

## 金刚石/碳纳米管异质界面热导及声子热输运特性

刘子怡<sup>1)</sup> 褚福强<sup>1)†</sup> 魏俊俊<sup>2)</sup> 冯妍卉<sup>1)‡</sup>

1) (北京科技大学能源与环境工程学院, 北京 100083)

2) (北京科技大学新材料技术研究院, 北京 100083)

(2024 年 3 月 5 日收到; 2024 年 5 月 8 日收到修改稿)

碳纳米管作为新一代热界面材料, 在天然材料中具有最高的热导率, 有望解决金刚石半导体超高热流密度的散热问题. 因此, 本文提出将金刚石和碳纳米管结合, 可大幅度提高器件性能及稳定性, 减小封装尺寸, 实现器件小型化设计. 采用非平衡分子动力学方法从微观层面探究了金刚石/碳纳米管异质结构界面热特性及影响因素. 研究发现碳纳米管层数增加使声子态密度峰值增大并向低频波段移动, 低频声子增多更有利于界面传热, 同时声子重叠能提高, 声子耦合振动增强提升了界面传热效率; 同时, 一定范围内体系温度的升高及碳纳米管长径比的增大可以提高近界面处金刚石和碳纳米管的态密度截止频率, 提升低频波段的峰值, 进一步增强两侧声子的耦合振动, 提高了界面热导. 最后, 采用正交试验模拟获得了金刚石/碳纳米管界面热导的最优值, 结果远优于目前一般半导体/金属的界面热导. 该工作为优化金刚石/碳纳米管异质界面的热输运提供了思路, 并将有利于器件热管理和芯片材料设计.

**关键词:** 碳纳米管, 金刚石, 界面热导, 分子动力学**PACS:** 81.05.uj, 91.60.Ki, 47.11.Mn, 63.22.-m**DOI:** 10.7498/aps.73.20240323

## 1 引言

目前, 信息技术设备、雷达、航空航天、军事等领域对高温高频、大功率芯片和短波光电子器件有着迫切的需求<sup>[1]</sup>. 金刚石作为超宽禁带半导体 (5.5 eV) 材料, 具有高击穿电场 (5—15 MW/cm)<sup>[2]</sup>、高热导率 (2.6—3.9 kW/(m·K))<sup>[3]</sup> 以及高载体迁移率 ( $2.2 \times 10^{-27}$  cm<sup>-3</sup>)<sup>[4]</sup>, 具有最高的品质因数 (figure of merit, FOM)<sup>[5]</sup>, 性能优于 Si, SiC, GaN 等材料<sup>[6]</sup>, 是制备高功率、高频、高温及低功率损耗电子器件的理想材料, 很好地满足了当前对于高频大功率电子器件的需求<sup>[7-9]</sup>, 在剂量学<sup>[10]</sup>、放射性伏打<sup>[11]</sup>和辐射检测<sup>[12]</sup>等方面也具有广阔的应用前景. 然而, 高频大功率的工作环境以及封装技术的限制会导致超高的局部热点. 节点温度升高会直接影响器

件的可靠性和运行速度, 导致栅极电流崩塌、载流子迁移率下降等现象. 传统的风冷方法或液体冷却技术已经不适用于新一代电子设备<sup>[13]</sup>. 应用热界面材料 (thermal interface material, TIM) 是提高电子封装和下一级热硬件界面间热输运的有效方法之一<sup>[14]</sup>.

传统的热界面材料中, 聚合物热界面材料热导率一般低于 10 W/(m·K), 金属基热界面材料有 Cu (401 W/(m·K)), Al (237 W/(m·K)), Si (148 W/(m·K)) 等, 这些热导率相对偏低的热界面材料无法有效去除芯片中异质结处的超高热点. 碳纳米管 (carbon nanotube, CNT) 作为新一代热界面材料, 在天然材料中具有最高的热导率 (6000 W/(m·K))<sup>[15]</sup>, 同时具有较高的热载荷和机械稳定性, 是热界面材料设计中理想的材料<sup>[16]</sup>. 基于此, 本文提出将金刚石和碳纳米管结合, 可大幅度提高器件性能及稳定

† 通信作者. E-mail: chufq@ustb.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: yhfeng@me.ustb.edu.cn

性, 减小封装尺寸, 实现器件小型化设计.

热界面材料的性能受其界面性质影响<sup>[17]</sup>. 因此, 改善热界面材料热性能需要了解和控制其界面性能. 界面热导 (interface thermal conductance, ITC) 或界面热阻 (interface thermal resistance, ITR) 是决定复合材料导热能力的关键因素<sup>[18]</sup>. 碳纳米管与基底的界面热特性被广泛研究<sup>[19–21]</sup>. 2005 年, Desai 等<sup>[22]</sup> 综合数值方法和分子动力学研究了用碳纳米管增强的热界面材料, 在 100 W 外加功率的条件下, 添加纳米管后热界面材料的热导率由 1—4 W/(m·K) 提高至 1000 W/(m·K). Feng 等<sup>[23]</sup> 采用分子动力学 (molecular dynamics, MD) 方法探究了垂直单壁碳纳米管与 Si 衬底之间的界面热导机理, 考虑了温度和系统尺寸的影响. Zhang 等<sup>[24]</sup> 同样通过分子动力学模拟研究了垂直碳纳米管与金属光滑表面之间的界面热阻, 详细研究了金属类型、碳纳米管直径和平均界面温度对界面热阻的影响, 指出界面热阻随着碳纳米管直径的增大呈指数减小.

前人的研究主要集中在碳纳米管/金属复合材料的界面特性, 而碳纳米管和金刚石复合材料的界面热特性问题尚不明晰. 潘东楷等<sup>[25]</sup> 指出两个堆叠低维结构界面处的弱声子耦合及声子本征模式分布的差异都会阻碍界面处的声子输运, 因此金刚石/碳纳米管复合材料的有效热导率会受到异质界面热输运的限制. 为了深入揭示金刚石和碳纳米管之间的热传输渠道, 有必要研究两者之间的界面热耦合. 分子动力学模拟已经在先前的工作中被用于研究复合材料的界面热导. 因此, 本文采用非平衡分子动力学方法结合正交试验模拟, 探究体系温度、碳纳米管层数及长径比对金刚石/碳纳米管异质界面热导的影响, 并进一步通过声子态密度和重叠能明晰了其界面声子耦合相关机理. 研究结果对

金刚石/碳纳米管的热传输和热调控有一定的指导意义.

## 2 模型及模拟

### 2.1 金刚石/碳纳米管模型

采用商业软件 Materials Studio 建立金刚石/碳纳米管模型, 模型如图 1(a) 所示. 金刚石进行〈111〉取向切面, 尺寸为 100 Å×100 Å×25 Å (1 Å = 10<sup>-10</sup> m), 共有 46320 个原子. 模拟通过改变体系温度以及碳纳米管的层数、长径比研究其对金刚石/碳纳米管复合材料界面热导的影响.

