

《物理学报》创刊 90 周年

低维微纳尺度体系声子热传导和热调控： 来自芯片散热的非平衡统计物理问题*

罗天麟¹⁾ 丁亚飞¹⁾ 韦宝杰¹⁾ 杜建迎¹⁾ 沈翔瀛^{1)†}
朱桂妹^{2)‡} 李保文^{1)2)3)4)††}

1) (南方科技大学材料科学与工程系, 深圳 518055)

2) (南方科技大学深港微电子学院, 深圳 518055)

3) (南方科技大学物理系, 深圳 518055)

4) (深圳国际量子研究院, 深圳 518017)

(2023 年 9 月 22 日收到; 2023 年 11 月 16 日收到修改稿)

半导体芯片发展路线图上的一个障碍是“热死 (heat death)”, 也就是大量热量的产生而导致芯片被烧毁. 所以散热问题成为进一步发展半导体工业亟待解决的关键问题. 芯片里的热传导包含一维和二维材料中声子热传导以及声子通过不同材料间的界面热传导. 本文总结了过去 30 年来一维、二维和界面声子热传导的主要理论和实验进展, 重点介绍了一维体系声子热传导发散的物理机制以及反常热传导和反常扩散之间的关系. 本文还简要讨论了与此相关的非平衡态统计物理的基本问题: 从给定的哈密顿量出发是否能够推导出宏观输运行为. 本文从微观图像的角度讨论了调控声子热传导的几种方法: 纳米声子晶体, 纳米热超材料, 界面和声子凝聚等. 为了让读者全面了解声子热传导, 还简要地介绍了其他声子热输运现象, 包括热导量子化、声子热霍尔效应、手性声子, 以及声子与其他载流子之间的相互作用. 最后, 本文讨论了声子热传导研究面临的挑战和机遇, 包括声子在量子信息和技术中的潜在应用.

关键词: 热输运, 芯片散热, 非平衡统计物理**PACS:** 44.10.+i, 05.10.-a, 65.80.-g, 63.20.-e**DOI:** 10.7498/aps.72.20231546

1 引言

微纳电子器件和光电器件的高度模块化、集成化、高频化及小型化使其单位面积上的热通量急剧增加. 这导致其温度剧增从而严重影响了器件的可靠性和使用寿命. 按照 Arrhenius 方程, 在半导体芯片的工作温度范围内, 芯片温度每上升 10 °C, 芯片寿命就会降低 50%^[1-3].

从图 1 中可以看到每个处理器上晶体管数目在近 50 年的发展变化. 目前最新款苹果手机 iPhone15 的芯片上约有 190 亿个晶体管. 两纳米技术可以在单个芯片上负载约 560 亿个晶体管. 随着晶体管数目急剧增加, 芯片上的热流密度也大幅升高. 图 1 中红色带箭头曲线代表芯片上的热流密度. 太阳照到地球上的热流密度大约是 800 W/m², 所以热点上的热流密度几乎是太阳照到地球上的 10000 倍. 在炎热的夏天, 我们常会说“热死了”,

* 国家自然科学基金 (批准号: 52250191, 12205138) 和深圳市基础研究面上项目 (批准号: JCYJ20220530113206015) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: shenxy@sustech.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: zhugm@sustech.edu.cn

†† 通信作者. E-mail: libw@sustech.edu.cn

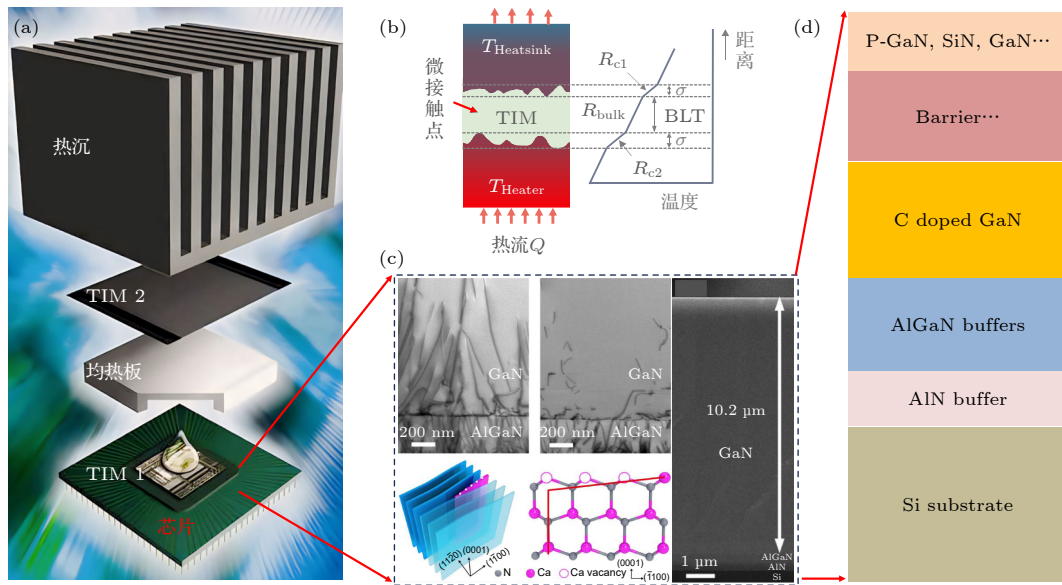


图 3 芯片涉及的热传导过程 (a) 芯片安装的宏观结构; (b) 热界面材料填充热沉与热源的示意图和温度分布; (c) 通过材料工程优化芯片内部结构^[6]; (d) Si 衬底 GaN 基电子器件的多层结构示意图

Fig. 3. Heat conduction of the computer chip: (a) Schematic diagram of chip packaging; (b) schematic diagram and temperature profile for an interface composed of two dissimilar segments; (c) optimize the structure of the chip by material engineering^[6]; (d) schematic diagram of the multilayer structure inside a GaN based electronic device chip on Si substrate.

片里传输出去呢? 一部分通过基底散走, 基底一般是用高热导率的陶瓷材料, 在芯片上面要涂一层硅脂, 这层硅脂的目的有两个: 一个是让 CPU 和均热板紧密结合在一起, 保证 CPU 能非常牢固的被固定住; 另外则是通过硅脂把热传到均热板, 不至于热点温度过高把 CPU 烧毁. 所以硅脂也叫作热界面材料 1 (thermal interfacial material 1, TIM1). 均热板上面还需有加一层热界面材料 2 (thermal interfacial material 2, TIM2) 把热量传递给热沉. 上面介绍的是芯片中热传输的宏观图像. 芯片内部情况又是如何呢? 图 3(c) 展示了一个第三代半导体芯片, 厚度大约 $10.2 \mu\text{m}$. 这里面包含了一百多层. 该芯片中热量产生后需要通过这么多层界面传导到硅板或别的衬底等. 这里涉及两个热传导问题: 第一, 热流沿垂直方向从芯片传导到热沉, 这是一个典型的一维热传导问题; 第二, 热在每一层上还会在面内进行扩散, 这是一个二维热扩散问题.

因此, 半导体芯片的传热过程包括了微纳米尺度上的一维和二维热传导. 另外, 半导体材料里声子是热的主要载体, 所以准确来说, 半导体芯片上的热传导问题其实就是微纳米尺度下一维和二维的声子热传导问题.

具体来说, 以下几个问题需要厘清:

1) 微纳尺度下热如何在一维和二维面内传输?

2) 热沿着材料界面是如何传输的? 界面特性又是如何影响热运输的? 这个不仅是深刻的科学问题, 也是目前产业界关注的实际材料工程问题.

3) 对微纳体系声子热运输机制的了解最终将服务于实际应用过程中对声子热运输的调控和管理. 如何进行有效散热, 保证电子器件/设备的正常运行已经成为半导体产业里最为紧迫且生死攸关的技术问题.

2 一维/准一维体系声子热传导

块体材料两端处于不同温度时, 热流会从高温端流向低温端, 体系中的热流密度满足傅里叶定律 ($J = -\kappa \nabla T$, 其中 J 为热流密度, 即单位时间内流过单位面积的能量, κ 为热导率, ∇T 为温度梯度). 在宏观尺度上, 热导率与电导率类似, 是材料的本征特性, 与材料的具体尺寸无关, 傅里叶定律自发现 200 年来一直被作为宏观尺度热运输的基本定理. 近年来随着人们对微纳尺度热运输理论和实验的研究, 发现傅里叶定律在微纳尺度下不一定成立. 比如在一维纳米管/纳米线, 原子级厚度的二维材料等中^[7], 纳米材料的热导率与块体材料有很大的不同, 这种不符合傅里叶定律的“反常热运输现象”受到了越来越多的关注^[8]. 受限于测试技术,

最初的研究大多集中在理论预测. 随着泵浦探测、拉曼光热法、热桥法等技术在近十年来的发展, 大量的实验工作相继出现^[9-11]. 截至目前, 微纳尺度下材料的反常热输运现象已经有大量的文献报道, 包括一些综述, 例如, Yang 等^[12]在 2013 年对低维材料体系的反常热输运和反常扩散进行了介绍; 2020 年 Zhang 等^[7]在综述论文中梳理了低维纳米材料的尺寸效应. 本部分将从一维材料体系的反常热输运出发, 介绍一维、准一维体系中的声子热传导行为, 包括 2020 年以后的最新的一些实验进

展; 然后分析反常热传导与反常扩散之间的关系; 最后讨论声子热传导中蕴含的非平衡统计物理问题.

2.1 一维体系声子热传导行为: 反常热传导系数

早在 1993 年, Kaburaki 和 Machida^[13]就基于 Fermi-Pasta-Ulam (FPU) 模型的一维原子链, 研究了热传导随非简谐程度和尺寸的变化规律, 体系尺寸与热导率的关系如图 4(a) 所示, 作者从这个图推断出 FPU 热导率收敛的错误结论. 1997 年,

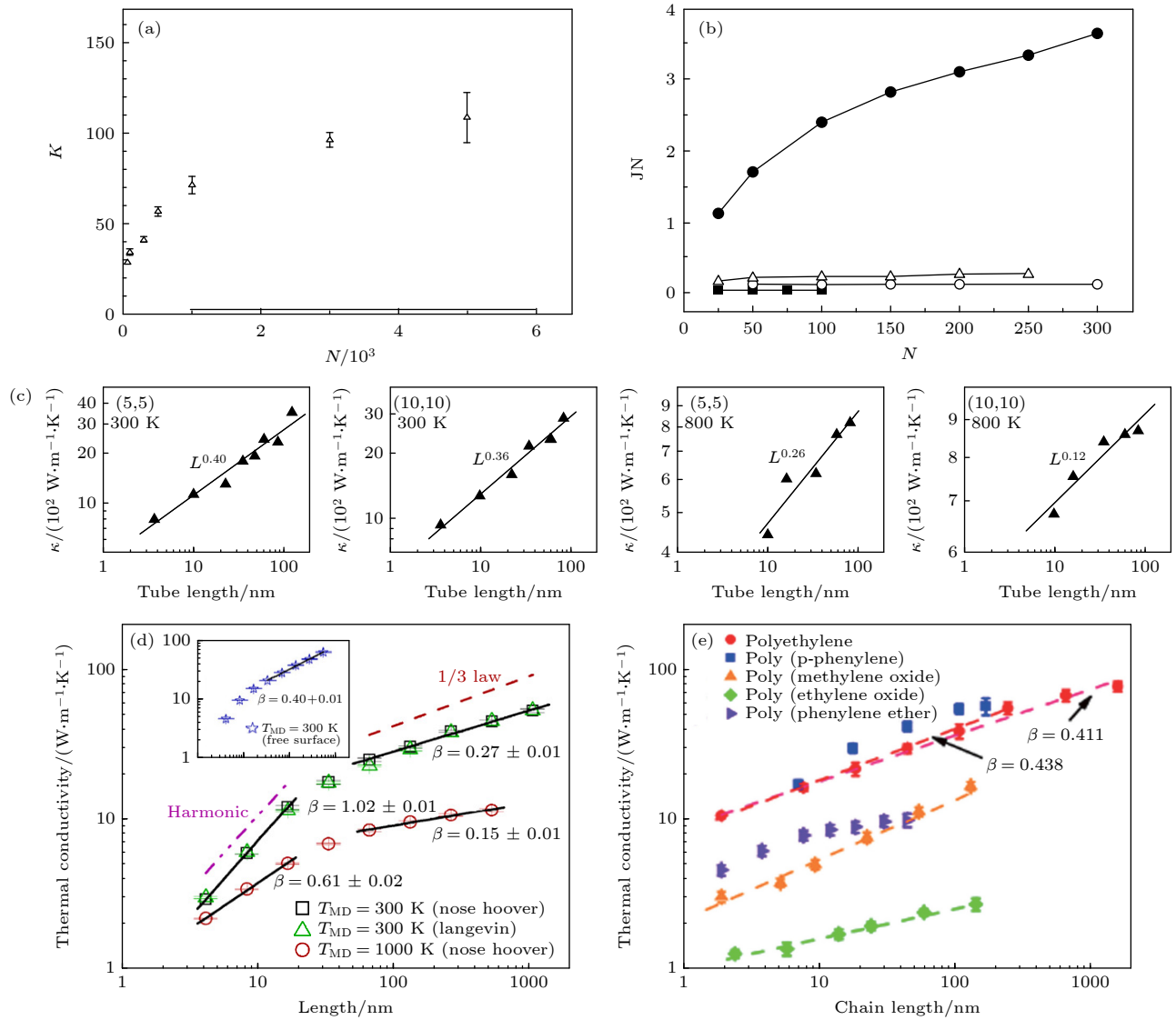


图 4 一维体系热导率发散的理论研究 (a) 当非线性参数 $\beta = 1.5$ 时, 一维原子链的热导率随体系尺寸 N 的变化关系^[13]; (b) 基于不同模型时 (FPU- β 模型, 不同参数的 FK 模型) JN 随原子链长度的变化关系^[15]; (c) 不同的单壁碳纳米管热导率随尺寸的变化关系^[16]; (d) 硅纳米线热导率随尺寸的变化关系^[17]; (e) 单根高分子链热导率随长度发散的实验结果^[18]

Fig. 4. Diverged thermal conductivity in 1D systems: (a) Thermal conductivity κ for an FPU lattice with $\beta = 1.5$ varies with the system size N ^[13]; (b) JN vs. the number of particles N for different models (J -heat flux)^[15]; (c) the thermal conductivity vs. tube length L in log-log scale for different tubes at 300 and 800 K^[16]; (d) thermal conductivity of SiNWs (with fixed transverse boundary condition) vs. longitude length L_z ^[17]; (e) thermal conductivity of single extended polymer chains of five polymers as a function of chain length^[18].

Lepri 等^[14]对 FPU 又做了进一步的研究,发现 FPU 体系热传导随尺度的指数发散 $L^{0.5}$. 1998 年, Hu 等^[15]比较了基于不同模型的一维原子链热传导,如图 4(b) 所示,对于具有不同参数的 Frenkel-Kontorova (FK) 模型 (具有不同的最近邻原子相互作用或周期性钉扎势 (on-site potential)), 只要钉扎势不为零或在足够低的温度下, JN 随着原子链长度 N 发散.

随着纳米材料的发展和计算能力的提升, 后续的模拟计算开始关注真实纳米材料的热输运行为, 在很多一维材料的模拟中也发现了类似的规律. 2002 年, Maruyama^[19]在对单壁碳纳米管 (single-walled carbon nanotubes, SWNTs) 的分子动力学 (molecular dynamics, MD) 模拟中发现了室温下热导率随纳米管长度的发散关系 $\kappa = \alpha L^{0.32}$, 在材料长度达到 404 nm 时热导率还未出现收敛. 2005 年 Zhang 和 Li^[16]采用非平衡分子动力学模拟 (non-equilibrium molecular dynamics simulation, NEMD) 对不同结构和不同温度下的 SWNT 进行了系统的研究, 计算结果如图 4(c) 所示, 热导率在不同情况下均体现出随长度发散的规律 ($\kappa \sim L^\beta$). 2010 年 Yang 等^[17]将研究尺度拓展到了微米量级, 在截面为 2.65 nm^2 的硅纳米线 (silicon nanowires, SiNWs) 上的 [100] 方向热导率计算中发现, 即使在远大于硅体材料声子平均自由程的长度下 ($1.1 \text{ }\mu\text{m}$) 仍满足 $\kappa \sim L^\beta$ 的关系 (图 4(d)). 除了本征热导率较

高的材料外, 研究人员在热导率很低的高分子材料领域也有很多有趣的发现. 2008 年 Henry 和 Chen^[20]基于格林-久保 (Green-Kubo) 公式和模态分析对单根聚乙烯纤维 (polyethylene, PE) 热导率进行理论估测时发现了反常的超高热导率, 同时也发现了其热导率随长度的发散关系. 短短两年后, 该理论预测就被实验所证实^[21]. 如图 4(e) 所示, 2012 年 Liu 等^[18]在多种高分子链中也发现了类似的尺寸效应.

在理论预测基础上, 伴随着热测量实验技术的发展, 2008 年 Chang 等^[22]采用悬空热桥法首次在实验上证实了傅里叶定律在碳纳米管和氮化硼纳米管中失效. 通过铂金属沉积调整纳米管的长度, 实验发现碳纳米管和氮化硼纳米管的热导率均体现了随长度的发散现象 (图 5(a)), 拟合后的结果显示, 在远远大于声子平均自由程的长度上, 碳纳米管的热导率随长度的发散指数为 0.6 (图 5(b)), 氮化硼纳米管随长度发散的指数为 0.5 (图 5(c)). Lee 等^[23]在 2017 年将测量长度拓展到 1 mm 以上的尺度上, 证实了在更大的尺度上热导率随长度指数发散的规律依然存在.

近年来, 一维体系的尺度效应在更精细的材料和不同的温度下获得了更多的证据. 2021 年 Yang 等^[24]基于热桥法在超细的 NbSe_3 纳米线中发现了声子热导的反常输运现象 (图 6(a)), 在 30, 100 和 300 K 的实验中均发现了热导率随长度的发散

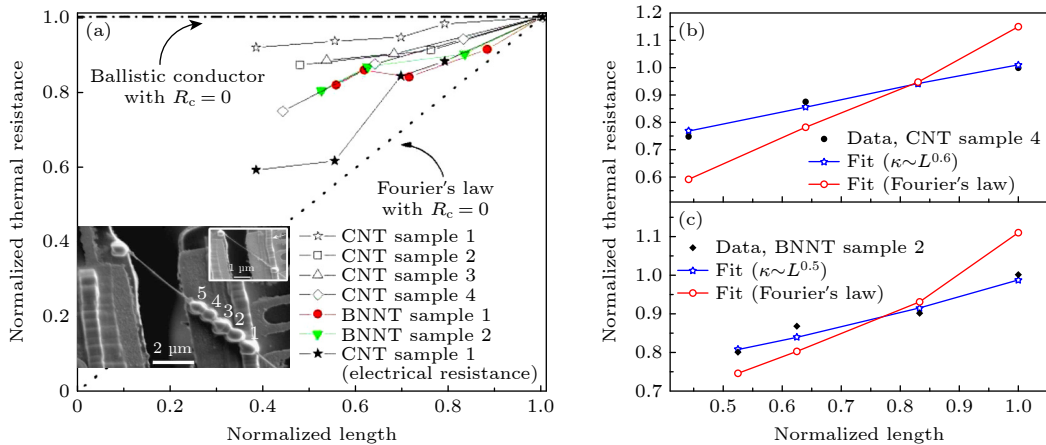


图 5 碳纳米管和氮化硼纳米管热阻随尺寸的变化关系 (a) 归一化的热阻随长度的变化关系, 插图为扫描电镜下悬空热桥法的测试装置^[22]; (b) 碳纳米管的归一化热阻随长度的变化关系 (从热阻变化推断出热导率变化为 $\kappa \sim L^{0.6}$)^[22]; (c) 氮化硼纳米管的归一化热阻随长度的发散关系 (从而得到 $\kappa \sim L^{0.5}$)^[22]

Fig. 5. Normalized thermal resistance vs. normalized sample length for different samples: (a) The relations between normalized thermal resistance and sample length for carbon nanotubes (CNTs) and boron-nitride nanotubes (BNNTs)^[22]; (b) the relations between normalized thermal resistance and sample length for CNT^[22]; (c) the relations between normalized thermal resistance and sample length for BNNTs^[22].

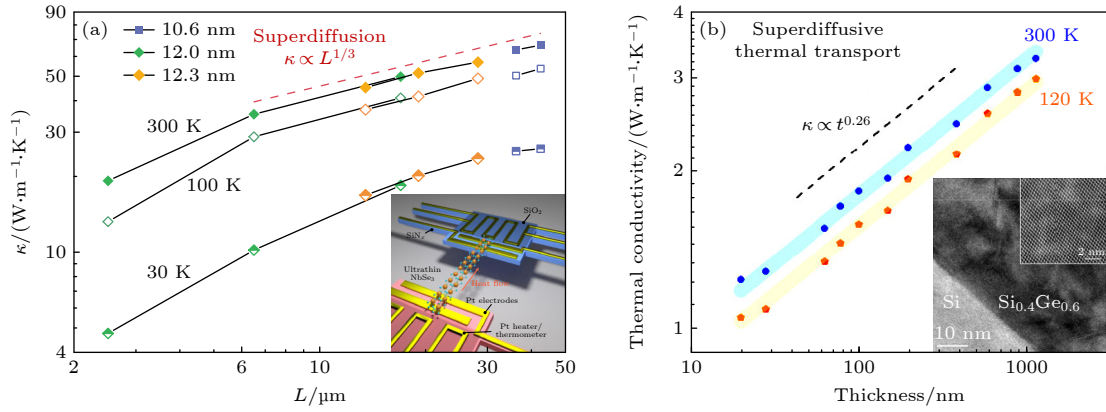


图 6 NbSe₃ 纳米线和 Si_{0.4}Ge_{0.6} 薄膜中的超扩散现象 (a) NbSe₃ 纳米线材料体系中的超扩散声子热运输实验发现^[24]; (b) Si_{0.4}Ge_{0.6} 薄膜中的超扩散热运输^[25]
 Fig. 6. Experimental evidence of superdiffusive behavior of thermal transport in aligned atomic chains and Si_{0.4}Ge_{0.6} thin films: (a) Observation of superdiffusive phonon transport in NbSe₃ nanowire^[24]; (b) superdiffusive thermal transport in Si_{0.4}Ge_{0.6} thin films^[25].

规律 ($\kappa \sim L^{1/3}$), 特征直径为 6.8 nm 的纳米线热导率相比特征直径为 26 nm 的纳米线具有 25 倍的增加. 2022 年 Yao 等^[25] 采用 3ω 法对 Si_{0.4}Ge_{0.6} 薄膜在垂直厚度方向的热传导 (也是个一维传热问题) 率测量上也发现了反常热传导现象. 如图 6(b) 所示, 在 120 和 300 K 的温度下热导率均出现了随厚度 t 的发散关系 ($\kappa \sim t^{0.26}$), 这一发散关系一直延续到厚度为 1 μm 时还未出现收敛.

2.2 反常热传导与反常扩散的关系

对反常热运输现象的解释长久以来困扰着相关领域的研究人员. 早在 1967 年, Rieder 等^[26] 在求解一维简谐晶格的热传导时就发现系统中未形成温度梯度, 傅里叶定律失效, Payton 在一维简谐晶格中引入质量无序也无法获得正常的热传导^[27]. 此后非线性、无序性、混沌等陆续被人们认为是正常热传导的微观动力学起源, 1997 年 Lepri 等^[14] 在非线性振子的研究中发现的热导率随尺寸发散的现象, 再次引燃了人们对反常热传导潜在物理机制探索的热情.

2003 年, Li 和 Wang^[8] 利用分数维微分方程描述的反常扩散现象, 建起了连接扩散与热传导之间定量关系的桥梁, 给出了唯象的理论体系, 如图 7 所示, 当体系能量按照 $\langle \sigma^2 \rangle = 2Dt^\alpha$ (其中 D 是扩散系数, t 是时间, α 是指数因子, $\langle \sigma^2 \rangle$ 是体系扩散在 t 时刻位移平方的平均值) 形式扩散时, 该系统的热运输将会体现出不同的与 α 相关的运输模式, 其中 α 与 β 满足关系 $\beta = 2 - 2/\alpha$. 从图 7 可以得出, 弹道运输 (ballistic motion) 意味着热导率与体

系尺寸成线性比例 ($\alpha=2$), 正常扩散 (normal diffusion) 则对应于满足傅里叶定律的常规热运输过程, 即热导率与样品尺寸无关, 是一个常数 ($\alpha = 1$), 而超扩散 (superdiffusion) 对应发散的热导率 ($\alpha > 1$), 亚扩散 (subdiffusion) 对应收敛的热导率 ($\alpha < 1$).

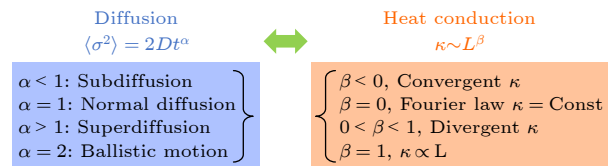


图 7 扩散与热传导之间的对应关系^[8]

Fig. 7. Connection between heat conduction and anomalous diffusion^[8].

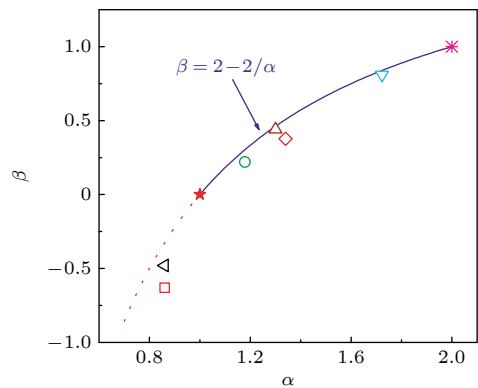


图 8 扩散方程中的 α 与热传导方程中 β 之间的关系^[8]
 Fig. 8. Connection between anomalous diffusion and heat conduction^[8].

