缺陷三个方面研究其对界面热导的影响, 通过声子态密度和声子参与率对界面热导的变化进一步阐述分析. 研究表明: 温度升高使界面热导增大, 分析认为随着温度升高晶格振动加剧, 低频声子态密度变大, 参与热输运声子数量增加; 其中单层石墨烯层结构界面热导的改变要高于多层石墨烯结构的界面热导. 当热输运方向的结构尺寸变化时, 同时改变氮化镓和碳化硅的层数, 界面热导无明显变化, 界面热输运声子散射几乎不受影响; 但中间石墨烯层从1层增加至5层时, 界面热导率先减小后缓慢增大, 由于在4层时低频声子参与率变小, 更多的声子局域化, 不参与传热声子数量更多, 故界面热导到达最小值 $0.021 \text{ GW}/(\text{m}^2\cdot\text{K})$. 随空位缺陷浓度增加界面热导先逐步增大后减小, 区别在于单空位缺陷在浓度为10%时, 界面热导达到最大值 $0.064 \text{ GW}/(\text{m}^2\cdot\text{K})$; 而双空位缺陷在浓度为12%时, 界面热导率达到最大值 $0.065 \text{ GW}/(\text{m}^2\cdot\text{K})$, 分析认为更多的声子从局域进入离域, 参与该传热声子较多, 导致界面热导增大. 研究结果有助于调控氮化镓器件的热输运性能, 可以为异质界面器件的设计提供理论依据.

关键词: 异质界面热导, 温度效应, 尺寸效应, 空位缺陷**PACS:** 79.60.Jv, 65.80.Ck, 02.70.Ns, 68.55.Ln**DOI:** 10.7498/aps.72.20230537

1 引言

在热传输方面, 异质界面材料^[1-3]引起半导体行业广泛关注, 如碳化硅/石墨烯^[4,5]、氮化镓/石墨烯^[6]以及六方氮化硼/石墨烯^[7]等. 其中氮化镓、碳化硅作为第3代宽带隙半导体材料, 由于其优异的性能有望代替硅材料被应用于高压电力电子器件. 然而在传统外延中氮化镓外延层与衬底间存在晶格失配和热失配问题^[8,9], 导致应变缺陷和热失配引起的温度升高影响氮化镓器件可靠性, 因此研究氮化镓基功率器件存在的热输运问题至关重要.

石墨烯 (Graphene, Gr) 作为二维碳纳米材料,

具有高达 $5000 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ ^[10] 的热导率. 石墨烯被认为是非常适合解决氮化镓与衬底间热失配问题的材料, 经过 Yan 等^[11] 研究发现在碳化硅衬底上通过引入少量石墨烯替代的热逃逸通道, 可以使氮化镓晶体管热点温度降低 $20 \text{ }^\circ\text{C}$. 此外, 石墨烯能够借助与氮化镓界面之间的弱范德瓦耳斯相互作用克服晶格失配形成的应变和缺陷^[12,13], 因此在传统碳化硅衬底上使用石墨烯对氮化镓进行外延生长^[14]已经成为主流. 研究人员^[13,15]通过金属有机化学气相沉积法在石墨烯/碳化硅衬底上外延生长氮化镓薄膜, 避免产生变形和缺陷的薄膜. Feldberg 等^[16]和 Fernandez-Garrido 等^[17]通过等离子分子束外延法在碳化硅衬底上合成石墨烯后外延氮化镓, 展

* 广西制造系统重点实验室项目 (批准号: 22-35-4-S017) 和广西高校中青年教師科研基础能力提升项目 (批准号: 2022KY0207) 资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: ldj168168@126.com

示一种全外延、可扩展的生长方法. Puybaret 等^[18]和 Xu 等^[19]使用石墨烯作为纳米掩膜生长在碳化硅上, 然后通过纳米选择区域生长法选择性生长氮化镓纳米薄膜.

近年来, 科研人员针对有关于氮化镓、石墨烯以及碳化硅材料的界面热输运特性进行了大量的研究. 如: Hu 等^[20]采用非平衡分子动力学模拟研究碳化硅/单层石墨烯/氮化镓的强耦合界面的热输运, 结果表明对于强结合界面, 界面热输运中近界面热阻占主导地位. Yang 等^[21]采用经典分子动力学研究在 6H-SiC/石墨烯缓冲层/GaN 异质界面上的热输运, 结果表明: 在势函数选择中 Tersoff-Erhart-Albe(TEA) 势优于环境相关原子间势(EDIP); 石墨烯层的单空位 (single-vacancy, SV) 缺陷可以降低界面热阻, 最大降低率为 9.6%; 不同成核区域的键合面积增加, 界面热阻下降 17.9%; 温度从 300 K 升高到 1100 K 时, 界面热阻最大下降 19.6%, 表明温度升高可以降低界面热阻.

除了上述含 3 种不同材料的异质结构, 更多的是研究 2 种不同材料的异质界面热输运特性. Liu 等^[22]采用非平衡态分子动力学方法研究温度、尺寸和材料缺陷率对碳化硅/石墨烯界面热导的影响. 研究表明, 两种界面作用下界面热导均随温度升高而增大, 随着碳化硅层数的增加而降低, 当层数从 10 层到 20 层时, 界面热导下降 30.5%. 随着碳化硅和石墨烯缺陷率的增加, 界面热导均先升高再降低. Wu 等^[6]利用非平衡分子动力学模拟研究氮化镓/石墨烯界面的界面热导, 结果表明, 缺陷浓度的增加导致界面热导先增加后下降, 0.6% 的点缺陷浓度可使界面热导提高 2.4 倍. Xiong 等^[23]采用非平衡态分子动力学方法研究石墨烯点缺陷对石墨烯-高分子复合材料界面热导和整体热导的影响. 结果表明, 石墨烯层的界面热导受点缺陷密度的影响较大, 当石墨烯的缺陷密度由 0 增大到 20% 时, 其界面热导由 75.6 MW/(m²·K) 增加为 85.9 MW/(m²·K). Yang 等^[24]采用非平衡分子动力学方法研究石墨烯/六方氮化硼范德瓦耳斯异质结构的导热系数, 结果表明, 1% 低氢覆盖率的夹层石墨烯可使导热系数降低 55%, 石墨烯上的空位缺陷对热导率的降低比六方氮化硼外层的硼或氮空位更显著.