### 2.2 模拟方法

采用开源软件 LAMMPS (large-scale atomic/molecular massively parallel simulator) 进行分子动力学模拟<sup>[26]</sup>, 模型采用 OVITO (open visualization tool) 软件进行可视化. 模拟过程势函数非常重要. 为了能够准确描述碳纳米管和金刚石中碳原子的相互作用, 本文采用 Tersoff 势函数<sup>[27]</sup> 描述碳纳米管和金刚石中各自碳原子之间的相互作用, 其势能的表达式如下:

$$V_{\text{tersoff}}(r_{ij}) = f_C(r_{ij})[f_R(r_{ij}) + b_{ij}f_A(r_{ij})], \quad (1)$$

其中  $i, j$  代表体系中的原子,  $r_{ij}$  表示  $i, j$  原子成键键长,  $V_{\text{tersoff}}(r_{ij})$  为  $i$  原子和其临近原子  $j$  之间的作用能,  $f_R, f_A$  分别表示产生作用能的排斥项和吸引项,  $f_C$  为势能截取函数,  $b_{ij}$  为键序函数.

Tersoff 多体势能只考虑了近程原子的作用力. 当原子间距大于 2.1 Å 时, 原子间的多体相互作用势能就被截断. 而碳纳米管和金刚石的间距大于 2.1 Å, 因此 Tersoff 多体势能无法考虑碳纳米管和金刚石之间远程力的作用, 而经典的 12-6 Lennard-Jones (L-J) 势函数<sup>[28]</sup> 可以很好的描述. 所以

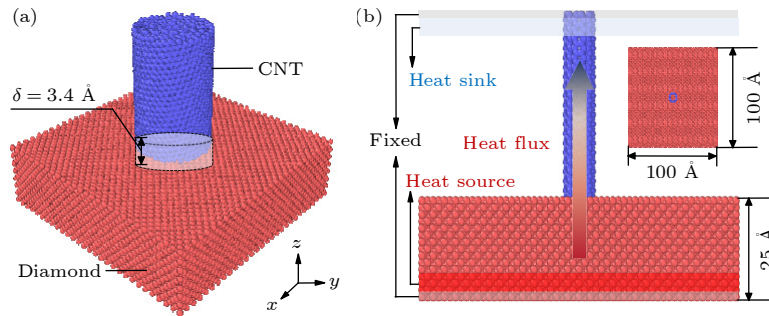


图 1 金刚石/碳纳米管模型及计算原理 (a) 金刚石/碳纳米管模型; (b) 计算原理

Fig. 1. Diamond/CNT model and calculation principle: (a) Diamond/CNT model; (b) calculation principle.

本文采用 12-6 L-J 势函数描述碳纳米管和金刚石之间碳原子的相互作用力, 其表达式如下:

$$V_{LJ}(r_{ij}) = 4\chi\epsilon \left[ \left( \sigma/r_{ij} \right)^{12} - \left( \sigma/r_{ij} \right)^6 \right], \quad (2)$$

其中  $\epsilon$  和  $\sigma$  分别为能量和距离参数,  $\chi$  为标度系数, 用来调整碳纳米管和金刚石之间总的作用力强弱.

采用反向非平衡分子动力学<sup>[29]</sup> (reverse non-equilibrium molecular dynamics, RNEMD) 模拟计算碳纳米管/金刚石异质结构的界面热导. 非平衡分子动力学方法模拟主要有两种方法, 一种是在材料两端施加恒定的温差, 进而造成温度梯度; 另一种是通过在热区和冷区施加不同的扰动, 从而在两端造成温差, 进而造成温度梯度, 即反向非平衡分子动力学法. 反向非平衡法又有两种主要的实现方法: 一种是 Müller-Plathe 法, 另一种是本文所采用的 Jund 和 Jullien<sup>[30]</sup> 恒定热流法. 该方法通过在热区和冷区减少一样的能量 (总能量不变). 在两端造成了温度差, 从而形成了温度梯度<sup>[31]</sup>. 通过对接触面积进行归一化, 得到单位面积的界面热导:

$$G = \frac{\dot{Q}}{A\Delta T}, \quad (3)$$

其中  $\dot{Q}$  为通过界面的热流, 由热沉中原子减去能  $\Delta\epsilon$  并加到热源中的原子中所决定;  $A$  为界面作用面积,  $\Delta T$  为界面两侧材料的温度差. 其中界面作用面积为环形作用力面积  $A = \pi d\delta$ , 其中  $d$  为碳纳米管直径,  $\delta$  为范德瓦耳斯力作用范围, 一般取为 3.4 Å, 如图 1(a) 所示.

模拟中时间步长设置为 1 fs,  $x$ ,  $y$ ,  $z$  方向均采用周期性边界条件. 固定体系两端, 防止其与外界产生热量交换. 临近固定端分别取 8 Å 的高度, 上下分别设置为冷源和热源, 如图 1(b) 所示. 在进行 RNEMD 模拟之前, 采用共轭梯度法 (conjugate gradient, CG) 对体系进行能量最小化. 在模拟的开始阶段, 首先采用正则系综 (体积恒定, 温度恒定) 对体系进行松弛 1 ns, 将体系温度稳定在 300 K. 接着在微正则系综 (体积恒定, 能量恒定) 下弛豫 1—1.5 ns, 体系达到平衡状态. 为了得到界面温差, 将整个体系沿轴向分为若干层, 在微正则系综下运行 1.5 ns, 每隔 0.1 ns 统计一次温度分布, 采用最后 0.5 ns 的温度分布来计算界面热导. 本文模拟考虑 3 个影响因素, 即体系温度、碳纳米管层数及长径比. 为了找出界面热导最优组, 考虑体系温度、碳纳米管层数、直径、长度及空白

因素 5 个因素设计了五因素四水平的正交试验, 表示为  $L_{16}(4^5)$ .

## 2.3 声子态密度及重叠能

为了进一步分析阐释非平衡分子动力学模拟的金刚石/碳纳米管之间的热耦合特性和热输运过程, 计算了近界面区域金刚石和碳纳米管中碳原子的声子态密度 (vibration density of states, VDOS) 和声子重叠能 (overlap energy). 声子态密度是将原子的速度自相关函数 (velocity auto correlation function, VACF) 通过快速傅里叶变换 (fast Fourier transform, FFT) 获得. 对于频率为  $\nu$  的声子, 其计算表达式为

$$\text{VDOS}(\nu) = \int \gamma(t) \exp(-2\pi i \nu t) dt, \quad (4)$$

其中  $\gamma(t)$  可通过 (5) 式计算:

$$\gamma(t) = \frac{\left\langle \sum_i v_i(0) \cdot v_i(t) \right\rangle}{\left\langle \sum_i v_i(0) \cdot v_i(0) \right\rangle}, \quad (5)$$

式中,  $i$  为体系中的原子序号,  $v_i(t)$  为第  $i$  个原子在  $t$  时刻的速度,  $\langle \dots \rangle$  表示系统平均. VDOS 与界面热导之间的关联性已成为纳米材料热传导研究中的一个重要内容, 低频声子的长平均自由程是影响单壁碳纳米管热传导的关键因素<sup>[32]</sup>. 此外, 研究发现 20 THz 以下的低频声子模式对双壁碳纳米管的热传导贡献为 62%—79%, 并且随着频率的增大, 声子振动对热导率的贡献逐渐减小到 12%<sup>[33]</sup>. 这些结果表明, 低频范围内 VDOS 特性的差异与促进碳结构界面热导的提升有直接关系.