图 8 刻画了在多种模型中热导率发散系数 β 与扩散关系中时间指数 α 之间的关系, 基本符合了 $\beta = 2 - 2/\alpha$ 的关系. 在此基础上, 2014 年 Liu

等^[28]基于平衡态理论,从能量守恒定律出发,结合格林-久保公式,得到了扩散过程与热流的关联函数之间的关系,推导出热扩散和热流密度涨落关联函数的严格等式,计算得出 $\beta = \alpha - 1$.这一结果似乎与之前的工作相冲突.近年来,Li等^[29]从数学上证明了这两个结果其实都是正确的,只是适用场景不同. $\beta = \alpha - 1$ 适用于平衡态附近的线性响应,而 $\beta = 2 - 2/\alpha$ 则适用偏离平衡态的状态.

2.3 一维声子热传导的统计物理问题

热传导过程是一个典型的不可逆过程.首先热量总是自发地从高温流向低温.前文中提到的一维声子热传导中蕴含着一个统计物理的根本问题.物理学家一直在研究这个源自20世纪六、七十年代的问题.具体表述是能否从微观的动力学问题中得到宏观的输运系数.在热传导领域,该问题可表述为:对于给定的哈密顿量:

$$H = \sum_{i=1}^N \frac{p_i^2}{2m_i} + V(x_i - x_{i-1}) + U(x_i), \quad (1)$$

其中 P_i 是第 i 个粒子的动量; m_i 是第 i 个粒子的质量; $V(x_i - x_{i-1})$ 表示第 i 和 $i-1$ 个粒子的相互作用势; $U(x_i)$ 表示第 i 个粒子的钉扎势(on-site potential).该物理体系的热输运满足傅里叶定律的充分必要条件是什么?这一问题的解决对于从第一性原理(first principle)出发设计特定输运系数的材料十分重要.但是,这其中涉及几个重要的问题:1) 稳态的存在性问题,即稳态是否存在? 2) 如果稳态存在,那它是不是唯一的? 3) 如果存在唯一的稳态,那么达到稳态的过程和路径是怎样的? 4) 能否建立起温度梯度? 5) 整个输运过程是否满足傅里叶定律?

这些问题貌似简单,要严格回答却很难.比如,在二十年前人们普遍认为(直到目前仍有部分人也这么认为),如果一个体系能建立起温度梯度,那么热传导过程就一定会满足傅里叶定律(热传导系数为常数).但是过去二十年的研究,尤其是对FPU模型的研究否定了这个常识^[14].关于达到稳态路径的问题,2021年的诺贝尔物理学奖获得者Parisi^[30]在1997年证明:对FPU- β 模型,如果非线性参数 β 趋于零,那么FPU体系建立稳态的时间是随系统长度指数发散的.20年前Eckmann和Hairer^[31]证明了上述哈密顿量,如果 $V(x) > U(x)$ (相互作用

用势 > 钉扎势),则在所有的温度范围内,一维体系可建立起温度梯度.但热传导能否满足傅里叶定律仍需进一步研究.

此外,热化(thermalization)是另一个重要问题.热化是指从任意非平衡态趋向能量均分的过程.19世纪Boltzmann提出的遍历性假设构成了统计物理学的基础,基于该假设可以得到不同自由度之间的能量均分.在统计物理领域,人们一直对两个问题感兴趣:1) 如何从微观系统出发证明一定能够达到热平衡? 2) 趋向能量均分的过程中系统所遵从什么规律? 1955年Fermi等^[32]的数值模拟结果意外地发现远离平衡态的系统并没有进入预期的能量均分状态,而是表现出了FPUT回归.如今,人们已经明确了足够大的扰动可以实现能量均分,但是对于无穷小的非线性扰动能否导致系统能量均分的问题理解还不够深入^[33].近几年,厦门大学赵鸿课题组^[34,35]提出,可以用非线性系统与简谐系统(可积系统)的“距离”来定义微扰强度,利用波湍流理论等解析手段证明了从一维原子链到三维晶格模型的均分时间与微扰强度成平方反比规律,严格证明了晶格体系中能量均分定理是成立的.

3 二维体系声子热传导

二维材料因具有很多新奇的物理特性而受到了科研界广泛的关注,尤其是自石墨烯材料的发现获2010年的物理学诺贝尔奖以来^[36],但其热输运的理论和实验工作相对较少,尤其是热导率的精确测量.本部分将从二维原子模型出发,阐明二维体系中的声子热传导的发散特性,探讨声子的流体动力学行为,介绍双层转角石墨烯在热传导过程中呈现出的“热魔角”现象.

3.1 二维原子模型

2004年由Novoselov等^[37]通过“壁虎胶带”分离出单层石墨烯后,由于石墨烯独特的物理性质使其在电子、光子等领域的潜在应用受到了广泛关注.受石墨烯的启发,其他二维材料,如六方氮化硼(h-BN)、硅烯、过渡金属硫化物(TMDCs)、过渡金属氧化物、五层V-VI三硫化物和黑磷等已被合成和研究.图9为一些典型二维材料的晶格结构及其热导率^[38].

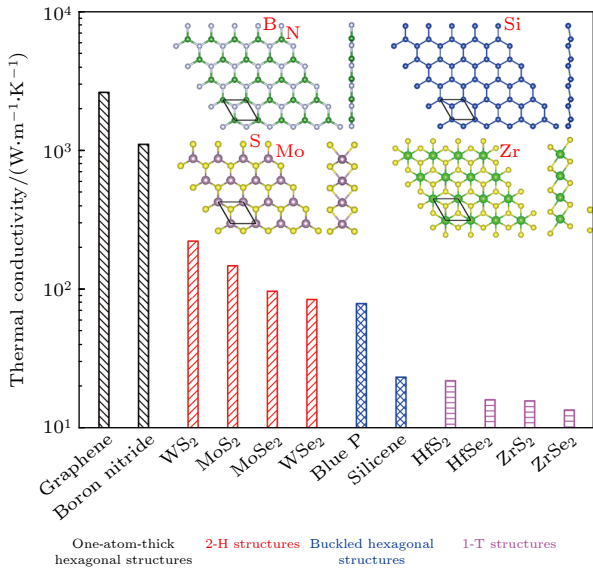


图 9 一些典型二维材料的热导率和平面结构^[38]

Fig. 9. Thermal conductivity and layer structure of some typical 2D materials^[38].

石墨烯在室温下具有非常高的热导率, 范围在 2000—5000 $\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$. 关于其许多工作都集中在理解其高热导率背后的热传输机制并利用其优越的导热性去填补实际应用中的缺口. 显然, 对石墨烯的声子传输和热导率的研究为其他新兴二维材料奠定了良好的基础. 然而, 即使对于石墨烯这种充分研究的二维材料, 仍有许多问题尚未达成共识. 此外, 许多新型二维材料的晶格结构与单层石墨烯并不相同. 因此, 是否能够将石墨烯的研究成果直接推广到其他二维材料有待商榷.

许多二维材料已被证明具有类似甚至优于石墨烯的性能. 例如, 虽然石墨烯没有带隙, 但一些单层过渡金属硫化物 (如 MoS_2 , WS_2 等) 具有带隙, 使其成为电子和光电器件材料的理想选择. 与传统硅基电子器件相比, 这些二维材料驱动的器件由于尺寸更小且更为高效. 然而, 一些二维材料的热导率非常低, 导致器件的散热成为限制其性能和可靠性的瓶颈. 因此, 理解二维晶体中的声子传输行为对于设计使用二维材料的新器件至关重要.

3.2 二维声子热输运

2000 年, Lippi 和 Livi^[39] 开启了二维体系热输运的研究, 在二维非线性晶格中发现了反常热输运现象. 2006 年, Yang 等^[40] 在二维 Fermi-Pasta-Ulam 晶格的中也发现了热导率发散现象. 2012 年, Wang 等^[41] 在动量守恒的二维非线性晶格中

发现: 在 FPU- β 模型中, 热导率在很宽的范围内呈现指数发散的趋势, 在尺度 $N > 10^3$ 的范围内可以很好地符合幂指数为 0.25 ± 0.01 的关系 (图 10(a)); 对于 φ^4 模型, 在计算的最大尺寸范围内热导率都展现了随尺寸变化的对数关系 (图 10(b)).

后续理论研究更注重真实材料体系, 比如石墨烯、过渡金属硫化物等. 室温下基于不同方法的二硫化钨热导率计算结果如图 10(c) 所示, 虽然不同模型计算的具体数值有所差异, 但大部分计算都表现出了明显的尺寸效应. 分子动力学模拟由于高估了非简谐性而导致热导率变化趋势不明显^[42]. 如图 10(d) 和图 10(e) 所示, 2015 年 Gu 等^[43] 运用第一性原理计算得到了不同声学支对热导率的贡献及其随尺寸的变化关系.

悬空少层二维材料的热导率测量十分困难, 截至目前相关的实验工作仍比较匮乏. 最具代表性的工作是 2014 年 Xu 等^[11] 基于热桥法完成的单层悬空石墨烯热导率的测试, 其中样品长度 300 nm—9 μm 之间, 样品宽度控制在 1.5 μm 左右. 实验结果如图 11(a) 所示, 由于石墨烯与热桥接触部分热阻很难扣除, 图中给出了不同接触热阻下的热导率, 红色、蓝色和棕色的线分别对应于忽略接触热阻、接触热阻占总热阻 5% 和 11.5% 时的热导率随长度的发散关系. 2020 年 Yu 等^[10] 基于拉曼光热法对多种二维过渡金属硫化物进行了系统研究. 测试中实验样品搭在圆形孔上, 因此选用半径作为尺寸标定. 如图 11(b) 所示, 分别研究了单层、双层和三层 MoS_2 热导率随半径的变化, 随后拓展到单层 WSe_2 和 WS_2 的研究中, 发现这三种材料热导率随半径的变化都满足对数关系 ($\kappa \sim \log R$).

相比于二维材料热输运的理论研究, 相关的实验工作可谓凤毛麟角, 关于尺寸效应的实验研究尺度还局限在极小的尺度范围以内. 主要原因有两方面: 其一, 二维材料的反常输运现象在悬空样品上才能观察得到, 而二维材料的悬空样品制备困难, 成功率很低; 其二, 虽然泵浦探测、热桥法和拉曼光热法等迅速发展, 但是在悬空单层或少层的二维材料热导率测量中依然存在多种问题, 仍迫切需要精确可靠的测量手段^[2].

低维材料尺寸效应的研究为我们提供了深入理解微纳尺度声子热输运物理机制的窗口, 也为纳米材料在声学器件和热管理的应用方面提供了机会.

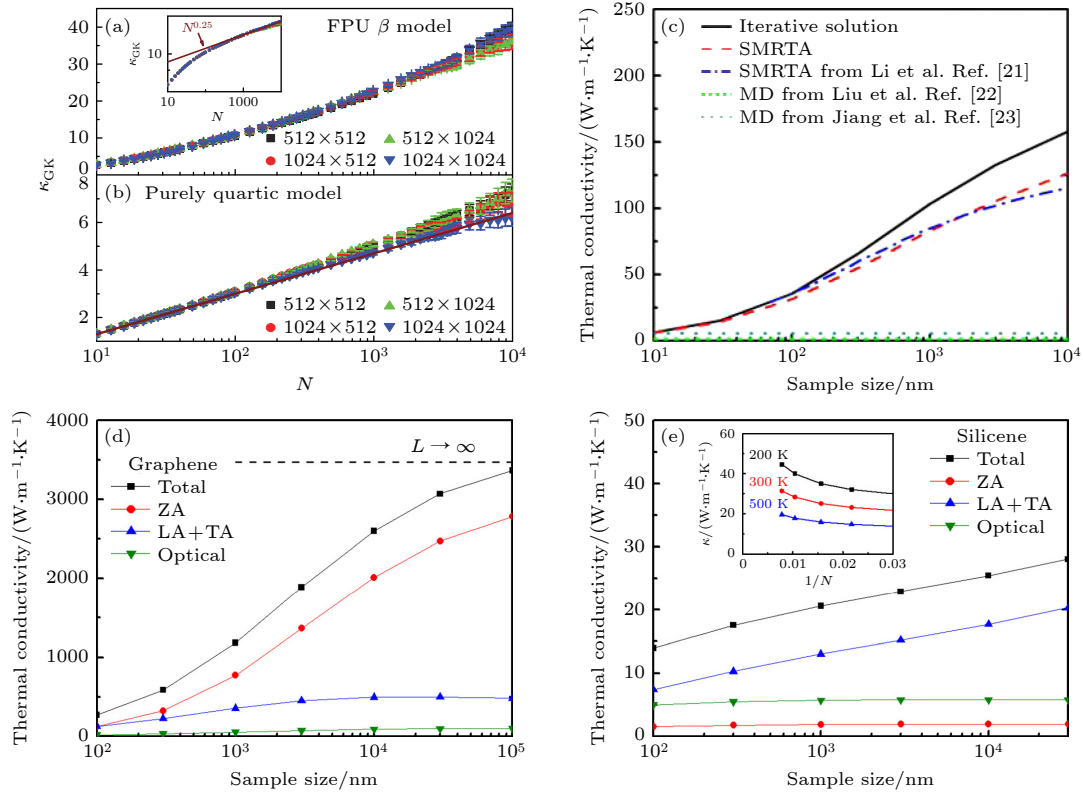


图 10 二维材料反常热运输的理论研究 (a) 基于 FPU- β 模型的二维晶格热导率随尺寸变化关系^[41]; (b) 基于相互作用势为四次方模型的二维晶格热导率随尺寸变化关系^[41]; (c) 基于不同计算方法得到的二硫化钼热导率随尺寸的变化关系^[42]; (d) 石墨烯热导率随尺寸变化关系; (e) 硅烯热导率随尺寸变化关系^[43]

Fig. 10. Anomalous thermal transport in two-dimensional material. (a) $\kappa_{\text{GK}}(N)$ in the X direction vs. N in $N_X \times N_Y$ lattices. FPU- β lattice. Inset: data plotted in double logarithmic scale. Solid line corresponds to $N^{0.25}$ ^[41]. (b) Purely quartic lattices^[41]. (c) The calculated thermal conductivity of MoS₂ at 300 K as a function of sample size^[42]. (d) Length dependence of thermal conductivity of each phonon branch of graphene. (e) Length dependence of thermal conductivity of each phonon branch of silicene^[43].

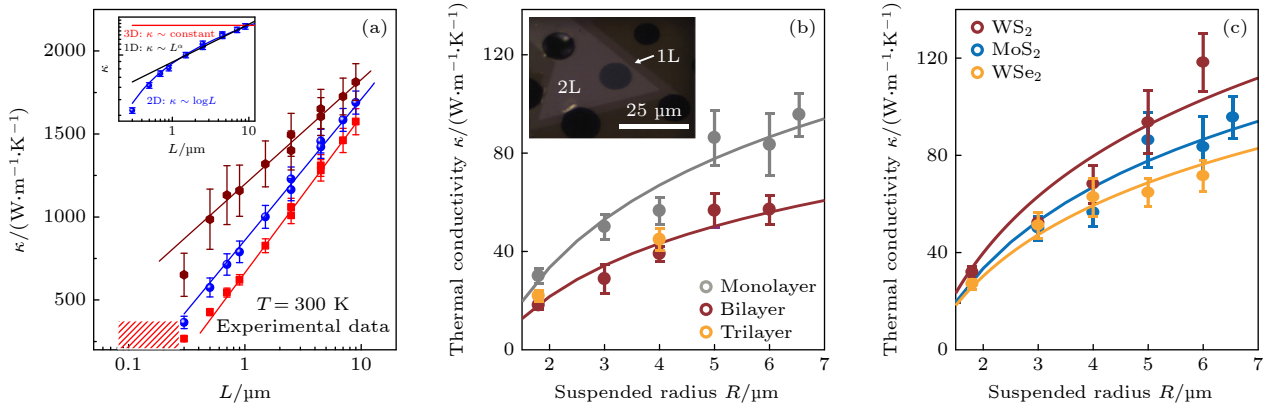


图 11 二维材料热导率发散的实验研究 (a) 基于热桥法测量得到的悬空单层石墨烯热导率^[11]; (b) 拉曼光热法得到的不同厚度 MoS₂ 热导率随尺寸的变化关系; (c) 拉曼光热法得到的不同材料二维材料热导率随尺寸的变化关系^[10]

Fig. 11. Thermal conductivity of 2D systems: (a) Experimental results on length-dependent thermal conductivity^[11]; (b) thermal conductivity of suspended monolayer/bilayer/trilayer MoS₂ obtained through Raman photothermal method as a function of sample size; (c) thermal conductivity of monolayer WS₂ (red color) and WSe₂ (orange color) obtained through Raman photothermal method as a function of sample size^[10].

3.3 声子的流体动力学行为

电子和其自旋可以通过外场进行调控,但是对于半导体中的热载流子-声子,还缺乏相应的调控手段,

这一定程度上限制了热电或声子学等器件的发展.一种可行的声子调控方法是通过引入小尺寸的纳米结构来改变声子平均自由程,从而调控其输运行为.

声子具有能量、动量、频率和波长等属性, 它们可以在晶格中传播和散射. 声子之间也可以发生相互作用, 导致声子的动量和能量的转移和耗散. 声子气体模型是一种理解声子的输运行为的传统方法. 求解其行为需要知道声子压力和温度之间的关系, 即状态方程. 一种常用的状态方程是理想气体状态方程:

$$p = nk_B T, \quad (2)$$

其中 P 是压强, T 是温度, n 是声子数密度; k_B 是玻尔兹曼 (Boltzmann) 常数. 此方程假设了声子之间没有相互作用, 且遵循玻色-爱因斯坦分布 (Bose-Einstein distribution). 当声子之间有相互作用时, 需要考虑声子的排斥或吸引力, 这时可以用范德瓦耳斯方程 (van der Waals equation) 或者其他更复杂的状态方程来描述.

声子能量密度和温度之间的关系用热容方程来描述. 一种常用的热容方程是德拜模型:

$$E = 3nk_B T \left(\frac{T}{\Theta_D} \right)^3 \int_0^{\Theta_D/T} \frac{x^3}{e^x - 1} dx, \quad (3)$$

其中, k_B 是玻尔兹曼常数; T 是温度; n 是声子模式; Θ_D 是德拜温度, 它是一个与晶格特性有关的常数. 此方程假设了声子频率的分布服从德拜频谱, 并且遵循玻色-爱因斯坦分布. 当声子频率的分布不服从德拜频谱时, 需要用其他更复杂的热容方程来描述声子能量密度和温度之间的关系.

在高度受限的纳米结构边界内, 通常假定声子在进行“弹道输运”(ballistic), 即边界内的声子不会受到散射. 此时声子的平均自由程主要由材料的尺寸和几何构型决定. 当声子的平均自由程远大于晶格常数时, 声子可以近似地看作是无相互作用的粒子, 这时可以用玻尔兹曼 (Boltzmann) 方程来描述声子的输运过程. 当声子的平均自由程与晶格常数相当或更小时, 声子之间的相互作用变得重要, 这时声子的输运模式既不像粒子也不像波, 而是类似连续介质的宏观流动, 可以用流体力学方程来描述^[44]. 一言以蔽之, 声子的流体力学行为是指声子可以在一定条件下表现出类似于流体的宏观特征, 如声子黏度、声子压力、声子温度等. 声子的流体力学行为对于理解固体中的热输运、热膨胀、热电效应等现象具有重要意义. 2023年, 科罗拉多大学博尔德分校 Murnane 团队与南方科技大学李保文教授^[45] 在利用极紫外 (extreme ultraviolet, EUV)

光束研究具有深层纳米尺度特征的三维硅超晶格中的声子传输动力学时, 观察到与块体相比热导率的显著降低. 同时研究人员还建立了一套预测性的理论, 用于描述在尺寸远小于块体声子平均自由程的硅纳米结构中的声子的流体力学行为, 并揭示了声子气体的黏性 (viscosity) 和材料的孔隙率 (porosity) 之间的普遍关系.

在纳米尺度上存在散射和动量扩散现象, 这给在纳米尺度下使用块体声子特性建立球状模型带来了挑战. 此外, 对于纳米尺度上的边界散射, 目前还不清楚它是否可以被视为非相干的热耗散程度. 为了研究三维硅声子晶体中高度受限制的热流, 研究人员采用了在室温下时间分辨极紫外光散射测量方法, 首先通过在结晶硅基底上刻蚀周期性的面心立方堆积球形空穴来制备硅超晶格薄膜. 然后使用超快红外泵浦激光激发超晶格薄膜, 并利用超快 30 nm 波长的极紫外探测光束来监测其延迟的表面变形^[45].

研究人员使用有限元方法对系统的热弹性响应进行了模拟, 并将模拟结果与实验数据进行了比较. 图 12 展示了室温下三维硅超晶格的特性, 其具有极低的热导率, 并且能够观察到超晶格表面的镍光栅的热弛豫现象. 通常, 傅里叶模型被用来描述超晶格的热导率, 而时间相关的热导率则是非傅里叶传输的一个显著特征^[46]. 根据傅里叶定律:

$$\mathbf{q} = -\kappa \nabla T, \quad (4)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{q} = -(1 - \phi) c_V \frac{\partial T}{\partial t}, \quad (5)$$

式中, \mathbf{q} 是热流密度; c_V 是硅的比热容; κ 是其等效热导率; T 是温度; $\phi = 0.385 \pm 0.02$ 是超晶格的孔隙率^[47]. 实验观察到的超晶格热导率明显低于块体的热导率 ($149 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$), 这一结果无法通过经典的体积缩减效应 (即代入孔隙率计算) 来解释. 因此, 需要更基本的解释来考虑参与热传输的声子群体与超晶格纳米结构之间的相互作用.

为了预测高度受限纳米结构中的测量结果, 可以将声子流体力学框架与多孔介质中稀薄气体动力学理论相结合, 以提高准确性. 该模型可以用 Guyer Krumhansl equation (GKE) 所描述^[48]. 但该方法仅适用于尺寸相对于块体声子平均自由程足够大的系统. 通过简化 GKE, 并假设热梯度几乎完全被 Laplacian 项描述的黏度系数所抵消, 可使用类似多孔介质中描述流体流动的达西定律模型

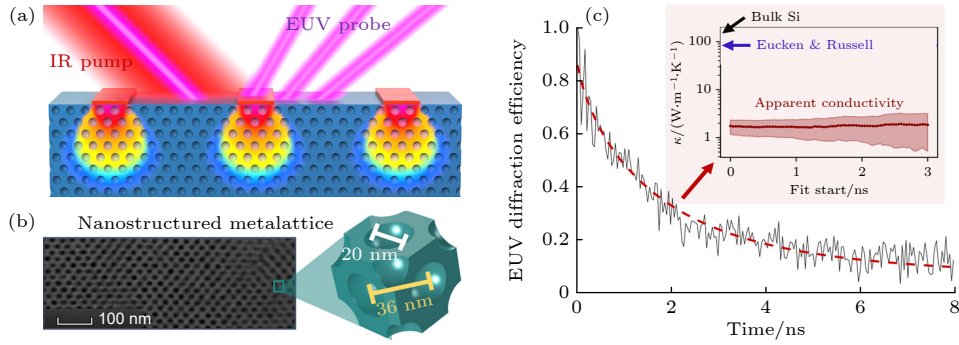


图 12 在室温下观察到三维硅超晶格的超低热导率 (a) 实验设置示意图. 通过一个时间延迟的极紫外探测光束, 在超快红外激光泵浦脉冲激发后, 监测超晶格表面镍光栅的热弛豫^[45]. (b) 超晶格结构的横截面电子显微镜图像. 约 500 nm 厚的超晶格薄膜由晶体硅组成, 其中穿插有 36 nm 周期性和约 20 nm 直径的 FCC 堆积孔隙, 导致孔隙率为 0.385 ± 0.02 ^[45]. (c) 傅里叶定律 (虚线红色) 预测值和实验得到的超低热导率数值 (灰色). 插图显示了块体硅导热率 (黑色)、体积缩减的有效介质理论 Eucken & Russell 导热率 (蓝色) 以及明显的超晶格导热率 (红色), 后者仅为块体的 1%^[45]

Fig. 12. Ultra-low thermal conductivity observed in three-dimensional silicon superlattices at room temperature. (a) Schematic diagram of the experimental setup. The thermal relaxation of the nickel grating on the superlattice surface is monitored after ultrafast infrared laser pump pulse excitation using a time-delayed extreme ultraviolet (EUV) probe beam^[45]. (b) cross-sectional electron microscope image of the superlattice structure. The approximately 500-nm-thick superlattice film is composed of crystalline silicon with 36-nm periodic and approximately 20-nm diameter FCC-stacked pores, resulting in a porosity of 0.385 ± 0.02 ^[45]. (c) Fourier's law predicted values (dashed red line) and experimentally obtained ultra-low thermal conductivity values (gray). The inset shows the bulk silicon thermal conductivity (black), the volume-reduced Eucken & Russell thermal conductivity (blue), and the distinct superlattice thermal conductivity (red), the latter being only 1% of the bulk value^[45].

