

带孔硅纳米薄膜热整流及声子散射特性研究*

鞠生宏 梁新刚†

(清华大学航天航空学院, 热科学与动力工程教育部重点实验室, 北京 100084)

(2012年7月20日收到; 2012年8月28日收到修改稿)

本文基于非平衡的分子动力学模拟方法计算了带有三角形孔的硅纳米薄膜的界面热阻特性, 结果表明 300—1100 K 范围内随着热流方向的改变, 在含有三角形孔的硅纳米薄膜中存在热整流效应, 热整流系数达 28%. 同时借助于声子波包动力学模拟方法, 获得了不同频率下的纵波声子在三角形孔处的散射特性, 结果表明纵波声子在散射过程中产生了横波声子, 并且从三角形底部向顶部入射的声子能量透射系数比反向时平均低 22%. 不对称结构引起的声子透射率的差异是引起热整流效应的主要因素.

关键词: 热整流, 三角形孔, 声子散射, 界面热阻

PACS: 61.46.-w, 65.80.-g, 63.20.kp, 68.35.-p

DOI: 10.7498/aps.62.026101

1 引言

热整流是指热量传递依赖于温度梯度或者热流方向的一种特殊传热现象^[1], 在电子器件热控及节能等领域具有巨大的潜在应用价值, 探索热整流的影响因素及其背后的作用机理十分必要. 在电子学领域存在二极管器件, 二极管使得电流只能在某个方向导通, 反向时电流则完全被截止. 在热学领域, 与电二极管相对应的应当是热二极管. 但是尽管导电和导热过程具有类似性, 到目前为止还没有真正能够实现热二极管功能的器件诞生. 作为导电及导热的主要载体, 电子和声子的特性存在明显差异, 这是导致目前热二极管无法实现的主要原因. 目前大部分的研究主要集中在部分实现热二极管的功能, 即热整流器. 热整流一般表现为热阻特性与热流方向有关, 因此可基于热阻特性的研究来设计热整流器. 由于热整流效应在纳米器件热设计中潜在运用价值巨大, 因而备受研究关注.

在过去十年国内外已有不少关于热整流的文献报道, 如 Terraneo 等人^[2]研究了非线性一维原子链中的热整流效应, 发现通过控制势能参数可以实现一维原子链从热的导体到绝缘体的转变. 随后研究人员针对一维原子链展开了大量研究^[3,4], 为

设计更现实的热整流器提供了理论基础. Wang 和 Liang^[5]在纳米复合薄膜法向热导率的模拟中观察到了反向异性热导率的现象, 随着两种材料原子质量差异的增加, 反向异性更加明显. Ju 等人^[6]研究了双层薄膜中的热整流效应, 发现热整流不仅仅取决于界面两侧材料的态密度重叠度, 还与两侧材料的频谱分布相关. Hu 等人^[7]和 Yang 等人^[8]利用分子动力学模拟的方法计算了非对称石墨烯结构中的热整流效应, 发现在截面变小的方向上热阻更小. 随后在非对称的碳纳米管^[9]、拓扑结构的纳米器件^[10]、变截面的硅纳米薄膜^[11]中均发现了热整流效应. 热整流现象同样引起了国内学者的关注, 如岳宝^[12]在模拟截面积具有台阶变化的纳米薄膜热导率时, 也观察到了热整流的现象, 且截面积变化越大, 热整流效应越明显. 孙麟^[13]模拟观察到在纳米管径向方向存在反向异性的热导率. 张茂平等^[14]采用非平衡的分子动力学研究了非对称的双链分子结构中的热整流特性. 张九如等人^[15]研究了不同固体材料接触界面的热整流现象, 发现两种材料热传导系数不同时, 能量传导系数越大, 热整流现象越明显. 王军等人^[16]研究了碰撞效应对热整流的影响. 实验研究方面, 目前实际测量已证实

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2012CB933200) 和国家自然科学基金 (批准号: 51176091) 资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: liangxg@tsinghua.edu.cn

在宏观尺度和纳米尺度均存在热整流效应^[17-19]. Kobayashi 等人^[17] 依据体材料热导率的温度依赖特性设计了热整流器, Sawaki 等人^[18] 利用模拟及实验的方法分别验证了锥形氧化钴体材料中存在热整流效应. Chang 等人^[19] 测量了原子质量分布不对称的纳米管的热导, 发现热流方向逆转后获得的热导最大差别可达 7%, 并且热流沿质量减小的方向上传递时热导最大.