声子重叠能是指声子态密度之间的匹配程度, 是影响声子输运及散射的主要机制. 通过下式计算:

$$E_{\text{overlap}} = \int g_0(\nu) \frac{h\nu}{\exp(h\nu/k_B T) - 1} d\nu, \quad (6)$$

其中,  $E_{\text{overlap}}$  是态密度重叠部  $g_0(\nu)$  的重叠能,  $h$  是普朗克常数,  $k_B$  是玻尔兹曼常数,  $\nu$  是频率,  $1/[\exp(h\nu/k_B T) - 1]$  是玻色-爱因斯坦分布.

## 3 结果与讨论

### 3.1 体系温度对金刚石/碳纳米管界面热导的影响

探究体系温度对金刚石/碳纳米管界面热导的影响. 体系温度分别设置为 300, 500, 700 和 900 K.



模拟得到沿热传输方向 ( $z$  轴) 上的温度分布如图 2(a) 所示. 由于金刚石和碳纳米管沿轴向均具有良好的导热性能, 当达到稳定状态时, 二者沿自身热传输方向的温度梯度很小, 且界面处 (25—27 Å) 出现大幅度温度降低, 界面热输运受阻. 图 2(b) 展示了不同温度下体系界面热导的变化, 界面热导随温度的升高先增大后减小, 在 500 K 达到最高值 318.55 MW/(m<sup>2</sup>·K).

对界面处金刚石和碳纳米管的碳原子进行声子态密度和重叠能分析. 图 3(a) 显示了 300 K 下

金刚石和碳纳米管的声子态密度, 碳纳米管的态密度截止频率约为 70 THz, 而金刚石的 VDOS 谱局限在 55 THz 以内, 且二者匹配程度较低. 当温度升高至 500 K 时 (图 3(b)), 两种材料中声子的密度增大, 增强了声子之间的相互作用和散射, 这可能会改变声子的传播特性, 导致碳纳米管的态密度截止频率降低至 40 THz, 而金刚石的 VDOS 谱的截止频率降低至 30 THz, 碳纳米管和金刚石的 VDOS 峰值以及整体频域均向低频处移动, 且峰值均有提高, 二者 VDOS 匹配增强, 传热增强. 当温

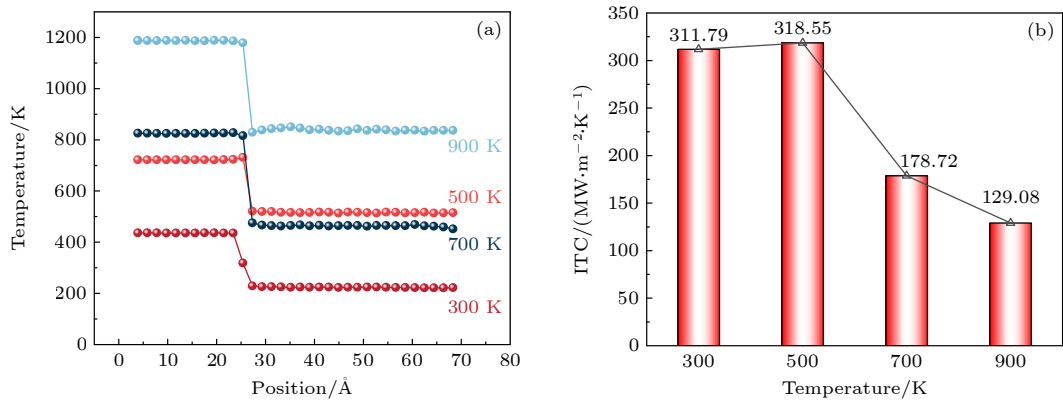


图 2 不同温度下体系的温度分布及界面热导 (a) 温度分布; (b) 界面热导随温度的变化

Fig. 2. System temperature distribution and ITC at different temperatures: (a) Temperature distribution; (b) variation of ITC with temperature.

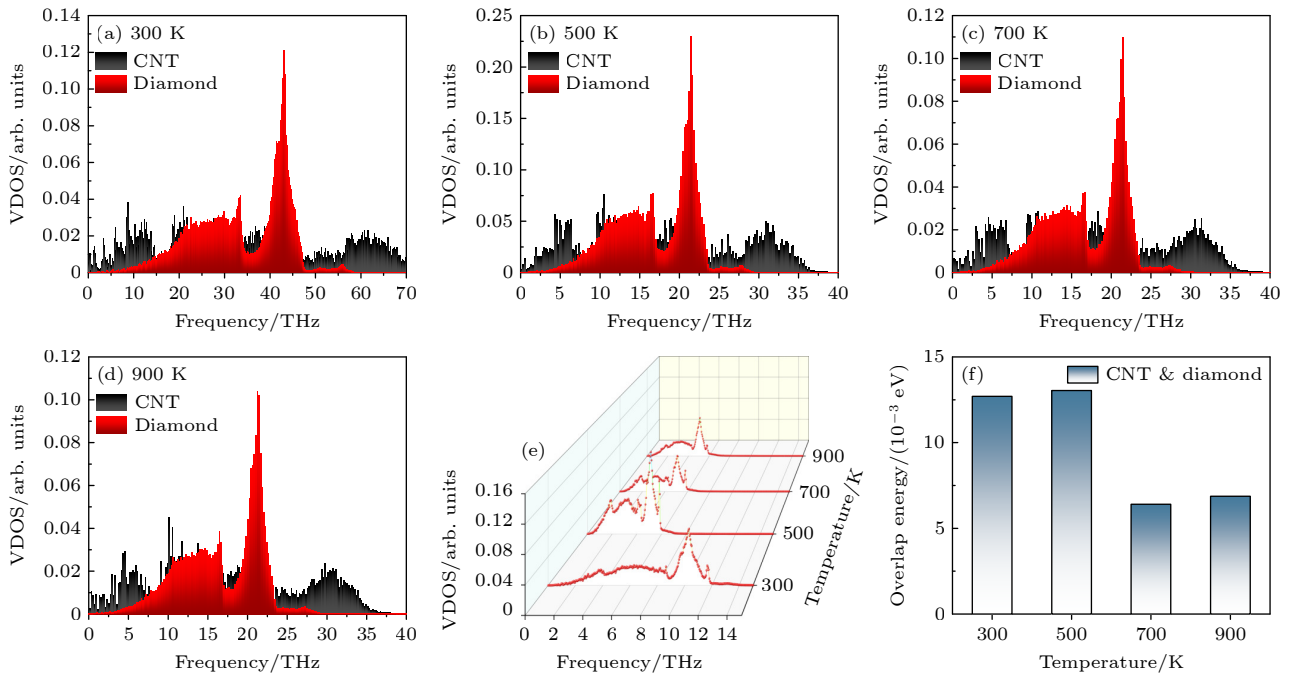


图 3 不同温度下近界面处金刚石和碳纳米管的声子态密度 (a) 300 K; (b) 500 K; (c) 700 K; (d) 900 K. (e) 不同温度下体系界面处的声子态密度; (f) 不同温度下近界面处金刚石和碳纳米管的重叠能

Fig. 3. VDOS of diamond and CNT close to interface at different temperatures: (a) 300 K; (b) 500 K; (c) 700 K; (d) 900 K. (e) VDOS at system interface at different temperatures; (f) overlap energy of diamond and CNT close to interface at different temperatures.