来刻画超晶格内声子气体的输运方程. 考虑了孔隙边界处的非零热流量, 并将超晶格的渗透率类比于在稀薄气体中应用达西定律, 其方程表述如下:

$$\nabla T = -\frac{\mu}{K} \mathbf{q}, \quad (6)$$

$$\kappa = \frac{\mu}{K}, \quad (7)$$

其中 K 是渗透率; μ 是黏度, 通过将渗透率和黏度之间的比值解释为表观热导率, 该方程可以从高度受限纳米系统的表观热导率中推断出声子的黏度. 然而, 为了准确提取声子黏度, 必须对渗透率 K 进行详细表征. 这个纯几何量遵循普适的趋势, 可以通过仿照 Kozeny-Carman 关于达西定律 (Darcy's law) 中孔隙率的表述^[49], 加上 Klinkenberg 的准弹道修正并采用扩散声子边界碰撞假设^[50], 最终可以得到渗透率 K 如下:

$$K = \frac{d^2 \Psi^2 (1 - \phi)^3}{24 \Gamma^2 \phi^2}, \quad (8)$$

式中, d 是流体力学直径; ϕ 是孔隙率; Ψ 是孔隙的球形度即指孔隙或空隙在几何形状上与球形的相似程度; Γ 代表了热流线的平均长度与其两端之间距离的比值. 对于具有三维孔隙分布的系统, 声子黏度可通过测得的表观导热率和平均几何特性来计算. (8) 式适用于各种几何形状的系统, 而不局

限于超晶格系统. 研究表明, 在超晶格、纳米网格和多孔纳米线中, 在给定孔隙率下表观热导率强烈依赖于几何细节, 而黏度仅依赖于孔隙率, 更确切地说, 黏度包含 $(1 - \phi)/\phi$. 此现象具有普适性, 如图 13 所示, 几乎适用于目前文献所涉及的所有实验和大部分分子动力学模拟中的所有纳米结构系统.

由于声子的内禀性质主要取决于纳米系统的多孔性, 而与具体几何形状无关, 因此在图 13 中观察到的给定孔隙率下热导率的变化可以归因于仅与几何形状有关的渗透率 K . 渗透率不仅解释了经典体积缩减效应, 还反映了纳米尺度的几何效应, 可用于重新解释文献中观察到的热导率与几何描述符之间的相关性. 渗透率还可以与颈部尺寸或最小特征尺寸相关联, 而这些参数被证明是表征纳米结构对热导率影响的良好指标^[50-52]. 此外, 一些在声子晶体中常涉及的纯几何效应, 如孔隙各向异性^[53]、反向散射^[54]或表面扰动^[55]都可以与渗透率相关联. 目前对于声子流体力学行为的研究已经提出了适用于受限纳米结构 (三维超晶格、二维纳米网络、多孔纳米线和纳米线网络) 的普适理论. 类比于多孔介质中的流体力学, 可以将热导率拆分为渗透率 (该项与几何构型相关) 和黏度 (该项包含了声子流动和声子相互作用在纳米尺度的受限作用) 作用项, 且表观热导率的变化仅与渗透率相关.

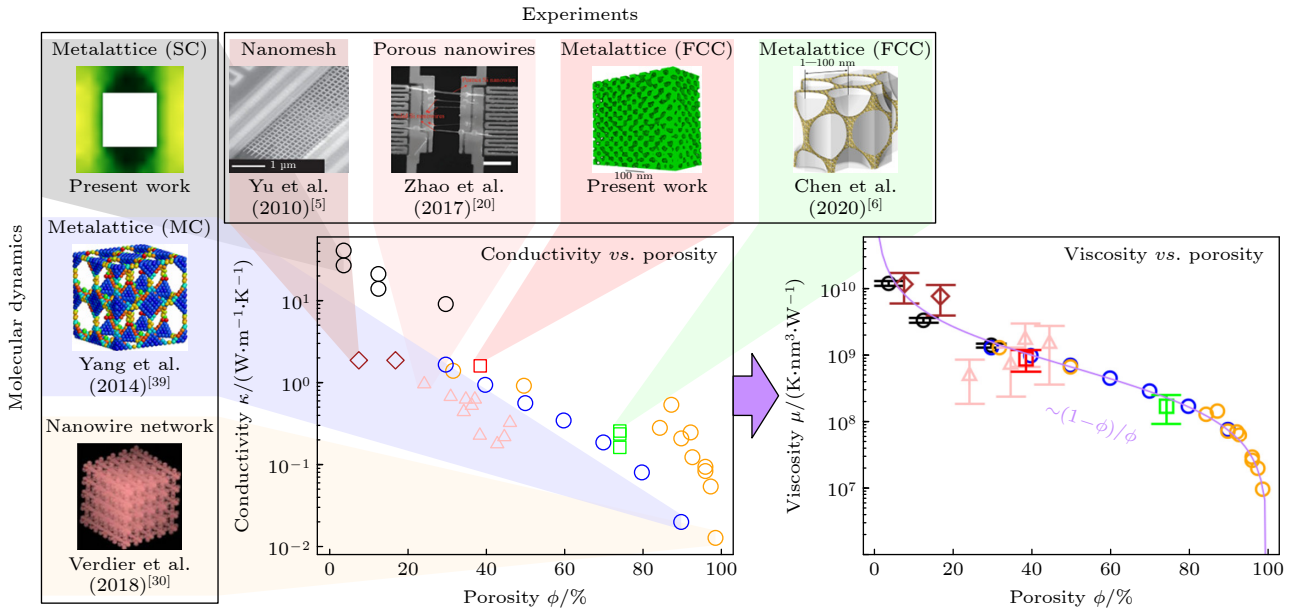


图 13 高度受限纳米体系中声子“黏度”(viscosity)与声子晶体孔隙率(porosity)的统一理论^[45]
 Fig. 13. Unified theory of phonon “viscosity” and “porosity” in highly constrained nano-systems^[45].

最近的数值模拟结果相应地在各类体系中观察到了声子的流体力学行为并对其展开研究. Zhang 等^[56]通过玻尔兹曼方程研究了有机材料中的声子流体力学传输. 研究表明, 聚乙烯 (polyethylene, PE)、聚乙炔 (polyacetylene, PA-II)、聚苯 (polyacene, PA-I) 等晶体聚合物, 都存在显著的声子流体力学传输现象, 其中聚乙烯在中温区 (120 K) 呈现明显声子流体力学行为. 他们通过对其谱声子分析发现, 这种行为来源于聚乙烯分子中一种特殊的扭转运动. Jiang 等^[57]利用声子玻尔兹曼输运方程结合第一性原理计算, 探索了各种材料的晶格热导率 κ 和不同相互作用势截断半径 r_c 之间的关系. 截断半径是在模拟中用于限定相互作用范围的参数, 它将原子之间的相互作用限制在小于 r_c 的范围内, 超出这个范围的相互作用将被忽略, 从而起到简化计算的作用. 他们对石墨烯和硅烯进行了研究, 并与块体硅的结果进行了比较. 他们发现随着 r_c 的增加, 石墨烯的 κ 最难收敛, 而块体硅的 κ 能够在较小的 r_c 下完成收敛. 在此研究过程中, 他们发现在石墨烯、硅烯这两种二维材料中都观测到了声子的流体力学行为, 这种现象源自于强烈的竖直方向 (Z 轴方向) 振动. 尽管对声子流体力学行为的研究, 尤其是在二维材料体系中^[58-60], 取得了一定的进展, 但是对于特定尺度下声子流体力学行为的理解还远远不够, 仍需要开展进一步的理论研究、数值模拟和实验验证.

3.4 双层转角石墨烯热传导的“魔角”

在二维材料的研究中, 双层转角石墨烯的研究是近年来的一个研究热点. 由于双层石墨烯上下层间转角的调控, 双层转角石墨烯 (twisted bilayer graphene, TBG) 可以形成一个新的超周期晶格——莫尔晶格. 当转角为 1.08° 时, 能带杂化及反交叉的出现导致在狄拉克点附近形成平带. 在 1.08° 的转角下, 双层石墨烯会产生很多不寻常的现象, 包括超导、电子强关联、自发铁磁性、量子化的反常霍尔态以及拓扑保护态等^[61-63]. 因此, 1.08° 常被称为“魔角”. 旋转角对于声子热运输会产生什么样的影响, 这个问题吸引了众多研究者的关注.

转角石墨烯除了石墨烯材料本身的周期结构外, 还存在第二个周期结构——莫尔晶格, 类似纳米声子晶体. 声子晶体的热传导系数除了依赖构成声子晶体材料的性质 (包括周期) 外, 还依赖声子晶体的周期等 (如图 14(a) 所示). 由此可以推断, 扭转石墨烯的热传导一定会依赖旋转角.

研究表明, 扭转石墨烯中由于不同高对称性方向的声子混合会产生混合折叠声子模式, 进而对声子性质产生影响, 尤其是石墨烯最主要的热载流子——面外声子^[11,64]. Li 等^[65]发现, 相比于未扭转的石墨烯, 在扭转角度为 34° 时石墨烯热导率减少.

在进一步的研究中, Han 等^[66]发现在 $0^\circ-30^\circ$ 之间, 旋转石墨烯面上热导率呈现一个不对称的 V 形, 即先下降后又上升. Battista 等^[67]测量了 TBG

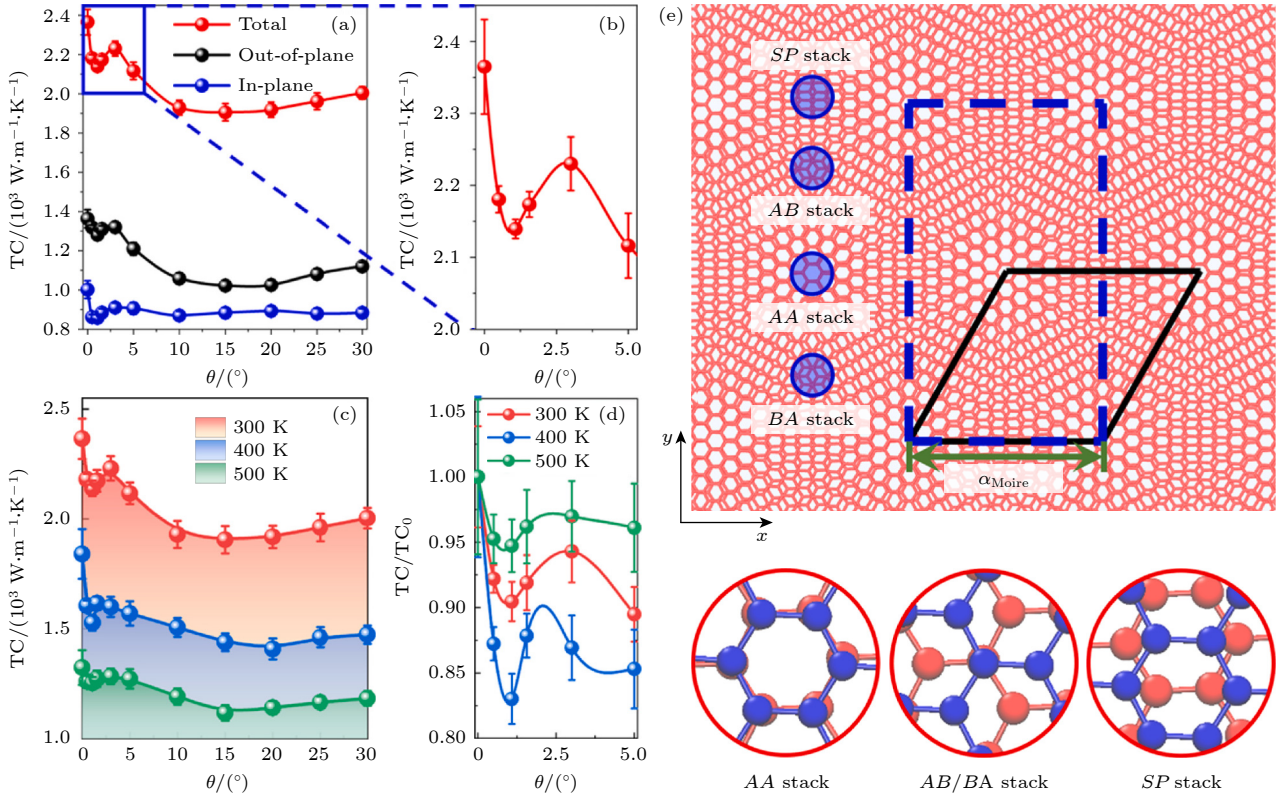


图 14 (a) 双层旋转石墨烯面内振动, 垂直方向振动对热传导的贡献和总的热导率随旋转角的变化^[71]; (b) 图 (a) 中 (0° — 5°) 范围内放大的热导率变化^[71]; (c) 不同温度下热导率与旋转角的依赖关系^[71]; (d) 0° — 5° 转角下不同温度热导率随转角的变化关系^[71]; (e) 双层旋转石墨烯形成的莫尔晶格 (Moiré) 和 AA, AB, SP 堆积结构的原子位置. 红/蓝颜色的原子对应下层和上层的碳原子^[71]

Fig. 14. (a) Total, in-plane, and out-of-plane thermal conductivity of TBG varies as twist angle from 0° to 30° at 300 K^[71]; (b) total thermal conductivity of TBG versus twist angle below 5° ^[71]; (c) total thermal conductivity of TBG versus with twist angle at temperatures 300, 400 and 500 K^[71]; (d) normalized thermal conductivity with respect to the value of the untwisted structure as a function of twist angle at 300, 400 and 500 K^[71]; (e) the Moiré lattice formed in TBG and the atomic arrangements of AA, AB, and SP stacks^[71].

的电子热导率随转角的变化. Nie 等^[68], Li 等^[69]和 Wang 等^[70]分别用非平衡分子动力学方法研究了 TBG 的热导率, 所得到的热导率对转角依赖关系的物理意义仍不清楚.

最近 Cheng 等^[71]发现了双层转角石墨烯 (TBG) 的热导率在转角为 1.08° 时呈现一个反常的局部极小值. 通过非平衡分子动力学研究发现, 热导率的局部极小值源自于原子振动振幅和应力的空间分布与散射位点密度之间的竞争. 在莫尔晶格中, 不同位置两层石墨烯的堆叠方式是不一样的, 在一个周期内典型的堆叠方式包括 AA, AB/BA, SP 堆叠 (如图 14(e) 所示). 不同的堆叠模式使得不同位置的原子振动和应力都有所区别, 导致声子所感受到的环境不一样, 从而产生声子散射位点, 降低热导率. “热魔角”的形成源自于原子振动振幅和应力的非局域化与 AA 堆积密度增加之间的竞争. 前者削弱了单个散射位点的散射强度, 后者增

大了散射位点的密度. 这两种效应的结合最终导致了转角石墨烯中出现了热传导的不规则性.

此外, 研究还表明“热魔角”的出现不随温度改变而改变, 揭示了纳米尺度下新的传热机制与二维材料的独特物理特性.

4 声子热导率调控

材料的声子热导率与材料中的声子行为密切相关, 其热导率可由如下公式表示:

$$\kappa = \frac{1}{24\pi^3} \sum_n \int C(k, n, T) v_g^2(k, n) \tau(k, n, T) dk, \quad (9)$$

$$v_g = \frac{\partial \omega}{\partial k}. \quad (10)$$

积分项中 n 是表示声子谱中第 n 支声学模式; k 是声子波矢; T 是温度; τ 是声子寿命; C 代表着每

一声子模态的热容; v_g 则是声子的群速度, 其为声子频率对波矢的偏导.

(9) 式表明影响声子行为的因素包括: 声子寿命, 声子数量, 声子的群速度. 声子作为一种准粒子, 具有波粒二象性. 调控声子的方式可以大致分为两类: 一类主要调制声子的波的性质; 另一类则注重于调制声子的粒子行为. 决定声子展现出粒子行为还是波动行为的关键在于三个长度之间的大小关系: 声子波长, 声子平均自由程 (声子群速度乘以声子寿命), 声子晶体的晶格常数.

4.1 纳米声子晶体调控热输运

声子具有特定的频率和波矢, 频率和波矢之间的关系被称为声子的色散关系. 与波一样, 声子也具有干涉和反射等性质. 调节声子的干涉行为在声子晶体中得到了广泛应用.

声子的相干性描述了声子振幅和相位在空间和时间上的关联程度. 相干现象是声子之间由于相位差异而引起的增强或抵消效应. 利用这种相干性, 人们可以通过构建特殊结构使处于特定频率范围内的声子相互抵消, 在声子色散谱中表现为禁带的出现. 当禁带出现时, 特定频率的声子无法通过, 导致材料的热导率急剧下降.

调控声子波行为制备声子晶体可分为两类: 布拉格散射型声子晶体和局域共振型声子晶体.

前者利用了声子的相干散射特性, 所以使用其机理构建的声子晶体为布拉格散射型声子晶体. 这种声子晶体是在声子的传播方向上构建周期性界面. 当声子的波长大于或接近晶格常数时, 布拉格定律 (Bragg's law) 将主导声子的输运过程^[66]. 使

声子被散射后发生相干 (如图 15), 从而导致完全带隙的产生. 在这种声子晶体中, 散射体的几何形状、晶格结构、散射体与晶格对称性等参数都会对带隙的位置和宽度产生影响. 局域共振型声子晶体则是利用结构中的局部共振单元来实现热导率的降低. 当传播声子频率和局部共振单元的共振频率相近时, 共振单元会发生共振, 导致声子群速度降低. 通常, 周期性局部共振体通常为柱状结构^[67] (如图 16 所示). 这些结构类似于谐振腔, 可以让部分声子局域化, 降低声子的传输能力, 进而降低材料的热导率. 拥有上述结构的纳米声子晶体的声子谱将显示出平带. 声子谱的斜率代表声子的群速度, 斜率越小, 声子的群速度越低, 材料的导热系数也越低. 而且如果在周期性声子晶体中引入无序结构, 可以使声子发生局域化, 从而进一步降低热导率. Ni 和 Volz^[73] 总结了声子在无序原子系统中的 Anderson 局域现象, 通过实验证据和理论分析, 讨论了声子 Anderson 局域现象的影响因素. Shao 等^[74] 通过原子级声子波包模拟研究了表面无序化和粗糙度对声子散射的影响, 挑战了传统对声子表面散射的认识, 并提出了对表面散射机制的新理解. Sun 等^[75] 将硼氮化物/碳纳米管超晶格结构中超晶格层厚度随机化, 通过分子动力学计算证明了声子 Anderson 局域的存在, 并进一步探讨了不同超晶格厚度分布对热导率的影响, 为设计低热导率热电材料提供了新思路. Wang 等^[76] 发现通过随机化超晶格层厚度, 可以显著地降低热导率, 这展示了相干声子在随机多层结构中的局域现象. Chowdhury 等^[77] 使用机器学习方法, 可以最大化多层结构带来的影响.

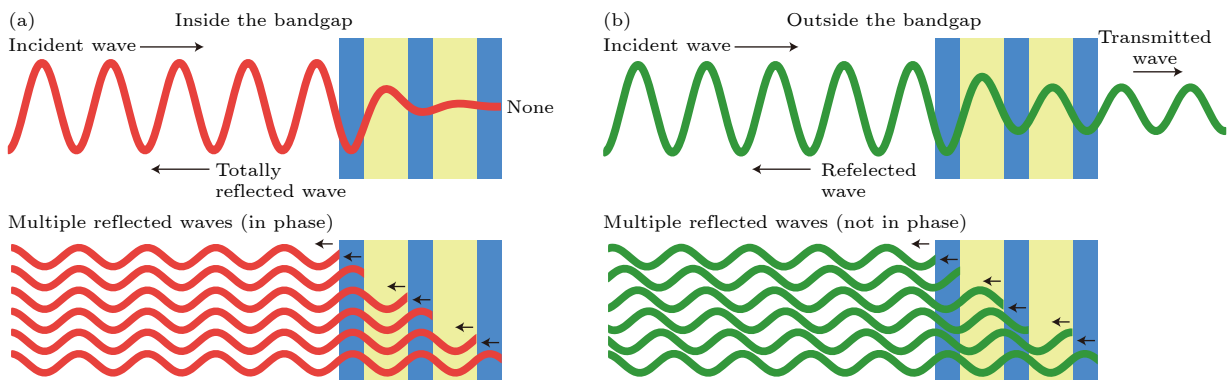


图 15 布拉格反射型声子晶体中声子在声子晶体的运动行为 (a) 处于禁带内的声子穿过周期结构逐渐消失^[72]; (b) 处于禁带外的声子能够穿过周期结构^[72]

Fig. 15. Travel behavior of phonons in phononic crystals: (a) Phonons within the bandgap gradually disappear as they pass through the periodic structure^[72]; (b) phonons outside the bandgap are able to pass through the periodic structure^[72].

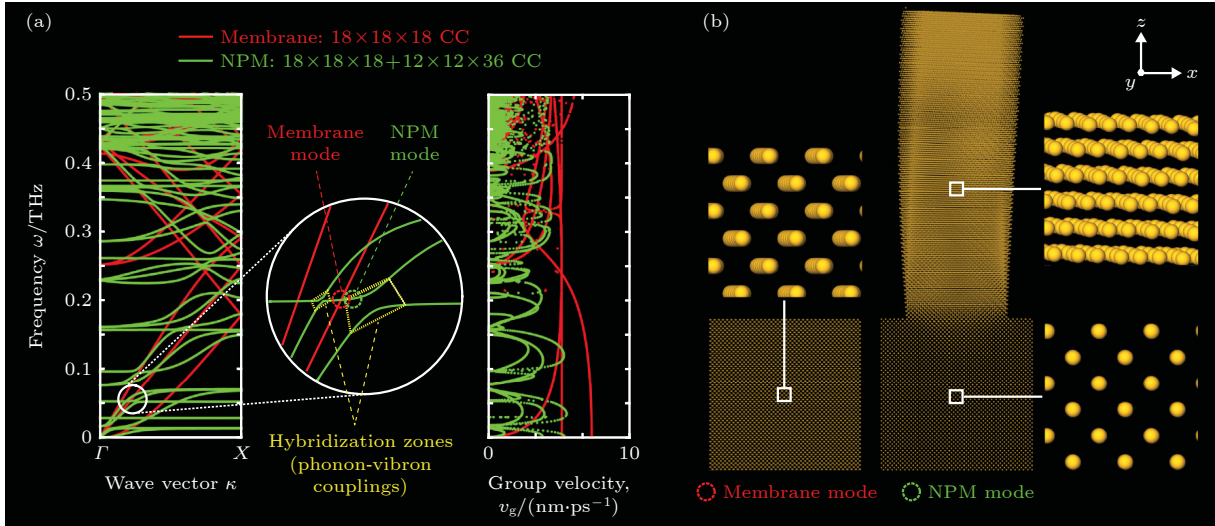


图 16 局域共振型声子晶体 (a) 相同材料下具有柱状结构的纳米声子晶体 (红色) 声子谱、群速度和没有柱状结构的膜 (绿色) 的声子谱、群速度的对比^[78]; (b) 柱状分子纳米声子晶体的结构^[78]

Fig. 16. Phononic crystals with resonant cavities: (a) Comparison of phonon spectra and group velocities between nanophononic crystals with pillars (red) and membranes without pillars (green) made of the same material^[78]; (b) structure of the nanophononic crystal with pillars^[78].

声子在运动过程中会在某些情况表现出粒子行为. 当声子经历的周期结构尺寸大于其平均自由程时, 声子会呈现扩散 (diffusive) 行为. 反之, 声子传播的方式为弹道输运 (ballistic). 声子之间和声子与周期结构之间还会发生散射等行为, 这些声子通常被称为非相干声子.

为了使声子遵循粒子般的扩散行为, 最好的办法就是调控声子的平均自由程. 掺杂 (doping) 是一种不错的方法, 掺杂是指向材料中引入杂质或其他元素, 如同位素. 这些杂质或掺杂元素在材料的晶体结构中替代原有的元素并嵌入到晶格中, 声子经过时会发生散射. 掺杂可以使声子寿命降低, 从而降低声子的平均自由程, 使材料的热导率降低. 不仅如此, 声子在边界上也会发生粒子般的散射行为. 因此, 也可以通过调节边界粗糙度^[79]使声子的平均自由程降低.

声子晶体 (phononic crystal), 顾名思义就是通过周期结构调控声子输运行为来改变物理特性的一类人造晶体. 声子是一种准粒子, 它代表着物体在特定时刻的振动模式. 不同频率的声子可以传递不同的信息.

低频的声子 (1 Hz—1 GHz) 主要传递声音信息, 而高频的声子 (> 1 THz) 则被视为热传导过程中的载流子 (图 17). 这种传热声子的波长大约在纳米尺度, 因此, 可调控热运输的声子晶体也常

被称作“纳米声子晶体 (nanophononic crystal)”.

4.1.1 一维纳米声子晶体

最常见的一维声子晶体也被称作超晶格 (superlattice), 将两种或多种不同材料沿某一特定方向进行周期排列而得到的结构. Li 等^[81]提出了简化共振模型来预测局部柱状共振器对声子群速度的影响, 他们提出的简化共振模型 (如图 18(a)) 能很好地预测声子群速度的下降现象, 该模型能很好符合有限元模拟结果. Costescu 等^[82]观察到 W/Al₂O₃ 超晶格的导热系数比氧化铝和钨的平均导热系数小 1/4. 在纳米声子晶体的研究领域中, 硅材料被广泛用于研究声子输运性质. 来自日本东京大学的 Nomura 课题组^[83-86]对硅基声子晶体进行了全面研究. 他们对比了相同孔隙率下周期孔结构与无规则孔结构的硅基声子晶体热导率下降情况, 在温度为 4 K 时, 时域热反射 (time-domain thermoreflectance, TDTR) 的实验结果表明, 规则孔结构的硅热导率下降到块体硅的 21%, 而无规则孔的热导率下降到块体硅的 8.5%. 对于声子晶体的其他结构, 如局部共振器、边界等对声子导热的影响, Nomura 课题组都进行了十分深入的研究 (如图 18(b)). Wang 等^[87]对石墨烯纳米带 (graphene nanoribbon, GNR) 的研究揭示, 只需要加入一部分杂质颗粒或者空隙, 就能大大削弱局部共振作用降低热导率 (如图 18(c)).

