

硅纳米薄膜中声子弹道扩散导热的蒙特卡罗模拟*

华钰超 董源 曹炳阳†

(清华大学工程力学系, 热科学与动力工程教育部重点实验室, 北京 100084)

(2013年5月23日收到; 2013年9月20日收到修改稿)

通过建立声子散射概率函数描述声子在输运过程中的散射, 提出了一种模拟声子弹道扩散导热的蒙特卡罗方法, 并将其应用于硅纳米薄膜中的稳态和瞬态弹道扩散导热过程的研究. 提出的蒙特卡罗方法对边界发射的声子束进行跟踪, 根据散射概率函数模拟声子束在传播区域内经历的散射过程, 并通过统计声子束的分布得到温度分布. 稳态导热过程的模拟发现, 尺寸效应会引起边界温度跳跃, 其值随着 Knudsen 数的增大而增大; 计算的硅纳米薄膜的热导率随着厚度的增大而增大, 与文献中的实验数据和理论模型相符. 通过瞬态导热过程的模拟得到了纳米薄膜内的温度分布随时间的变化, 发现瞬态导热过程中的热波现象与空间尺度相关, 材料尺寸越小, 弹道输运越强, 薄膜中的热波现象也越显著.

关键词: 纳米薄膜, 弹道扩散导热, 蒙特卡罗模拟, 尺寸效应

PACS: 44.10.+i, 05.10.Ln, 66.70.-f

DOI: 10.7498/aps.62.244401

1 引言

近年来, 微电子技术的发展方兴未艾. 一方面电子器件的特征尺寸不断变小, 其制造技术已经达到纳米量级; 另一方面单个芯片的集成度从 20 世纪 50 年代末期开始就基本以每 18 个月一倍的速度增长, 虽然芯片上每个元件的功率很小, 但高集成度会使热流密度达到 10^5 W/cm^2 量级. 要在微米甚至纳米尺度的器件上把如此高的热量带走, 传统的冷却技术和传热关系式已经失效. 然而, 微电子器件的可靠性却又对温度十分敏感, 当器件处在 $70\text{--}80\text{ }^\circ\text{C}$ 时, 温度每增加 $1\text{ }^\circ\text{C}$, 其可靠性会下降 5% ^[1], 可见冷却技术对微电子技术的发展有着至关重要的意义. 因此, 对微纳尺度传热规律的研究已成为国际微电子界和传热界的热点.

在介电材料和一些半导体材料中, 热量传递主要通过晶格振动. 晶格振动可以由二次量子化转化为声子产生、消灭与传播的过程^[2], 所以导热也就相应转化为声子气的输运过程. 一般情况下, 声子在输运过程中受到杂质和其他声子的散射, 从而热

量以扩散的方式输运并服从傅里叶导热定律; 而在纳米尺度的材料中, 由于材料的特征尺度与声子平均自由程相当, 一部分声子将不经历散射过程, 直接从一个边界到达其他边界, 这些声子的输运过程称为弹道输运. 微纳尺度下的导热不再服从傅里叶导热定律. 这一导热过程称作弹道扩散导热, 需要用声子玻尔兹曼方程来进行描述.

对于弹道扩散导热的研究方法可以分为解析和数值模拟两大类. 在解析方法研究方面, Joshih 和 Majumdar^[3] 由线性声子玻尔兹曼方程得到了声子辐射方程; Chen^[4] 将声子密度分布函数分为扩散输运部分和弹道输运部分, 由线性声子玻尔兹曼方程得到了一个弹道扩散导热方程; Alvareza 和 Jou^[5] 以非平衡热力学为基础对 Cattaneo-Vernotte (CV) 方程的边界条件及热导率做出修正, 以此描述弹道扩散导热过程; Dong 等^[6] 从热质理论出发, 考虑了热的惯性效应, 得到了普适导热方程. 对弹道扩散导热的数值模拟方法主要有三种: 分子动力学模拟^[7,8]、格子玻尔兹曼方程^[9]、蒙特卡罗模拟^[10-15]. 分子动力学模拟的对象是原子或者分子, 对大量粒子的运动进行模拟, 然后通过统计分析就可以得到

* 国家自然科学基金(批准号: 51322603, 51321002, 51136001)、新世纪优秀人才支持计划和清华大学自主科研计划资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: caoby@tsinghua.edu.cn