度升高至 700 K 时 (图 3(c)), 二者 VDOS 峰降低了一半, 激发的低频声子减少, 导致热输运被削弱; 当温度升高至 900 K 时 (图 3(d)), 金刚石的 VDOS 在中频 22 THz 处的峰值略减小, 而碳纳米管在低频 10 THz 处的 VDOS 峰值增大了一倍. 整体来看, 两侧 (300 K 和 900 K) 到 500 K 变化表现为峰值红移, 低频声子增多, 界面输运能力增强. 图 3(e) 显示了界面处碳原子的声子态密度随温度的变化, 界面态密度受两种碳原子影响, 温度高于 500 K 时可明显观察到 VDOS 峰值降低, 导致界面热输运受阻. 图 3(f) 显示了重叠能随温度的变化, 重叠能变化趋势与界面热导变化趋势相似, 温度为 500 K 时, 重叠能最大, 二者声子匹配程度最高. 界面处的热输运能力主要取决于界面两侧低频声子的耦合振动. 二者态密度重叠部分增大, 且低频声子 VDOS 值增大, 两种碳原子共振增强, 界面热输运能力增强. 态密度峰值增大且蓝移, 界面处声子散射增强, 界面热输运能力恶化. 另一方面, 随着温度的升高, 非谐性使声子能够通过非弹性传输通道传输, 界面热导升高, 但温度高于 500 K 时, 由于模拟所构建的碳纳米管为扶手椅型, 扶手椅型碳纳米管热稳定性较差, 刚性较差<sup>[34]</sup>, 并且手性指数为 (6, 6), 直径较小, 原子相对较少, 表面积较小, 碳纳米管刚性较弱, 这导致碳纳米管发生软化, 因此结构变得更加无序, 边界声子散射变强, 导致热导大幅下降<sup>[17]</sup>.

### 3.2 碳纳米管层数对金刚石/碳纳米管界面热导的影响

本节探究了碳纳米管层数对金刚石/碳纳米管界面热导的影响. 层数因素设置 6 组, 层数依次为 2, 3, 4, 6, 8. 采用 RNEMD 模拟得到沿热传导方向的温度分布如图 4(a) 所示, 发现界面温差随碳纳米管层数增加而减小. 图 4(b) 为计算得到的界面热导, 发现随着碳纳米管层数增加, 界面热导单调增大.

通过声子态密度和重叠能对模拟结果进行分析. 不同碳纳米管层数对应体系下金刚石/碳纳米管界面区域碳原子的 VDOS 如图 5(a)—(f) 所示. 与碳纳米管为 2 层时相比, 当碳纳米管壁为 3 层时, 与双壁碳纳米管相比, 金刚石的整体 VDOS 值降至约 0.5 倍. 碳纳米管壁为 4 层时, 碳纳米管在 5 THz 和 10 THz 处的峰值略有提高, 金刚石的

VDOS 变化不大. 碳纳米管壁为 6 层时, 碳纳米管和金刚石的 VDOS 峰值均增大为约原本的 2 倍, VDOS 耦合增强. 当碳纳米管壁增加为 8 层时, 碳纳米管在 0—2 THz 低频段的 VDOS 值有所提高, 而 22 THz 处的峰值降低了约 0.02 arb.units. 中频态密度随层数增加而增大, 匹配程度增大. 不同碳纳米管层数对应体系界面区域碳原子的 VDOS 如图 5(f) 所示, 低频 5—15 THz 的态密度明显增长, 界面传热随之增强. 进一步分析声子重叠能, 如图 5(g) 所示. CNT 和金刚石重叠能随层数增加而增大, 二者匹配程度增强, 与 VDOS 分析所得结论一致.

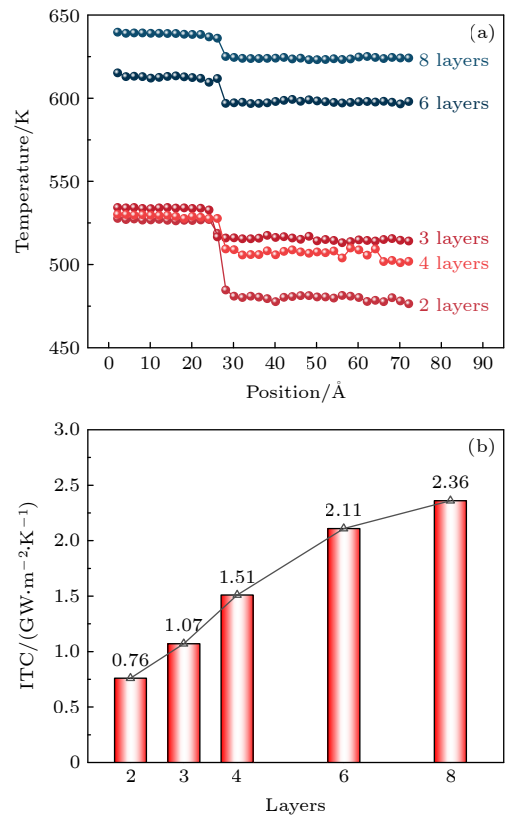


图 4 不同层数碳纳米管对应金刚石/碳纳米管体系的温度分布和界面热导 (a) 体系沿  $z$  轴的温度分布; (b) 界面热导随碳纳米管层数的变化

Fig. 4. Temperature distribution and ITC of diamond/CNT system with different CNT layers: (a) Temperature distribution of the system along  $z$  axis; (b) variation of ITC with CNT layers.

### 3.3 碳纳米管长径比对金刚石/碳纳米管界面热导的影响

探究碳纳米管长径比对金刚石/碳纳米管界面热导的影响, 碳纳米管长径比范围为 2.3—12.39.