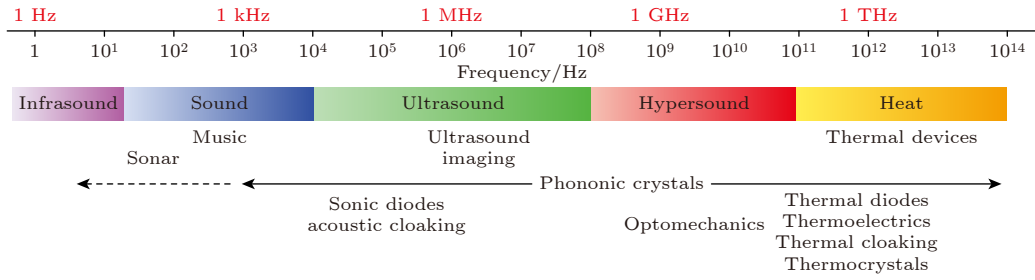


图 17 不同波长声子传递的信息^[80]

Fig. 17. Information transmission by phonons of different wavelengths^[80].

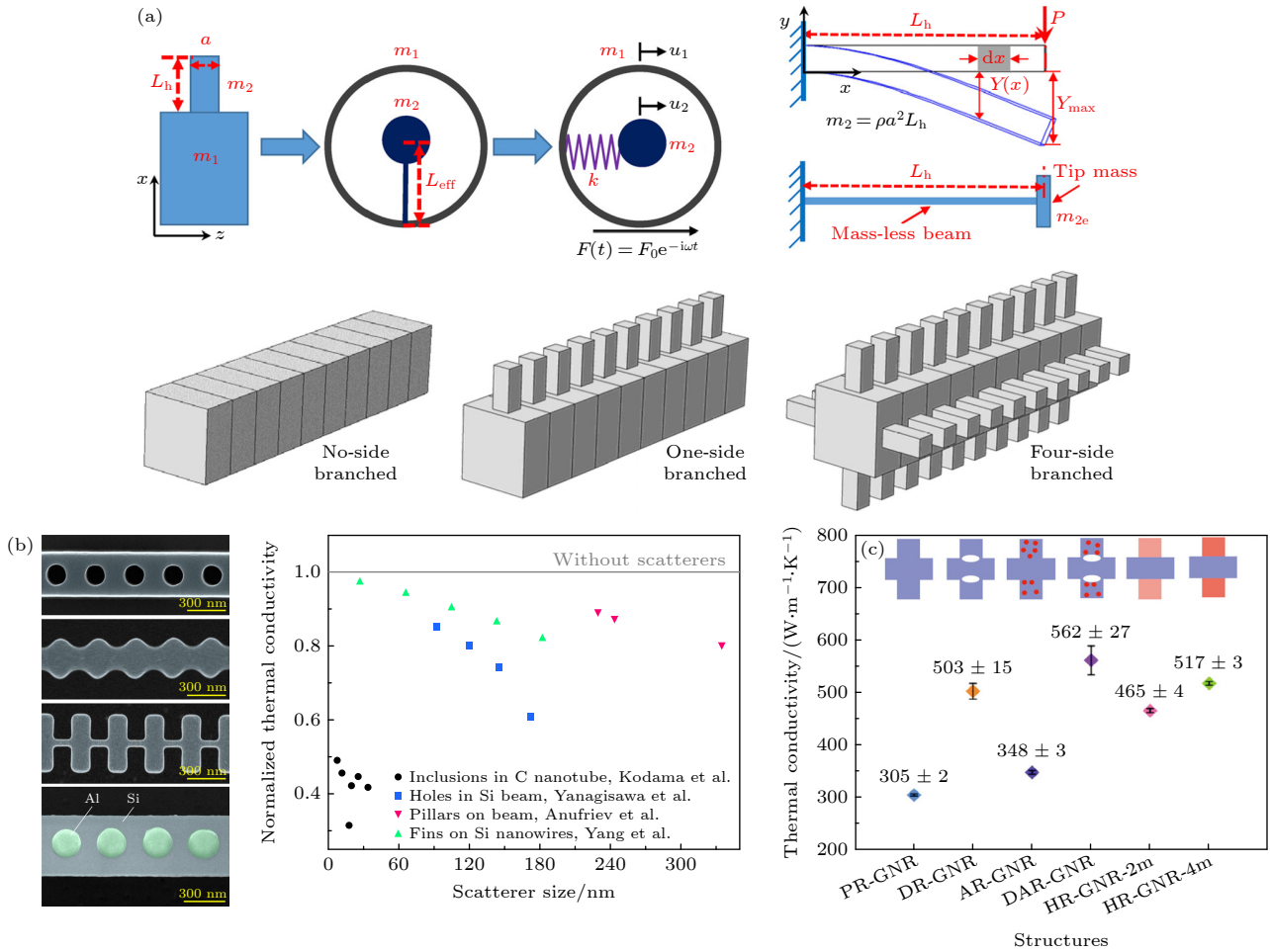


图 18 (a) 简化后的共振器模型^[81]; (b) 四种不同类型的周期型结构 (由上至下分别是打孔结构、翅形结构、柱形结构、材料掺杂结构), 以及四种结构的热导率与结构尺寸的变化关系^[84]; (c) 不同共振器结构 GNR 的热导率^[87]

Fig. 18. (a) Simplified resonator model^[81]; (b) four different types of periodic structures (from top to bottom: holes, wings, pillars, and material-doped structure), and the relationship between thermal conductivity and structural size for the four structures^[84]; (c) thermal conductivity of different resonator structures in GNRs^[87].

4.1.2 二维纳米声子晶体

当块体材料在两个方向上都具有周期性的结构时, 称为二维声子晶体. 二维声子晶体的研究与一维声子晶体相似. Yang 等^[88]对二维石墨烯声子晶体 (graphene phononic crystal, GPnC) 的热导率进行了理论计算, 他们使用非平衡分子动力学的

方法探究了样品长度、温度等因素对石墨烯声子晶体热导率的影响. 如图 19(a), (b) 所示, 他们发现二维石墨烯声子晶体的热导率随长度的增加而增加, 并在一定长度 (~250 nm) 后增长趋于平稳. 此外, 与石墨烯相比, 石墨烯声子晶体表现出不同的温度依赖性行为, 随着温度的升高, 热导率下降得

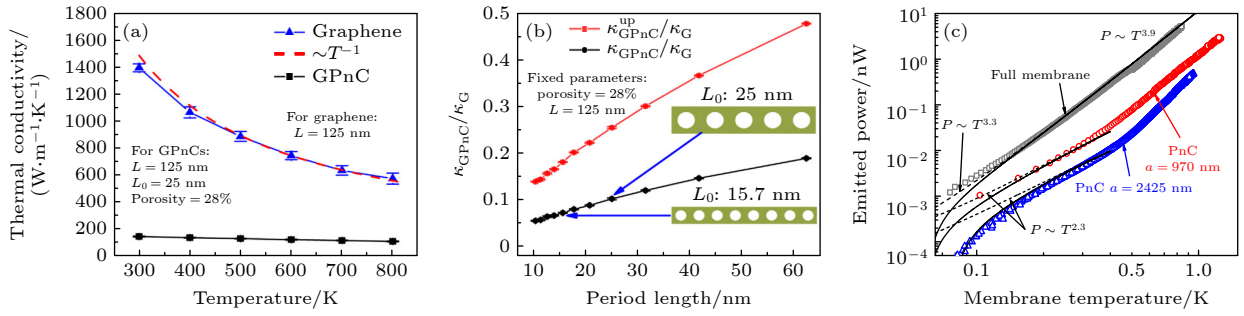


图 19 二维石墨烯声子晶体的热导率随 (a) 温度, (b) 周期长度的变化情况^[88]; (c) 声子晶体在激光加热下的温度变化情况, 符号的大小代表测量误差^[89]

Fig. 19. Thermal conductivity variation with temperature (a) and system periodic length (b)^[88]; (c) temperature changes of the nanophononic crystals under laser heating, where the symbol size represents measurement errors^[89].

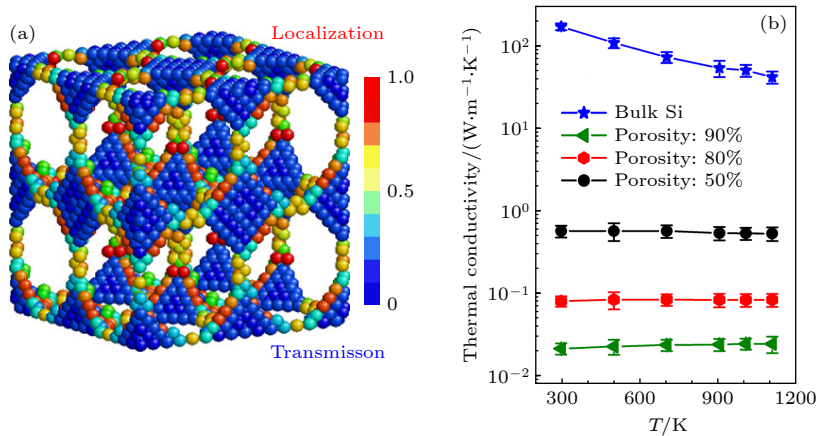


图 20 (a) 三维声子晶体中声子传输方式示意图^[91]; (b) 不同孔隙率下硅基声子晶体热导率随温度变化情况^[91]

Fig. 20. (a) Schematic representation of phonon transport in three-dimensional nanophononic crystals^[91]; (b) temperature dependence of thermal conductivity in silicon-based nanophononic crystals with different porosities^[91].

较慢. 同时, 他们还研究了不同波长声子的参与率, 对以上现象背后的物理机理给出了合理的解释. Zen 等^[89]在 1 K 的环境下进行实验, 观察到具有规则孔洞的氮化硅薄膜热导率存在下降情况 (如图 19(c)). 通过分析声子态密度, 他们提出热导率下降不仅仅是因为相干声子, 态密度和群速度的降低同样带来了热导率的下降.

4.1.3 三维纳米声子晶体

研究发现, 与二维声子晶体类似, 三维声子晶体的热导率下降也不能简单归因于相干声子的影响. Yang 等^[90,91]通过分子动力学模拟, 探究了三维硅纳米声子晶体的热导率变化规律. 研究的结果表明: 孔隙率越大, 声子晶体热导率越低, 孔洞的存在可以将硅的热导率降低到原来的 1/10000 (如图 20). 声子的参与态密度表明, 随着孔隙率的增加, 更多的声子被局域化. 硅纳米声子晶体热导率对温度变化不敏感, 计算表明从室温到 1100 K, 热

导率几乎无变化.

4.2 纳米热超材料调控热输运

超材料是一种人造材料, 通过结构设计对材料的关键物理参数进行调控, 从而赋予其独特的物理性质, 这些性质常规材料往往不具备. 随着纳米技术的不断发展, 实验中可实现的材料结构制备尺度不断减小, 超材料的概念不再局限于宏观材料. 在热学和声子调控领域, 制备纳米超材料的方法可以归纳为以下几种.

4.2.1 表面修饰

在微纳尺度下, 材料的热导率受到声子行为控制, 声子会与界面发生相互作用. 声子可以在界面处发生镜面反射或漫反射, 或兼而有之. 用于估计镜面反射程度的参数 p 可以使用 Ziman 公式^[48]得到:

$$p = \exp\left(-\frac{16\pi^3\delta^2}{\lambda^2}\right), \quad (11)$$

其中 λ 表示声子波长; δ 是均方根表面粗糙度. 当 $\delta \ll \lambda$ 时, p 趋近于 1, 对应于纯粹的镜面反射, 这种反射对声子传输没有干扰. 当 $p = 0$ 时, 声子散射全为漫反射, 材料的热导率最低, 这个极限被称为卡西米尔极限 (Casimir limit)^[92].

目前人们已经提出很多理论模型来理解声子反射的具体机制. Martin 等^[93] 认为表面粗糙度会导致声子谱的改变, 并使用微扰理论计算了声子的表面反射, 如图 21(a) 和图 21(b). Maurer 等^[94] 通过声子蒙特卡罗 (Monte Carlo) 模拟了硅纳米线表面粗糙化导致的极低热导率. 研究发现, 在不同粗糙度条件下, 几何平均自由程 (geometric mean free path) 会影响材料的热导率. 在较低粗糙度下, 热导率与几何平均自由程呈指数关系; 而在高粗糙度下, 声子在表面多次散射导致热导率线性下降, 接近非晶极限 (amorphous limit). 除此之外, 如图 21(c), Chang 等^[95] 通过在高热导率的碳和氮化硼纳米管外部沉积铂, 首次在实验上制备了微纳尺度下的热二极管. 另外, 由于表面修饰在大多情况都会降低

热导率, 所以通过表面修饰调控声子行为在热电领域也具有广泛的应用前景^[96,97].

4.2.2 多孔结构

多孔结构为进一步降低纳米材料的热导率提供了一种新方法. 不同于声子晶体的周期性孔结构. 无序的孔洞可以增强声子散射并减小声子的平均自由程, 从而高效调控材料的热导率.

利用嵌段共聚物光刻法^[100,101] 制备多孔硅薄膜是一种常用的方法, 这样制备的多孔材料热导率受孔径的影响很大. 多孔硅通常可根据其孔径进行分类, 包括微孔 (<2 nm)、介孔 (2—50 nm) 和大孔 (>50 nm). 一直以来, 在研究声子行为时, 无序孔都会和规整排列有序孔 (纳米声子晶体) 进行比较. Lee 等^[102] 通过分子动力学模拟和第一性原理计算了周期性排列的纳米级孔隙 (图 22(a)) 以及非周期排列孔 (图 22(b)) 对晶体硅的室温热电性能的影响, 发现周期性和非周期性的孔带来的热导率下降区别并不是很大. 然而 Ma 等^[103] 认为 Lee 等^[102] 的模拟体系太小, 在考虑更大的声子波长的情况下, 他们使用宏观有限元模拟微观波在规整和无

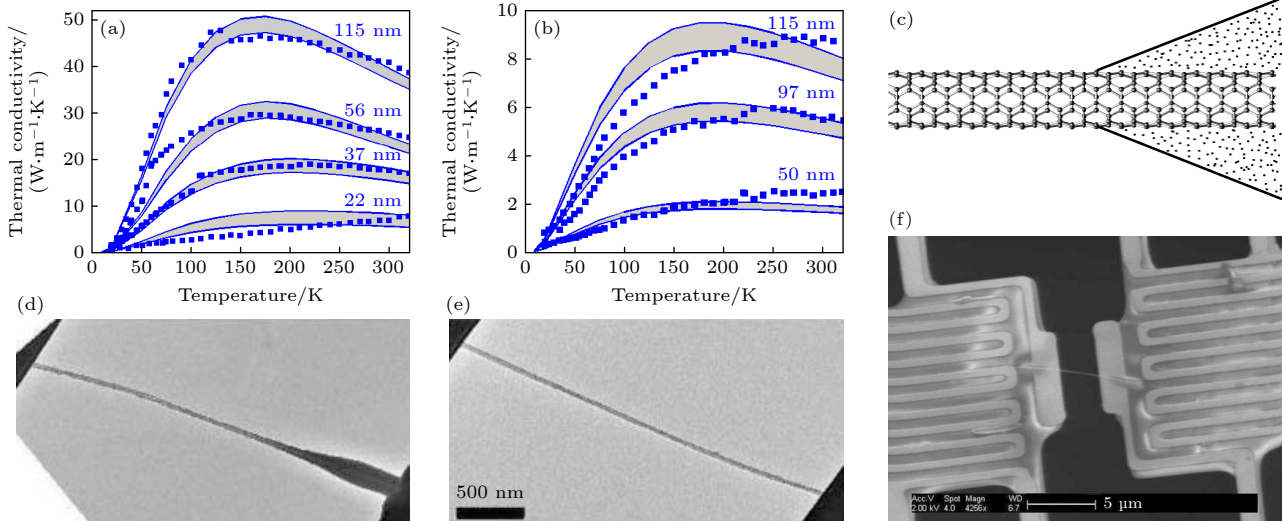


图 21 (a) 光滑的 VLS Si 纳米线的热导率, 阴影区域是具有均方根粗糙度为 1—3 Å 的理论预测^[93,98]; (b) 粗糙的 Si 纳米线的热导率 (均方根粗糙度为 3—3.25 nm)^[93,99]; (c) 在纳米管 (晶格结构) 上沉积金属铂的示意图^[95]; (d), (e) 相应的低放大倍率透射电子显微镜图像, $C_9H_{16}Pt$ 沉积在电极上前 (d) 后 (e) 的碳纳米管 (中间的浅灰色线) 的扫描电子显微镜图像, 比例尺为 5 μm; (f) 热导率测试实验装置示意图^[95]

Fig. 21. (a) Thermal conductivity of smooth VLS Si nanowires. The shaded areas represent theoretical predictions result with root mean square roughness of 1–3 Å^[93,98]. (b) Thermal conductivity of rough Si nanowires with root mean square roughness of 3.00–3.25 nm^[93,99]. (c) Schematic description of depositing amorphous $C_9H_{16}Pt$ (black dots) on a nanotube (lattice structure)^[95]. (d), (e) Corresponding low-magnification transmission electron microscopy images of the same carbon nanotube, showing the condition before (d) and after (e) $C_9H_{16}Pt$ deposition. Scanning electron microscopy image of a carbon nanotube (light gray line in the center) with $C_9H_{16}Pt$ deposited on the electrodes, the scale bar is 5 μm. (f) Schematic diagram of experimental device for thermal conductivity test^[95].

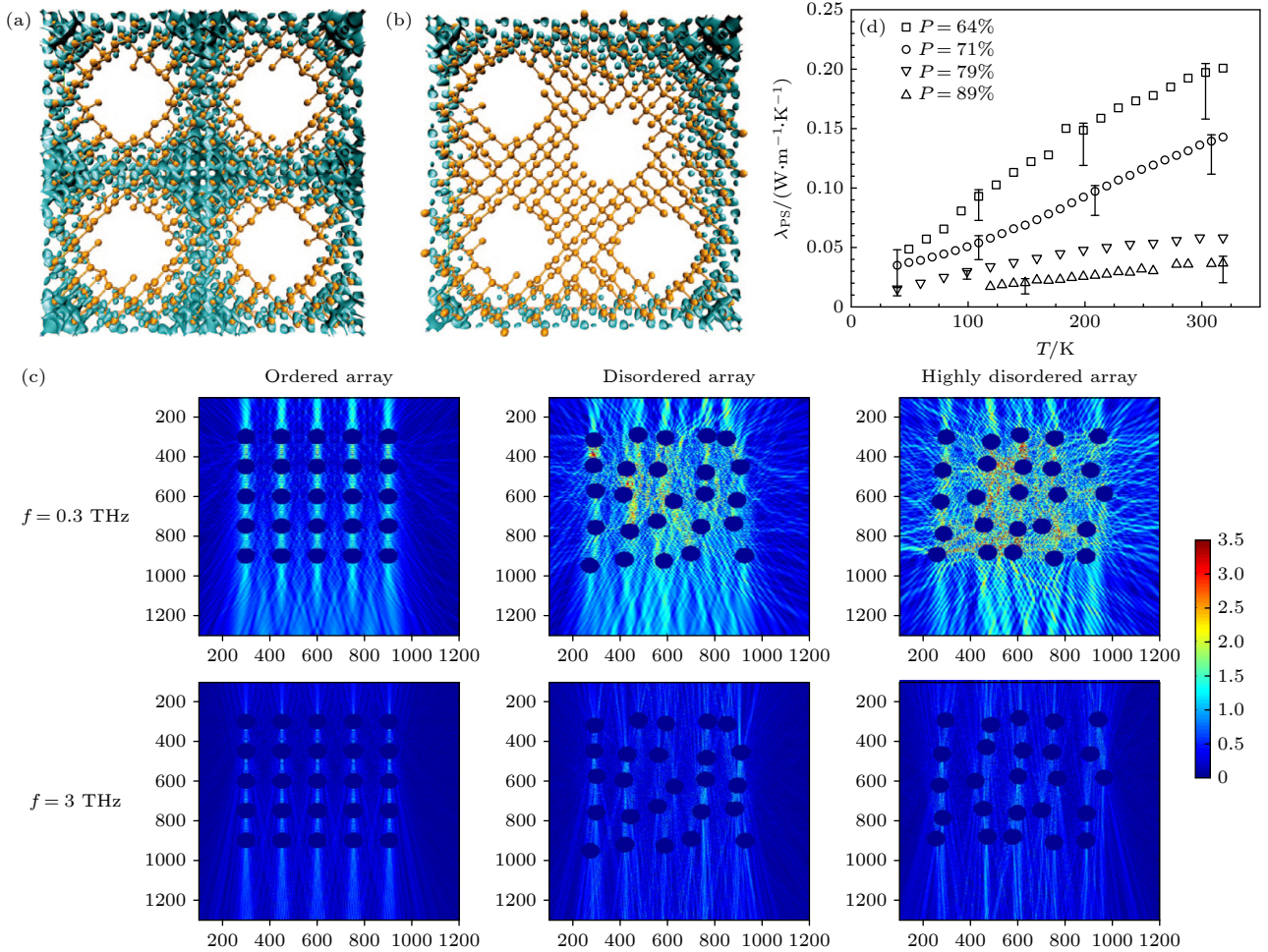


图 22 (a) 周期排布孔硅纳米材料^[102]; (b) 规整排布孔硅纳米材料^[102]; (c) 不同频率的波穿过规整和无规多孔介质的散射情况^[103]; (d) 无规多孔硅热导率在不同孔隙率 $P = 64\%$, 71% , 79% , 89% 的变化情况^[104]

Fig. 22. (a) Periodic porous silicon nanomaterials^[102]; (b) regularly arranged porous silicon nanomaterials^[102]; (c) scattering of waves at different frequencies through periodic porous and amorphous porous media^[103]; (d) variation of thermal conductivity for amorphous porous silicon with different porosities $P = 64\%$, 71% , 79% , 89% ^[104].

序孔洞中的散射行为后, 发现低频声子相较于高频声子而言更容易发生散射 (图 22(c)), 这样的散射行为对材料的热导率影响很大. Gesele 等^[104] 通过 3ω 法测量了电化学腐蚀多孔硅层的热导率 (图 22(d)), 发现热导率比纯硅小 3—5 个数量级, 热导率随着孔隙率的降低而增加, 随温度的升高而增加.

4.2.3 缺陷与同位素掺杂

缺陷通常指实际晶体材料与理想晶体材料之间的差异, 常见的缺陷包括点缺陷、线缺陷 (位错) 和面缺陷等. 大多数情况下, 缺陷被视为不利因素, 但因为声子的特征长度与纳米结构的特征长度相当, 故而也可以利用缺陷来实现对声子行为的调控. 同位素掺杂 (doping) 等缺陷会增加声子散射, 从而导致纳米材料的热导率下降并提高其热电优值. 与 10 年前相比, 科学家们对掺杂和缺陷调

控的理解更加深入, 已经有许多研究提供了宝贵的经验, 可以指导这一领域的持续发展^[105].

氦离子辐照 (helium ion irradiation) 是一种实验技术, 通过使用高能氦离子束对材料进行辐照处理, 氦离子辐照的过程涉及将高能氦离子束照射到目标材料表面或内部. 这些高能氦离子可以穿透材料的表面并在其内部产生能量沉积, 导致原子的位移和缺陷产生. Zhao 等^[106] 使用氦离子辐照技术对硅纳米线进行处理. 他们在硅纳米线的不同位置进行辐照, 并用热桥法对热导率进行测量. 如图 23(a), 他们发现通过对辐照剂量的精确控制, 可以实现局部热导率的精确调控, 使其在晶体和非晶体之间变化 (图 23(b)). 此外, 硅纳米线的热导率随辐照剂量的增加而急剧降低, 仅 4% 的缺陷就能将热导率降低约 70%. 在 $300\text{ }^{\circ}\text{C}$ 下退火 2 h, 受损

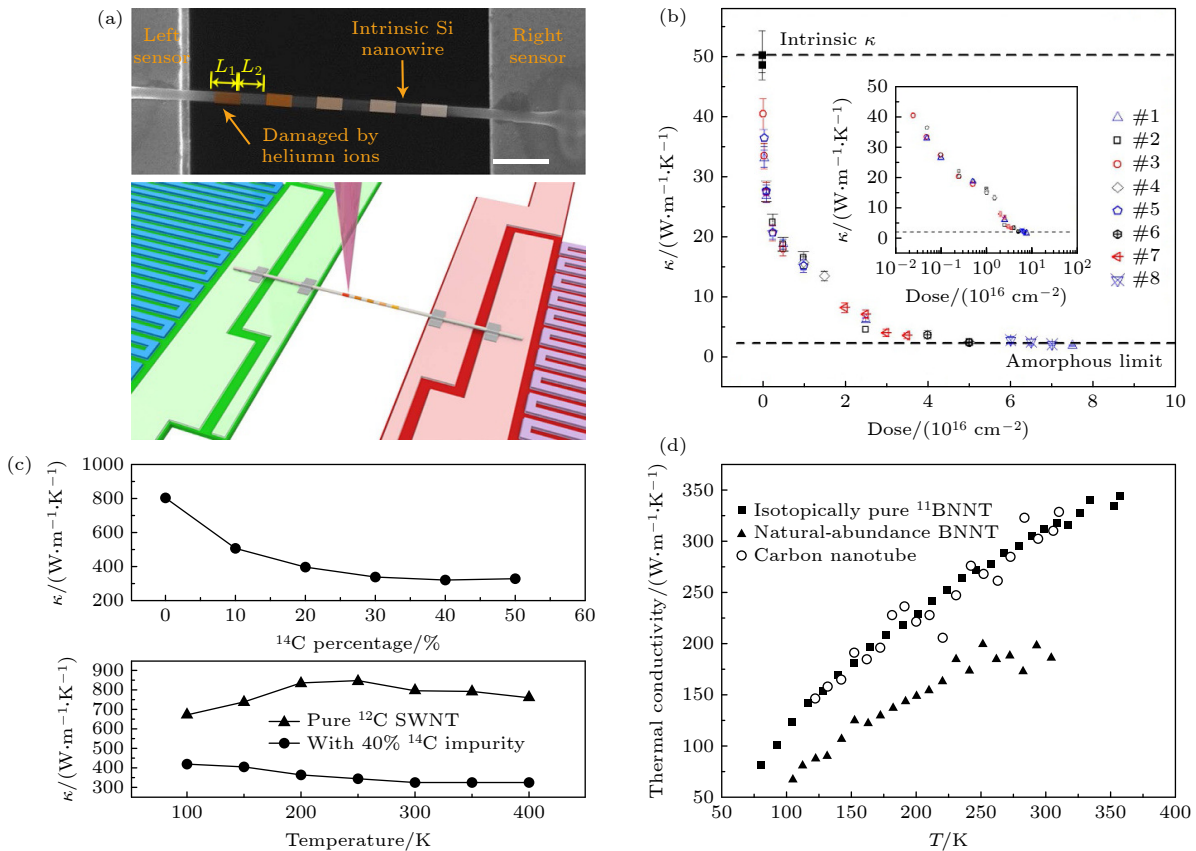


图 23 (a) 氦离子辐照后实验实物图和示意图^[106]; (b) 硅纳米线热导率随掺杂浓度的变化^[106]; (c) 单壁碳纳米管热导率随掺杂浓度下降示意图^[16]; (d) 掺杂前后氮化硼热导率随温度的变化^[110]

Fig. 23. (a) Experimental images and schematic diagram after helium ion irradiation^[106]; (b) thermal conductivity variation of silicon nanowire with doping concentration^[106]; (c) decrease in thermal conductivity of single-walled carbon nanotubes with doping concentration^[16]; (d) variation of boron nitride thermal conductivity with temperature before and after doping^[110].