本文主要依据结构不对称性可引起热整流效应的特点, 设计了含有三角形孔结构的硅纳米薄膜, 利用非平衡的分子动力学模拟方法计算了不同温度下三角形孔的热阻特性, 考察了三角形孔的热整流效应. 同时借助于声子波包动力学模拟方法, 获得了不同频率下的声子在三角形孔处的散射特性, 尝试从声子能量透射率的角度解释热整流效应.

2 模拟方法

硅材料在微电子领域以及新能源领域有着广泛的应用, 因此选取硅作为本文的模拟对象. 根据硅原子的金刚石结构类型, 本文选取了常用的 Stillinger-Weber(S-W) 三体势来描述硅原子间的相互作用. 模拟薄膜的厚度 (Z 方向) 为 50 UC(UC 为晶胞长度, $1 \text{ UC} = 5.4309 \text{ \AA}$), 截面积为 $10 \text{ UC} \times 2 \text{ UC}$, 三角形孔位于薄膜的正中央 (如图 1 所示), 底部长 8 UC, 高 4 UC, 整个模型结构在模拟中采用全三维的周期性边界条件.

在每次模拟之前将一个随机的、满足波尔兹曼速度分布的初始速度赋给计算区域中的各个原子. 采用速度 Verlet 算法来求解运动方程, 模拟的时间步长 Δt 设为 1 fs. 系统首先在 NPT 系综 (固定原子数 N , 压强 P , 温度 T) 下进行弛豫平衡以到达预期设定的温度和压强, 其后在 NVE 系综 (固定原子数 N , 体积 V , 能量 E) 下进行弛豫. 通常每次模拟时间段为 2.6 ns, 其中 0.6 ns 用来使系统弛豫到一个稳定平衡的状态, 其余则用来作统计分析.

2.1 Müller-Plathe 方法

分子动力学模拟计算材料热导率的方法一般分为平衡 (EMD) 和非平衡 (NEMD) 两种, 本文采用 NEMD 中的 Müller-Plathe(M-P) 方法^[20]. M-P 方法计算薄膜热导率的主要思想是将薄膜沿热流传递方向分成 N 层, 分别找出第一层中原子速度最大

以及中间层中原子速度最小的原子, 交换这两个原子的速度, 并通过控制交换的频率和每次交换的次数, 产生相应的温度梯度. 该方法既保持了模拟系统动量守恒, 又保持了系统能量守恒, 不再需要涉及传统的 NEMD 中复杂的热浴过程. 速度交换产生的热流 j_z 则通过统计单位时间单位面积内能量的交换量获得,

$$j_z = \frac{1}{2tA} \sum_{\text{exchange}} \frac{m}{2} (v_{\text{hot}}^2 - v_{\text{cold}}^2), \quad (1)$$

其中 t 为时间, A 为模拟系统在热流方向上的横截面积, m 为原子质量, v_{hot} 和 v_{cold} 分别是用于交换的两个原子的速度.