目前学者研究集中在氮化镓、石墨烯或者碳化硅等单个材料的性能, 而对氮化镓/石墨烯/碳化硅异质界面特性的研究相对较少. 随着以碳化硅和石墨烯为衬底外延出氮化镓制备方法的研究, 该异质

结构有望在未来电力电子器件中广泛应用, 并且根据上述研究表明材料的界面热导影响因素不仅与温度有关, 而且与材料结构尺寸以及自身缺陷有关. 因此, 本文旨在探讨分析氮化镓/石墨烯/碳化硅异质结构在不同的温度、尺寸以及空位缺陷下的界面热输运特性, 分析异质结构的热输运特性机制, 可以在使用异质界面结构时更好地调控界面特性, 改善电力电子器件性能进而提高可靠性, 对半导体材料的研发与应用具有重要学术意义.

2 模型构建与模拟过程

2.1 模型构建

利用商用分子模拟软件 Material Studio 建立氮化镓/石墨烯/碳化硅异质界面模型. 考虑到晶格失配程度, 在 XY 平面上氮化镓单层的初始结构为 8×7 个单元; 石墨烯单层的初始结构为 11×9 个单元; 碳化硅单层的初始结构为 9×7 个单元. 因此, 石墨烯层的界面尺寸为 2.68 nm 与 3.82 nm, 氮化镓和碳化硅在对石墨烯的 X 方向的晶格失配率为 2.37% 和 4.91%, Y 方向的晶格失配率为 2.68% 和 1.69%, 均控制在 5% 的合理范围内. 构建氮化镓、石墨烯和碳化硅的单层结构后, 进行 Z 方向的扩胞, 得到不同层数的多层模型. 异质结构为三明治结构, 其中石墨烯层位于多层氮化镓与多层碳化硅之间, 石墨烯层间距为 3.34 Å^[25]. 由于氮化镓与石墨烯之间靠弱范德瓦耳斯相互作用缓解失配带来的负面影响, 因此选择范德瓦耳斯相互作用为界面作用, 在其作用下界面距离初始设为氮化镓/石墨烯 3.4 Å^[6], 碳化硅/石墨烯 3.62 Å^[26]. 最后进行模型优化得到氮化镓/石墨烯/碳化硅异质界面模型, 氮化镓 (12 层)/石墨烯 (1 层)/碳化硅 (12 层) 异质结构界面模型如图 1 所示.

本文主要研究不同尺寸、不同温度以及不同 SV 缺陷、双空位 (double-vacancy, DV) 缺陷率下氮化镓/石墨烯/碳化硅异质界面热导的变化. 在模型构建过程中, 氮化镓和碳化硅的层数为 12 层, 分别建立单层 (1 层) 和多层 (3 层) 的石墨烯片, 研究温度升高 (300—1100 K) 时界面热导的变化; 当石墨烯层数为 1 层, 构建不同层数 (8—28 层) 的氮化镓层和碳化硅层; 当氮化镓层和碳化硅层为 12 层, 构建不同层数 (1—5 层) 石墨烯层; 最后在石墨烯层上添加空位缺陷率 (0—16%) 的 SV 缺陷和 DV 缺陷, 研究在温度为 300 K 时界面热导的变化.

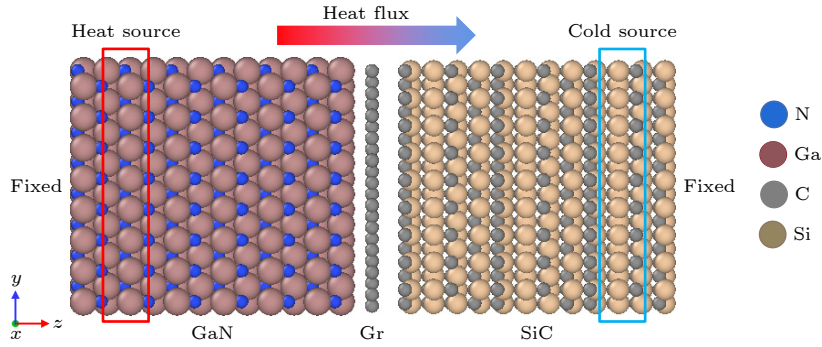


图 1 氮化镓(12层)/石墨烯(1层)/碳化硅(12层)异质结构界面模型

Fig. 1. Interface model of gallium nitride (12 layers)/graphene (1 layer)/silicon carbide (12 layers) heterostructure.

2.2 模拟过程

采用分子动力学软件 (large-scale atomic/molecular massively parallel simulator, LAMMPS) 计算氮化镓/石墨烯/碳化硅异质界面热导, 在这个过程中需要设定势函数, 其中氮化镓的原子间势采用 Stillinger-Weber (SW)^[27] 势函数, 石墨烯的原子间势采用 AIREBO^[28] 势函数, 碳化硅的原子间势采用 Tersoff^[29] 势函数, 氮化镓与石墨烯、氮化镓与碳化硅以及碳化硅与石墨烯的原子间势采用 Lennard-Jones(LJ) 势函数, 其中 SW 势、AIREBO 势以及 Tersoff 势可以在 LAMMPS 软件包中调用, 而 LJ 势函数的参数需要自行设置.

LJ 势函数的表达式为

$$U(r_{ij}) = 4\varepsilon_{ij}[(\sigma/r_{ij})^{12} - (\sigma/r_{ij})^6], \quad (1)$$

其中, r_{ij} 表示原子 i 和 j 之间的实际距离; ε_{ij} 为势阱深度, 代表原子 i 和 j 之间的作用强度; σ 表示势能为零的原子间距. 各个原子间的能量和距离参数如表 1 所列.

表 1 LJ 势函数参数
Table 1. Lennard-Jones parameter.

参数	ε/eV	$\sigma/\text{\AA}$
C-C	0.00455	3.851
Si-C	0.00891	4.073
Ga-C	0.00905	4.117
N-C	0.00617	3.757
Si-Ga	0.01771	4.339
Si-N	0.01207	3.979

仿真模拟 X, Y, Z 方向均采用周期边界条件, 首先在模型热输运方向 (Z 方向) 两端固定原子; 然后采用固定温度法在两端固定层往里设置热源和冷源, 氮化镓端为热源、碳化硅端为冷源, 冷源

和热源之间进行能量交换产生界面热输运, 系统情况如图 1 所示. 运动方程采用速度 Verlet 算法^[30] 进行迭代, 根据前人实践经验^[22] 将时间步长直接设置为 0.25 fs. 在非平衡态分子动力学模拟之前进行初始化, 首先对模型系统进行能量最小化处理, 采用微正则系综 (NVE) 和共轭梯度法进行温度初始化, 进而进行平衡温度设置使该温度下的原子速度符合高斯分布; 接着采用正则系综 (NVT) 进行第 1 次恒温优化预平衡运行 60 万步; 然后采用郎之万^[30] (Langevin) 热浴法进行随机速度控制并且进行第 2 次优化运行 60 万步; 最后重置 Langevin 恒温器之后再弛豫 300 万步, 进行数据样本采集, 主要是消除之前系统未达到稳定状态下数据的影响. 为得出高度可信的结果, 因此其中数据样本每 1000 个时间步采集一次平均温度, 得到温度梯度. 当外界温度为 300 K 时分布如图 2 所示, 其中 ΔT_1 为氮化镓层热源温度变化, ΔT_2 为碳化硅层冷源温度变化, ΔT 为石墨烯中间层温度变化.