部分的热导率可以恢复. Aiyiti 等^[107]用低氧等离子体也实现了二维 MoS_2 热导率的连续调控.

同位素掺杂是指在一个物质中将一种元素的原子替换为该元素的同位素, 这种方式将会产生缺陷, 从而影响材料的热导率. 在纳米材料中, 质量的突变很容易引起声子行为的改变. Zhang 等^[16]通过理论模拟了单壁纳米管的热导率与其手性、同位素杂质、管长和温度之间的关系. 作者发现其结果与电导率的变化相反, 热导率对于纳米管的手性不敏感. 然而, 同位素杂质可以将热导率降低 60% (如图 23(c)), 并改变热导率的温度依赖行为. 在纳米材料中, 同位素导致的热导率下降大都源于声子局域化的形成, 有大量的理论模拟对同位素掺杂热导率降低的规律进行了研究^[108,109]. Chang 等^[110]通过实验研究了硼 11 掺杂的氮化硼, 发现天然氮化硼纳米管是纯硼 11 的氮化硼纳米管热导率的 50% (如图 23(d)). 这样由于同位素存在的热导率降低实验结果很好的符合了图 23(c) 的数值模拟

结果. 同时他们还发现纯硼 11 的氮化硼纳米管热导率大小及随温度变化的规律与碳纳米管基本一致, 作者推测这是因为硼 11 的原子质量和碳的原子质量相近, 进而两种材料的声子行为相似.

4.3 界面热阻调控热输运

界面热阻 (interfacial thermal resistance, ITR) 是指热流通过两个材料形成的界面受到的阻碍. 它衡量了热流从一个材料传递到另一个材料的难易程度. 降低电子设备内部界面热阻可以提高热量的传递和散热效率, 避免热量在局部区域积累而导致设备的损坏. 设备热管理不仅保障了器件的可靠性, 同时也决定了芯片算力能达到的高度. 据此, 散热问题已成为“后摩尔”时代电子技术发展的重大挑战之一^[1].

界面的能量传递涉及界面处相互作用和散射过程, 包括电子-声子、声子-声子相互作用和声子-界面散射等, 对热量在界面处的传递起着重要作

用. 界面的结构和界面缺陷会引入散射中心, 影响热传导过程. 通过深入研究界面热阻, 揭示材料界面的微观特性和能量传递机制, 对于设计新材料、优化热管理技术和提高能源转换效率具有重要意义. 因此, 界面热阻的研究不仅仅需要我们对物质性质和能量传递行为的深刻理解, 也需要考虑实际的工程应用^[2].

4.3.1 界面热阻研究方法

4.3.1.1 理论方法

对于宏观界面而言, 界面热导 (interfacial thermal conductance, ITC) 与几何形状无关, 而对于纳米尺度的界面热传输, 界面热阻强烈依赖于接触面积和接触界面的几何形状^[111]. 由于晶格失配或原子位错, 纳米尺度的界面通常被定义为一个有限的区域, 此区域大小的选择通常与界面类型、声子平均自由程和载流子类型等相关. 对于声子主导的界面热传输过程, 常涉及声子入射后发生的反射与折射过程, 如图 24 所示, 可通过计算声子传输系数来计算界面热阻, 两种主要的理论分别为连续介质理论和原子尺度理论 (图 25)^[2].

连续介质理论包括声子失配模型 (acoustic mismatch model, AMM) 和扩散失配模型 (diffuse mismatch model, DMM). AMM 将两种材料视为由理想平面分隔的连续介质, 忽略晶格结构的细节, 将声子视为弹性波, 适用于低温情况, 忽略了非弹性散射^[112]. 后续通过引入复波矢或考虑额外

热振动等方法来扩展 AMM 的使用范围. AMM 假设界面处的声子发生折射和镜面反射, 其预测值通常较高. 在此基础上, DMM 提出考虑界面处声子散射效应^[113]. AMM 和 DMM 是基于连续介质理论发展起来的, 忽略了原子结构和界面的局部变化. 而后晶格动力学、格林函数 (Green's function) 方法、分子动力学模拟、玻尔兹曼输运方程、蒙特卡罗方法等基于界面原子结构的数值方法被提出. 晶格动力学基于固体原子振动模式, 求解原子间相互作用势能和晶格动力学方程来研究热传导过程^[114], 在小尺度下具有很好的准确性, 适用于晶体材料的界面热阻计算; 格林函数方法考虑非弹性散射和界面效应对热传导的影响, 通过计算材料的格林函数研究界面的电子和声子耦合以及界面杂质、缺陷等对热传导的影响^[115]. 格林函数方法在原子尺度下具有较好的准确性, 适用于各种界面结构的热阻计算. 然而, 晶格动力学和格林函数方法的计算复杂度较高, 对系统的尺寸和时间尺度有一定的限制. 分子动力学模拟方法通过数值模拟原子的运动来研究热传导过程. 它可以考虑原子的非平衡态和动态行为, 适用于各种材料的界面热阻计算^[113]. 分子动力学模拟通过追踪系统中每个原子的运动, 利用牛顿运动方程和原子间相互作用的经验公式来模拟热传导. 分子动力学方法的优点在于能够捕捉到原子尺度的细节和局部变化, 但存在计算成本高、势函数简化和尺度限制等缺点^[55,116]. 由于势函数的准确性将直接影响分子动力学模拟的准确性,

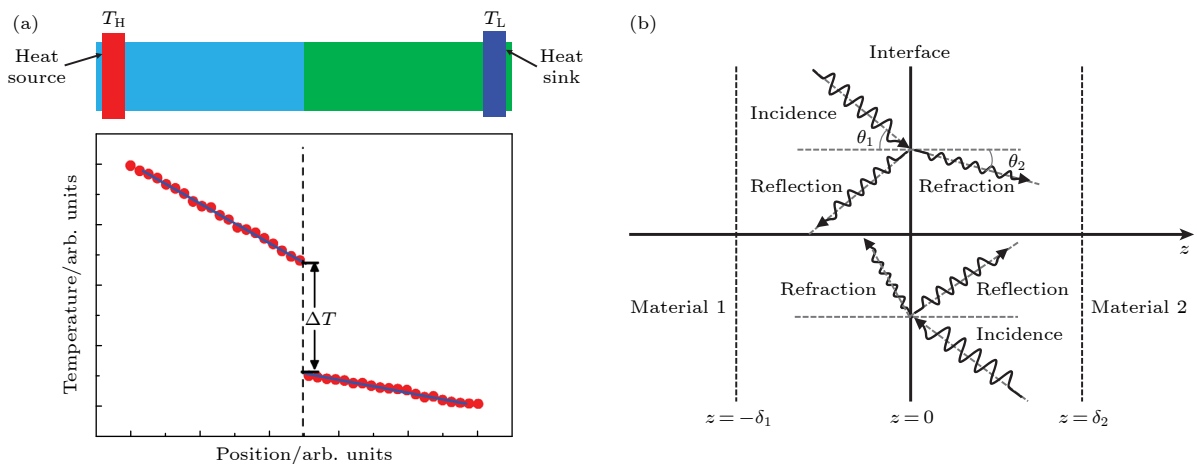


图 24 (a) 由两个不同阶段组成的界面的示意图和温度分布图^[2]; (b) $z = 0$ 处的理想界面分别延伸到每侧的有限厚度 δ_1 和 δ_2 , 与在界面上的声子反射和折射示意图^[2]

Fig. 24. (a) Schematic diagram and temperature distribution of an interface composed of two different segments^[2]; (b) the ideal interface extending to finite thicknesses δ_1 and δ_2 on each side of $z = 0$, with phonon reflection and refraction at the interface^[2].

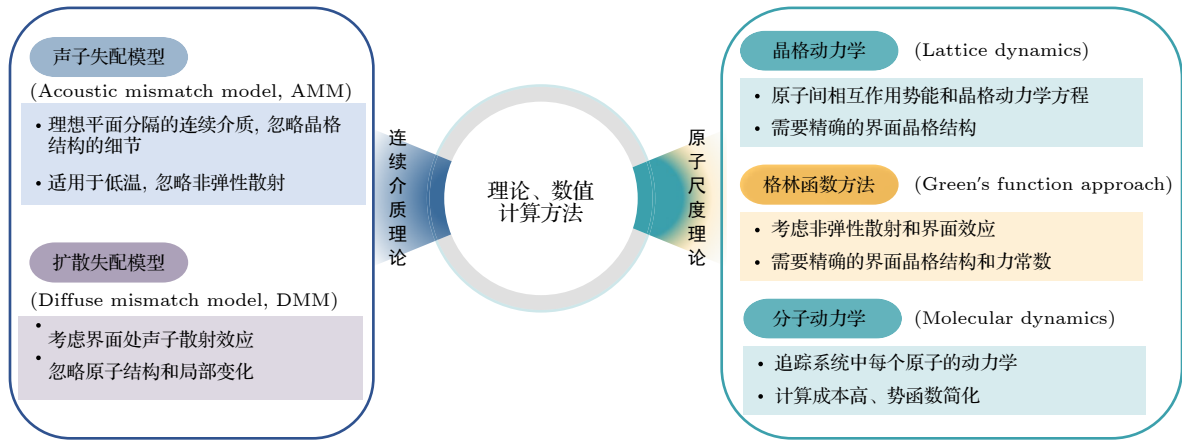


图 25 计算界面热阻的理论和数值方法比较

Fig. 25. Comparison of theoretical and numerical methods for calculating interface thermal resistance.

所以获得准确的势函数十分重要. 势函数一般是使用第一性原理计算得到, 这使得创建势函数的成本很高. 随着计算机科学的发展, 人工智能开始逐渐为科学研究服务. 研究人员可通过机器学习得到更准确的原子间相互作用势, 从而更好更快地对各类界面热传导问题进行分析^[117-122]. 玻尔兹曼输运方程、蒙特卡罗方法、密度泛函理论等方法也可以用于界面热阻的计算. 选择合适的方法应根据研究的具体需求和系统的特性来确定. 对于小尺度和复杂界面, 晶格动力学、格林函数方法和玻尔兹曼输运方程可能更适用; 而对于宏观尺度和复杂结构, 分子动力学方法和蒙特卡罗方法可能更具优势. 同时, 还可以结合不同方法的优点进行组合和改进, 以提高计算的准确性和效率.

4.3.1.2 实验方法

界面热阻的测量方法可分为稳态测量和瞬态测量. 稳态测量包括传统的热桥法和电子束自加热法^[123]; 而瞬态测量则包括差分 3ω 法和泵浦-探测技术^[124,125] (图 26). 传统加热器-传感器方法使用一个加热器在界面上产生温度梯度, 并使用多个传感器测量界面上的温度跳跃^[113]. 电子束自加热技术是热桥方法的扩展与延伸, 是目前唯一一种用于测量一维异质结界面热阻的技术^[126]. 它通过在扫描电子显微镜内使用聚焦的电子束作为加热源, 利用热桥电阻的变化测量温度变化. 当聚焦的电子束扫描过界面时, 可以检测到热阻的突变, 该突变对应于界面处的界面热阻. 聚焦的电子束需要穿过相对较长的路径, 较厚的样品具有更好的信噪比. 因此适用于较厚的样品, 瞬态测量法中 3ω 法通过

将一个高频电流通入样品, 测量其温度响应, 计算界面热阻. 它是一种非接触式测量方法, 适用性广, 但精度有限^[125]. 泵浦-探测热反射技术通过超快激光器研究非平衡现象, 其中时域热反射系统 (TDTR) 通过探测泵浦和探测光束之间的延迟时间进行研究, 频域热反射法 (frequency-domain thermoreflectance, FDTR) 则通过测量泵浦光束的调制频率进行研究. 这两种方法可用于研究热导率和界面热阻. 它们的优点包括快速、可靠、适用于各种材料和界面, 缺点是 TDTR 需要复杂的机械延迟装置, 而 FDTR 信噪比受到高频限制.

4.3.2 调控界面热阻的方法

界面耦合强度是指界面两边材料的相互作用大小, 它对界面热阻的影响非常重要. 界面耦合强度的调节可以通过改变材料之间的键合方式、应用静压或改变化学键合强度来实现. 静压可以使材料中的原子达到平衡位置, 同时改变它们的振动频率, 从而影响界面的弹性. 在高静压下, 界面的最大声子频率和群速度会增加, 从而提高传热效率. 例如通过施加静压可增强石墨烯和碳化硅界面的传热性能^[128]. 在材料表面引入功能化分子或改变表面化学基团, 可导致界面热阻的变化. 例如, 在石墨烯与金属界面上引入氧、氟和氮基团, 可显著提高界面的热传导效率^[129]. 类似的研究在其他材料界面上也有进行, 结果显示功能化分子的引入可以增强界面的声子传输. 另外, 晶体材料中的粗糙度通常会降低热传导效率. 通过调节界面的粗糙度、量子点注入或化学腐蚀等方法, 可以有效地调节界面的耦合强度和热阻.

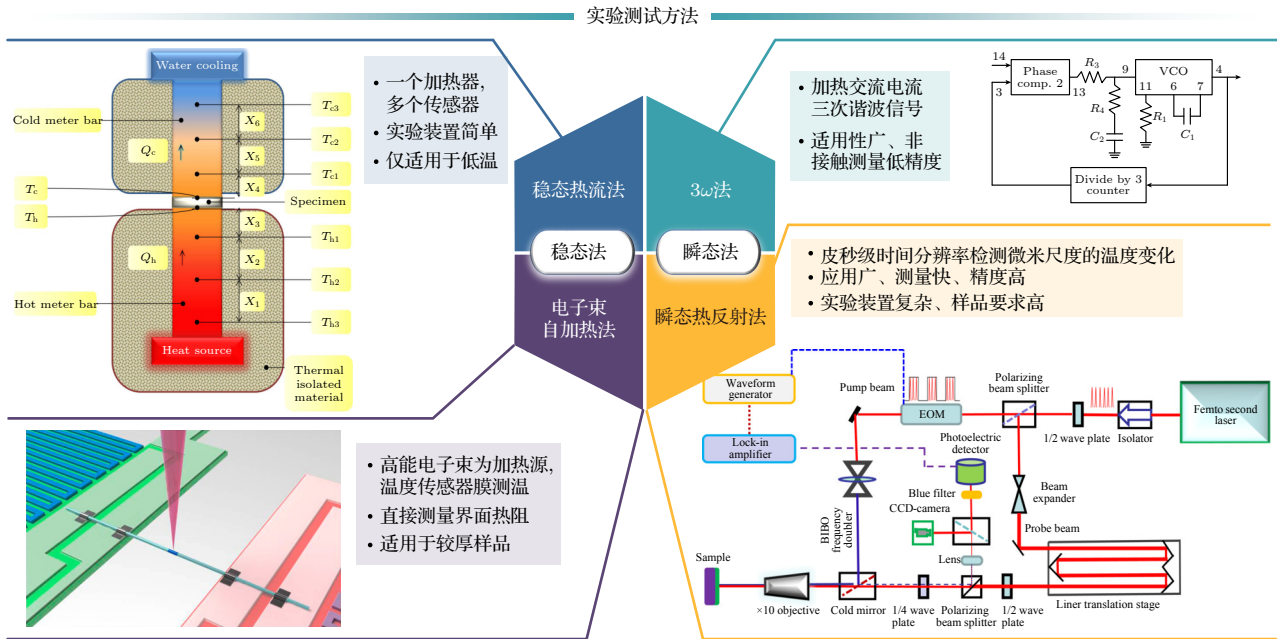


图 26 界面热阻的实验测量方法 [55,106,127]

Fig. 26. Experimental methods for measuring interface thermal resistance [55,106,127].

4.3.3 目前界面热阻研究难点

研究界面热阻的理论方法和模拟方法各有优势和局限性. 以热阻计算为例, Hopkins 等 [130] 比较了 AMM 和非平衡格林函数方法 (non-equilibrium Green's function method, NEGF) 两种方法在 Si/Ge 系统中的应用. 结果表明, 对于均匀的一维链, 两种方法得到的结果相同, 但在 Si/Ge 原子接合处, 声子传输函数存在差异. 非平衡格林函数方法能够捕捉到声子波在多个界面处的多重振荡特征, 而 AMM 理论未考虑多次反射和声子波的相位一致性. 晶格失配对界面热传导具有重要影响. 研究者采用了多种方法处理晶格失配. 一种方法是简化模型, 如仅考虑质量失配或假设不同材料具有相同的晶格常数, 但会导致界面产生未弛豫的应变. 另一种方法是将分子动力学模拟与非平衡格林函数方法相结合, 通过模拟界面附近的原子结构重构和计算频率依赖的声子传输系数来研究晶格失配界面的热传导 [131].

综上所述, 计算界面热阻的研究目前缺乏一个统一的理论框架. 不同的理论方法和模拟方法在界面热阻计算中有各自的优势和局限性. 因此, 进一步的研究应致力于综合考虑声子模式、界面结构、晶格失配等因素, 寻求一个统一的理论框架, 并能够给出准确且可验证的预测结果.

此外, 固-固界面声子传输机制和界面热导的

理论仍无法解释所有实验观测结果. 实验测得的室温界面热导值通常在一个较窄的范围内, 在 10—800 MW·m⁻²·K⁻¹ 之间有所差异, 而理论模型 (如 AMM 和 DMM) 计算得到的范围要大得多. 例如, 在铅/金刚石界面上, 由于铅的德拜温度比金刚石小很多, 计算得到的 ITC 值较小, 约为 2.5 MW·m⁻²·K⁻¹, 比实验测得值 (31 或 60 MW·m⁻²·K⁻¹) 小 1 个数量级 [132]. 非弹性声子散射由于非谐性的存在提供了额外的热传输通道, 理论上使 ITC 产生强烈的温度依赖性. 然而, 实验观察到室温下 ITC 的温度依赖性较弱 [133]. 非晶材料的无序原子结构导致较低的热导率 (0.1—1.0 W·m⁻¹·K⁻¹), 然而两个非晶固体之间的 ITC 却大于晶体间的 ITC. 这说明无序有助于改善能量传递 [134]. 其他因素, 如材料的德拜温度、弹性模量以及界面的局部信息 (如声子振动态密度和配位数密度), 也会对界面热导产生影响.

总的来说, 当前的理论模型尚不能同时解释所有实验观测结果, 对于固-固界面声子传输机制和界面热导的理解仍存在一些挑战和待解决的问题.

4.3.4 界面热阻的非对称性

界面热阻的大小取决于两侧材料之间的界面特性和相互作用, 由于材料之间的结构、化学成分和界面形貌等因素的差异, 界面热阻在两个相邻材料之间有可能存在不对称的现象. Pollack [135] 在其

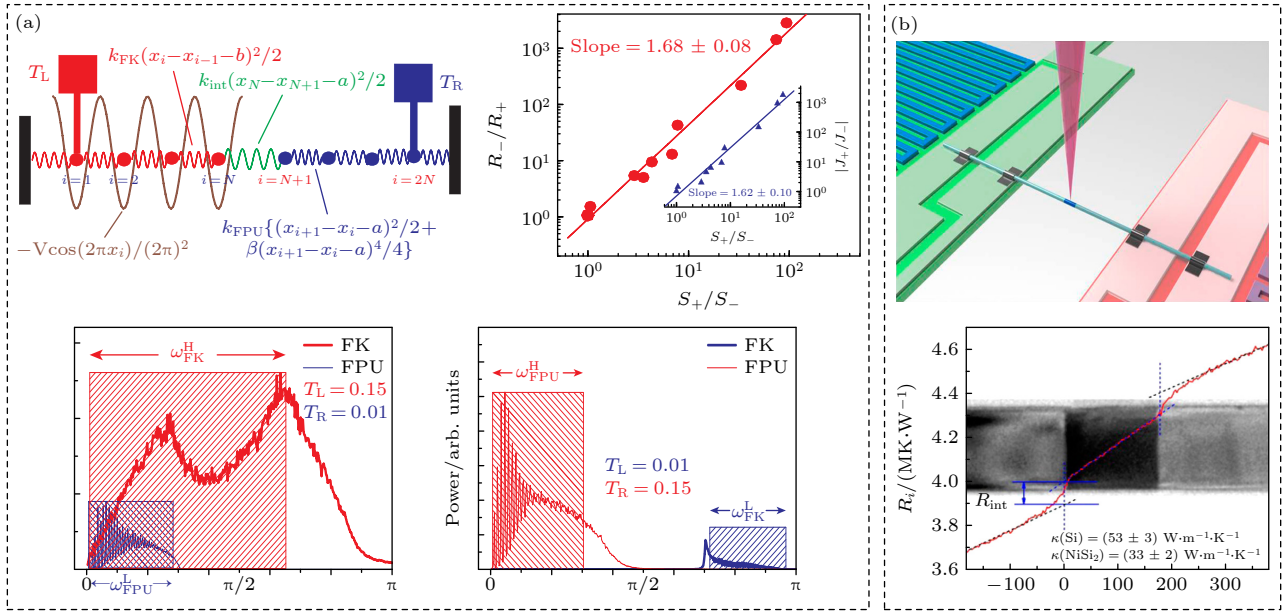

 图 27 界面热阻不对称性的理论计算与实验验证 (a) 理论^[137]; (b) 实验^[126]

Fig. 27. Theoretical calculation and experimental verification of interface thermal resistance asymmetry: (a) Theoretical^[137]; (b) experiment^[126].

1969 年的综述文献里就提出界面热阻是否对称这个前瞻性问题. 但是这个问题一直到 2004 年才有了明确的答案^[136]. Li 等^[136] 通过分子动力学模拟研究由两个不同的非谐晶格 Frenkel-Kontorova (FK) 和 Fermi-Pasta-Ulam(FPU) 模型组成的界面热阻, 首次发现界面热阻的不对称现象. 这个界面热阻的不对称是直接导致热整流的物理机制^[137]. 热整流和热二极管的发现以及后来发现的热三极管等声子热器件奠定了一门新型学科——“声子学”的基础^[138]. 2014 年李保文团队^[126,139] 还通过电子束自加热技术在实验上测得热流从 Si 到 NiSi₂ 的热阻与从 NiSi₂ 到 Si 的热阻, 两者存在明显差异 (图 27).

如何降低界面热阻, 提升散热效率一直受到人们的关注. Yang 等^[140] 在 2007 年首次提出梯度材料有助于界面热传导. 在具有质量梯度的一维非简谐晶格中, 当具有较重质量的一端与高温热浴接触时, 界面粒子的声子谱在较宽频率范围内都有重叠, 热沿着温度梯度的方向穿过晶格. 而当较轻质量一端与高温热浴接触时, 声子谱只在较窄频率范围内产生重叠, 即所谓的振动失配, 此时尽管存在温度梯度, 但随着声子散射效果增强, 导致载热声子很难在系统中传播实现热输运. 随后的研究发现, 通过调整一维原子链中间层的质量分布^[141], 发现质量梯度分布有助于消除界面处的振动失配, 从

而提高传热效率 (图 28(a) 和图 28(b)). 研究还利用非平衡格林函数和机器学习算法优化出最佳质量分布以达到最大传热效果, 并将其理论设计推广至更接近实际的 Si/Ge 和 Si/Si 同位素三维系统中, 为利用质量梯度设计高效界面材料提供了理论支撑. Ma 等^[142] 利用分子动力学方法, 模拟研究了 Si/Ge 体系中不同梯度结构界面的热传导现象和声子谱特性. 当两个界面被质量为指数变化的梯度层连接时, 两个相邻层之间的振动失配变小. 与线性变化质量梯度层、以及均匀质量层和纯 Si/Ge 界面相比, 指数变化的质量梯度模型有更多的声子能够跨相邻层传输, 导致热传导性能显著提高 (图 28(c) 和图 28(d)).