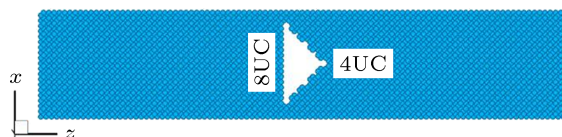


图 1 带三角形孔的硅纳米薄膜结构示意图

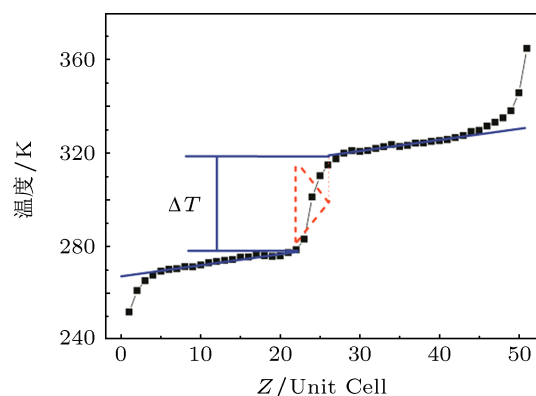


图 2 带孔硅纳米薄膜典型温度分布

根据 M-P 方法得到的含三角形孔的硅纳米薄膜的典型温度分布如图 2 所示, 可以看出在三角形孔处存在明显的温度降, 此时孔的热阻 R_{hole} 则可通过下式计算得到:

$$R_{\text{hole}} = \frac{\Delta T}{j_z}, \quad (2)$$

其中 ΔT 为温度降, j_z 为速度交换产生的热流密度大小. 为了使模拟计算的相对误差更小, 本文利用加热区两侧的温度降分别计算出热阻大小, 并取平均值作为最终结果.

2.2 声子波包模拟方法

声子波包模拟的思路就是预先设计好一个固定频率的声子波包信号, 根据此信号可以得到相应原子的初始位移和初始速度, 将初始速度和位移赋给分子模拟中的每个原子, 借助于传统分子动力学的方法来研究某个频率下的声子在材料中的传播. 预设的初始波包位移信号一般可以通过下式给定^[21]:

$$u_i = B \varepsilon_i(k_o) \exp[ik_o(z_i - z_o)] \times \exp[-\eta^2(z_i - z_o)^2], \quad (3)$$

其中 u_i 代表第 i 个晶胞中原子的位移分量, ε_i 为极化矢量值, B 为位移幅值, η 用来控制波包的宽度, z_o 代表波包中心位置, z_i 代表原子 i 的 z 方向位置. 而初始速度信号则通过在上式中加入时间项并对时间求一阶导数即可. 为了针对某一特定材料设定相应频率的声子波包, 首先需要获得相应材料的色散关系, 严格按照色散关系来构建特定波矢 k_o 和频率下的声子波包. 本文主要涉及声子色散关系中纵波声学支上的声子界面特性研究. 整个模拟过程中势能函数同样选用了常用的 S-W 三体势, 模拟细节与前面 M-P 方法计算完全相同.

利用声子波包模拟的方法可以深入研究不同频率的声子在不同界面的散射特性. 图 3 给出了一个典型的声子波包穿透三角形孔的详细过程. 如将三角形孔等效为一个界面, 从图中可以看出, 声子波包经过界面的散射, 部分透射到界面另一侧, 而其余则被反射回入射一侧. 根据穿透界面前后两侧声子波包动能的变化可以计算出声子能量透射系数. 本文中关于界面能量透射系数的计算都是根据动能变化计算得到.

3 结果及讨论

3.1 三角形孔的热整流特性

在不同的热流方向下, 考察了三角形孔热阻在 300—1100 K 范围内随温度的变化趋势, 结果如图 4 所示. 可以看出三角形孔引起的界面热阻量级为 $10^{-9} \text{ m}^2 \cdot \text{K} \cdot \text{W}^{-1}$. 无论热流从三角形底部流向顶部, 还是从顶部流向底部, 随着温度的升高三角形孔的热阻大小都出现明显的降低. Ju 等人^[6] 将双层复合薄膜的界面热阻视为界面温度、材料、薄膜厚度和热流方向的函数, 发现界面热阻与界面温度有

关, 且界面温度越高, 界面热阻越小, 这与本文模拟得到的三角形孔热阻温度特性相类似. 一般情况下, 当温度升高时, 声子数目会增加, 相应地穿透界面的声子数和能量也会增加, 因此界面热阻将会减小.