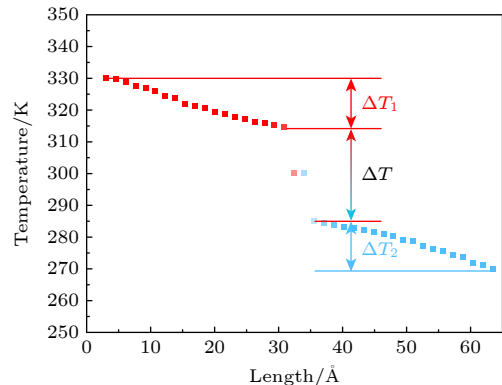


图 2 氮化镓/石墨烯/碳化硅异质结构沿热流方向的温度分布

Fig. 2. Temperature distribution of gallium nitride/graphene/silicon carbide heterostructures along the heat flow direction.

氮化镓/石墨烯/碳化硅异质界面的界面热导反映异质界面热输运特性, 界面热导 κ 可由 (2) 式计算:

$$\kappa = -\frac{Q_q}{\partial T/\partial x}, \quad (2)$$

其中, Q_q 代表热通量; $\partial T/\partial x$ 代表温度梯度, 可由采集的平均温度进行线性拟合得到. 热通量 Q_q 可由 (3) 式计算:

$$Q_q = \frac{dE}{A dt}, \quad (3)$$

其中, dE 代表系统中所有原子交换的总能量, A 代表垂直于热通量方向的异质界面截面面积, dt 代表系统中所有原子能量交换的时间.

氮化镓/石墨烯/碳化硅异质材料作为半导体纳米材料, 其热输运特性主要受声子弹道运输的散射和局域化作用影响, 声子散射和局域化均会阻碍界面热输运, 研究表明界面热输运主要依靠低频声子^[31]. 在氮化镓/石墨烯/碳化硅界面声子热输运中, 平面外的声学声子 (ZA 模声子) 通常被认为是氮化镓/石墨烯/碳化硅界面热导的主要热载体, 它们在材料界面处的散射和反射对界面热导起到决定性的影响. ZA 声子是一种主要以出平面振动为特征的声子模式, 它是晶格中最低能激发模式之一, 对应着固体中的最低声学模, 在许多固体中的频率非常低, 被认为是低频声子.

因此本文引入声子态密度 (phonon density of states, PDOS) 和声子参与率 (phonon participation ratio, PPR) 从声子角度阐述分析该异质结构的界面热导变化原因. PDOS 可以用于分析声子热输运机制, 有利于深入阐述材料热学特性. PDOS^[24] 是由速度自相关函数经过傅里叶变换得到, 表达式为

$$P(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int e^{-i\omega t} \left[\sum_{j=1}^N v_j(t)v_j(0) \right], \quad (4)$$

式中, N 为总粒子数, $v_j(0)$ 为粒子 j 在初始时间的平均速度矢量, $v_j(t)$ 为粒子 j 在 t 时刻的速度, ω 为振动声子频率. 在对应的频率下 PDOS 值很高则表示该频率下的声子数量多, 若 PDOS 值为零, 则说明该频率下无可用传热声子. 而界面热输运主要靠不同材料的声子间的互相作用, PDOS 的三阶重叠因子 S ^[24,32] 用来估计不同材料界面热输运的声子重叠, 表达式为

$$S = \int \prod_{k=1}^3 P_k(\omega) / \left[\prod_{k=1}^3 \int P_k(\omega) \right], \quad (5)$$

式中, $P_k(\omega)$ ($k = 1, 2, 3$) 分别对应氮化镓、石墨烯和碳化硅的 PDOS. PPR^[33] 是通过 PDOS 加权计算得到, 表达式为

$$R(\omega) = \frac{1}{N} \frac{\left[\sum_j P_n^2(\omega) \right]^2}{\sum_j P_n^4(\omega)}, \quad (6)$$

式中, $P_n(\omega)$ 为 n 频率下对应的 PDOS. PPR 可以区分声子状态, 处于离域或是局域, 在离域中的声子为游离态, 是主要的热输运声子; 而局域中的声子局域化, 可视为不参与热输运, 由于当 $R(\omega) < 0.3$ 时, 表示该模式的振动对于整个结构的贡献程度相对较小, 因此该声子可能在热输运中的贡献不如其他声子显著. 因此一般设定 $R(\omega) < 0.3$, 声子处于局域, 也就是说 $R(\omega) < 0.3$, 声子局域化, 参与热输运的声子数量减少; 反之增多. 因此 PPR 可以直观地反映声子散射情况, 从而揭示界面热导的变化.

3 结果与讨论

3.1 温度对氮化镓/石墨烯/碳化硅异质界面热导的影响

首先固定氮化镓和碳化硅的层数均为 12 层, 石墨烯的层数为单层 (1 层) 和多层 (3 层), 外界环境温度为 300—1100 K, 界面热导计算结果如图 3 所示, 单层、多层石墨烯下的界面热导均随着温度的升高而增大, 但单层石墨烯的界面热导始终大于多层热导, 且上升趋势类似, 与文献 [6, 21] 中随温度升高时界面热导的变化情况一致. 当温度从 300 K 升高到 1100 K 时, 单层石墨烯下的界面热导从 0.047 GW/(m²·K) 增大到 0.134 GW/(m²·K), 多层石墨烯下的界面热导从 0.028 GW/(m²·K) 增大到 0.066 GW/(m²·K). 分析认为当较低温度时, 边界散射作用强, 声子热输运受阻; 随着温度升高晶格振动随之加剧, 原子和分子的振动会变得更加剧烈, 晶格振动的能量也增加, 这使得原子之间的相互作用变得更强, 由于 3 种材料之间存在很强的相互作用, 使得针对这种结构具有高能量的低频声子相互交换的概率很小, 导致声子在不同材料之间传递的散射减少, 参与热输运声子数量增加, 载流

子声子散射也随之减弱, 削弱边界散射作用, 能量交换更频繁, 提高热传递效率, 有利于声子的运输, 从而提高界面热导.