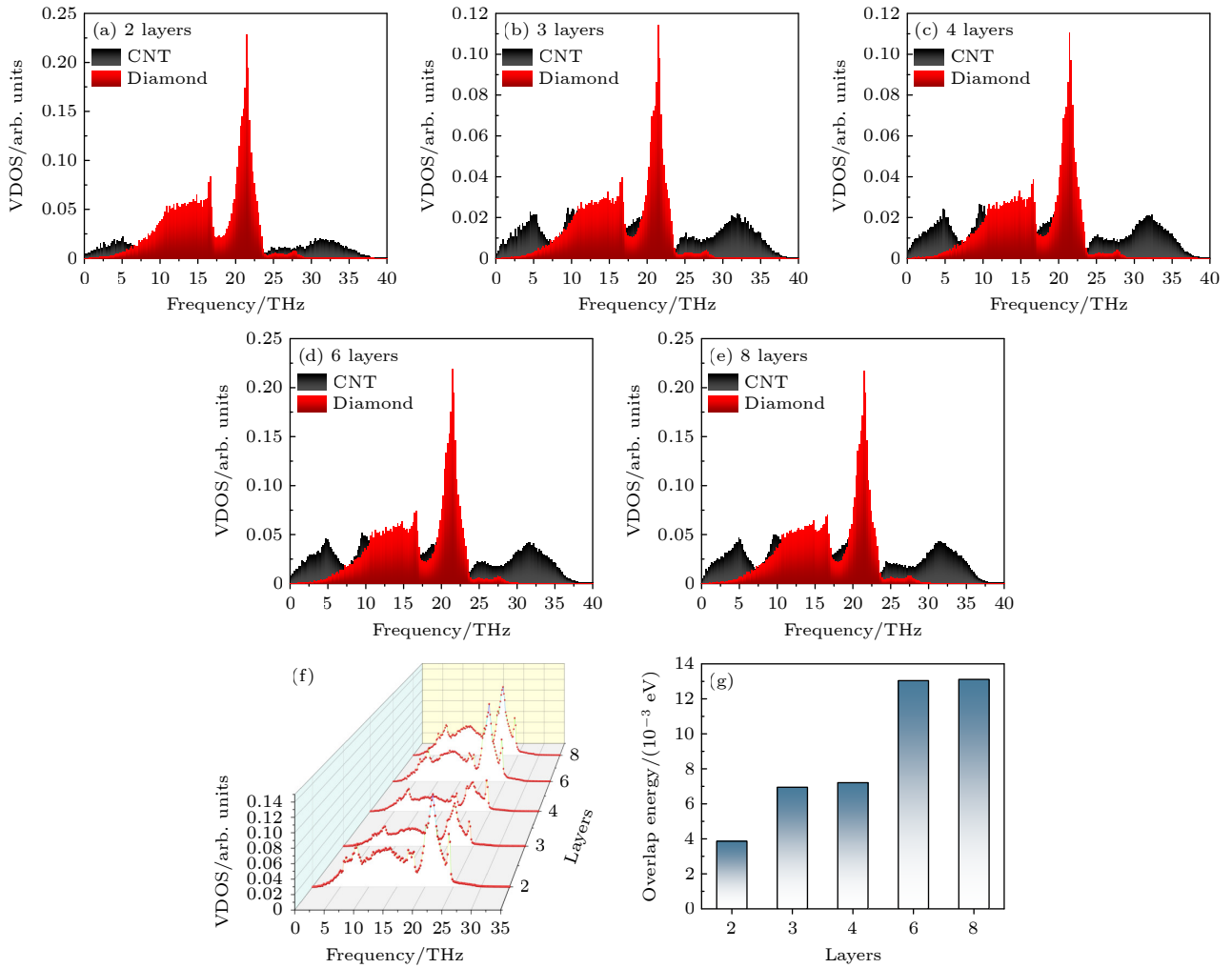


图5 不同碳纳米管层数对应界面处的金刚石和碳纳米管的声子态密度 (a) 2层; (b) 3层; (c) 4层; (d) 6层; (e) 8层. (f) 不同碳纳米管层数对应金刚石/碳纳米管界面处的声子态密度; (g) 不同碳纳米管层数对应体系中近界面处金刚石和碳纳米管的重叠能

Fig. 5. VDOS of diamond and CNT close to interface with different layers of CNT: (a) 2 layers; (b) 3 layers; (c) 4 layers; (d) 6 layers; (e) 8 layers. (f) VDOS at diamond/CNT interface with different CNT layers; (g) overlap energy of diamond and CNT close to interface with different CNT layers.

图6为界面热导随碳纳米管长径比的变化, 界面热导随着长径比增大先增大后减小. 采用声子态密度和重叠能对模拟结果进一步分析. 图7(a)–(f)为金刚石和碳纳米管的VDOS随碳纳米管长径比的变化, 图7(g)为界面处碳原子的VDOS随长径比的变化. 当碳纳米管长径比由2.3增大为3.0时, 金刚石和碳纳米管的VDOS频域变宽, 由40 THz增至80 THz, 声子数增多, 界面处碳原子的态密度变化与之类似. 当碳纳米管长径比由3.0增至12.4的过程中, 金刚石和碳纳米管的碳原子VDOS频域变窄, 峰值减小. 同时, 界面处VDOS蓝移且峰值降低, 导致界面热输运减弱. 图7(h)为重叠能随碳纳米管长径比的变化, 趋势与界面热导的变化一致.

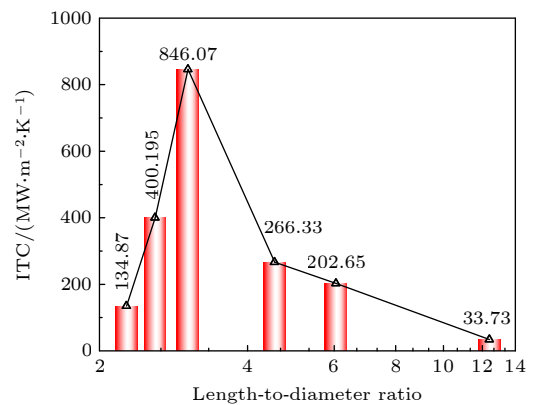


图6 金刚石/碳纳米管复合材料界面热导随碳纳米管长径比的变化

Fig. 6. Variation of ITC with length-to-diameter ratio ( $L/d$ ) of CNT.