材料的宏观热学信息, 分子动力学模拟的计算量巨大, 模拟对象的尺寸受到限制; 格子玻尔兹曼方程对于复杂几何边界的适应性差; 蒙特卡罗方法追踪大量声子的运动, 通过统计得到声子的分布函数, 从而获得材料的宏观热学信息. 基于声子玻尔兹曼方程的解析方法与蒙特卡罗数值模拟方法相比, 解析方法往往需对玻尔兹曼方程进行简化, 而且仅对于一些简单的边界和初值条件才可以得到与实验值接近的结果. 相比解析方法, 蒙特卡罗方法相当于给出了玻尔兹曼方程的离散化数值解, 更适于定量研究声子散射对弹道运输过程的影响. 与分子动力学模拟和格子玻尔兹曼方程相比, 蒙特卡罗方法易于处理复杂的几何边界及瞬态运输的问题, 而且模拟过程中可以区分声子不同的散射过程, 从而能够定量地研究各种散射过程对宏观导热的影响.

在蒙特卡罗方法模拟弹道扩散导热的过程中, 声子束的追踪方式可以分为两种. 第一种类似于辐射传热计算中的能束跟踪法^[16], 对从边界发射的声子束进行跟踪, 通过对声子束分布的统计得到宏观结果. Klitsner 等^[10]用此种追踪方式的蒙特卡罗方法模拟了低温下硅体材料中的完全弹道导热, 得到了完全弹道导热时的温度分布, 讨论了低温下试样夹持器件对热导率测量值的影响. 第二种方法类似于稀薄气体中用于求解玻尔兹曼方程的直接蒙特卡罗模拟^[11-15]. 首先根据控制单元的初始温度由普朗克分布函数计算出单元中的声子数, 并通过随机数取样赋予声子波矢等性质, 然后根据已建立的概率模型函数, 由随机数取样改变控制体中的声子的位置和性质, 从而得到控制体内新的声子分布, 重复上述过程直到得到稳定结果. Peterson^[11]在声子直接蒙特卡罗模拟中使用了德拜理论的方法处理声子的色散关系和态密度函数; Chen 等^[12,13]则做出了更为细致的处理, 在模拟过程中考虑了具体材料的色散关系及不同声子分支的影响; Jeng 等^[14]在模拟中使用了灰体近似并引入了周期性边界条件; Lacroix 等^[15]利用声子直接蒙特卡罗法模拟了纳米线中的稳态及瞬态声子运输过程. 两种声子追踪方式相比, 第一种方法有较小的计算量, 同时对于复杂几何边界的处理优于第二种, 但是第一种追踪方法目前仅被用来模拟完全弹道导热过程, 应用范围远小于第二种.

本文的模拟采用第一种声子追踪方法研究硅纳米薄膜中弹道扩散导热过程. 由于模拟的温度范围的变化, 与 Klitsner 等^[10]明显不同的是声子在硅

纳米薄膜中不再是完全弹道运输, 必须考虑散射对导热的影响^[17]. 本文建立了一个散射概率函数模拟声子在薄膜中运输时受到的散射. 通过模拟发现, 在稳态弹道扩散导热过程中, 尺寸效应的作用将会引起边界温度跳跃, 其值随着 Knudsen 数 (Kn) 的增大而增大. 计算的硅纳米薄膜热导率随着厚度的增加而增加. 通过瞬态弹道扩散导热的模拟发现, 热波现象与空间尺度相关, 随着尺寸的减小, 弹道运输的增强将使得薄膜中的热波现象更显著.

2 模拟方法

2.1 灰体近似和弹性波近似

灰体近似是指假设声子的性质与频率无关, 具体的处理方法是声子与频率相关的性质, 如频率、群速度等在频率空间中积分以后求平均值, 这样声子的平均性质就只与温度有关^[11]. 以灰体近似下的平均群速度 v_{gav} 计算为例:

$$v_{\text{gav}} = \frac{\sum_p \int_0^{\omega_{\text{mp}}} \frac{\partial \omega}{\partial q} n_{\omega} D_{\omega} d\omega}{N_{\text{ph}}}, \quad (1)$$

式中, ω 表示角频率; q 表示波矢; p 表示声子的分支, 考虑的光学声子对导热的贡献远小于三支声学声子, 所以计算中只计算两支横波声学声子和一支纵波声学声子; n_{ω} 表示声子的分布函数

$$n_{\omega} = 1 / \left[e^{\left(\frac{\hbar \omega}{k_{\text{B}} T} \right)} - 1 \right];$$