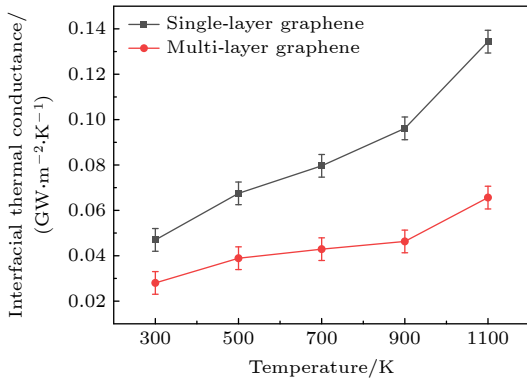


图3 单层石墨烯和多层石墨烯下界面热导与温度变化的关系

Fig. 3. Relationship between interfacial thermal conductance and temperature change under single-layer graphene and multi-layer graphene.

为进一步分析阐述界面热导随温度变化情况, 计算石墨烯为单层时的氮化镓/石墨烯/碳化硅异质结构的 PDOS 以及重叠因子, 如图 4 所示. 图 4(a) 中氮化镓层 PDOS 有很高的重叠, 表明氮化镓层的声子对温度的变化不敏感; 图 4(b) 中石墨烯层 PDOS 随着温度的升高, 在低频 (约 8 THz) 处的态密度由上升趋势演变出一个峰, 在低频 (约 10 THz) 处的峰值随着温度升高先减小然后向右偏移增大, 在频率 16 THz 处的峰值随着温度升高明显减少, 但随着温度升高 PDOS 向右偏移, 占据更宽的频率区域, 增大与氮化镓层、碳化硅层的声子重叠. 图 4(c) 中碳化硅 PDOS 在频率 20 THz 处存在一个波谷, 其值随温度的升高严格增大, 中频 (约 26 THz) 处峰值随温度升高严格减小. 根据 PDOS 的重叠因子可以发现当温度从 300 K 升高到 1100 K 时, 重叠因子从 1.859×10^{-4} 增大到 2.235×10^{-4} . 随着温度升高, PDOS 重合度也随之逐渐升高, 声子匹配数量开始增加, 界面热输运能力增强, 因此随着温度升高界面热导整体呈上升趋势.

3.2 尺寸对氮化镓/石墨烯/碳化硅异质界面热导的影响

主要分析氮化镓/石墨烯/碳化硅异质结构下其界面热导分别与氮化镓、碳化硅以及石墨烯之间的关系. 这里只分析对称结构, 当石墨烯层数为 1,

温度为 300 K 时, 氮化镓和碳化硅层数同时从 8 层增加到 28 层; 当氮化镓和碳化硅层数为 12 层时, 石墨烯层数从 1 层增加到 5 层, 界面热导计算结果如图 5 所示.

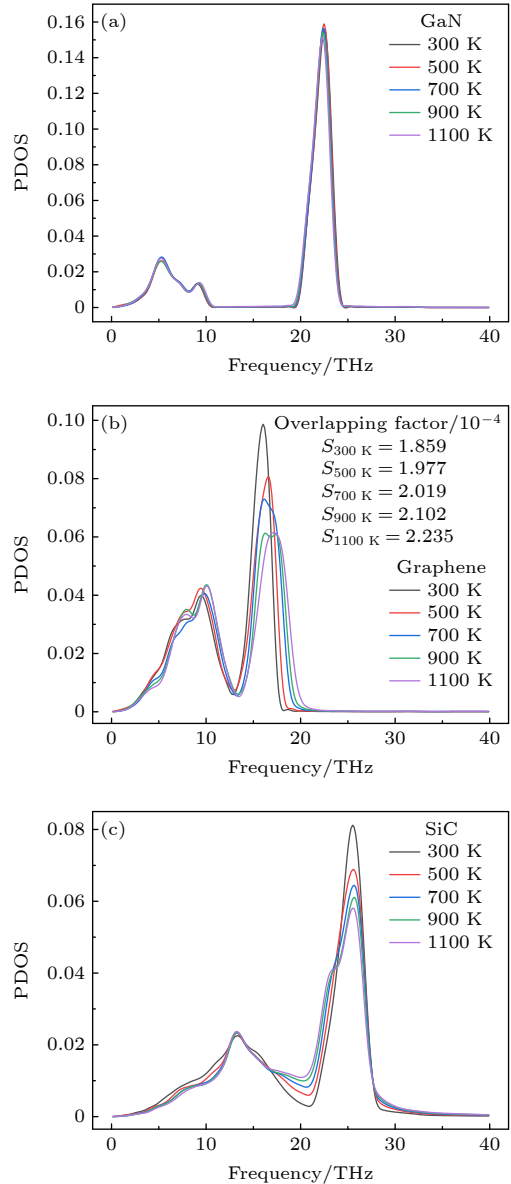


图4 温度变化下石墨烯为单层时异质界面结构中各组件的 PDOS 图 (a) 氮化镓; (b) 石墨烯; (c) 碳化硅

Fig. 4. PDOS plot of each component in heterogeneous interface structure when graphene is a single layer under temperature change: (a) GaN; (b) Graphene; (c) SiC.

当增加氮化镓和碳化硅的层数时, 界面热导始终在 $0.045 \sim 0.047 \text{ GW}/(\text{m}^2 \cdot \text{K})$, 对比整体热输运随尺寸增加而减小的性质, 界面热导在氮化镓/碳化硅层数为 8—28 层时, 受结构尺寸的影响不大, 并且在考虑误差的影响下, 利用数据分析软件 (SPSS)^[34] 计算其相关性系数为 0.107, 可以发现热

流方向的尺寸与界面热输运性质的相关性很弱, 在其他类似的研究^[4]中也发现此结论. 分析认为在 8 层氮化镓和氮化硅以及单层石墨烯的结构尺寸下包括异质界面中所有重要的声子热输运模式, 超过声子平均自由程, 界面热输运的声子散射几乎不受影响. 为进一步验证该结论, 计算氮化镓和碳化硅层数变化的 PDOS, 如图 6 所示, 氮化镓层的低频声子变化不明显, 石墨烯层在 8 和 10 THz 两处随之形成波峰, 但呈现的是无规律变化. 氮化镓和碳化硅层数为 8 层时, 碳化硅层中在 7 和 13 THz 出的 PDOS 值相对其他层数的 PDOS 值更为突出, 在 11 THz 处最低. 随着氮化镓和碳化硅层数的变化 PDOS 变化毫无规律, 相同之处在于高频声子几乎没有变化, 可以结合重叠因子的变化规律分析解释界面热导的变化, 由重叠因子可以看出低频声子的匹配率变化不大, 因此可以解释界面热导的变化与氮化镓、碳化硅的层数变化无关.