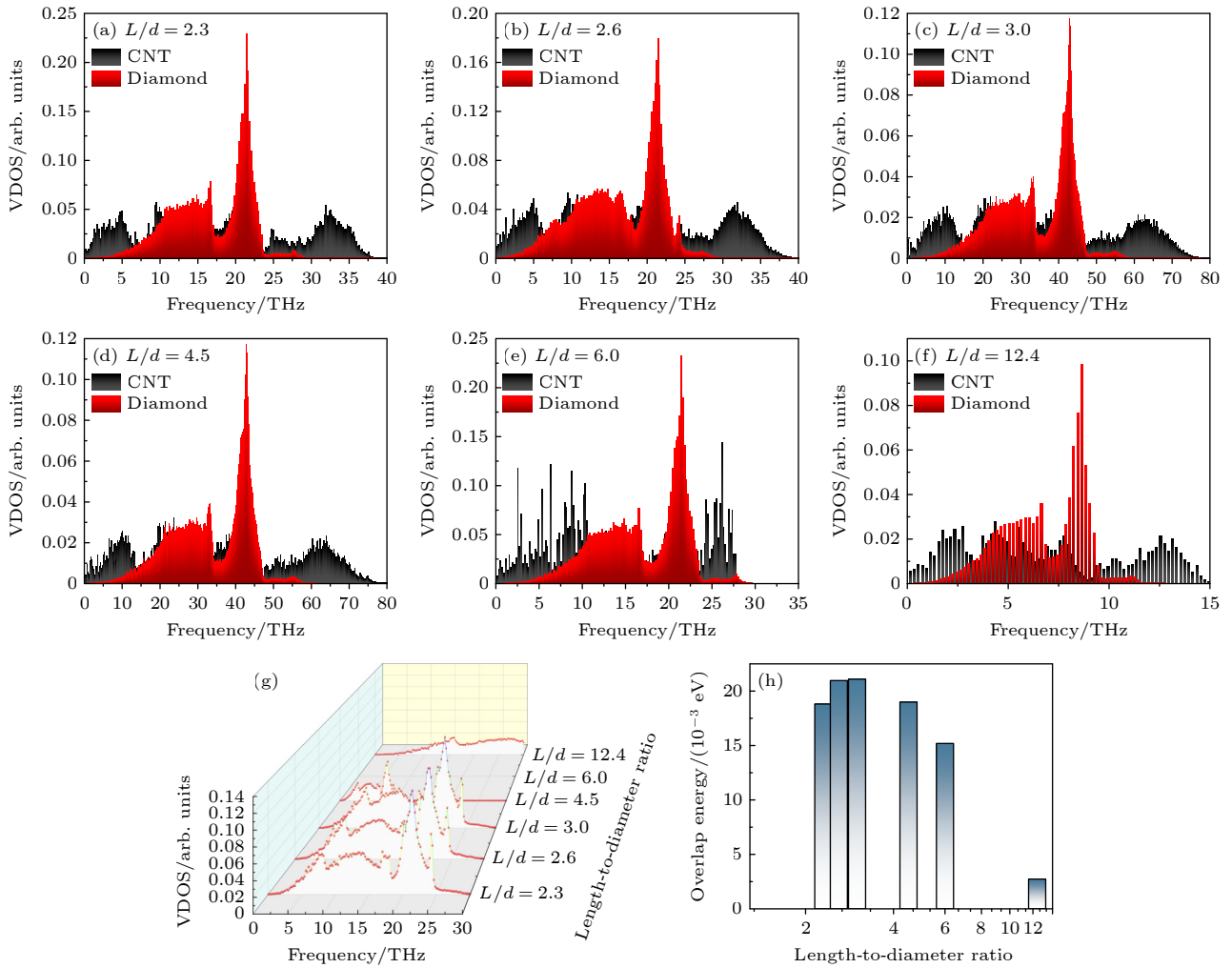


图 7 不同碳纳米管长径比对应近界面处的金刚石和碳纳米管的声子态密度 (a)  $L/d = 2.3$ ; (b)  $L/d = 2.6$ ; (c)  $L/d = 3.0$ ; (d)  $L/d = 4.5$ ; (e)  $L/d = 6.0$ ; (f)  $L/d = 12.4$ . (g) 不同碳纳米管长径比对应金刚石/碳纳米管界面处的声子态密度; (h) 不同碳纳米管长径比对应体系中近界面处金刚石和碳纳米管的重叠能

Fig. 7. VDOS of diamond and CNT close to interface with different CNT length-to-diameter ratio: (a)  $L/d = 2.3$ ; (b)  $L/d = 2.6$ ; (c)  $L/d = 3.0$ ; (d)  $L/d = 4.5$ ; (e)  $L/d = 6.0$ ; (f)  $L/d = 12.4$ . (g) VDOS at diamond/CNT interface with different CNT length-to-diameter ratio; (h) overlap energy of diamond and CNT close to interface with different CNT length-to-diameter ratio.

### 3.4 正交试验确定金刚石/碳纳米管界面热导最优值

当各影响因素取不同的水平组合时, 各因素所引起的输出特性值的波动亦不相同. 由于非线性效应, 必定存在一组最优水平组合, 使得各参数波动所造成的输出特性值的波动最小, 即一致性最好. 因此基于 SPSS 软件中的正交设计<sup>[35]</sup>原理, 本节采用正交试验模拟寻求各因素的最优水平组合, 得到最优金刚石/碳纳米管界面热导. 采用五因素四水平正交试验表共进行了 16 组模拟. 表 1 为界面热导的计算结果, 图 8(a) 为正交试验结果的均值分析, 发现界面热导随着 CNT 层数的增加呈线性增大.

表 1 正交试验界面热导结果

Table 1. ITC results of orthogonal test.

Number	ITC/(MW·m <sup>-2</sup> ·K <sup>-1</sup> )	Number	ITC/(MW·m <sup>-2</sup> ·K <sup>-1</sup> )
1	146.21	9	614.33
2	237.72	10	816.90
3	394.06	11	135.93
4	528.635	12	430.075
5	249.165	13	1264.37
6	103.735	14	788.3
7	1208.075	15	267.035
8	553.91	16	137.12

对正交试验结果进行极值分析, 得到表 2 结果, 其中  $K_i$  ( $i = 1, 2, 3, 4$ ) 为某个因素的第  $i$  个水平的指标之和;  $R$  表示  $K_i$  的最大值与最小值之差.



$R$  越大, 即说明该因素的影响越强, Optimum level 指  $K_i$  值最大时对应的水平  $i$ , 即各因素的最优水平. 根据所得结果, 碳纳米管结构参数对金刚石/碳纳米管界面热导的影响排序为: 层数 > 长度 > 直径, 体系温度对其影响程度处于层数和长度之间; 同时, 当温度、手性指数、层数、长度分别为 900 K, (6, 6), 6 层, 5 nm 时, 金刚石/碳纳米管复合材料存在最优界面热导. 对最优组进行反向非平衡分子动力学模拟, 体系温度分布如图 8(b) 所示, 此时界面温降为 9.925 K, 界面热导值为 2652.34 MW/(m<sup>2</sup>·K),

与正交组最高界面热导相比界面热导提高了 109%, 验证了该条件下存在最优界面热导, 且该结果远远优于目前一般金属/半导体的界面热导 [36], 相比一般复合材料, 金刚石/碳纳米管复合材料强化散热潜力极大. 对正交试验结果进行正交分析, 温度、直径、层数和长度影响因素的  $P$  值分别为 0.133175, 0.519681, 0.003009, 0.118284. 根据  $P$  值检验,  $P < 0.05$  表示影响显著,  $P < 0.01$  表示影响极其显著.  $P$  值检验结果进一步证明了层数因素对界面热导影响极其显著, 长度、温度、直径因素对界面热导的影响依次减弱, 与极值分析结果一致.