其中 $\hbar = 1.055 \times 10^{-34}$ J·s, $k_{\text{B}} = 1.381 \times 10^{-23}$ J/K; N_{ph} 表示总的声子数 $N_{\text{ph}} = \sum n_{\omega}$; D_{ω} 是态密度函数. 本次模拟使用德拜模型中的态密度函数 $D_{\omega} = V \omega^2 / (2\pi^2 v^3)$, 其中 V 为材料体积. 代入以上的公式, (1) 式就可以被表示为

$$v_{\text{gav}} = \frac{\int_0^{\omega_{\text{D}}} \frac{V \omega^2}{2\pi^2 v^3} \frac{\partial \omega}{\partial q} d\omega}{N_{\text{ph}}}, \quad (2)$$

其中 ω_{D} 为德拜频率, $\omega_{\text{D}} = \bar{v} [6\pi^2 (N/V)]^{1/3}$ ^[18], 式中 N 为原子总数.

通过灰体近似可以求出一定温度下的声子平均群速度 v_{gav} , 进一步可以通过此温度下的体材料热导率算出平均自由程 l_{av} ^[13]:

$$l_{\text{av}} = \frac{3k_{\text{b}}}{C_{\text{v}} v_{\text{gav}}}, \quad (3)$$

其中 k_b 为体材料热导率, C_v 为定容比热用德拜比热模型^[18] 计算.

色散关系描述了声子角频率 ω 与波矢 q 之间的关系. 在本文计算中我们借鉴德拜理论中的处理方法, 把晶格当作弹性介质来处理^[18]. 对于波矢 q , 有线性的色散关系

$$\omega = v_{\text{gav}} q, \quad (4)$$

其中 v_{gav} 为横波和纵波的平均群速度. 文献 [18] 采用这样的近似处理方式, 较准确地计算了当温度低于德拜温度时介电材料的比热.

2.2 能量密度与温度

通过蒙特卡罗方法对声子束进行跟踪, 可以得到声子束在薄膜内的分布, 但要得到温度分布, 还需要建立声子束分布与温度的关系式. 对于一个等温的黑体边界, 半球发射的声子能量流为

$$E = \frac{\pi}{3} \int_0^{\omega_D} v_{\text{gav}} \omega^3 \frac{V \hbar}{2\pi^2 v^3 \left[e^{\left(\frac{\omega \hbar}{k_B T}\right)} - 1 \right]} d\omega, \quad (5)$$

一般情况下 $\bar{v} \approx v_{\text{gav}} \approx v_s$, v_s 为此温度下材料的平均声速. 令 $y = \frac{\omega \hbar}{k_B T}$, 则有

$$E = \left(\frac{N k_B v_s \pi}{\Theta_D^3} \int_0^{\frac{\Theta_D}{T}} \frac{y^3}{e^{(y)} - 1} dy \right) T^4. \quad (6)$$

当材料的温差不大时, 可以令

$$\sigma_{T_0} = \frac{N k_B v_s \pi}{\Theta_D^3} \int_0^{\frac{\Theta_D}{T_0}} \frac{y^3}{e^{(y)} - 1} dy, \quad (7)$$

其中 $T_0 = (T_1 + T_2)/2$, 这样就得到了等温黑体边界半球发射声子能量流与温度的关系

$$E = \sigma_{T_0} T^4. \quad (8)$$

对于内部单元发射能量与温度的关系, 可以用与上面相似的处理方法在全球上积分得到

$$dQ_{e(T)} = 4\varepsilon \sigma_T T^4 dV, \quad (9)$$

其中 ε 为声子发射率, $\varepsilon = l_{\text{av}}^{-1}$.

2.3 发射与散射的概率函数

在蒙特卡罗模拟中, 为了能够通过随机数取样得到声子束的穿透距离和发射方向等信息, 需要相应地符合声子发射规律的概率模型函数. 首先定义每一个声子束的能量 $W = E/N_b$, N_b 是模拟中等温边界上所取声子束数目.

在本文所模拟的导热问题中可以认为在方位角 φ 方向对称, 所以发射方向只需考虑仰角 $d\Omega_\theta = \sin\theta d\theta$. 通过积分分布函数可以建立等温边界声子束发射方向与随机数之间的关系^[9]:

$$\sin\theta = \sqrt{R_\theta}, \quad (10)$$

其中 R_θ 为 0—1 的随机数. 对于纳米薄膜内的单元, 声子束发射方向同样由积分分布函数可以得到发射方向与随机数的关系

$$\cos\theta = 1 - 2R_\theta. \quad (11)$$

弹道扩散导热过程中, 声子在输运时会受到散射. 所以本文建立了如下的声子散射概率函数来模拟声子输运中受到的散射.