4.4 利用声子凝聚调控热输运

1968 年, Fröhlich^[143] 发现当外部供应能量超过某特定阈值时, 谐振子的能量分布将集中于频率最低的振动模上. 虽然 Fröhlich 凝聚现象类似于玻色-爱因斯坦凝聚 (Bose-Einstein condensates, BEC), 但实际上这是一种非平衡现象. 玻色-爱因斯坦凝聚出现在接近绝对零度的平衡系统中. Nardecchia 等^[144] 通过光泵驱动使牛血清蛋白处于非平衡状态, 发现在特定的频率下系统会产生 Fröhlich 凝聚现象. Zhang 等^[145] 基于分子振动系统探究 Fröhlich 凝聚的临界行为与量子涨落之间的关系, 发现非线性振动模式的能量再分配对

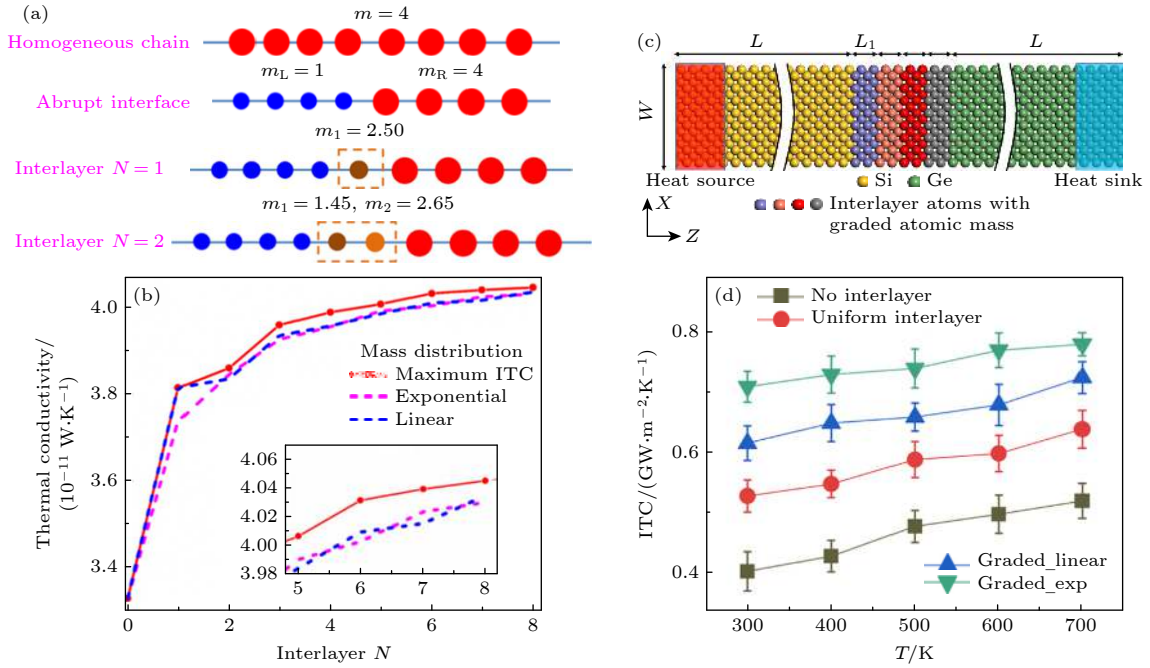


图 28 (a) 均匀、突变和质量梯度一维原子链的示意图^[142]; (b) 界面热导与质量梯度中间层的层数关系^[142]; (c) 具有质量梯度 Si/Ge 界面示意图^[142]; (d) 界面热导与温度的关系^[142]

Fig. 28. (a) Schematic diagram of uniform, abrupt, and mass-graded one-dimensional atomic chains^[142]; (b) relationship between interface thermal conductivity and the number of layers in the mass-graded intermediate layer^[142]; (c) schematic diagram of Si/Ge interface with mass gradient^[142]; (d) relationship between interfacial thermal conductance and temperature^[142].

凝聚现象的产生和声子数的分布至关重要。目前，对 Fröhlich 凝聚的研究主要集中在生物系统上。因此，找到一个可控的非生物系统来实现和研究 Fröhlich 凝聚现象具有重要意义。

腔光力学系统通过辐射压力将电磁辐射与机械运动耦合，可以实现量子换能器、量子存储、高精度测量等功能^[146]。在腔光力学系统中，光子-声子之间的非线性耦合作用引起振动模式之间的能量再分配，进而实现非平衡稳态的 Fröhlich 凝聚。Zheng 和 Li^[147] 提出了如图 29(a) 的光力系统，用以实现声子的 Fröhlich 凝聚。在相干激光驱动下，系统哈密顿量为

$$H_0 = \omega_c a^\dagger a + E(a^\dagger e^{-i\omega_d t} + a e^{i\omega_d t}) + G a^\dagger a x_1^2 + \sum_{j=1}^N \left(\frac{p_j^2}{2m} + \frac{1}{2} k_j x_j^2 \right) - \sum_{j=1}^{N-1} k x_j x_{j+1}, \quad (12)$$

其中 $a^\dagger(a)$ 是光子的产生(湮灭)算符; ω_c 是腔场的频率; ω_d 是振幅为 E 的相干驱动场的频率; $G = \frac{1}{2} \frac{\partial^2 \omega_c}{\partial x^2}$ 是光力耦合强度; m 是简谐振子的质量; k 是最近邻耦合强度, k_j, x_j, p_j 分别是第 j 个振动膜的劲度系数, 位移算符, 动量算符。等式右侧前三项分别代表腔光子、相干驱动场与光腔耦合、振动膜与光腔耦合的哈密顿量; 等式右侧最后

两项则表示 N 个声子的总能量。利用开放量子系统的主方程方法, 可以获得不同模式下声子数的演化和系统的稳态分布。作者通过调节失谐量(即 $\Delta = \omega_d - \omega_c$), 实现了声子凝聚的现象。如图 29(b) 和图 29(c) 所示, 当系统满足 $\Delta < 0$, 声子主要集中于最低频振动模式上; 当系统满足 $\Delta > 0$, 声子集中于高频振动模式上。通过调控声子和光子的作用, 类 Fröhlich 声子凝聚可被实现。这种凝聚现象对于声致光学激光的开发和研究具有重要意义。

以上分析表明, 在光力系统中通过考虑非线性耦合引起振动模式之间的能量再分配, 可以实现非平衡稳态的 Fröhlich 凝聚。而通过巧妙设计具有非线性反馈的机械振子系统, Fröhlich 凝聚同样可以被实现^[148]。如图 30(a) 所示, 利用干涉仪测量机械振子的集体位移, 通过反馈回路确定施加到谐振器上的驱动。谐振器的运动方程为

$$\dot{Q}_j = \omega_j P_j, \quad (13)$$

$$\dot{P}_j = -\omega_j Q_j - \gamma_j P_j + \xi_j + H_{\text{fb}}^{(j)}, \quad (14)$$

其中 ω_j 是第 j 个简正模的频率, Q_j 和 P_j 分别是第 j 个简正模的无量纲位移和动量; $\gamma_j P_j$ 与 ξ_j 分别是系统耗散和热噪声; $H_{\text{fb}}^{(j)}$ 是施加在第 j 个模式上的反馈力, 由测量的机械振子集体位移 $Q = \sum_j Q_j$

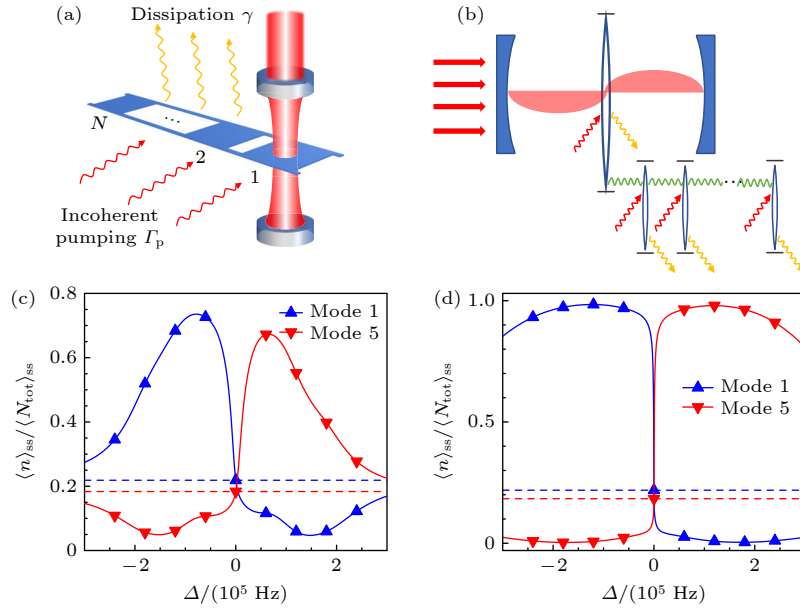


图 29 (a) 腔光学系统示意图, 包含光学腔与一维膜阵列的相互作用^[147]; (b) 系统简化模型^[147]; (c), (d) 最低(最高)模式下的声子数^[147]

Fig. 29. (a) Schematic diagram of the optomechanical system, including the interaction between the optical cavity and the one-dimensional membrane array^[147]; (b) simplified model of the system^[147]; (c), (d) phonon numbers in the lowest (highest) mode^[147].

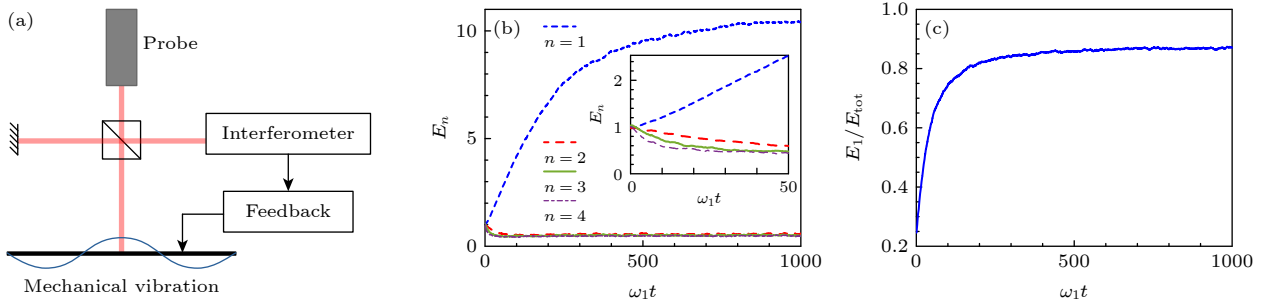


图 30 (a) 具有非线性反馈的机械振子系统^[148]; (b), (c) 最低模式 ($n=1$) 的振动能在长时间稳态下占主导地位, 实现最低模式的声子(能量)凝聚^[148]

Fig. 30. (a) Mechanical oscillator system with nonlinear feedback^[148]; (b), (c) the vibrational energy of the lowest mode ($n=1$) dominates in the long-term steady state, achieving phonon (energy) condensation in the lowest mode^[148].

所确定. 研究人员设计如下反馈回路:

$$F_1 = \int_0^t Q(s) ds, \quad (15)$$

$$F_D = \dot{Q}, \quad (16)$$

$$H_{\text{fd}}^{(j)} = -g_j \omega_{\text{fd}} \tanh[\omega_{\text{fd}} (F_1^2 F_D + 3Q^2 F_1)]. \quad (17)$$

通过考虑非线性的反馈回路设计 $H_{\text{fd}}^{(j)}$, 系统实现了最低模式的声子凝聚. 如图 30(b) 和图 30(c) 所示, 最低模式的振动能量占主导地位. 在稳定状态下, 最低模式的振动能量占总振动能量的 85% 以上. 同时, 最低模式的相位图呈现类似于声子激光器的环形相位图^[149], 这表明非线性反馈引起了最低模式的振幅相干性(如图 29). 此外, 非线性反

馈的引入增强了相位的相干性, 使系统的相干时间延长了一个数量级(如图 31).

总之, 通过引入合适的非线性反馈回路, 谐振多模系统可以实现模式之间能量的再分配, 从而产生声子凝聚现象. 综合谐振系统的振幅与相位相干特性, 非线性反馈回路谐振系统可以用于实现高灵敏传感器和新型单色声子激光器. 需要注意, 实现模式能量调控的关键是非线性反馈回路的设计与选择, 它决定了系统声子/能量凝聚的能力与效率. 因此, 在未来的研究中, 人们可以利用机器学习构建模型, 以获得优化的声子凝聚系统, 并利用该系统实现对声子数分布和声子能量的调控.

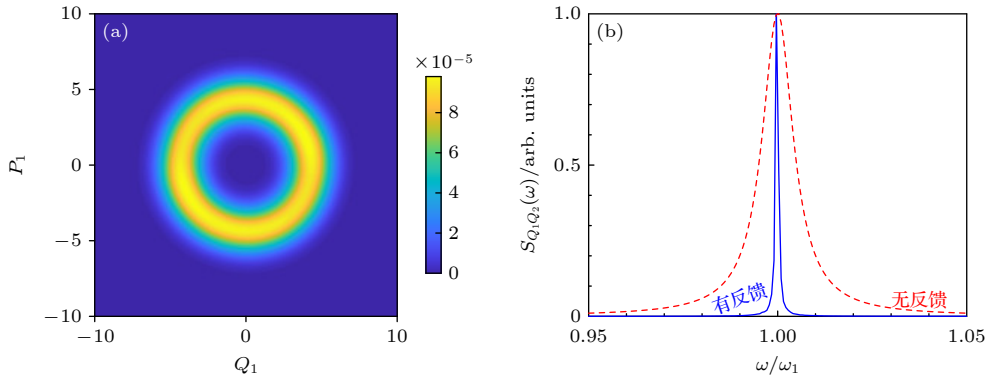


图 31 稳态下最低模的声子统计. 非线性反馈诱导的 (a) 最低模式的相位图与 (b) 最低模式的噪声功率谱密度^[148]

Fig. 31. Depicts the phonon statistics of the lowest mode in the steady state. The phase diagram of the lowest mode induced by nonlinear feedback is shown in Figure (a), while Figure (b) displays the noise power spectral density of the lowest mode^[148].

5 其他声子输运现象

5.1 声子热导率的量子化

类似于电子系统的量子化电导现象, 热输运也具有类似的量子化热导现象. 在 1998 年, Rego 和 Kirczenow^[150] 利用 Landauer 输运理论发现, 在低温弹道输运范围内, 一维量子通道中声子的热导率是量子化的. 研究表明, 在 $k_B T < \hbar\omega$ 近似条件下, 系统中只有最低的四支无质量的声子模对热导有贡献. 当热库与量子线 (一维量子通道) 之间不存在界面热阻时, 每支声子模贡献一个量子化的热导值, 记为 $k_0 = \pi^2 k_B^2 T / (3h)$ (其中, k_B 是玻尔兹曼常数, h 是普朗克常数, T 是温度). 该量子化热导值与材料的性质和几何结构以及粒子统计性质均无关, 具有普适性^[151].

在理论研究的基础上, 2000 年 Schwab 等^[152] 基于新型的微制造技术, 测量了低温条件下绝热悬浮纳米结构氮化硅桥的热导, 首次观测到了理论预言的量子化热导现象. 如图 32(a) 所示, 在温度低于 0.08 K 时, 热导率呈现出量子化的平台; 当温度高于 1 K 时, 热导率的量子化平台被破坏, 随后热导率随温度升高而增加. 此外, 在温度介于 0.1—0.4 K 之间时, 所测得的热导率随温度升高而降低, 并且明显低于量子化的热导值. 对于热导率低于量子化平台的现象, Santamore 等^[153] 利用连续弹性模型, 证明了这种热导率的降低是由于纳米线的粗糙表面和不连续界面引起的声子非弹性输运效应所致. 值得注意的是, 在极低温下, 这些影响因素会变得非常微弱, 从而导致热导率接近于量子化平台.

为了研究结构对声子热导率的影响, 湖南大学的陈克求教授及其合作者们进行了详细的研究. 他们通过探究量子结构的几何形状、结构参数以及衰减模对声子弹道输运和热导率的影响, 来揭示量子结构对热导率的调控. 2005 年, Chen 等^[154] 采用散射矩阵方法, 探究了结构缺陷对纳米线低温热导率的影响. 他们发现, 不同类型的缺陷会导致不同的热导率特性. 当缺陷是空位 (void) 时, 可以清楚地观察到量子化热导率和低于量子化热导值的现象. 然而, 当结构缺陷由夹持材料 (clamped material) 组成时, 量子化热导平台被破坏, 热导率随着温度的升高而单调增加.

在此基础上, Peng 等^[155,156] 进一步研究了不同量子结构对低温热导率量子化的影响. 他们发现, 在一维理想量子线的情况下, 可以观察到由四支声学模式实现的理想化量子平台, 其热导率为特定值 $4\pi^2 k_B^2 T / (3h)$. 然而, 当存在非均匀结构, 例如 Catenoidal 形量子结构或掺杂量子点时, 由于非理想接触引发的额外散射, 会导致系统的热导率下降, 破坏热导率的量子化平台. 图 32(b) 和图 32(d) 展示了一些非均匀结构的示例, 这些结构的存在会引起额外声子散射, 并进一步影响热导率量子化的现象. 这些研究对于揭示量子结构对纳米材料热导率的调控机制具有重要意义.

在热导率量子化的理论研究中, 研究人员借助量子力学、热力学和统计物理等理论框架发展了多种理论模型, 如费米黄金法则、弹性连续模型和非平衡格林函数方法, 来更好地描述纳米尺度系统中的热导率量子化现象^[157]. 这些模型可以帮助我们理解和解释在纳米尺度结构中观察到的热导率量

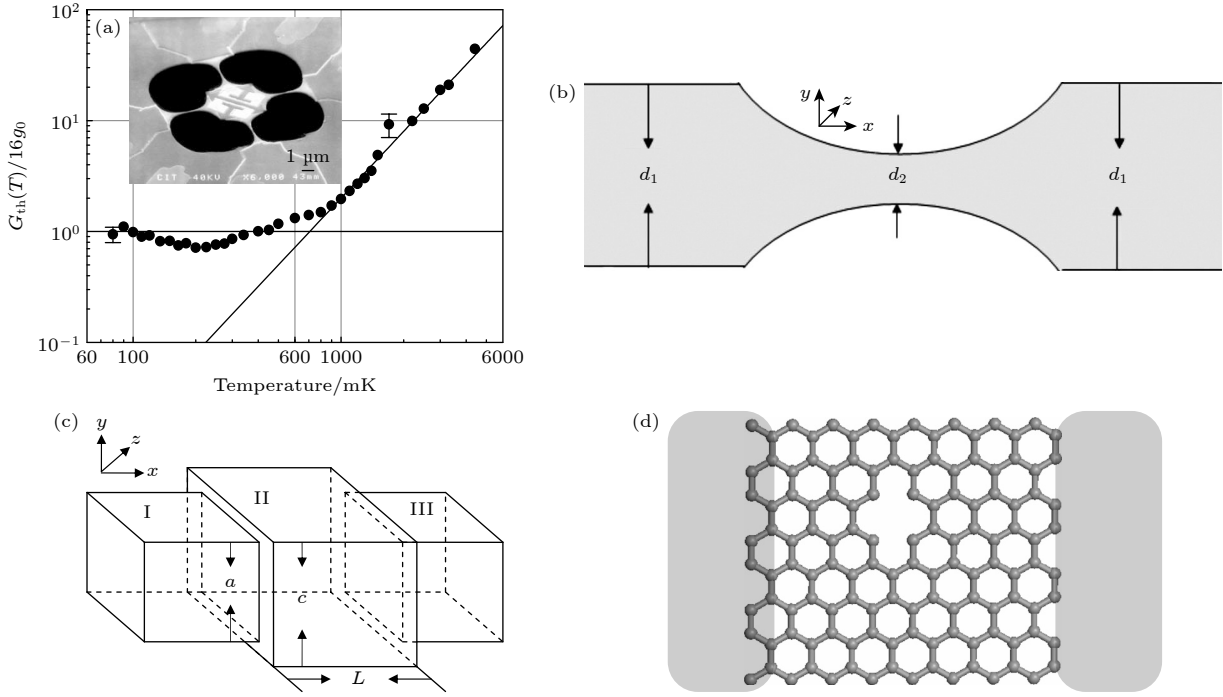


图 32 (a) 低温下声学声子热导率的实验值与温度的关系^[152]; 具有 (b) catenoidal 形量子结构的量子线、(c) 量子点调制的量子结构, 以及 (d) 双腔结构调制石墨烯纳米带的量子结构的声子输运和热导率^[155,156]

Fig. 32. (a) The relationship between the experimental value of acoustic phonon thermal conductivity and temperature^[152]; phonon transport and thermal conductivity of the quantum structure with (b) catenoidal shaped quantum structure, (c) quantum dot modulated quantum structure, and (d) double cavity structure modulated graphene nanoribbon quantum structure^[155,156].

子效应. 在实验测量方面, 研究人员依赖微纳米尺度技术和先进的热测量仪器, 例如纳米线和纳米薄膜的制备、激光测温 and 扫描探针显微镜等, 来观测量子结构中热导率的变化规律. 这些技术和仪器的使用使得我们能够在纳米材料中实现对热传导行为的精确测量, 从而更好地理解和研究纳米尺度系统中的热传导现象.

通过研究量子结构热导率, 可以促进新型纳米材料的研发, 指导微型电子器件和集成电路的热管理和设计. 研究热导率量子化现象可以优化微型电子器件和集成电路的热传导性能, 提高稳定性和可靠性. 此外, 深化对量子效应和纳米尺度传热行为的理解, 有助于推动相关学科的发展, 并为未来的研究和技术应用提供重要指导.

5.2 自旋-声子量子热输运

声子并不是孤立存在的, 它们与其他载流子之间存在相互作用. 这种相互作用对于理解材料的热输运、电输运和电热耦合行为至关重要^[158]. 其中, 声子与电子之间的相互作用通常表现为电子-声子散射, 导致电子能量的改变, 进而影响电子的迁移率和材料的电导率. 此外, 声子还可与电子的自旋相

互作用.

自旋塞贝克效应 (spin Seebeck effect) 是一种在磁性材料中由温度梯度引发的“自旋电压”现象. 在考虑磁性材料中声子与电子自旋相互作用的情况下, 当施加温度梯度于材料上时, 声子会驱动电子自旋的重分布, 从而产生自旋电子流, 引发自旋塞贝克效应. 2008 年, Uchida 等^[159] 首次在 NiFe/Pt 双层膜体系中观测到横向自旋塞贝克效应. 后续研究发现该效应在不同的材料结构中广泛存在, 包括铁磁半导体 GaMnAs、铁磁绝缘体 LaY₂Fe₅O₁₂, 以及反铁磁材料等^[159,160].

2013 年 Ren^[161] 针对铁磁体/非磁性金属结构中的非平衡自旋-热输运, 首次提出自旋/磁子二极管负微分自旋塞贝克效应. 为了探究磁性纳米结构中自旋-声子耦合对量子热输运的影响, 2014 年, Flipse 等^[162] 基于 YIG/Pt 异质结构, 在考虑磁振子与声子和电子与声子之间相互作用的基础上, 观测到了由自旋流引起的自旋珀耳帖 (Peltier effect) 效应, 为纳米级冷却技术的发展提供了新的途径. 在外加磁场条件下, Zhang 等^[163] 基于对称的三端顺磁结构, 考虑自旋-声子相互作用, 发现了非线性相互作用或散射边界引起的声子退相干和

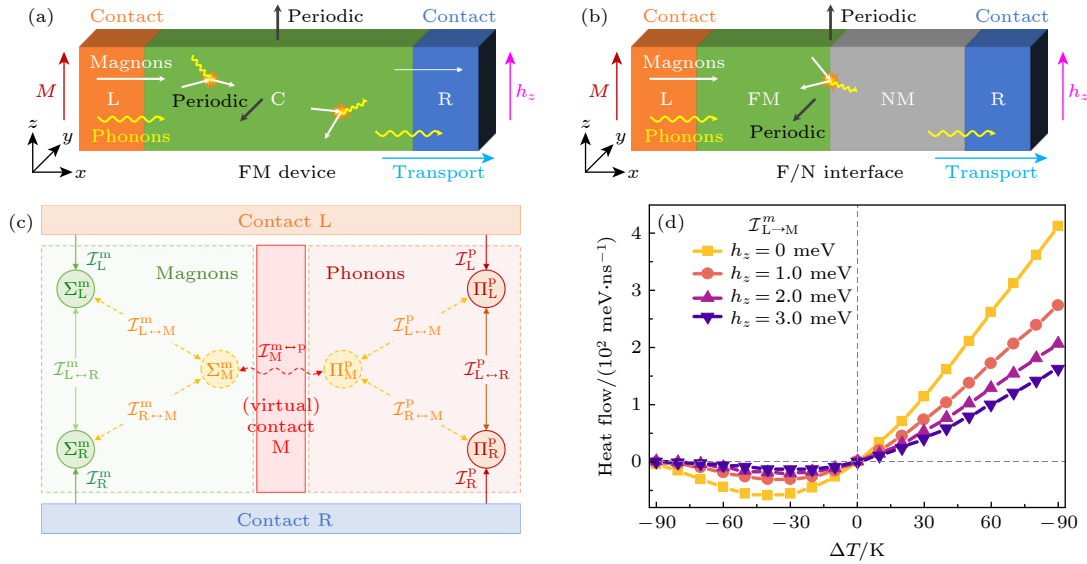


图 33 (a) 铁磁器件; (b) 铁磁体/非磁性金属 (F/N) 界面器件; (c) 磁振子-声子散射器件中的能量交换; (d) 不同外磁场下磁振子非弹性热流随温差的变化^[164]

Fig. 33. (a) Ferromagnetic (FM) devices; (b) ferromagnetic/nonmagnetic (F/N) interfaces; (c) the energy exchange in the present magnon-phonon scattering (MPS) devices; (d) the temperature difference and external magnetic field dependence of inelastic heat flow^[164].

非对称性导致的弹道热整流现象. 为了探究磁振子-声子散射对三维铁磁纳米结构的量子热传输的影响, Pan 等^[164] 构建了如图 33(a) 和图 33(b) 所示的 3D 铁磁体 (ferromagnet, FM) 器件以及铁磁体/非磁性金属 (ferromagnetic/nonmagnetic, F/N) 界面器件. 他们应用了非平衡格林函数理论方法和图形微扰理论, 明确了器件结构内的热流交换过程, 包括弹性热流和非弹性热流, 以及通过磁振子-声子散射实现的热量交换 (如图 33(c) 所示). 在适当的温度范围内, 通过调整磁场, 系统可以产生自旋冻结和非互易热传输现象 (例如热整流、负微分热导), 实现磁热开关的效果 (如图 33(d) 所示).