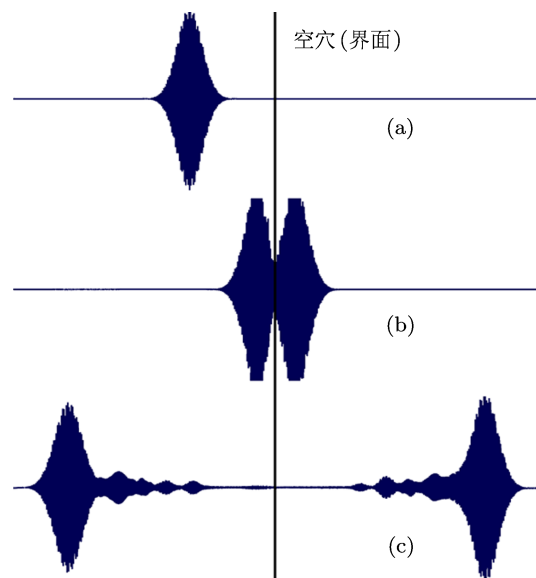


图 3 声子波包在三角形孔处的散射过程

从图 4 中还可以看出, 当热流从三角形底部流向顶部时, 三角形孔引起的热阻要比热流方向相反时平均大约 28%, 这意味着在含有三角形孔的硅纳米薄膜中存在明显的热整流效应, 并且低温时的热整流较高温时要大些. 非导电材料中的传热就是声子能量的传递, 可以从流体力学结构流动阻力的角度理解这一现象: 当热流从三角形底部流向顶部时, 等效于流体流经一个突缩通道, 此时的流动阻力较大; 而当热流反向时, 则等效于流体流经一个渐缩通道, 此时流动阻力较前者小. 因此三角形孔的热阻与热流方向相关.

3.2 三角形孔的声子散射特性

传统的分子动力学模拟往往只能得到声子全频域的界面导热特性, 并不能深层次揭示作用机理和频率/波长的影响, 这就导致了在解释某些结果时不能更深入一步讨论分析. 前面从流体力学流动阻力的角度也只是定性上理解热整流效应的原因, 无法揭示其本质. 本文同时尝试运用声子波包动力学模拟方法研究声子在三角形孔处的散射特性、从声子能量透射率的角度解释热整流效应.

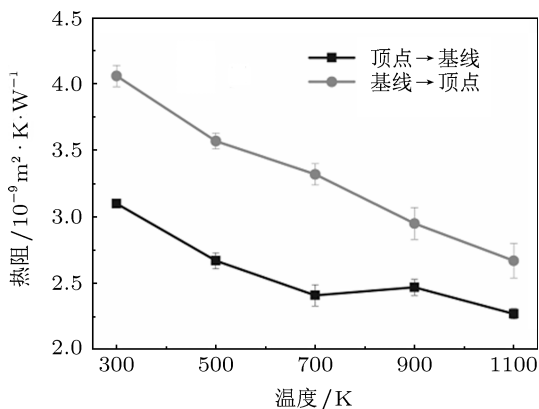


图4 热流方向不同时三角形孔热阻随温度的变化

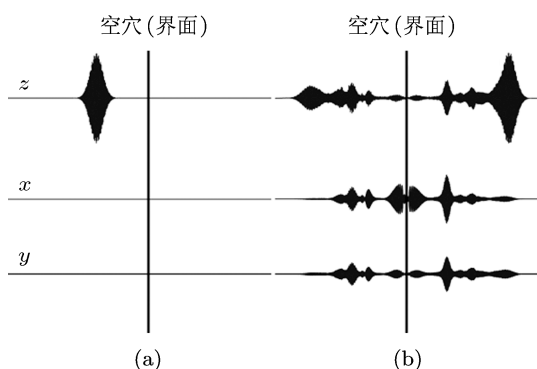


图5 散射前后各方向波包信号对比 (a) $t = 0$; (b) $t = 30$ ps

图5给出了在三角形孔散射前后 x, y, z 三个方向原子位移信号分别随着 z 坐标的变化关系. 从图中可以看出, 初始信号仅为纵波信号, 在 x 和 y 方向并没有初始信号; 但经过界面散射后, 在 x 和 y 方向同样产生了部分位移信号, 这说明声子波包经过三角形孔散射后产生了部分横波信号. 图6和图7给出了不同频率的纵波声子分别从三角形底部向顶部以及从顶部向底部入射时的能量透射率以及散射对比图.

