

纳米尺度材料有效导热率的界面效应

韩亚芬, 夏新林, 李东辉, 谈和平

(哈尔滨工业大学 能源科学与工程学院, 150001 哈尔滨)

摘要: 为了研究界面效应对纳米尺度材料内声子热输运的影响, 利用格子波尔兹曼法模拟二维矩形结构二氧化硅纳米材料内声子热输运, 模拟过程考虑了边界散射对声子平均自由程的影响. 结果表明, 相对镜反射的情况, 漫反射界面明显降低了纳米尺度材料的导热率, 边界面存在界面效应; 随着镜反射因子的减小, 材料的有效导热率降低; 提高纳米尺度固体材料界面的粗糙度, 界面热阻增强, 有助于降低导热率.

关键词: 格子波尔兹曼方法; 纳米尺度; 声子输运; 界面效应; 导热率

中图分类号: TK124

文献标志码: A

文章编号: 0367-6234(2013)07-0068-04

Effect of boundary of effective thermal conductivity for nanoscale material

HAN Yafen, XIA Xinlin, LI Donghui, TAN Heping

(School of Energy Science and Engineering, Harbin Institute of Technology, 150001 Harbin, China)

Abstract: To study the influence of boundary effect on phonon heat transport in nanoscale material, the phonon heat transport in silicon dioxide material for rectangular geometry is simulated, in which the effect of boundary scattering on phonon mean free path is considered. The results show that the effective thermal conductivity in nanoscale material reduces more obviously for diffuse reflection than the case of specular reflection, and the effect of boundary exists at the boundary. The effective thermal conductivity reduces with the decrease of specularly factor. The increasing of boundary roughness in nanoscale material, which enhances the thermal resistance of boundary, is in favor of the reduction of the thermal conductivity.

Key words: Lattice Boltzmann method; nanoscale; Phonon transport; Effect of boundary; Thermal conductivity

纳米尺度材料因具有奇异的物理特性, 使得其在电子、航空航天、国防等领域有着广阔的应用前景^[1-3]. 在航空航天领域, 随着高超声速飞行器的发展, 对隔热材料的要求也越来越高, 利用纳米技术开发气凝胶隔热复合材料已成为目前研制轻质高效隔热材料的主要方向^[4]. 集成电路以及其它微型器件的特征尺度也已经减小到纳米尺度, 器件中的散热成为了一个关键问题^[5]. 因此对纳米尺度材料热传输性质进行模拟研究可以为纳米

尺度材料的热设计和性能优化提供理论依据和参考.

目前, 对纳米尺度材料传热的理论研究主要集中在热传输的尺度效应方面. 冯晓利等^[6]和 Lu X等^[7]采用分子动力学方法数值研究了固体氩晶体纳米薄膜的导热系数. 王赞等^[8-9]基于蒙特卡洛法研究了等截面和变截面硅纳米线的热导率, 模拟了等效直径分别为 22、37、56 nm 硅纳米线在 15 ~ 315 K 温度范围内的热导率. Rodrigo Escobar^[10]利用格子波尔兹曼方法模拟了纳米尺度硅薄膜内瞬态和稳态声子热传输. David Lacroix^[11]利用直接蒙特卡洛法模拟了硅和镉纳米颗粒中声子输运的尺度效应. Mei-Jiau Huang^[12]采用非平衡态分子动力学方法研究了直径分别为 4.1、7.6、10.6 nm 的无限长纳米线的

收稿日期: 2012-08-04.

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(51176038); 国家自然科学基金委创新研究群体(51121004).

作者简介: 韩亚芬(1979—), 女, 博士研究生;
夏新林(1964—), 男, 教授, 博士生导师;
谈和平(1952—), 男, 教授, 博士生导师.

通信作者: 夏新林, xiaxl@hit.edu.cn.

导热率,并发现其热导率远小于体材料的值.

当材料尺寸减小到纳米尺度时,材料边界的界面效应变得更为重要,特别是当材料的特征尺寸可比于或小于声子的平均自由程时,界面效应是影响其热传输的重要因素,有必要对其进行详细深入的分析.本文利用格子波尔兹曼法模拟了二氧化硅纳米材料内的声子热传输,分析了不同尺寸下导热率的界面效应,以及界面粗糙程度对材料有效导热率的影响.

1 物理数学模型

1.1 格子波尔兹曼方程

图1为模拟中选取的边长分别为 L 和 d 的矩形结构二氧化硅材料.