5.3 声子热霍尔 (Hall) 效应

在关联绝缘体中, 由于电子之间的相互作用强烈, 电子的行为受到约束, 不能自由移动. 这导致了电子的局域化行为, 即电子在晶格上形成了一种特定的有序结构或者是定域态. 然而, 在存在温度梯度的条件下, 这些电中性载流子仍然可以通过与热激发的声子、磁激子或自旋子等相互作用而传导热量. 其中, 声子热霍尔效应是声子热传导的一个特殊现象. 在存在温度梯度和外磁场的情况下, 声子与自旋激发之间的相互作用导致声子传热方向发生偏转, 使得热能沿横向方向传播, 而不是沿传统的热传导方向^[165] (如图 34(a) 所示). 该横向热传

导的性质与声子流和磁场强度, 以及温度梯度有关. Hentrich 等^[166] 通过实验发现, 自旋液体材料 α -RuCl₃ 在垂直磁场条件下, 横向热导率 K_{xy} 与外部磁场强度呈线性关系, 而与温度呈非线性关系 (如图 34(c) 和图 34(d)). Yang 等^[167] 借鉴费米液体理论的唯一思想, 提出了绝缘体霍尔热导率的微观模型, 理论分析了不同温度区间的霍尔热导率 K_{xy}/T 随温度变化的规律 (如图 34(b) 所示), 得到了与实验相吻合的结果. 此外, Akazawa 等^[168] 基于 Cd-K 材料, 通过考虑自旋-声子相互作用, 探究了横向霍尔热导率 K_{xy} 中的自旋霍尔热导 K_{xy}^{sp} 与声子霍尔热导 K_{xy}^{ph} , 发现声子本身并不会表现出热霍尔效应. 声子霍尔热导 K_{xy}^{ph} 是由声子与磁场诱导自旋激发的耦合引起的. 声子热霍尔效应的研究对于理解固体中的热电传导以及热能转化等过程具有重要意义.

声子热霍尔效应的产生与声子能带的拓扑结构密切相关. 通过改变系统外参数 (如磁场、温度等), 可以有效地调控声子热霍尔效应的大小和相变行为. Zhang 等^[169] 从拓扑的角度对电介质中的声子热霍尔效应进行了研究, 推导了关于声子热霍尔电导率的一般表达式:

$$K_{xy} = \frac{\hbar}{8VT} \sum_{k, \sigma \neq \sigma'} f(\omega_\sigma) (\omega_\sigma + \omega_{\sigma'})^2 \Omega_{k_x k_y}^\sigma, \quad (18)$$

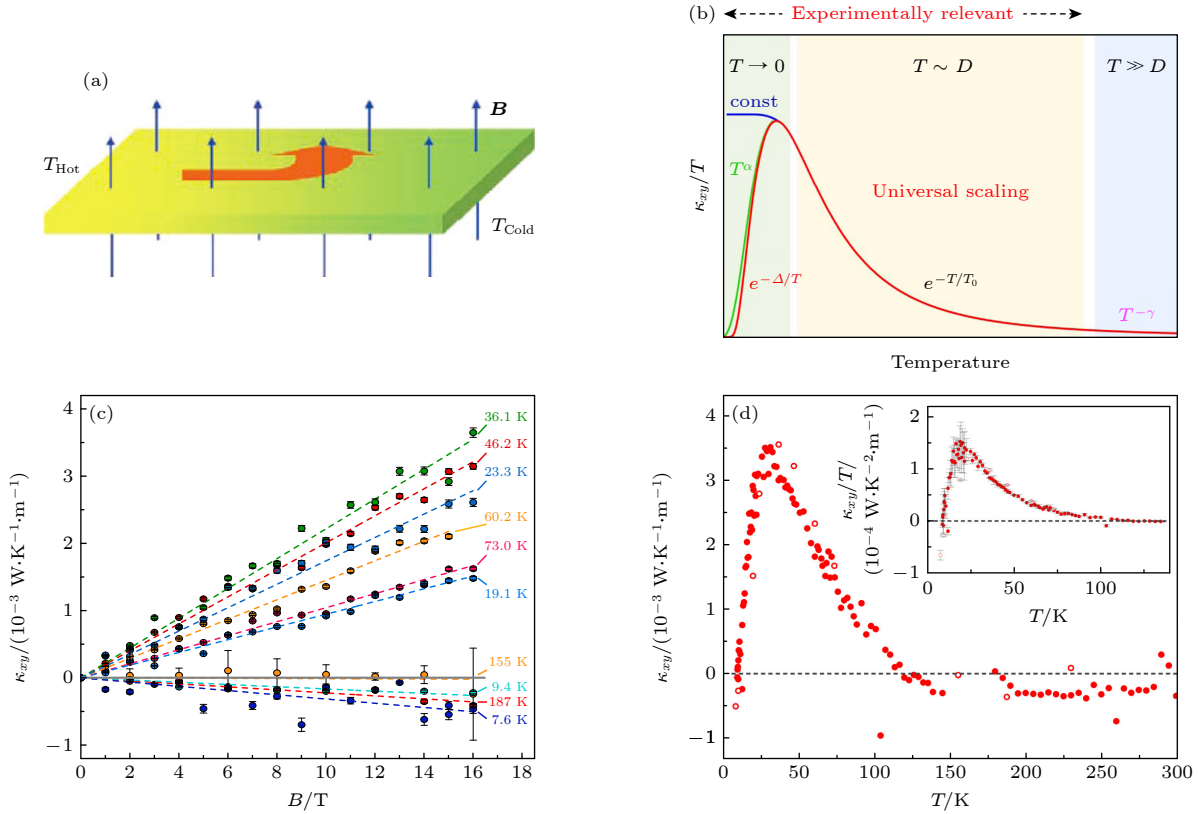


图 34 (a) 声子霍尔效应^[165]; (b) 理论分析, 霍尔热导率 K_{xy}/T 随温度的变化规律^[166]; 基于 α -RuCl₃ 实验测得横向热导率 K_{xy} 与 (c) 磁场和 (d) 温度的关系^[166]

Fig. 34. (a) Phonon Hall effect^[165]; (b) three temperature regions for the thermal Hall conductivity^[166]; (c) magnetic field and (d) temperature dependence of the transversal heat conductivity K_{xy} of α -RuCl₃^[166].

其中 V, T 分别是体系的体积与温度; $(\omega_\sigma + \omega_{\sigma'})^2$ 与声子的能量相关; $\Omega_{k_x k_y}^\sigma$ 代表声子能带的 Berry 曲率; $f(\omega_\sigma)$ 是玻色分布函数. 该表达式包含了声子能带的拓扑信息. 通过分析声子能带的拓扑结构, 可以得到声子热霍尔电导率的具体数值以及其与系统参数的关系. 当声子能带的 Berry 曲率在某些区域不为零时, 系统表现出声子热霍尔效应, 横向热传导也会呈现有限值. 研究人员发现, 声子霍尔电导率 K_{xy} 与外部磁场强度之间的关系通常是非单调的. 随着磁场强度的增加, 声子热霍尔电导率先增大然后减小 (如图 35 所示). 在临界点 $h_c \simeq 25.4778$ rad/ps 处, 声子热霍尔电导率的一阶函数 dK_{xy}/dh 出现不连续行为, 对应了系统声子热霍尔效应的相变现象. 这种相变现象与声子能带的拓扑结构密切相关. 除了磁性绝缘体材料, 非磁性绝缘体材料中的声子热霍尔效应也可以实现. 这是由于声子与外部磁场之间的拉曼相互作用, 导致声子能带具有非零的 Berry 曲率, 从而使得系统显示有限值的声子热霍尔电导率^[170].

5.4 手性声子

手性 (chirality) 是物体或系统与其镜像不能重合的一种几何性质, 其能揭示基本粒子和准粒子相互作用的对称性破坏. 声子通常被视为是无质量、中性的粒子, 它们不携带电荷和自旋. 在传统物理观念下, 声子被认为是线极化的且不具备手性特征. 然而, 在某些特殊的晶格结构和材料中, 声子的运动方式和分布可能受到晶格结构的影响, 导致声子模式具有拓扑性质, 表现出一定程度的声子手性.

2014 年, Zhang 和 Niu^[171] 通过改变磁化强度和自旋-声子相互作用, 针对时间反演对称性破缺的磁性体系, 观测到非零的声子角动量, 证实了声子角动量的存在. 随后, 他们在空间反演对称性破缺的非磁性体系中预测了手性声子的存在 (如图 36(a) 所示)^[172]. 研究表明, 在非对称的二维六方晶格中, 高对称点的布里渊区存在三重旋转对称性, 导致声子呈现出量子化的赝角动量特性, 包括轨道赝角动量和自旋赝角动量, 从而使得晶格中的声子表现出固有的手性. 手性声子可以与圆偏振光和谷电子发

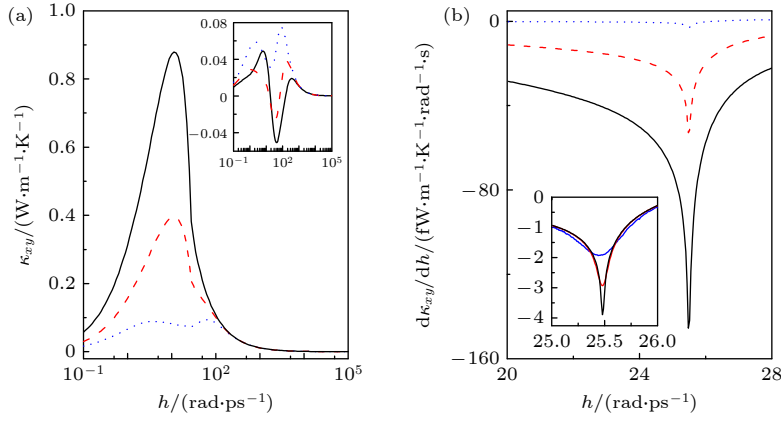


图 35 不同温度下 (a) 声子霍尔电导率 K_{xy} 和 (b) 一阶导数 dK_{xy}/dh 与磁场 h 的非单调关系, $T = 50$ (点线), 100 (虚线), 和 300 K (实线)

Fig. 35. (a) Phonon Hall conductivity K_{xy} vs. magnetic field h for different temperatures; (b) dK_{xy}/dh as a function of magnetic field at different temperatures: $T = 50$ (dotted line), 100 (dashed line), and 300 K (solid line).

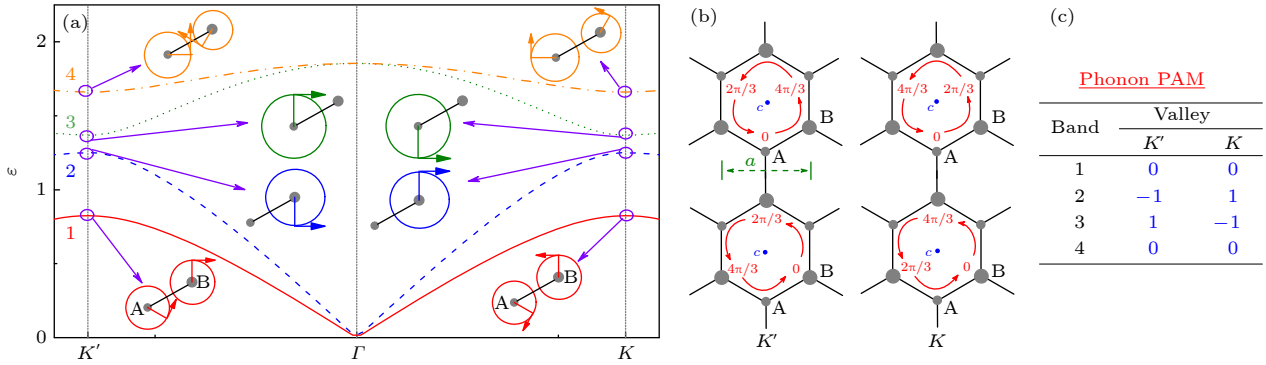


图 36 蜂窝状 AB 晶格中的谷声子 (a) 蜂窝状 AB 晶格的声子色散关系以及子格 A 与 B 在 $k(k')$ 点的声子振动模式示意图; (b) 在 $k(k')$ 点处, 子格 A 与 B 非局域部分的相位示意图; (c) 在 $k(k')$ 点处, 1—4 各支能带的声子赝角动量

Fig. 36. Valley phonons in a honeycomb AB lattice: (a) Phonon dispersion relation of a honeycomb AB lattice; (b) phase correlation of the phonon nonlocal part for sublattice A (upper two panels) and sublattice B (lower two panels); (c) phonon pseudo-angular momentum (PAM) for bands 1 to 4.

生耦合, 产生手性选择性的光学跃迁. 基于这些理论结果, 2018 年, Zhu 等 [173] 在单层二硒化钨 (WSe_2) 中观测到手性声子的存在, 并验证了声子参与的电子谷间散射的选择定则. 进一步的研究发现, 手性声子不仅存在于上述单层六角晶格体系中, 还存在于其他类型的晶格中. 例如, 在破坏了空间反演对称性的 Kagome 晶格中, 研究人员发现了椭圆极化的手性声子, 通过调节原胞内与原胞之间的键强关系, 实现了声子手性的有效控制 [174]; 在石墨烯/六方氮化硼异质结构中, 研究人员实现了频率可调的非简并手性声子 [175].

声子手性的研究不仅对基础物理具有重要意义, 而且在实际应用中具有潜在价值. 声子手性代表了大量原子的集体手性运动, 而不是单个电荷载

体或光学激发的手性. 研究人员通过利用手性声子与量子点发射的单个光子之间的纠缠关系, 实现了宏观集体激发的纠缠, 为量子点声子驱动的纠缠和声子手性在单光子水平上的设计提供了新的途径 [176]. 研究人员利用晶体结构的手性与声子手性之间的联系, 发现了一种新型的声子手性二极管效应 [177]. 如图 37 所示, 具有明确手性的声子只能在一个方向上传播, 而不能在相反方向上传播. 研究结果表明, 声子手性的传播方向受晶格手性的影响. 当晶体结构变为其手性相反的对应该结构时, 声子手性或传播方向会发生切换, 这为控制声子传输和设计信息传输装置提供了新的思路.

为了探究结构手性、手性声子和自旋之间的相关性, 研究人员基于非磁性手性材料观测到了手性

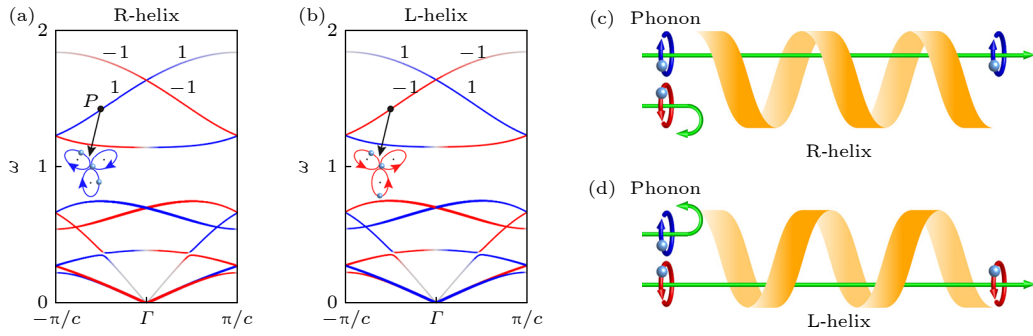


图 37 (a) 右旋和 (b) 左旋的声子谱, 它们显示出相同的色散但相反的手性分布^[177]. 在图 (a) 中 P 附近的频率下, (c) 只允许左旋声子从左到右通过螺旋链, (d) 当螺旋的手性发生改变时, 只允许右旋声子从左到右通过螺旋链^[177]

Fig. 37. The phonon spectra for (a) right-handed helix and (b) left-handed helix, which show the same dispersion but opposite chirality distribution^[177]; (c) at the frequency around P in figure (a) only left-handed phonons are allowed to pass the helix from left to right, (d) when the chirality of the helix is switched, the situation reverses^[177].

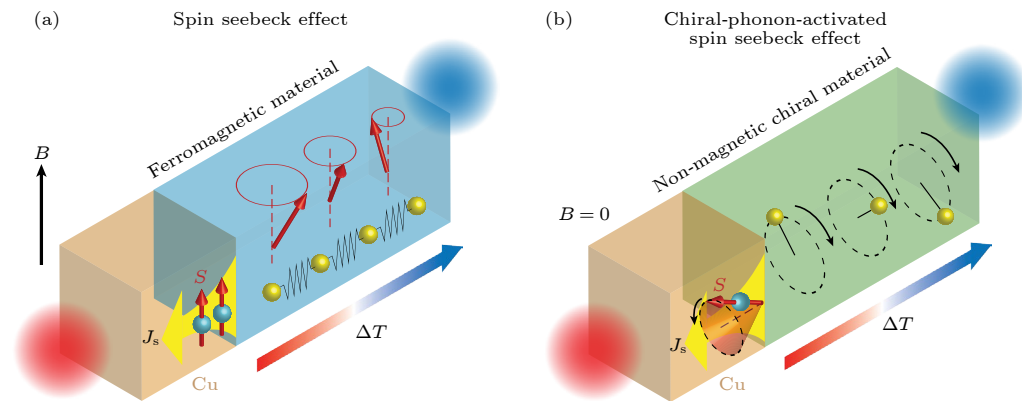


图 38 (a) 铁磁性材料中自旋塞贝克效应的示意图, 通过向铁磁体施加温度梯度, 在相邻的非磁性层 (即 Cu) 中产生自旋电流^[178]; (b) 手性声子激发的自旋塞贝克效应的示意图, 通过向非磁性手性体系施加温度梯度, 在没有磁化和磁场的情况下, 手性声子通过手性体系在 Cu 层中产生自旋电流^[178]

Fig. 38. (a) Schematic illustration of the spin Seebeck effect in a ferromagnetic material. By applying a temperature gradient to the ferromagnet, a spin current is generated in an adjacent non-magnetic layer (that is, Cu)^[178]. (b) Schematic illustration of the chiral-phonon-activated spin Seebeck effect. When a temperature difference is applied to a chiral material, a spin current can be produced in the Cu layer due to the propagation of the chiral phonons through the material in the absence of the magnetization and magnetic field^[178].

声子激发自旋电流的现象^[178]. 如图 38(b) 所示, 利用超快激光脉冲诱导手性材料产生瞬态温度梯度, 在没有磁化和磁场的情况下, 研究人员观测到了手性声子通过非磁性手性体系在 Cu 层中产生自旋电流. 研究表明, 通过破坏非磁性材料的空间反演对称性, 可以产生具有非零角动量的手性声子. 这些手性声子在温度梯度的驱动下产生非平衡自旋流, 实现了手性声子激发的自旋塞贝克效应. 虽然研究结果尚未完全解释结构手性、手性声子和自旋之间的关系, 但为新型自旋热电子学器件的开发提供了一条可行途径. 总之, 手性声子的研究不仅为拓扑新材料和量子信息技术的开发提供了机会, 还有助于推动声子学在能源转换、信息存储和量子计算等领域的应用.

6 总结与展望

6.1 总结

过去二十多年的理论、计算模拟和实验研究揭示了低维微纳米尺度材料热传导的行为. 这些行为和体材料里的声子热传输非常不一样, 可以概括为尺寸效应与维度效应.

1) 对于一维材料而言, 热传导系数与材料尺度 (长度) 依赖关系为指数发散, $\kappa \sim L^\beta$. 其中 β 值是否是一个普适的数值, 到目前为止还没有一个统一的理论共识. 从一维流体模型的重整化理论推导得出的 β 值是 $1/3$ ^[179], 而从玻尔兹曼方程出发利用模式耦合理论推导得出的 β 值是 $2/5$ ^[180]. 数值模

拟和实验得到的值有的接近 $1/3$, 有的接近 $2/5$ ^[7]. 这种反常热传导系数与反常热扩散存在一对一的关系.

2) 对于二维材料而言, 悬空材料热传导随尺度依赖关系为对数发散, $\kappa \sim \log(L)$. 但是一旦二维材料放到任何衬底材料上, 那么其热导率由于衬底的影响就会大幅减小, 且热导率将与材料尺寸无关, 这可以从 FK 模型得到解释.

微纳材料的热传导行为可以通过多种方式进行调控. 纳米声子晶体、纳米热超结构材料以及引入缺陷或者同位素掺杂等都是通过改变材料结构来调控热传导行为的. 这些方法通过改变声子能带(纳米声子晶体), 增加声子散射效应或引发声子局域化(纳米热超结构材料)来降低热导率.

除了改变材料结构, 还可以通过引入外场作用来调控声子热输运行为. 如通过外加磁场可以实现声子热霍尔效应. 利用光力相互作用, 通过引入光场可以使声子在最低或最高频率上凝聚而调控声子传输, 从而改变热输运行为.

微纳米尺度材料热输运的研究成果为微纳米芯片的设计提供了理论支撑. 罔顾微纳米尺度的特殊热输运行为而提出的芯片设计方案几乎是不可能在实际应用场景中奏效的.

6.2 未来挑战

微纳米尺度的研究在过去二十多年虽然取得了非常明显的成就, 但也存在很多挑战.

1) 在理论方面是否可以提出这样一个统一理论, 其既能够同时解释热导率在一维和二维体系下不同的发散现象, 又能计算出三维体系中热导率的最终收敛值.

各种散射机制究竟是如何运作导致二维体系的热导率发散? 如四声子散射, 第二声等散射机制, 他们之间的关系到目前还不得而知.

2) 在实验方面, 到目前为止, 关于一维体系(如纳米线、纳米管和纳米薄膜的垂直方向热输运)的实验较多, 但是二维材料尺寸效应的实验则非常有限. 这方面的实验耗时耗力, 测量手段也较少. 此外由于复杂的多物理场耦合作用, 需要谨慎对待一些实验结果的后处理过程. 比如在测量石墨烯热导率的时候, 一些测量方法就不能按照传统的数据处理方式求得结果, 因为除了声子本身的输运特性外, 还需要详细考虑二维材料里光子-电子,

电子-声子, 声子-声子等相互作用后, 才能给出比较可靠的测量值^[181].

关于低维声子热传导有很多研究组都提出声子流体模型, 包括第二声的概念^[60,182-184]. 这里有几个关键问题需要进一步厘清. 首先, 能否直接测得第二声存在的直接实验证据? 目前 Yu 等^[185]通过分子动力学理论模拟方法找到了石墨烯中第二声存在的理论证据, 但相关的实验研究还并未出现, 也就是能否在二维材料(尤其是石墨烯)测量到温度以波动的形式传播的直接证据? 另外, 如果有第二声存在, 那么一个纳米带的热导率会表现出与带的宽度的依赖关系^[184], 实验能否直接测量到这种依赖关系?

6.3 展望

声子可以作为信息载体, 这将会令其在如火如荼的量子信息发展大潮中迎来机遇. 固态里存在的无规则的声音——热——不仅仅对传统信息传输是一个重大障碍, 更是量子信息退相干的主要原因. 因此如何控制热(非相干声子), 或者把非相干声子转换成相干声子(如前文提到声子凝聚的办法), 这将对制造高质量的量子信息材料具有非常重要的现实意义. 另一方面, 如何把局域声子作为量子信息的一种资源利用, 那将会给固体量子信息的发展带来一个令人兴奋的前景.

总之, 低维晶格中声子热传导的研究, 不仅对于非平衡统计物理的基础理论研究意义重大, 而且随着半导体技术的发展, 对于芯片散热等实际问题也具有重要的指导意义. 对于半导体材料声子性质的深入研究, 还将有助于未来的量子信息材料和器件的开发和应用.