设 P 是一段时期后声子未被散射的概率, 其随着时间的变化可以表示为

$$\frac{\partial P}{\partial t} = -\frac{P}{\tau}, \quad (12)$$

则在这一段时间内声子被散射的概率 \bar{P} 为

$$\bar{P} = 1 - P = 1 - e^{-\frac{t}{\tau}}, \quad (13)$$

可以化为和声子传播距离有关的函数

$$\bar{P} = 1 - \exp\left(-\frac{\Delta t v_{\text{gav}}}{\tau v_{\text{gav}}}\right) = 1 - e^{-\frac{l}{l_{\text{av}}}}, \quad (14)$$

进行无量纲化 $\bar{l} = l/D$, 其中 D 为计算问题的特征尺度,

$$\bar{P} = 1 - e^{-\left(\frac{\bar{l}}{Kn}\right)}, \quad (15)$$

其中 $Kn = l_{\text{av}}/D$. 由上面得到的声子散射概率公式, 产生 0—1 的随机数 R_l , 令 $R_l = \bar{P}$, 易得到

$$\bar{l} = -Kn \ln(1 - R_l). \quad (16)$$

由于随机数 R_l 在 0 到 1 之间均匀分布, 所以也可以表示为 $\bar{l} = -Kn \ln(R_l)$. 其所给出的声子束穿透距离受到散射作用的控制, 所以可以记作散射穿透距离 \bar{l}_s .

在模拟瞬态问题时, 在一个时间步长内声子未受到散射时, 声子束的无量纲穿透距离称为弹道穿透距离 \bar{l}_b 为

$$\bar{l}_b = R_t v_{\text{gav}} \Delta t / D. \quad (17)$$

模拟声子瞬态输运的过程中, 判断在一个时间步长内, 某一声子是否被散射, 可以通过比较 \bar{l}_s 与 \bar{l}_b 来实现. 当 $\bar{l}_b < \bar{l}_s$ 时, 则该声子束在此时间段内

没有受到散射,在下一时刻仍然保持上一时刻的方向和性质传播;反之声子束就受到散射,需要从被散射位置重新发射.

2.4 模拟对象及参数

表 1 给出了室温的单晶硅材料的物性,由 (3) 式估计硅材料的声子散射平均自由程,图 1 为硅纳米薄膜中的弹道扩散导热的声子输运示意图.硅纳米薄膜的厚度为 D ,声子束从等温边界上发射进入硅纳米薄膜内部,在传播过程中发生散射.

表 1 室温 (300 K) 时单晶硅的物性

比热/ $J \cdot kg^{-1}$	热导率/ $W \cdot mK^{-1}$	密度/ $kg \cdot m^{-3}$	声速/ $m \cdot s^{-1}$	平均自由程/ nm
690	150	2330	6400	43.7

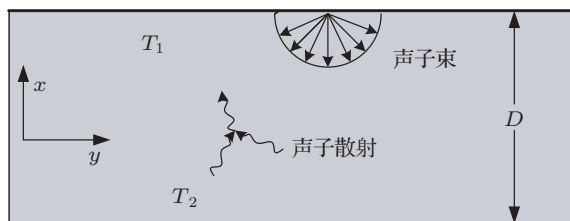


图 1 硅纳米薄膜弹道扩散导热声子输运模拟

对于稳态弹道扩散导热的模拟过程,分别从两个等温边界 $T_1 = 305 K$ 和 $T_2 = 295 K$ 发射 N_0 个声子束,逐一追踪声子束,并依据概率模型通过随机数取样得到声子束在输运过程中的发射方向、被散射位置等信息,对这些信息进行统计得到纳米薄膜中的声子密度分布,从而得到薄膜内的能量密度分布,最后根据能量密度与温度的关系就可以得到温度分布.同时根据两个等温边界之间的温差 $(T_1 - T_2)$ 以及模拟得到的热流密度 q ,计算硅纳米薄膜的热导率 $k = Dq / (T_1 - T_2)$.

对于瞬态模拟的过程,在初始时刻纳米薄膜保持 $T_0 = 300 K$ 温度,从初始时刻开始,薄膜一侧与温度 $T_1 = 305 K$ 边界接触并保持不变.从高温 T_1 边界发射声子束,在时间步长 dt 内进行追踪,一共进行 50 个时间步长的追踪;最后通过统计得到温度分布.同时为了更进一步地研究热波与弹道运输之间的关系,改变瞬态模拟中的 Kn ,对不同 Kn 的热波温度分布进行对比.本文模拟了 Kn 为 0.1, 0.3 和 1.0 的瞬态弹道扩散导热过程.