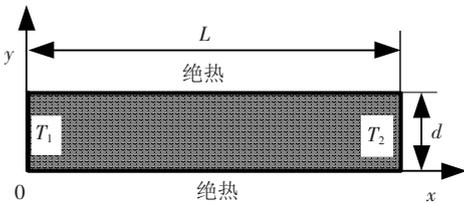


图1 二氧化硅材料几何模型

不考虑外力的情况下,经过松弛时间近似的波尔兹曼方程最一般的表达式为

$$\frac{\partial f}{\partial t} + v \cdot \nabla f = \frac{f^0 - f}{\tau}$$

式中: f 为声子分布函数; f^0 为声子平衡态分布函数; v 代表声子群速度; τ 代表声子松弛时间,由声子平均自由程和群速度的比值确定.

声子为玻色子,平衡态分布函数服从玻-爱分布:

$$f^0 = 1 / (e^{(\hbar\omega/k_B T)} - 1)$$

式中: ω 为声子振动频率系数, \hbar 为普朗克数与 2π 的比值, k_B 为玻尔兹曼常数.

将分布函数对频率积分,得到声子能量密度.根据德拜模型假设,声子能量密度可表示为

$$e = \frac{9\eta k_B T^4}{T_D^3} \int_0^{\frac{T_D}{T}} \frac{x^3}{e^x - 1} dx$$

式中: η 为波矢数密度, T_D 为德拜温度, $x = \hbar\omega / (k_B T)$ 为量纲一的频系数.

用 e_i 和 e_i^0 分别表示 i 方向声子能量密度分布函数和平衡态分布函数,则其演化方程表示为

$$e_i(r + v_i \Delta t, t + \Delta t) - e_i(r, t) = -\Delta t / \tau \cdot [e_i(r, t) - e_i^0(r, t)]$$

式中 v_i 为沿 i 方向的声子群速度.

假定各向同性,格点平衡态声子能量密度为

$$e_i^0(r, t) = \frac{1}{Q} \sum_{i=1}^Q e_i(r, t)$$

式中 Q 为格点总速度方向数.

薄膜内部格点热流可表示为

$$q = \sum_{i=1}^Q v_i e_i(r, t)$$

1.2 边界条件

对于图1中绝热边界处理通常包括镜反射和漫反射两种情况,以 $y = 0$ 边界为例,图2给出了本文所采用格子波尔兹曼方法D2Q9模型绝热边界的处理.

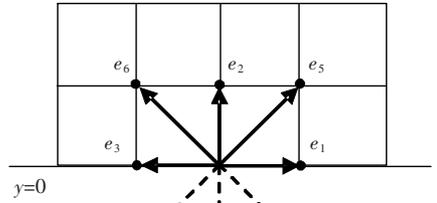


图2 绝热边界条件

对于镜反射边界:

$$e_2 = e_4; e_5 = e_8; e_6 = e_7;$$

对于漫反射边界:

$$e_2 = e^0; e_5 = e^0; e_6 = e^0$$

1.3 声子平均自由程

假设纳米尺度固体中晶格缺陷散射、杂质 Z 散射、声子间散射与其体材料相同.根据Matthiessen定律,考虑边界散射的纳米固体导热声子自由程可表示为

$$\frac{1}{\Lambda} = \frac{1}{\Lambda_m} + \frac{1}{\Lambda_b}$$

式中: Λ_m 为体材料的声子平均自由程, Λ_b 为边界散射的声子平均自由程, Λ 为考虑了边界散射后纳米固体内的声子平均自由程.

对于图1所示的二维矩形固体及其边界条件,绝热边界为镜反射时,保证了声子动量守恒,因此不会引起任何传输阻力,从而边界可以被移除.

$$\frac{1}{\Lambda_b} = \frac{1}{Bd}$$

式中 $B = 3/4$.

绝热边界为漫反射时,漫散射引起的声子传输阻力应包含在声子平均自由程的计算中.根据Matthiessen定律,漫反射边界散射引起的声子平均自由程为

$$\frac{1}{\Lambda_b} = \frac{1}{B} \left(\frac{1}{L} + \frac{1}{d} \right)$$

2 计算结果及讨论

文献[13]中已验证了本文程序代码的有效

性,不再重复验证.考虑图1所示的矩形结构二氧化硅材料.左右边界给定等温边界条件,左边界温度 299.5 K,右边界温度 300.5 K.上下边界绝热,分别采用镜反射和漫反射处理.