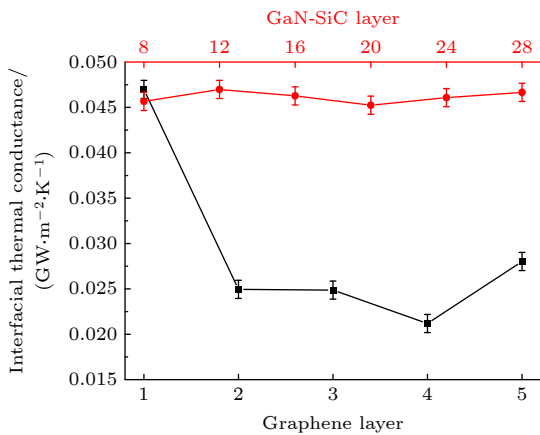


图 5 界面热导与氮化镓/碳化硅和石墨烯层数变化的关系
Fig. 5. Relationship between interfacial thermal conductance and change in number of layers of gallium nitride/silicon carbide and graphene.

而对于中间石墨烯层数变化有着与之不同的结论, 当石墨烯层从 1 层增加到 5 层时, 在 4 层时界面热导最低, 界面热导从 0.047 $\text{GW}/(\text{m}^2\cdot\text{K})$ 下降到 0.021 $\text{GW}/(\text{m}^2\cdot\text{K})$ 左右, 然后再小幅上涨到 0.028 $\text{GW}/(\text{m}^2\cdot\text{K})$, 这主要是因为随着石墨烯层的增加, 界面面积增加, 界面声子散射也随之增加, 进而增加界面热阻, 导致界面热导下降. 由于石墨烯是由单层碳原子组成的二维材料, 具有很高的热导率, 其单层结构允许光子和声子在材料中自由传播. 但当多个石墨烯层叠加时, 层与层之间的相互作用会影响热输运性能, 从而导致界面热导的降

低. 具体来说, 在两层石墨烯之间的界面处存在一些物理和几何特性, 如界面结构和距离, 影响着热传导的速率和方式. 并且当层数增加时, 层与层之间的相互作用变化, 这种相互作用会限制热传导, 增加界面热阻. 因此, 多层石墨烯下的界面热导相对于单层而言会显著降低.

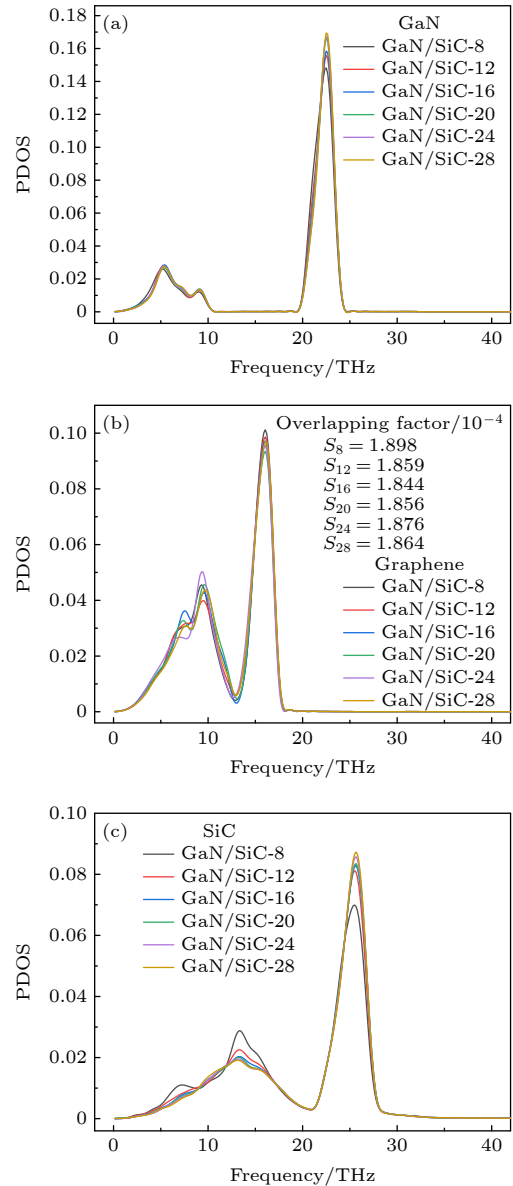


图 6 氮化镓/碳化硅层数变化的 PDOS 图 (a) 氮化镓; (b) 石墨烯; (c) 碳化硅

Fig. 6. PDOS plot of GaN/SiC layer number change: (a) GaN; (b) Graphene; (c) SiC.

而后界面热导的上升则需要进一步分析声子模式的状态, 由于氮化镓层和碳化硅层没有改变, 可以忽略氮化镓层和碳化硅层的 PDOS 变化, 针对石墨烯层数变化的 PDOS 如图 7(a) 所示. 在低频区域 (0—10 THz) 内, 氮化硅与碳化硅的 PDOS

重合的区域始终在石墨烯低频声子下方, 并且石墨烯高频声子几乎不随石墨烯层数变化而变化, 石墨烯的声子模式改变几乎没有影响 PDOS 重合度, 重叠因子的大小无规律性. 因此, 为进一步解释其界面热导的变化规律, 只计算 1 层、4 层以及 5 层石墨烯的 PPR, 如图 7(b) 所示, 可以发现在低频区域 (0—30 THz) 下, 在 $PPR > 0.3$ 的范围中, 1 层石墨烯的 PPR 值最大, 然后是 5 层石墨烯, 最后是 4 层, 表明参与热运输的声子的数量先减少后增多. 而在 $PPR < 0.3$ 的范围中, 相较于 1 层石墨烯, 4 层有更多的声子从离域进入局域, 其次是 5 层, 这说明 4 层和 5 层石墨烯有更多的声子局域化, 参与传热的声子数量减少, 传热堵塞效应增加, 声子散射也随之增强, 声子热运输受阻加重. 因此界面热导先减小后缓慢增大.

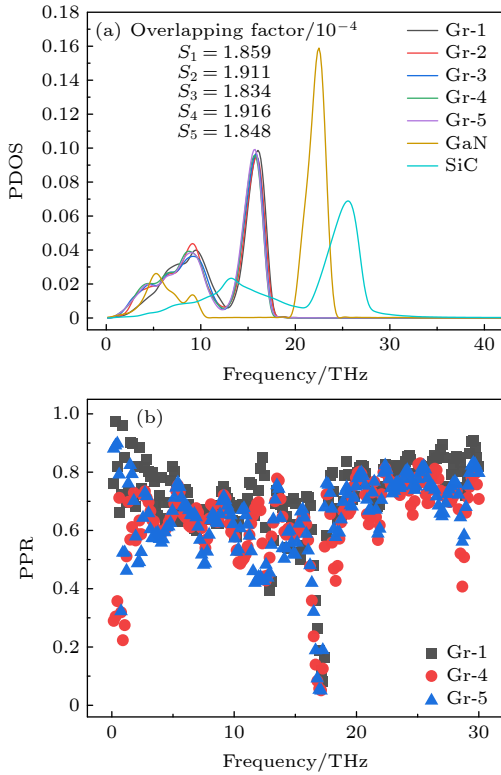


图 7 (a) 石墨烯层数变化的 PDOS 图; (b) 石墨烯层数变化的 PPR 图
 Fig. 7. (a) PDOS plot of graphene layer number change; (b) PPR plot of graphene layer number change.