3 模拟结果与分析

3.1 硅纳米薄膜中稳态弹道扩散导热

图 2 为硅纳米薄中膜稳态弹道扩散导热的温度分布,其表现出了以下的特点.出现边界温度跳跃,纳米薄膜内部温度随着位置线性变化,这与 Lacroix 等 [15] 和 Klitsner 等 [10] 通过蒙特卡罗以及 Joshi 和 Majumdar [3] 由求解声子辐射方程得到的温度分布的规律相同.由于弹道运输,一部分声子将直接从纳米薄膜的一个等温边界到达另一个等温边界,其不经历中间的散射过程,从而不产生温度梯度,这是造成边界温度跳跃的原因.从图 2 中还可以看到,边界温度跳跃随着 Kn 的增大而增加,因为随着 Kn 增大,由 (15) 式声子的散射概率不断减小,薄膜中通过弹道运输的声子不断增加.当 $Kn = 0$ 时,弹道扩散导热退化为扩散导热,温度分布完全服从傅里叶导热定律,边界温度跳跃为 0,热流密度与温度梯度成正比;随着 Kn 增大,弹道运输增强,薄膜的温度分布不断变得平缓,当 $Kn \rightarrow \infty$ 时,弹道运输将控制整个纳米薄膜中的导热过程,温度分布变为一条平行于横轴的直线,温度梯度为 0,此时薄膜内温度变为 $T_{ballistic}$,边界温度跳跃达到最大值,与此同时热流密度也只和两个边界的温差有关,这样的情况就称为 Casimir 极限 [3],此时有

$$T_{ballistic} = [(T_1^4 + T_2^4) / 2]^{1/4},$$

$$q_{ballistic} = \sigma(T_1^4 - T_2^4).$$

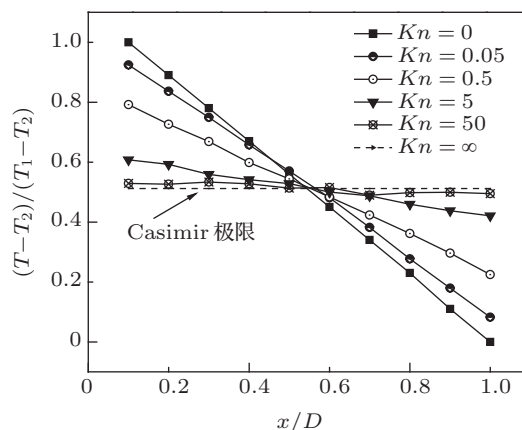


图 2 硅纳米薄膜内稳态温度分布

图 3 为纳米薄膜的热导率随着厚度的变化.与体材料热导率作为材料物性而与尺寸无关不同,对于硅纳米薄膜,由于厚度与声子平均自由程相当,

弹道运输的作用显著, 热导率表现出了明显的尺寸效应. 纳米薄膜的热导率随着厚度的增加而增加, 与此同时热导率随着厚度变化的斜率却在减小, 薄膜热导率逐渐趋近于体材料的热导率. 将模拟结果与文献中的实验数据比较, 可以看到在 $D < 50 \text{ nm}$ 的范围内, 模拟值比试验值大, 随着薄膜厚度的增大, 模拟值与实验值相当.

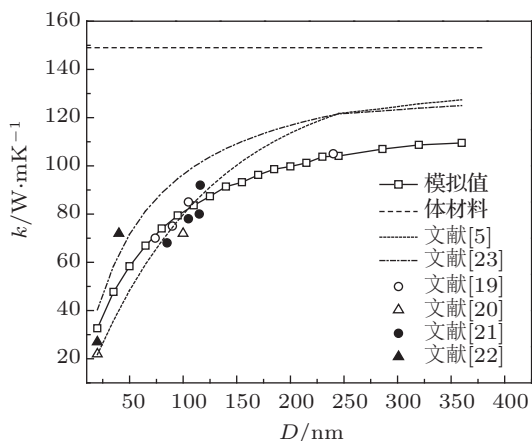


图3 硅纳米薄膜热导率随厚度的变化

与 Majumdar^[23] 的灰体介质模型 $k = k_b / (1 + Kn/\alpha)$ (其中 α 为形状修正因子, 在薄膜中 $\alpha = 4/3$), 以及 Alvareza 和 Jou^[5] 的模型