2.1 镜反射和漫反射对导热率的影响

对两种情况进行模拟,第一种情况:取 $L = 60$ nm,改变 y 方向尺寸 d ,分析绝热边界分别取镜反射和漫反射时对 x 方向有效导热率的影响,图3给出了模拟结果.第二种情况: y 方向尺寸分别取 $d = 3, 6, 12$ 和 60 nm 固定不变,改变 x 方向(平行热流方向)尺寸 L ,分析绝热面分别取镜反射和漫反射时有效导热率的变化,模拟结果如图4.图中纵坐标 k 为给定尺寸材料的有效导热率与体材料导热率的比值^[13].

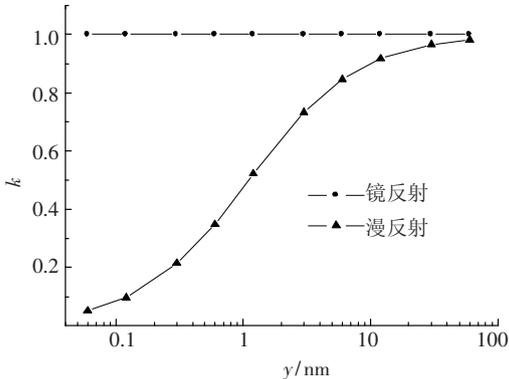


图3 垂直热流方向的尺寸变化时导热率的界面效应

图3表明,镜反射时,垂直热流方向尺寸 d 对导热率没有影响,这是由于此时边界足够光滑,不会引起声子传输阻力,相当于边界被移除.漫反射时,界面效应存在,导热率随着尺寸 L 的减小而减小.

图4中,“镜反射”为 d 在4种不同情况下绝热面均采用镜反射时的模拟结果.其余曲线均为漫反射的结果,对于漫反射的情况,随着 d 的增大模拟结果逐渐增大,当 d 增大到 60 nm 时,界面影响消失,漫反射的模拟结果与镜反射的结果基本重合.

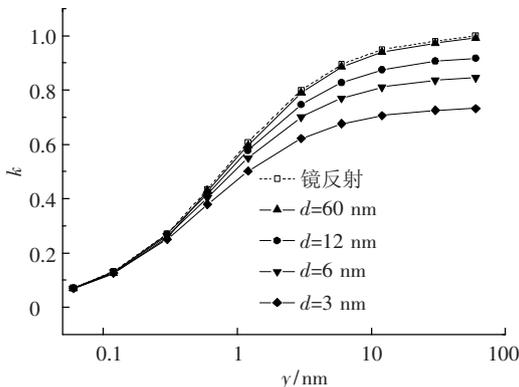


图4 不同尺寸 d 固定不变时导热率的界面效应

2.2 镜反射因子对导热率的影响

当固体材料的特征尺寸可比于或小于声子的平均自由程时,声子的界面效应是影响热传输的关键因素.更多的内部声子与边界面相互作用,因此其传输受到阻碍.由于制作上的不同,同种材料固体也会展现不同的表面特性,因此也就展现了不同的热特性.在实际固体中,声子与边界面的作用多处于镜反射和漫反射两种情况之间.为了表征固体材料的表面特性,定义镜反射因子 F 为边界处发生镜反射的声子能量密度占总声子能量密度的百分比,镜反射时, $F = 1.0$; 漫反射时, $F = 0$.

图5给出了 y 方向(垂直热流方向)尺寸 d 和镜反射因子 F 变化时 x 方向有效导热率的变化.可以发现,随着 d 的减小,对所有镜反射因子,有效导热率都迅速下降.当上下边界尺寸 d 不变时,增大上下边界面的镜反射因子,材料的有效导热率提高.这是因为,当声子遇到边界时,材料上下边界的镜反射因子高时能促进声子传输,当镜反射因子降低时,声子传输受到阻碍,降低了有效导热率.