## 4 结 论

本文采用非平衡分子动力学方法从微观层面研究了体系温度、碳纳米管层数及长径比对金刚石/碳纳米管复合材料界面热导的影响, 并进一步通过声子态密度和重叠能进行了机理分析. 研究发现, 第一, 碳纳米管层数增加使碳纳米管声子态密度的峰值增大并向低频波段移动, 声子重叠能随层数增加而增大, 低频声子增多并且耦合振动增强, 更有利于界面传热. 第二, 发现一定范围内体系温度的升高及碳纳米管长径比的增大可以提高近界面处金刚石和碳纳米管的态密度截止频率, 提高低频波段的峰值, 进一步增强两侧声子的耦合振动, 提高界面热导. 第三, 采用正交试验模拟获得了金刚石/碳纳米管界面热导最优值及条件, 当温度、手性指数、层数、长度分别为 900 K, (6, 6), 6 层, 5 nm 时, 金刚石/碳纳米管界面热导最高可以达到 2.65 GW/(m<sup>2</sup>·K), 是目前报道的金刚石基复合材料界面热导的最高结果. 第四, 通过正交分析, 碳纳米管层数对金刚石/碳纳米管异质界面界面热导影响最显著, 碳管结构参数对体系界面热导的影响程度排序为: 层数 > 长度 > 直径, 体系温度对其影响程度处于层数和长度之间. 该研究对于调控碳纳米管与金刚石的界面热输运具有一定指导意义, 并将有利于器件热管理和芯片材料设计.

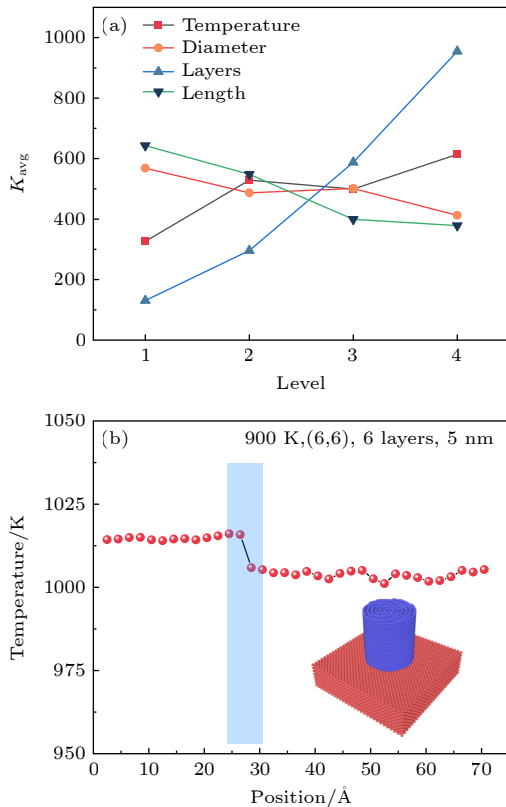


图 8 正交试验结果分析 (a) 各因素水平平均值表; (b) 最优组温度分布

Fig. 8. Orthogonal test result analysis: (a) Average value diagram of each factor and each level; (b) optimal group temperature distribution.

表 2 正交试验极值分析

Table 2. Range analysis of orthogonal test.

Level	Temperature /K	Diameter /nm	Layers	Length /nm
$K_1$	326.66	568.52	130.75	643.16
$K_2$	528.72	486.66	296.00	547.98
$K_3$	499.31	501.28	587.65	399.31
$K_4$	614.21	412.44	954.50	378.43
$R$	287.55	156.08	823.75	264.73
Optimum level	4	1	4	1

## 参考文献

- [1] Wang Q J, Deng Y G, Wang R Z, Liu X J 2023 *Acta Phys. Sin.* **72** 226301 (in Chinese) [王权杰, 邓宇戈, 王仁宗, 刘向军 2023 物理学报 **72** 226301]
- [2] Hiraiwa A, Kawarada H 2015 *J. Appl. Phys.* **117** 124503
- [3] Berman R, Hudson P, Martinez M 1975 *J. Phys. C: Solid*



*State Phys.* **8** L430

- [4] Pernot J, Volpe P N, Omnès F, Muret P, Mortet V, Haenen K, Teraji T 2010 *Phys. Rev. B* **81** 205203
- [5] Chow T P, Omura I, Higashiwaki M, Kwarada H, Pala V 2017 *IEEE Trans. Electron Devices* **64** 856
- [6] Perez G, Maréchal A, Chicot G, Lefranc P, Jeannin P O, Eon D, Rouger N 2020 *Diamond Relat. Mater.* **110** 108154
- [7] Russell S A O, Sharabi S, Tallaire A, Moran D A J 2012 *IEEE Electron Device Lett.* **33** 6291745
- [8] Sato H, Kasu M 2013 *Diamond Relat. Mater.* **31** 47
- [9] Yang Y, Koeck F A, Dutta M, Wang X, Chowdhury S, Nemanich R J 2017 *J. Appl. Phys.* **122** 155304
- [10] Hodgson M, Lohstroh A, Sellin P, Thomas D 2017 *Meas. Sci. Technol.* **28** 105501
- [11] Bodie C S, Lioliou G, Lefevre G, Barnett A M 2022 *Appl. Radiat. Isot.* **180** 110027
- [12] Chaudhuri S K, Kleppinger J W, Karadavut O, Mandal K C 2021 *IEEE Electron Device Lett.* **42** 200
- [13] Yang Z, Zhou L H, Luo W, Wan J Y, Dai J Q, Han X G, Fu K, Henderson D, Yang B, Hu L B 2016 *Nanoscale* **8** 19326
- [14] Due J, Robinson A J 2013 *Appl. Therm. Eng.* **50** 455
- [15] Hone J, Whitney M, Piskoti C, Zettl A 1999 *Phys. Rev. B* **59** R2514
- [16] Marconnet A M, Panzer M A, Goodson K E 2013 *Rev. Mod. Phys.* **85** 1295
- [17] Sho H, Takuma H, Takuma S, James E, Junichiro S 2013 *Int. J. Heat Mass Transfer* **67** 1024
- [18] Chang G, Duan J L, Wang L H, Wang X T, Zhang H L 2017 *Mater. Rep.* **31** 72 (in Chinese) [常国, 段佳良, 王鲁华, 王西涛, 张海龙 2017 *材料导报* **31** 72]
- [19] Lee S, Lee A, Baek S, Sung Y, Jeong H 2022 *Diamond Relat. Mater.* **130** 109428
- [20] Yu H T, Feng Y Y, Chen C, Zhang Z X, Cai Y, Qin M M, Feng W 2021 *Carbon* **179** 348
- [21] Ma J K, Shang T Y, Ren L L, Yao Y M, Zhang T, Xie J Q, Zhang B T, Zeng X L, Sun R, Xu J B, Wong C P 2020 *Chem. Eng. J.* **380** 122550
- [22] Desai A, Mahajan S, Subbarayan G, Jones W, Geer J, Sammakia B 2005 *J. Electron. Packag.* **128** 92
- [23] Feng Y, Zhu J, Tang D W 2015 *Phys. Lett. A* **379** 382
- [24] Zhang D, Tang Y Z, Wang S, Lin H, He Y 2022 *Compos. Interfaces* **29** 899
- [25] Pan D K, Zong Z C, Yang N 2022 *Acta Phys. Sin.* **71** 086302 (in Chinese) [潘东楷, 宗志成, 杨诺 2022 *物理学报* **71** 086302]
- [26] Thompson A P, Aktulga H M, Berger R, et al. 2022 *Comput. Phys. Commun.* **271** 108171
- [27] Sha Z D, Brancio P S, Pei Q X, Sorkin V, Zhang Y W 2013 *Comput. Mater. Sci* **67** 146
- [28] Heinz H, Vaia R A, Farmer B L, Naik R R 2008 *J. Phys. Chem.* **112** 17281
- [29] Liu Y Z, Yue J C, Liu Y N, Nian L L, Hu S Q 2023 *Chin. Phys. Lett.* **40** 086301
- [30] Jund P, Jullien R 1999 *Phys. Rev. B* **59** 13707
- [31] Qin C L, Luo X Y, Xie Q, Wu Q D 2022 *Acta Phys. Sin.* **71** 030202 (in Chinese) [秦成龙, 罗祥燕, 谢泉, 吴乔丹 2022 *物理学报* **71** 030202]
- [32] Yao Z H, Wang J S, Li B W, Liu G R 2005 *Phys. Rev. B* **71** 085417
- [33] Li J Q, Shen H J 2018 *Mol. Phys.* **116** 1297
- [34] Zhu Y B, Bao Z, Cai C J, Yang Y J 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 7833 (in Chinese) [朱亚波, 鲍振, 蔡存金, 杨玉杰 2009 *物理学报* **58** 7833]
- [35] Seberry J 2017 *Orthogonal Designs* (Wollongong: Springer Cham) pp1–430
- [36] Zong Z C, Pan D K, Deng S C, Wan X, Yang L N, Ma D K, Yang N 2023 *Acta Phys. Sin.* **72** 034401 (in Chinese) [宗志成, 潘东楷, 邓世琛, 万骁, 杨哩娜, 马登科, 杨诺 2023 *物理学报* **72** 034401]