对比图7中结果可以看出, 当声子波包从三角形孔的顶点向底部入射时(图7(a)所示), 反射信号较弱, 透射信号占大部分; 而当声子波包从三角形孔的底部向顶点入射时, (图7(b)所示), 反射信号与透射信号强度基本相当, 且此时的反射信号比相反方向入射声子波包的反射信号要强. 从三角形底部入射的声子波包很大一部分会被三角形底部平面直接反射; 而由顶点入射的声子波包则通过三角形孔的两个斜面向另一侧传递. 因此, 热量从三角形的顶部向底部传递时要容易些. 当不同频率的声子从三角形顶部向底部传递时的能量透射率在整个频

率段范围内要高于反向约22%. 声子能量透射率的差异是三角形引起热整流效应的主要因素.

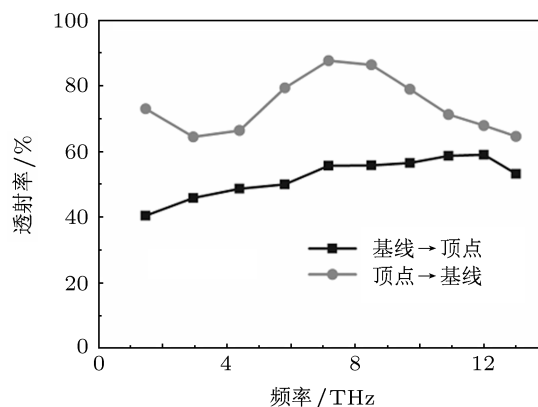


图6 不同入射方向的声子在三角形孔处的能量透射率对比

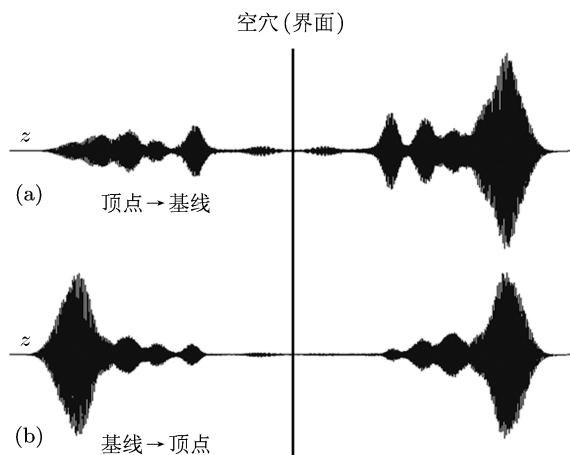


图7 不同入射方向的声子在三角形孔处的散射对比

4 结论

利用非平衡分子动力学模拟方法计算了含有三角形孔的硅纳米薄膜的热整流特性, 模拟结果表明三角形孔的热阻量级为 $10^{-9} \text{m}^2 \cdot \text{K} \cdot \text{W}^{-1}$, 孔的热阻随着温度的升高出现明显降低. 当温度升高时, 声子数目会增加, 相应地穿透界面的声子数和能量也会增加, 因此界面热阻将会减小. 当热流反向时, 在 300 K 到 1100 K 范围内不对称孔的热阻变化约28%. 同时利用声子波包模拟方法获得了不同频率下的声子在三角形孔处的散射特性. 整个频率段的平均声子透射系数变化22%. 声子透射率的差异可以认为是含有不对称孔的硅纳米薄膜产生热整流现象的主要因素.