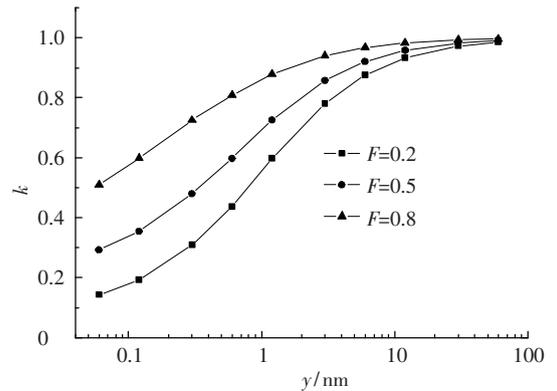


图5 镜反射因子 F 对有效导热率的影响

根据波动理论,声子在界面处的散射行为由声子的波长和界面粗糙度决定.当声子波长远大于界面粗糙度时,发生镜反射;当声子波长远小于界面粗糙度时,发生漫反射.国内外学者对 Kapitza 热阻(界面接触热阻)的研究发现,界面粗糙度是影响 Kapitza 热阻的关键因素.从以上声子与界面作用的模拟结果来看,当界面相对粗糙时,由于漫反射对边界声子能量的重新分配,导致越来越多的声子被散射回去,从而增强了界面热阻,阻碍了能量的输运.因此,对于电子器件内需要提高导热率,增强散热的情况,可采用降低界面的粗糙度的方法;而隔热材料也可通过提高界面的粗糙度降低导热率.

3 结 论

本文通过采用格子波尔兹曼法模拟二维矩形结构二氧化硅材料内的声子热输运,分析了纳米尺度二氧化硅材料有效导热率的尺寸效应和界面效应.得出以下结论:

1) 边界为镜反射时无界面效应,漫反射时界面效应存在.

2) 绝热边界漫反射时,随着垂直热流方向尺寸 d 的增大,有效导热率增大.当尺寸 d 增大到 60 nm 后,界面效应消失,导热率与 d 无关.

3) 边界尺寸不变时,减小边界处的镜反射因子,材料的有效导热率降低.也就是说,边界的粗糙程度是影响材料有效导热率的重要因素.提高材料边界的粗糙度,材料的有效导热率降低.

参考文献

- [1] LADRY E S, MCGAUGHEY A J H. Effect of film thickness on the thermal resistance of confined semiconductor thin films [J]. *Journal of Applied Physics*, 2010, 107(1): 013521.
- [2] NICHOLAS L, CHARIKLIA L. Nanoengineering Strong Silica Aerogels [J]. *Nanoletters*, 2002, 2(9): 957 - 960.
- [3] RIGACCI A, ACHARD P, EHRBURQER-DOLLE F, *et al.* Structural investigation in monolithic silica aerogels and thermal properties [J]. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 1998, 225(Apr II): 260 - 265.
- [4] 高庆福,张长瑞,冯坚,等. 氧化铝气凝胶复合材料的制备与隔热性能[J]. *国防科技大学学报*, 2008, 30(4): 39 - 42.
- [5] MAZUMDER S, MAJUMDAR A. Monte carlo study of phonon transport in solid thin films including dispersion and polarization [J]. *Journal of Heat Transfer*, 2001, 123(4): 749 - 759.
- [6] 冯晓利,李志信,过增元,电介质薄膜导热系数的尺寸效应[J]. *清华大学学报:自然科学版*, 2001, 41(8): 83 - 86.
- [7] LU X, CHU J H. Phonon heat transport in silicon nanowires [J]. *European Physical Journal B*, 2002, 26(1): 375 - 378.
- [8] 王赞,陈云飞,贺赞晖,等. 基于蒙特卡洛法的硅纳米线热导率研究[J]. *东南大学学报:自然科学版*, 2009, 39(2): 245 - 249.
- [9] 王赞,赵睿杰,陈云飞,变截面纳米线声子输运蒙特卡洛模拟[J]. *中国科学:技术科学*, 2010, 40(3): 231 - 236.
- [10] RODRIGO E, BRIAN S, CRISTINA A. Lattice boltzmann modeling of subcontinuum energy transport in crystalline and amorphous microelectronic devices [J]. *Journal of Electronic Packaging*, 2006, 128(2): 115 - 124.
- [11] LACROIX D, JOULAIN K, LEMONNIER D. Monte Carlo transient phonon transport in silicon and germanium at nanoscales [J]. *Physical Review B*, 2005, 72: 064305.
- [12] HUANG Meijiau, WENG Chieuchou, CHANG Taiming. An investigation of the phonon properties of silicon nanowires [J]. *International Journal of Thermal Sciences*, 2010, 49(7): 1095 - 1102.
- [13] 韩亚芬,夏新林,戴贵龙. 纳米 SiO₂ 材料声子热输运的格子波尔兹曼法模拟[J]. *工程热物理学报*, 2011, 32(9): 1575 - 1578.

(编辑 杨 波)