参考文献

- [1] Moore A L, Shi L 2014 *Mater. Today* **17** 163
- [2] Chen J, Xu X, Zhou J, Li B 2022 *Rev. Mod. Phys.* **94** 025002
- [3] Harper C 2004 *Electronic Packaging and Interconnection Handbook*. (New York: McGraw-Hill, Inc)
- [4] Muralidhar R, Borovica-Gajic R, Buyya R 2022 *ACM Comput. Surv.* **54** 1
- [5] Waldrop M M 2016 *Nature* **530** 144
- [6] Zhang J, Yang X, Feng Y, Li Y, Wang M, Shen J, Wei L, Liu D, Wu S, Cai Z, Xu F, Wang X, Ge W, Shen B 2020 *Phys. Rev. Mater.* **4** 073402
- [7] Zhang Z, Ouyang Y, Cheng Y, Chen J, Li N, Zhang G 2020 *Phys. Rep.* **860** 1

- [8] Li B, Wang J 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 044301
- [9] Xu X, Chen J, Li B 2016 *J. Phys. : Condens. Matter* **28** 483001
- [10] Yu Y F, Minhaj T, Huang L J, Yu Y L, Cao L Y 2020 *Phys. Rev. Appl.* **13** 034059
- [11] Xu X, Pereira L F C, Wang Y, Wu J, Zhang K, Zhao X, Bae S, Cong Tinh B, Xie R, Thong J T L, Hong B H, Loh K P, Donadio D, Li B, Oezylmaz B 2014 *Nat. Commun.* **5** 3689
- [12] Yang N, Xu X, Zhang G, Li B 2012 *AIP Adv.* **2** 041410
- [13] Kaburaki H, Machida M 1993 *Phys. Lett. A* **181** 85
- [14] Lepri S, Livi R, Politi A 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 1896
- [15] Hu B, Li B, Zhao H 1998 *Phys. Rev. E* **57** 2992
- [16] Zhang G, Li B 2005 *J. Chem. Phys.* **123** 114714
- [17] Yang N, Zhang G, Li B W 2010 *Nano Today* **5** 85
- [18] Liu J, Yang R 2012 *Phys. Rev. B* **86** 104307
- [19] Maruyama S 2002 *Physica B Condens. Matter* **323** 193
- [20] Henry A, Chen G 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 235502
- [21] Shen S, Henry A, Tong J, Zheng R, Chen G 2010 *Nat Nanotechnol* **5** 251
- [22] Chang C W, Okawa D, Garcia H, Majumdar A, Zettl A 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 075903
- [23] Lee V, Wu C H, Lou Z X, Lee W L, Chang C W 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 135901
- [24] Yang L, Tao Y, Zhu Y, Akter M, Wang K, Pan Z, Zhao Y, Zhang Q, Xu Y Q, Chen R, Xu T T, Chen Y, Mao Z, Li D 2021 *Nat Nanotechnol* **16** 764
- [25] Yao F, Xia S, Wei H, Zheng J, Yuan Z, Wang Y, Huang B, Li D, Lu H, Xu D 2022 *Nano Lett.* **22** 6888
- [26] Rieder Z, Lebowitz J L, Lieb E 2004 *J. Math. Phys.* **8** 1073
- [27] Payton D N, Rich M, Visscher W M 1967 *Phys. Rev.* **160** 706
- [28] Liu S, Hänggi P, Li N, Ren J, Li B 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 040601
- [29] Li S-N, Cao B-Y 2020 *Appl. Math. Lett.* **99** 105992
- [30] Parisi G 1997 *Europhys. Lett.* **40** 357
- [31] Eckmann J P, Hairer M 2000 *Commun. Math. Phys.* **212** 105
- [32] Fermi E, Pasta P, Ulam S, Tsingou M 1955 *Studies of the Nonlinear Problems*; Los Alamos National Lab. (LANL), Los Alamos, NM (United States): 1955.
- [33] Berman G P, Izrailev F M 2005 *Chaos: An Interdisciplinary Journal of Nonlinear Science* **15** 015104
- [34] Wang Z, Fu W, Zhang Y, Zhao H 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 186401
- [35] Fu W, Zhang Y, Zhao H 2019 *Phys. Rev. E* **100** 052102
- [36] Mas-Ballesté R, Gómez-Navarro C, Gómez-Herrero J, Zamora F 2011 *Nanoscale* **3** 20
- [37] Novoselov K S, Geim A K, Morozov S V, Jiang D E, Zhang Y, Dubonos S V, Grigorieva I V, Firsov A A 2004 *Science* **306** 666
- [38] Gu X, Wei Y, Yin X, Li B, Yang R 2018 *Rev. Mod. Phys.* **90** 041002
- [39] Lippi A, Livi R 2000 *J. Stat. Phys.* **100** 1147
- [40] Yang L, Grassberger P, Hu B 2006 *Phys. Rev. E* **74** 062101
- [41] Wang L, Hu B, Li B 2012 *Phys. Rev. E* **86** 040101
- [42] Gu X K, Yang R G 2014 *Appl. Phys. Lett.* **105** 131903
- [43] Gu X K, Yang R G 2015 *J. Appl. Phys.* **117** 025102
- [44] Tobey R a I, Siemens M E, Cohen O, Murnane M M, Kapteyn H C, Nelson K A 2007 *Opt. Lett.* **32** 286
- [45] McBennett B, Beardo A, Nelson E E, Abad B, Frazer T D, Adak A, Esashi Y, Li B, Kapteyn H C, Murnane M M, Knobloch J L 2023 *Nano Lett.* **23** 2129
- [46] Kollie T G 1977 *Phys. Rev. B* **16** 4872
- [47] Beardo A, Knobloch J L, Sendra L, Bafaluy J, Frazer T D, Chao W, Hernandez-Charpak J N, Kapteyn H C, Abad B, Murnane M M, Alvarez F X, Camacho J 2021 *ACS Nano* **15** 13019
- [48] Ziman J M 2001 *Electrons and Phonons: the Theory of Transport Phenomena in Solids* (Oxford University Press)
- [49] Karniadakis G, Beskok A, Aluru N 2006 *Microflows and Nanoflows: Fundamentals and Simulation* (New York: Springer Science & Business Media)
- [50] Graczyk K M, Matyka M 2020 *Sci. Rep.* **10** 21488
- [51] Verdier M, Lacroix D, Termentzidis K 2018 *Phys. Rev. B* **98** 155434
- [52] Desmarchelier P, Beardo A, Alvarez F X, Tanguy A, Termentzidis K 2022 *Int. J. Heat Mass Transfer* **194** 123003
- [53] Lysenko V, Perichon S, Remaki B, Barbier D, Champagnon B 1999 *J. Appl. Phys.* **86** 6841
- [54] Ferrando-Villalba P, D'Ortenzi L, Dalkiranis G G, Cara E, Lopeandia A F, Abad L, Rurali R, Cartoixa X, De Leo N, Saghi Z, Jacob M, Gambacorti N, Boarino L, Rodríguez-Viejo J 2018 *Sci. Rep.* **8** 12796
- [55] Plimpton S 1995 *J. Comput. Phys.* **117** 1
- [56] Zhang Z, Ouyang Y, Guo Y, Nakayama T, Nomura M, Volz S, Chen J 2020 *Phys. Rev. B* **102** 195302
- [57] Jiang J, Lu S, Ouyang Y, Chen J 2022 *Nanomaterials* **12** 2854
- [58] Li X, Lee S 2019 *Phys. Rev. B* **99** 085202
- [59] Scuracchio P, Michel K H, Peeters F M 2019 *Phys. Rev. B* **99** 144303
- [60] Lee S, Broido D, Esfarjani K, Chen G 2015 *Nat. Commun.* **6** 6290
- [61] Cao Y, Fatemi V, Fang S, Watanabe K, Taniguchi T, Kaxiras E, Jarillo-Herrero P 2018 *Nature* **556** 43
- [62] Carr S, Massatt D, Fang S, Cazeaux P, Luskin M, Kaxiras E 2017 *Phys. Rev. B* **95** 075420
- [63] Bistrizter R, MacDonald A H 2011 *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* **108** 12233
- [64] Cocemasov A I, Nika D L, Balandin A A 2013 *Phys. Rev. B* **88** 035428
- [65] Li H, Ying H, Chen X, Nika D L, Cocemasov A I, Cai W, Balandin A A, Chen S 2014 *Nanoscale* **6** 13402
- [66] Han S, Nie X, Gu S, Liu W, Chen L, Ying H, Wang L, Cheng Z, Zhao L, Chen S 2021 *Appl. Phys. Lett.* **118** 193104
- [67] Di Battista G, Seifert P, Watanabe K, Taniguchi T, Fong K C, Principi A, Efetov D K 2022 *Nano Lett.* **22** 6465
- [68] Nie X, Zhao L, Deng S, Zhang Y, Du Z 2019 *Int. J. Heat Mass Transfer* **137** 161
- [69] Li C, Debnath B, Tan X, Su S, Xu K, Ge S, Neupane M R, Lake R K 2018 *Carbon* **138** 451
- [70] Wang M H, Xie Y E, Chen Y P 2017 *Chin. Phys. B* **26** 116503
- [71] Cheng Y, Fan Z, Zhang T, Nomura M, Volz S, Zhu G, Li B, Xiong S 2023 *Mater. Today Phys.* **35** 101093
- [72] Ravichandran J, Yadav A K, Cheaito R, Rossen P B, Soukiassian A, Suresha S J, Duda J C, Foley B M, Lee C-H, Zhu Y, Lichtenberger A W, Moore J E, Muller D A, Schlom D G, Hopkins P E, Majumdar A, Ramesh R, Zurbuchen M A 2014 *Nat. Mater.* **13** 168
- [73] Ni Y, Volz S 2021 *J. Appl. Phys.* **130** 190901
- [74] Shao C, Rong Q, Li N, Bao H 2018 *Phys. Rev. B* **98** 155418
- [75] Sun L, Zhai F, Cao Z, Huang X, Guo C, Wang H, Ni Y 2023 *Chin. Phys. B* **32** 056301
- [76] Wang Y, Huang H, Ruan X 2014 *Phys. Rev. B* **90** 165406
- [77] Roy Chowdhury P, Reynolds C, Garrett A, Feng T, Adiga S P, Ruan X 2020 *Nano Energy* **69** 104428

- [78] Honarvar H, Hussein M I 2018 *Phys. Rev. B* **97** 195413
- [79] Kothari K, Maldovan M 2017 *Sci. Rep.* **7** 5625
- [80] Maldovan M 2013 *Nature* **503** 209
- [81] Li B, Tan K T, Christensen J 2017 *Phys. Rev. B* **95** 144305
- [82] Costescu R, Cahill D, Fabreguette F, Sechrist Z, George S 2004 *Science* **303** 989
- [83] Anufriev R, Yanagisawa R, Nomura M 2017 *Nanoscale* **9** 15083
- [84] Anufriev R, Maire J, Nomura M 2021 *APL Mater.* **9** 070701
- [85] Anufriev R, Gluchko S, Volz S, Nomura M 2018 *ACS Nano* **12** 11928
- [86] Maire J, Anufriev R, Yanagisawa R, Ramiere A, Volz S, Nomura M 2017 *Sci. Adv.* **3** e1700027
- [87] Wang H, Cheng Y, Fan Z, Guo Y, Zhang Z, Bescond M, Nomura M, Ala-Nissila T, Volz S, Xiong S 2021 *Nanoscale* **13** 10010
- [88] Yang L, Chen J, Yang N, Li B 2015 *Int. J. Heat Mass Transfer* **91** 428
- [89] Zen N, Puurtinen T A, Isotalo T J, Chaudhuri S, Maasilta I J 2014 *Nat. Commun.* **5** 3435
- [90] Yang L, Yang N, Li B 2013 *Sci. Rep.* **3** 1143
- [91] Yang L, Yang N, Li B 2014 *Nano Lett.* **14** 1734
- [92] Moore A L, Saha S K, Prasher R S, Shi L 2008 *Appl. Phys. Lett.* **93** 083112
- [93] Martin P, Aksamija Z, Pop E, Ravaioi U 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 125503
- [94] Maurer L N, Aksamija Z, Ramayya E B, Davoody A H, Knezevic I 2015 *Appl. Phys. Lett.* **106** 133108
- [95] Chang C W, Okawa D, Majumdar A, Zettl A 2006 *Science* **314** 1121
- [96] Hochbaum A I, Chen R, Delgado R D, Liang W, Garnett E C, Najarian M, Majumdar A, Yang P 2008 *Nature* **451** 163
- [97] Lim J, Hippalgaonkar K, Andrews S C, Majumdar A, Yang P 2012 *Nano Lett.* **12** 2475
- [98] Li D, Wu Y, Kim P, Shi L, Yang P, Majumdar A 2003 *Appl. Phys. Lett.* **83** 2934
- [99] Algra R E, Verheijen M A, Borgström M T, Feiner L F, Immink G, van Enkevort W J P, Vlieg E, Bakkers E P A M 2008 *Nature* **456** 369
- [100] Li X, Bohm P W 2000 *Appl. Phys. Lett.* **77** 2572
- [101] Canham L 2014 *Handbook of Porous Silicon* (Berlin: Springer International Publishing)
- [102] Lee J H, Galli G A, Grossman J C 2008 *Nano Lett.* **8** 3750
- [103] Ma J, Sadhu J, Ganta D, Tian H, Sinha S 2014 *AIP Adv.* **4** 124502
- [104] Gesele G, Linsmeier J, Drach V, Fricke J, Arens-Fischer R 1997 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **30** 2911
- [105] Zhang G, Li B 2010 *Nanoscale* **2** 1058
- [106] Zhao Y, Liu D, Chen J, Zhu L, Belianinov A, Ovchinnikova O S, Unocic R R, Burch M J, Kim S, Hao H, Pickard D S, Li B, Thong J T L 2017 *Nat. Commun.* **8** 15919
- [107] Aiyiti A, Hu S, Wang C, Xi Q, Cheng Z, Xia M, Ma Y, Wu J, Guo J, Wang Q, Zhou J, Chen J, Xu X, Li B 2018 *Nanoscale* **10** 2727
- [108] Chen J, Zhang G, Li B 2009 *Appl. Phys. Lett.* **95** 073117
- [109] Yang N, Zhang G, Li B 2008 *Nano Lett.* **8** 276
- [110] Chang C W, Fennimore A M, Afanasiev A, Okawa D, Ikuno T, Garcia H, Li D, Majumdar A, Zettl A 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 085901
- [111] Yang J, Waltermire S, Chen Y, Zinn A A, Xu T T, Li D 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 023109
- [112] Khalatnikov I 1952 *Zh. Eksperim. i Teor. Fiz* **23** 169
- [113] Swartz E T, Pohl R O 1989 *Rev. Mod. Phys.* **61** 605
- [114] Young D A, Maris H J 1989 *Phys. Rev. B* **40** 3685
- [115] Wang J S, Wang J, Zeng N 2006 *Phys. Rev. B* **74** 033408
- [116] Maiti A, Mahan G D, Pantelides S T 1997 *Solid State Commun.* **102** 517
- [117] Yang H, Zhang Z, Zhang J, Zeng X C 2018 *Nanoscale* **10** 19092
- [118] Behler J 2016 *The Journal of Chemical Physics* **145** 170901
- [119] Zubatiuk T, Isayev O 2021 *Acc. Chem. Res.* **54** 1575
- [120] Wu Y-J, Fang L, Xu Y 2019 *npj Comput. Mater.* **5** 56
- [121] Jin S, Zhang Z, Guo Y, Chen J, Nomura M, Volz S 2022 *Int. J. Heat Mass Transfer* **182** 122014
- [122] Ouyang Y, Yu C, He J, Jiang P, Ren W, Chen J 2022 *Phys. Rev. B* **105** 115202
- [123] Wang Z, Xie R, Bui C T, Liu D, Ni X, Li B, Thong J T 2011 *Nano Lett.* **11** 113
- [124] Cahill D G 2004 *Rev. Sci. Instrum.* **75** 5119
- [125] Cahill D G 1990 *Rev. Sci. Instrum.* **61** 802
- [126] Liu D, Xie R, Yang N, Li B, Thong J T L 2014 *Nano Lett.* **14** 806
- [127] Sun F, Wang X, Yang M, Chen Z, Zhang H, Tang D 2017 *Int. J. Thermophys.* **39** 5
- [128] Giri A, Gaskins J T, Li L, Wang Y-S, Prezhdov O V, Hopkins P E 2019 *Phys. Rev. B* **99** 165139
- [129] Foley B M, Hernández S C, Duda J C, Robinson J T, Walton S G, Hopkins P E 2015 *Nano Lett.* **15** 4876
- [130] Hopkins P E, Norris P M, Tsegaye M S, Ghosh A W 2009 *J. Appl. Phys.* **106** 023710
- [131] Li X, Yang R 2012 *Phys. Rev. B* **86** 054305
- [132] Hohensee G T, Wilson R B, Cahill D G 2015 *Nat. Commun.* **6** 6578
- [133] Wilson R B, Apgar B A, Hsieh W-P, Martin L W, Cahill D G 2015 *Phys. Rev. B* **91** 115414
- [134] Zhong J, Xi Q, Wang Z, Nakayama T, Li X, Liu J, Zhou J 2021 *J. Appl. Phys.* **129** 195102
- [135] Pollack G L 1969 *Rev. Mod. Phys.* **41** 48
- [136] Li B, Wang L, Casati G 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 184301
- [137] Li B, Lan J, Wang L 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 104302
- [138] Ding Y F, Zhu G M, Shen X Y, Bai X, Li B W 2022 *Chin. Phys. B* **31** 126301
- [139] Liu D 2014 *Ph. D Theses* (Singapore: National University of Singapore)
- [140] Yang N, Li N, Wang L, Li B 2007 *Phys. Rev. B* **76** 020301
- [141] Yang L, Wan X, Ma D, Jiang Y, Yang N 2021 *Phys. Rev. B* **103** 155305
- [142] Ma D, Zhao Y, Zhang L 2021 *J. Appl. Phys.* **129** 175302
- [143] Fröhlich H 1968 *Int. J. Quantum Chem.* **2** 641
- [144] Nardecchia I, Torres J, Lechelon M, Giliberti V, Ortolani M, Nouvel P, Gori M, Meriguet Y, Donato I, Preto J, Varani L, Sturgis J, Pettini M 2018 *Phys. Rev. X* **8** 031061
- [145] Zhang Z, Agarwal G S, Scully M O 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 158101
- [146] Aspelmeyer M, Kippenberg T J, Marquardt F 2014 *Rev. Mod. Phys.* **86** 1391
- [147] Zheng X, Li B 2021 *Physical Review A* **104** 043512
- [148] Zheng X, Li B 2022 arXiv preprint arXiv: 2201.00251
- [149] Pettit R, Ge W, Kumar P, Luntz-Martin D, Schultz J, Neukirch L, Bhattacharya M, Vamivakas A 2019 *Nat. Photonics* **13** 1
- [150] Rego L G C, Kirczenow G 1998 *Phys. Rev. Lett.* **81** 232
- [151] Rego L G C, Kirczenow G 1999 *Phys. Rev. B* **59** 13080
- [152] Schwab K, Henriksen E A, Worlock J M, Roukes M L 2000 *Nature* **404** 974
- [153] Santamore D H, Cross M C 2001 *Phys. Rev. B* **63** 184306

- [154] Chen K Q, Li W X, Duan W, Shuai Z, Gu B L 2005 *Phys. Rev. B* **72** 045422
- [155] Peng X F, Chen K Q, Wan Q, Zou B, Duan W 2010 *Phys. Rev. B* **81** 195317
- [156] Peng X F, Wang X J, Gong Z Q, Chen K Q 2011 *Appl. Phys. Lett.* **99** 233105
- [157] Huang L, Chen S Z, Zeng Y J, Wu D, Li B L, Feng Y X, Fan Z Q, Tang L M, Chen K Q 2020 *Adv. Electron. Mater.* **6** 2000689
- [158] Wang Z, Zhang D M, Ren J 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 220302 (in Chinese) [王子, 张丹妹, 任捷 2019 物理学报 **68** 220302]
- [159] Uchida K, Takahashi S, Harii K, Ieda J, Koshibae W, Ando K, Maekawa S, Saitoh E 2008 *Nature* **455** 778
- [160] Jaworski C, Yang J, Mack S, Awschalom D, Heremans J, Myers R 2010 *Nat. Mater.* **9** 898
- [161] Ren J 2013 *Phys. Rev. B* **88** 220406
- [162] Flipse J, Dejene F K, Wagenaar D, Bauer G E W, Youssef J B, van Wees B J 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 027601
- [163] Zhang L, Wang J S, Li B 2010 *Phys. Rev. B* **81** 100301
- [164] Pan H, Tang L M, Chen K Q 2022 *Phys. Rev. B* **105** 064401
- [165] Xing Y H, Xu X F, Zhang L F 2017 *Acta Phys. Sin.* **22** 226601 (in Chinese) [邢玉恒, 徐锡方, 张力发 2017 物理学报 **22** 226601]
- [166] Hentrich R, Roslova M, Isaeva A, Doert T, Brenig W, Büchner B, Hess C 2019 *Phys. Rev. B* **99** 085136
- [167] Yang Y F, Zhang G M, Zhang F C 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 186602
- [168] Akazawa M, Shimozawa M, Kittaka S, Sakakibara T, Okuma R, Hiroi Z, Lee H Y, Kawashima N, Han J H, Yamashita M 2020 *Phys. Rev. X* **10** 041059
- [169] Zhang L, Ren J, Wang J S, Li B 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 225901
- [170] Saito T, Misaki K, Ishizuka H, Nagaosa N 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 255901
- [171] Zhang L, Niu Q 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 085503
- [172] Zhang L, Niu Q 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 115502
- [173] Zhu H, Yi J, Li M Y, Xiao J, Zhang L, Yang C W, Kaindl R A, Li L J, Wang Y, Zhang X 2018 *Science* **359** 579
- [174] Chen H, Wu W, Yang S A, Li X, Zhang L 2019 *Phys. Rev. B* **100** 094303
- [175] Gao M, Zhang W, Zhang L 2018 *Nano Lett.* **18** 4424
- [176] Chen X, Lu X, Dubey S, Yao Q, Liu S, Wang X, Xiong Q, Zhang L, Srivastava A 2019 *Nat. Phys.* **15** 221
- [177] Chen H, Wu W, Zhu J, Yang Z, Gong W, Gao W, Yang S A, Zhang L 2022 *Nano Lett.* **22** 1688
- [178] Kim K, Vetter E, Yan L, Yang C, Wang Z, Sun R, Yang Y, Comstock A H, Li X, Zhou J 2023 *Nat. Mater.* **22** 322
- [179] Narayan O, Ramaswamy S 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 200601
- [180] Pereverzev A 2003 *Phys. Rev. E* **68** 056124
- [181] Vallabhaneni A K, Singh D, Bao H, Murthy J, Ruan X 2016 *Phys. Rev. B* **93** 125432
- [182] Cepellotti A, Fugallo G, Paulatto L, Lazzeri M, Mauri F, Marzari N 2015 *Nat. Commun.* **6** 6400
- [183] Huberman S, Duncan R A, Chen K, Song B, Chiloyan V, Ding Z, Maznev A A, Chen G, Nelson K A 2019 *Science* **364** 375
- [184] Shang M Y, Mao W H, Yang N, Li B, Liu J T 2022 *Phys. Rev. B* **105** 165423
- [185] Yu C, Shan S, Lu S, Zhang Z, Chen J 2023 *Phys. Rev. B* **107** 165424

The 90th Anniversary of *Acta Physica Sinica*

Phononic thermal conduction and thermal regulation in low-dimensional micro-nano scale systems: Nonequilibrium statistical physics problems from chip heat dissipation^{*}

Luo Tian-Lin¹⁾ Ding Ya-Fei¹⁾ Wei Bao-Jie¹⁾ Du Jian-Ying¹⁾

Shen Xiang-Ying^{1)†} Zhu Gui-Mei^{2)‡} Li Bao-Wen^{1)2)3)4)††}

1) (*Department of Materials Science and Engineering, Southern University of Science and Technology, Shenzhen 518055, China*)

2) (*School of Microelectronics, Southern University of Science and Technology, Shenzhen 518055, China*)

3) (*Department of Physics, Southern University of Science and Technology, Shenzhen 518055, China*)

4) (*International Quantum Academy, Shenzhen 518017, China*)

(Received 22 September 2023; revised manuscript received 16 November 2023)

Abstract

“Heat death”, namely, overheating, which will deteriorate the function of chips and eventually burn the device and has become an obstacle in the roadmap of the semiconductor industry. Therefore, heat dissipation becomes a key issue in further developing semiconductor. Heat conduction in chips encompasses the intricate dynamics of phonon conduction within one-dimensional, two-dimensional materials, as well as the intricate phonon transport through interfaces. In this paper, the research progress of the complexities of phonon transport on a nano and nanoscale in recent three years, especially the size dependent phonon thermal transport and the relationship between anomalous heat conduction and anomalous diffusion are summarized. Further discussed in this paper is the fundamental question within non-equilibrium statistical physics, particularly the necessary and sufficient condition for a given Hamiltonian whose macroscopic transport behavior obeys Fourier’s law. On the other hand, the methods of engineering the thermal conduction, encompassing nanophononic crystals, nanometamaterials, interfacial phenomena, and phonon condensation are also introduced. In order to comprehensively understand the phononic thermal conduction, a succinct overview of phonon heat transport phenomena, spanning from thermal quantization and the phonon Hall effect to the chiral phonons and their intricate interactions with other carriers is presented. Finally, the challenges and opportunities, and the potential application of phonons in quantum information are also discussed.

Keywords: thermal transport, chip heat dissipation, non-equilibrium statistical physics

PACS: 44.10.+i, 05.10.-a, 65.80.-g, 63.20.-e

DOI: [10.7498/aps.72.20231546](https://doi.org/10.7498/aps.72.20231546)

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 52250191, 12205138) and the Shenzhen Basic Research General Project, China (Grant No. JCYJ20220530113206015).

[†] Corresponding author. E-mail: shenxy@sustech.edu.cn

[‡] Corresponding author. E-mail: zhugm@sustech.edu.cn

^{††} Corresponding author. E-mail: libw@sustech.edu.cn



低维微纳尺度体系声子热传导和热调控：来自芯片散热的非平衡统计物理问题

罗天麟 丁亚飞 韦宝杰 杜建迎 沈翔瀛 朱桂妹 李保文

**Phononic thermal conduction and thermal regulation in low-dimensional micro-nano scale systems:
Nonequilibrium statistical physics problems from chip heat dissipation**

Luo Tian-Lin Ding Ya-Fei Wei Bao-Jie Du Jian-Ying Shen Xiang-Ying Zhu Gui-Mei Li Bao-Wen

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 234401 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20231546

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20231546>

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

全固态锂离子电池内部热输运研究前沿

Frontiers of investigation on thermal transport in all-solid-state lithium-ion battery

物理学报. 2022, 71(2): 026501 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211887>

周期驱动系统的非平衡热输运与热力学几何

Nonequilibrium thermal transport and thermodynamic geometry in periodically driven systems

物理学报. 2021, 70(23): 230503 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20211723>

声子系统中弹性波与热输运的拓扑与非互易现象

Topological and non-reciprocal phenomena in elastic waves and heat transport of phononic systems

物理学报. 2019, 68(22): 220302 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191463>

非平衡量子物态中的对称性与时间维度效应

Symmetries and effect of time dimension in non-equilibrium quantum matter

物理学报. 2021, 70(23): 230310 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20211741>

自组织结构的控制：从平衡过程到非平衡过程

Control of self-organization: From equilibrium to non-equilibrium

物理学报. 2020, 69(14): 140503 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200161>

二维材料热传导研究进展

Recent progresses of thermal conduction in two-dimensional materials

物理学报. 2020, 69(19): 196602 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200709>