# Interface thermal conductance and phonon thermal transport characteristics of diamond/carbon nanotube interface

Liu Zi-Yi<sup>1)</sup> Chu Fu-Qiang<sup>1)†</sup> Wei Jun-Jun<sup>2)</sup> Feng Yan-Hui<sup>1)‡</sup>

1) (*School of Energy and Environmental Engineering, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China*)

2) (*Institute for Advanced Materials and Technology, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China*)

( Received 5 March 2024; revised manuscript received 8 May 2024 )

## Abstract

Diamond, an ultra-wide band gap semiconductor material, is an ideal material for high-power, high-frequency, high-temperature, and low-power loss electronic devices. However, high-frequency and high-power working environment leads to ultra-high local hot spots. Thermal interface material (TIM) is urgently needed to improve interface heat dissipation. Carbon nanotube (CNT), a brand-new generation of TIM, has ultra-high thermal conductivity (6000 W/(m·K)) and is expected to solve the heat dissipation problem of diamond semiconductor.

Based on this, we first propose to combine diamond and CNT to improve the performance and stability of semiconductor device, reduce packaging size, and achieve miniaturized design of devices. Here we use reverse non-equilibrium molecular dynamics (RNEMD) method to study the thermal transport characteristics and interface thermal conductance (ITC) at the diamond/CNT interface. The results reveal that increasing CNT layers enhances the overall vibration density of states (VDOS) of CNT and shifts the peak value towards the low frequency band, which is more conducive to interface heat transfer. Alternatively, the enhancement of the phonon overlap energy strengthens the coupling vibration of phonon and thus improving the efficiency of the interfacial heat transfer. Moreover, in a certain range, the increase of system temperature and CNT length-to-diameter ratio can raise the cutoff frequency of the VDOS of diamond and CNT near the interface and the peak value of the low frequency band. This further improves the coupling vibration of phonon on both sides. Finally, by orthogonal test simulation, the optimal value of ITC is determined to be 2.65 GW/(m<sup>2</sup>·K) when the temperature, chirality, layers and length are 900 K, (6, 6), 6 layers and 5 nm respectively. This result greatly exceeds the current ITC of general semiconductors/metal. Compared with general composite materials, diamond/CNT composite material has great potential to enhance heat dissipation. Furthermore, according to P-value test, the number of layers has an extremely significant influence on interfacial thermal transport, while the influence of length, temperature and diameter decrease in turn.

This work provides insights into optimizing heat transport at diamond/carbon nanotube interface and will be beneficial for device thermal management and chip material design.

**Keywords:** carbon nanotube, diamond, interface thermal conductance, molecular dynamics

**PACS:** 81.05.uj, 91.60.Ki, 47.11.Mn, 63.22.-m

**DOI:** 10.7498/aps.73.20240323

† Corresponding author. E-mail: [chufq@ustb.edu.cn](mailto:chufq@ustb.edu.cn)

‡ Corresponding author. E-mail: [yhfeng@me.ustb.edu.cn](mailto:yhfeng@me.ustb.edu.cn)



## 金刚石/碳纳米管异质界面热导及声子热输运特性

刘子怡 褚福强 魏俊俊 冯妍卉

## Interface thermal conductance and phonon thermal transport characteristics of diamond/carbon nanotube interface

Liu Zi-Yi Chu Fu-Qiang Wei Jun-Jun Feng Yan-Hui

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 73, 138102 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20240323

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240323>

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

Au-TiO<sub>2</sub>光电极界面声子热输运特性的分子动力学模拟

Molecular dynamics simulation of thermal transport properties of phonons at interface of Au-TiO<sub>2</sub> photoelectrode

物理学报. 2024, 73(10): 103105 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240026>

多壁碳纳米管与金属表面间接接触行为的分子动力学模拟

Molecular dynamics simulation of contact behaviors between multiwall carbon nanotube and metal surface

物理学报. 2021, 70(10): 106101 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20202194>

金刚石/环氧树脂复合物热导率的分子动力学模拟

Molecular dynamics simulation of thermal conductivity of diamond/epoxy resin composites

物理学报. 2023, 72(16): 168102 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222270>

非对称纳米通道内界面热阻的分子动力学研究

Molecular dynamics study of interface thermal resistance in asymmetric nanochannel

物理学报. 2020, 69(22): 224701 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200491>

一种新型的三壁碳纳米管螺旋振荡器:分子动力学模拟

A novel triple-walled carbon nanotube screwing oscillator: a molecular dynamics simulation

物理学报. 2020, 69(22): 228801 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200821>

混合失配模型预测金属/半导体界面热导

Mixed mismatch model predicted interfacial thermal conductance of metal/semiconductor interface

物理学报. 2023, 72(3): 034401 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20221981>