3.3 单、双空位缺陷浓度对氮化镓/石墨烯/碳化硅异质界面热导率的影响

当温度为 300 K 时分析 SV 和 DV 缺陷对单层石墨烯的氮化镓/石墨烯/碳化硅异质界面热导率的影响, 计算缺陷浓度为 0—16% 下的界面热导,

其结果如图 8 所示. 随着缺陷浓度的增加, 界面热导率先增加后减小. 在 300 K 时无缺陷界面热导为 $0.047 \text{ GW}/(\text{m}^2 \cdot \text{K})$, 当 SV 缺陷浓度增加到 10% 时, 界面热导增大到最大值 $0.064 \text{ GW}/(\text{m}^2 \cdot \text{K})$, 之后随着 SV 缺陷浓度增大开始减小; 然而与 SV 缺陷不同的是, 当 DV 缺陷浓度增加到 12% 时, 界面热导达到最大值, 为 $0.065 \text{ GW}/(\text{m}^2 \cdot \text{K})$, 然后才开始减小.

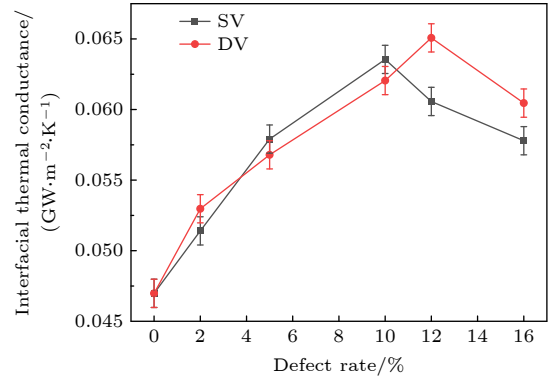


图 8 界面热导与空位缺陷浓度变化的关系
 Fig. 8. Relationship between interface thermal conductance and vacancy defect concentration change.

为分析异质界面热导的变化, 根据氮化镓/石墨烯/碳化硅异质界面的声子振动模式频率数量分布的变化情况, SV 和 DV 缺陷浓度变化的 PDOS 曲线如图 9(a) 和图 9(b) 所示. 由图 9(a) 可以发现, 随着 SV 缺陷浓度的增加, 在低频区域 (0—30 THz) 中, 10 THz 左右的波峰开始下降, 并且向左偏移, 当缺陷浓度为 5% 时在 5 和 8 THz 形成两个波峰; 当缺陷浓度为 10% 时, 频率达到最低, 在 3 THz 左右再次并成一个波峰, 随着缺陷浓度再次增大, 峰值也随之下降并且往右偏移; 而在 13—18 THz 频率区域内, PDOS 峰值降低, 出现声子软化现象, 声子速度下降, 低频声子数量增多, 不同的是在缺陷浓度高于 10% 时, PDOS 波峰在逐渐消失, 声子频率横跨区域变宽, 高频、低频声子数量都增多. 而 DV 缺陷 PDOS 与 SV 缺陷有所不同, 在图 9(b) 中随着 DV 缺陷的浓度增加, 在 0—7 THz 频率范围内的 PDOS 值上升开始加快, 10 THz 左右的波峰先上升后下降最后消失, 并且 7 THz 左右新形成两个峰往左偏移, 在 5 THz 左右缺陷浓度 12% 时两个峰合成 1 个, 其 PDOS 峰值最大, 然后随着缺陷浓度增大到 16% 再次分成两个峰; 在 13—18 THz 频率区域内, PDOS 峰值严格降低, 导致

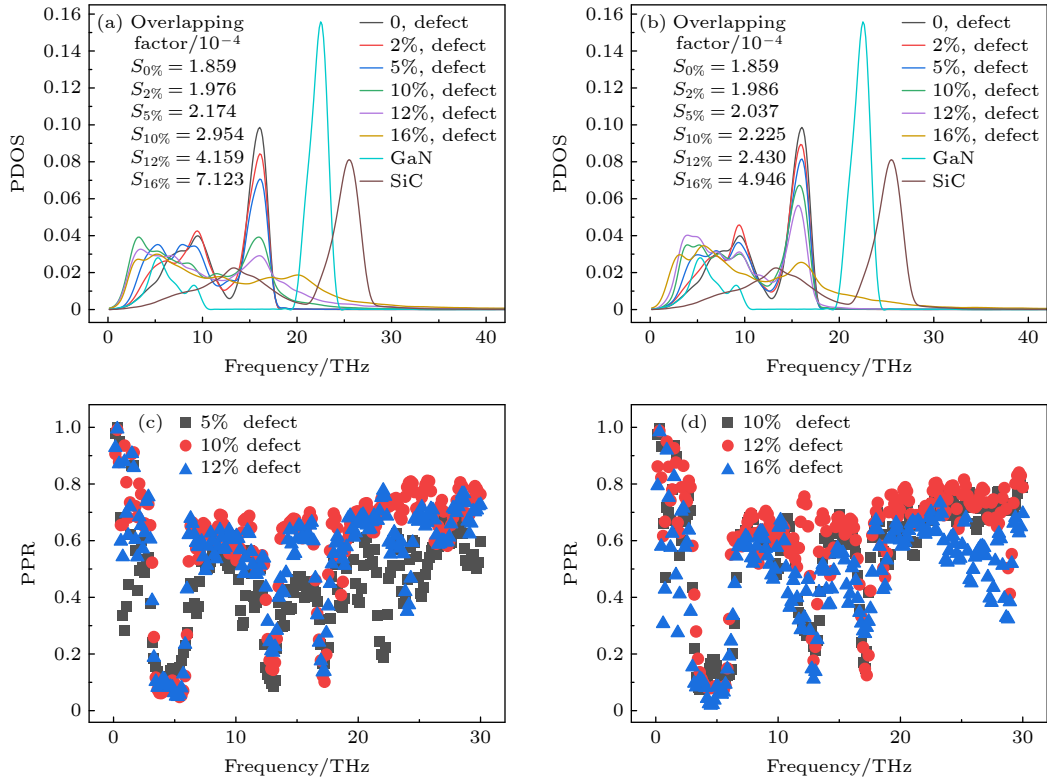


图 9 (a) SV 缺陷和 (b) DV 缺陷浓度变化的 PDOS 图; (c) SV 缺陷和 (d) DV 缺陷浓度变化的 PPR 图

Fig. 9. PDOS plot of (a) SV defect and (b) DV defect with change in vacancy defect concentration; PPR plot of (c) SV defect and (d) DV defect with change in vacancy defect concentration.