- [1] Roberts N A, Walker D G 2011 *Int. J. Therm. Sci.* **50** 648
- [2] Terraneo M, Peyrard M, Casati G 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 094302
- [3] Li B W, Wang L, Casati G 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 184301
- [4] Li B W, Lan J H, Wang L 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 104302
- [5] Wang S C, Liang X G 2011 *Int. J. Therm. Sci.* **50** 680
- [6] Ju S H, Liang X G, Wang S C 2010 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **43** 085407
- [7] Hu J N, Ruan X L, Chen Y P 2009 *Nano Lett.* **9** 2730
- [8] Yang N, Zhang G, Li B W 2009 *Appl. Phys. Lett.* **95** 033107
- [9] Wu G, Li B W 2007 *Phys. Rev. B* **76** 085424
- [10] Jiang J W, Wang J S, Li B 2010 *Europhys. Lett.* **89** 46005
- [11] Ju S H, Liang X G 2012 *J. Appl. Phys.* **112** 024307
- [12] Yue B 2006 *Master Dissertation* (Beijing: Tsinghua University) (in Chinese) [岳宝 2006 硕士学位论文 (北京: 清华大学)]
- [13] Sun L 2003 *Master Dissertation* (Beijing: Tsinghua University) (in Chinese) [孙麟 2003 硕士学位论文 (北京: 清华大学)]
- [14] Zhang M P, Zhong W R, Ai B Q 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 060511 (in Chinese) [张茂平, 钟伟荣, 艾保全 2011 物理学报 **60** 060511]
- [15] Zhang J R, Jin Y 2002 *Mater. Sci. Eng.* **20** 432 (in Chinese) [张九如, 金燕 2002 材料科学与工程 **20** 432]
- [16] Wang J, Li J Y, Zheng Z G 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 476 (in Chinese) [王军, 李京颖, 郑志刚 2010 物理学报 **59** 476]
- [17] Kobayashi W, Teraoka Y, Terasaki I 2009 *Appl. Phys. Lett.* **95** 171905
- [18] Sawaki W, Kobayashi W, Moritomo Y, Terasaki I 2011 *Appl. Phys. Lett.* **98** 081915
- [19] Chang C W, Okawa S, Majumdar A, Zettl A 2006 *Science* **314** 1121
- [20] Müller-Plathe F 1997 *J. Chem. Phys.* **106** 6082
- [21] Schelling P K, Phillpot S R, Keblinski P 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 2484

Thermal rectification and phonon scattering in silicon nanofilm with triangle hole*

Ju Sheng-Hong Liang Xin-Gang[†]

(Key Laboratory for Thermal Science and Power Engineering of Ministry of Education, School of Aerospace, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

(Received 20 July 2012; revised manuscript received 28 August 2012)

Abstract

Thermal rectification has potential applications in the thermal management of electronics and energy saving. Discovering thermal rectification phenomena and understanding the mechanism are very essential. Reported in this paper is the thermal rectification in silicon nanofilm with triangle holes by the non-equilibrium molecular dynamics simulation. The results show that in the silicon nanofilm with triangle holes, the difference in thermal rectification coefficient is around 28% with the variation of heat flow direction in a temperature range from 300 K to 1100 K. The phonon wave packet dynamic simulations indicate that transverse phonons are generated during the scattering of longitudinal phonons in the nanofilms. When the phonon transport direction is reversed, the average phonon energy transmission coefficient is changed by about 22% in all the frequency range. The difference in phonon transmissivity, which is caused by asymmetric structure, is regarded as being attributed mainly to the thermal rectification in silicon film with triangle holes.

Keywords: thermal rectification, triangle hole, phonon scattering, interfacial thermal resistance

PACS: 61.46.-w, 65.80.-g, 63.20.kp, 68.35.-p

DOI: 10.7498/aps.62.026101

* Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (Grant No. 2012CB933200), and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 51176091).

[†] Corresponding author. E-mail: liangxg@tsinghua.edu.cn