低频声子数量增多. 由于界面热输运主要靠低频声子, 并且 SV 和 DV 缺陷浓度都可以从重叠因子快速增长看出, 石墨烯层的声子模式和氮化镓、碳化硅层的重叠因子变化趋势与界面热导率吻合, 因此声子模式的变化结合重叠因子可以解释石墨烯层缺陷浓度作用下界面热导的变化规律.

为进一步证实缺陷浓度变化出现的界面热导率峰值, 图 9(c) 和图 9(d) 给出 PPR 变化情况. 在低频 (0—30 THz) 区域中, PPR > 0.3 范围内, 可以看出 SV 缺陷浓度在 10% 时 PPR 有更多更高的峰, 其次是 12%, 最后是 5%, 这说明参与热输运的声子数量先增多后减少; 而在 PPR < 0.3 范围内, 5% SV 缺陷浓度下更多的声子从离域进入局域, 其次是 12%. 对于 SV 缺陷浓度 10% 来说, 5% 和 12% 受传热堵塞的原子数量增加, 声子散射也随之增加, 热输运受限, 因此界面热导先增加后减少. 对于缺陷浓度 12% 来说, 5% 受传热堵塞的原子数量增加, 缺陷浓度 12% 的界面热导高于 5%. DV 缺陷作用下的界面热导变化分析与 SV 缺陷类似, 在 12% DV 缺陷浓度下参与热输运声子数量最多, 热输运受限制程度低, 因此 DV 缺陷浓度为 12%

时, 界面热导最大, 其次是 16% DV, 最后是 10% DV. 结果表明适当的缺陷浓度可以提高氮化镓/石墨烯/碳化硅异质界面热导.

4 结 论

本文通过非平衡分子动力学对氮化镓/石墨烯/碳化硅异质界面热输运性质进行分析, 从温度、尺寸以及单、双空位缺陷浓度三个方面探讨其对界面热导率的影响, 并且引入 PDOS 和 PPR 结合重叠因子从微观声子模式振动阐明界面热导变化的原因, 得到结论如下:

1) 在温度影响下, 单层、多层石墨烯异质中间层下的界面热导均随着外界环境温度升高而增大, 主要归因于低频区域 (0—20 THz) 内的 PDOS 随着温度升高而增加, 参与界面热输运的声子数量增加, 声子散射作用增强, 有利于声子热输运. 而且单层石墨烯下的界面热导随温度升高的速率明显高于多层石墨烯.

2) 在热输运方向的结构尺寸影响下, 随氮化镓-碳化硅层数增加界面热导并无明显变化, 而随

着石墨烯层数从 1 层增加到 5 层, 界面热导先逐渐减小后缓慢增大, 在 4 层时界面热导达到最低, 主要原因是在石墨烯层数为 4 层时, 在 0—20 THz 更多的声子从离域进入局域, 声子局域化, 使得传热堵塞效应增加, 参与热运输的声子减少, 声子热运输受限制更严重.

3) 在单、双空位缺陷的影响下, 界面热导均随着缺陷浓度的增加先增大后减小, 是因为在 0—20 THz 范围内的 PDOS 随着缺陷浓度增加而增加, 但随着浓度再增加, 更多的声子局域化, 不参与热运输. 不同的是 SV 缺陷在浓度为 10% 时, 界面热导率达到最大值 $0.064 \text{ GW}/(\text{m}^2 \cdot \text{K})$; 而 DV 缺陷在浓度为 12% 时, 界面热导率达到最大值 $0.065 \text{ GW}/(\text{m}^2 \cdot \text{K})$.

研究表明: 从温度、尺寸以及缺陷浓度方面可以调控异质界面热运输特性, 有利于以氮化镓为基础的微型纳米器件热设计, 促进半导体材料应用工艺的发展.

参考文献

- [1] Lee J Y, Shin J H, Lee G H, Lee C H 2016 *Nanomaterials (Basel)* **6** 193
- [2] Liu Y, Fang Y, Yang D, Pi X, Wang P 2022 *J. Phys. Condens. Matter.* **34** 183001
- [3] Xu H, Akbari M K, Zhuiykov S 2021 *Nanoscale Res. Lett.* **16** 94
- [4] Islam M S, Mia I, Ahammed S, Stampfl C, Park J 2020 *Sci. Rep.* **10** 22050
- [5] Zanane F Z, Sadki K, Drissi L B, Saidi E H 2022 *J. Mol. Model.* **28** 88
- [6] Wu D, Ding H, Fan Z Q, Jia P Z, Xie H Q, Chen X K 2022 *Appl. Surf.* **581** 152344
- [7] Li M, Zheng B, Duan K, Zhang Y, Huang Z, Zhou H 2018 *J. Phys. Chem. C* **122** 14945
- [8] Littlejohn A J, Xiang Y, Rauch E, Lu T M, Wang G C 2017 *J. Appl. Phys.* **122** 185305
- [9] Utama M I B, de la Mata M, Magen C, Arbiol J, Xiong Q 2013 *Adv. Funct. Mater.* **23** 1636
- [10] Balandin A A 2011 *Nat. Mater.* **10** 569
- [11] Yan Z, Liu G, Khan J M, Balandin A A 2012 *Nat. Commun.* **3** 827
- [12] Kim Y, Cruz S S, Lee K, Alawode B O, Choi C, Song Y, Johnson J M, Heidelberg C, Kong W, Choi S, Qiao K, Almansouri I, Fitzgerald E A, Kong J, Kolpak A M, Hwang J, Kim J 2017 *Nature* **544** 340
- [13] Zollner C J, Almogbel A, Yao Y, SaifAddin B K, Wu F, Iza M, DenBaars S P, Speck J S, Nakamura S 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 161101
- [14] Xu Y, Wang J, Cao B, Xu K 2022 *Chin. Phys. B* **31** 117702
- [15] Al Balushi Z Y, Miyagi T, Lin Y C, Wang K, Calderin L, Bhimanapati G, Redwing J M, Robinson J A 2015 *Surf. Sci.* **634** 81
- [16] Feldberg N, Klymov O, Garro N, Cros A, Mollard N, Okuno H, Gruart M, Daudin B 2019 *Nanotechnology* **30** 375602
- [17] Fernandez-Garrido S, Ramsteiner M, Gao G, Galves L A, Sharma B, Corfdir P, Calabrese G, de Souza Schiaber Z, Fuller C, Trampert A, Lopes J M J, Brandt O, Geelhaar L 2017 *Nano Lett.* **17** 5213
- [18] Puybaret R, Patriarche G, Jordan M B, Sundaram S, El Gmili Y, Salvestrini J P, Voss P L, de Heer W A, Berger C, Ougazzaden A 2016 *Appl. Phys. Lett.* **108** 103105
- [19] Xu Y, Cao B, Li Z, Zheng S, Cai D, Wang M, Zhang Y, Wang J, Wang C, Xu K 2019 *Cryst. Eng. Comm.* **21** 6109
- [20] Hu M, Poulidakos D 2013 *Int. J. Heat Mass Transfer* **62** 205
- [21] Yang B, Yang H, Li T, Yang J, Yang P 2021 *Appl. Surf. Sci.* **536** 147828
- [22] Liu D J, Wang S M, Yang P 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 187302 (in Chinese) [刘东静, 王韶铭, 杨平 2021 物理学报 **70** 187302]
- [23] Xiong Y, Wu H, Gao J, Chen W, Zhang J, Yue Y 2019 *Acta Phys. Chim. Sin.* **35** 1150
- [24] Yang Y, Ma J, Yang J, Zhang Y 2022 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **14** 45742
- [25] Teshome T, Datta A 2017 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **9** 34213
- [26] Liu Z, Su Z, Li Q, Sun L, Zhang X, Yang Z, Liu X, Li Y, Yu F, Zhao X 2019 *RSC Adv.* **9** 32226
- [27] Stillinger F H, Weber T A 1985 *Phys. Rev. B* **31** 5262
- [28] Liu D J 2020 *Phys. Lett. A.* **384** 126077
- [29] Li M, Zhang J C, Hu X J, Yue Y N 2015 *Appl. Phys. A.* **119** 415
- [30] Farago O 2019 *Physica A* **534** 122210
- [31] Ye Z Q, Cao B Y, Guo Z Y 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 154704 (in Chinese) [叶振强, 曹炳阳, 过增元 2014 物理学报 **63** 154704]
- [32] Han D, Wang X, Ding W, Chen Y, Zhang J, Xin G, Cheng L 2019 *Nanotechnology* **30** 075403
- [33] Guo Y, Bescond M, Zhang Z, Xiong S, Hirakawa K, Nomura M, Volz S 2021 *APL Materials* **9** 091104
- [34] Schulz J 2003 *J. Reprod. Infant. Psyc.* **21** 363

Molecular dynamics of heat transport properties at gallium nitride/graphene/silicon carbide heterointerface*

Liu Dong-Jing[†] Zhou Fu Chen Shuai-Yang Hu Zhi-Liang

(College of Mechanical and Electrical Engineering, Guilin University of Electronic Technology, Guilin 541004, China)

(Received 6 April 2023; revised manuscript received 9 May 2023)

Abstract

In order to study the thermal transport properties of heterogeneous gallium nitride/graphene/silicon carbide interface, the effects of temperature, size and vacancy defects on the thermal conductance of the interface are investigated by non-equilibrium molecular dynamics method, and the effects of changes of phonon state density and phonon participation rate on the thermal conductance of the interface are further analyzed. The results show that the thermal conductance of the interface increases with temperature increasing. The analysis shows that as temperature rises, the lattice vibration intensity, the density of low frequency phonon states, and the number of phonons involved in heat transport all increase. The change of thermal conductance at the interface of single-layer graphene is higher than that of multi-layer graphene. When the structural size of the heat transport direction is changed and the number of layers of gallium nitride and silicon carbide are changed at the same time, the thermal conductance at the interface does not change significantly, and the phonon scattering of the thermal transport at the interface is almost unaffected. However, as the number of graphene interlayers increases from the first layer to the fifth layer, the interface thermal conductance first decreases and then slowly increases. Because of the fourth layer, the participation rate of low frequency phonons decreases, more phonons are localized, and the number of phonons that do not participate in heat transfer increases, and the interfacial thermal conductance reaches a minimum value of 0.024 GW/(m²·K). As the vacancy defect concentration increases, the interfacial thermal conductance first increases gradually and then decreases. The difference is that when the concentration of single vacancy defects is 10%, the interface thermal conductance reaches a maximum value of 0.063 GW/(m²·K). When the concentration of double vacancy defects is 12%, the interfacial thermal conductance reaches a maximum value of 0.065 GW/(m²·K). The analysis shows that more phonons enter into the delocalisation from the local region and more phonons participate in the heat transfer, leading to the increase of the interface thermal conductance. The results are useful in adjusting the thermal transport performance of GaN devices and provide a theoretical basis for designing the devices with heterogeneous interfaces.

Keywords: heterogeneous interface thermal conductance, temperature effect, size effect, vacancy defect

PACS: 79.60.Jv, 65.80.Ck, 02.70.Ns, 68.55.Ln

DOI: 10.7498/aps.72.20230537

* Project supported by the Guangxi Key Laboratory of Manufacturing System Project, China (Grant No. 22-35-4-S017) and the Guangxi University Young and Middle-aged Teachers Research Basic Research Ability Improvement Project, China (Grant No. 2022KY0207).

[†] Corresponding author. E-mail: ldj168168@126.com

氮化镓/石墨烯/碳化硅异质界面热输运特性的分子动力学研究

刘东静 周福 陈帅阳 胡志亮

Molecular dynamics of heat transport properties at gallium nitride/graphene/silicon carbide heterointerface

Liu Dong-Jing Zhou Fu Chen Shuai-Yang Hu Zhi-Liang

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 157901 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20230537

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230537>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

石墨烯/碳化硅异质界面热学特性的分子动力学模拟

Thermal property of graphene/silicon carbide heterostructure by molecular dynamics simulation

物理学报. 2021, 70(18): 187302 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210613>

尺寸效应对微通道内固液界面温度边界的影响

Size effect on boundary condition at solid-liquid interface in microchannel

物理学报. 2019, 68(2): 020201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181876>

离子辐照对磷烯热导率的影响及其机制分析

Effect of ion irradiation on thermal conductivity of phosphorene and underlying mechanism

物理学报. 2022, 71(5): 056101 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211857>

高应变率下温度对单晶铁中孔洞成核与生长影响的分子动力学研究

Molecular dynamics simulation of effect of temperature on void nucleation and growth of single crystal iron at a high strain rate

物理学报. 2019, 68(24): 246102 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190920>

PS3000-b-PAA5000球形胶束温度效应的原位小角X射线散射技术研究

Temperature dependence of spherical micelles of PS3000-b-PAA5000 studied by in-situ small angle X-ray scattering

物理学报. 2018, 67(4): 048301 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172167>

冲击加载下环三亚甲基三硝胺的初始动态响应及反应机理

Initial dynamic response and reaction mechanism of cyclotrimethylenetrinitramine under shock loading

物理学报. 2021, 70(15): 158202 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201279>