$$k = \frac{k_b}{2\pi^2 Kn^2} (\sqrt{1 + 4\pi^2 Kn^2} - 1)$$

进行比较, 可以看到两个模型计算的热导率随着薄膜厚度变化的规律与模拟结果相符合. Majumdar^[23] 模型计算的值比模拟值大, 这是因为 Majumdar^[23] 模型是由稳态声子玻尔兹曼方程的关于 Kn 的一阶近似得到的, 弹道运输的作用没有完全包含在式中; Alvareza 和 Jou^[5] 模型在薄膜厚度小于 100 nm 时计算值比模拟值小, 厚度大于 100 nm 时则又比模拟值大, 在厚度大于 200 nm 后会比 Majumdar^[23] 模型计算值还大.

纳米薄膜热导率随着厚度变化的规律可以用 (18) 式来表示:

$$k \propto D^\beta, \quad (18)$$

其中 β 表示弹道运输与扩散运输相对强度的大小^[24,25], 一般情况下 $\beta \in 0-1$. $\beta = 0$ 时, 声子扩散运输, 材料热导率与尺度无关, 例如常温下的体材料; $0 < \beta < 1$ 时, 此时材料的尺寸与声子平均自由程相当, 声子兼有弹道运输和扩散运输; $\beta = 1$, 此时声子平均自由程远远大于材料尺寸, 声子为完全

弹道运输, 材料的热导率随着尺度线性变化, 例如理想的一维简谐晶体^[26]. Li 和 Wang^[24] 研究发现描述热导率随特征长度变化的参数 β 和体系中粒子能量传播距离的均方差与时间关系的指数 α 存在着关系, $\beta = 1 - \alpha/2$. Yang 等^[25] 通过分子动力学模拟的方法验证上述关系式的正确性, 表明 β 值反映了体系中能量的运输方式. 图4对模拟得到的热导率随薄膜厚度变化的曲线进行了分段拟合, 分析在不同的厚度范围内弹道运输与扩散运输的相对强度的大小, 可以看到随着厚度的增加, Kn 减小, β 不断变小, 这意味着在薄膜中声子弹道运输的强度与扩散运输相比在不断减弱. 当 $Kn \ll 1$ 时, 扩散运输将控制导热过程, 此时 $\beta \rightarrow 0$ 热导率将不随厚度变化; 当 $Kn \gg 1$ 时, 薄膜中的导热将由弹道运输控制, 声子的散射来自边界, 此时 $\beta \rightarrow 1$ 热导率随薄膜厚度的增加而线性增加.

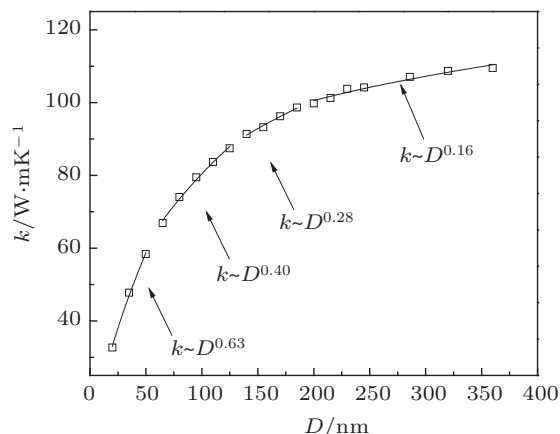


图4 热导率随着薄膜厚度变化的分段拟合

图5给出了纳米薄膜热导率随温度的变化. 可以看到, 当温度大于 150 K 时, 硅纳米薄膜的热导率随着温度的增高而变小, 不同厚度的纳米薄膜的热导率随温度变化的趋势与体材料的相同. 热导率随温度的变化受到两个因素的影响: 一个是材料的比热随着温度不同而不同, 体材料的热导率与比热成正比, 微纳尺寸材料的热导率和比热的关系与体材料相近, 当材料温度远低于德拜温度 Θ_D 时, 比热与温度的三次方成正比, 随着温度的升高比热的增加趋势逐渐减缓; 另一方面是声子平均自由程随温度的变化, 当温度大于 150 K 时, 主要考虑声子 U 散射过程的平均自由程 $l_{av} \propto e^{\gamma\Theta_D/T}$ ^[27], 其中 γ 是调节参数, 散射自由程随着温度指数衰减. 在温度大于 150 K 的范围内, 硅的比热随着温

度的增加趋势比散射自由程随温度的衰减趋势弱, 所以硅的热导率在此温度范围内随着温度的减小而减小. 受到尺寸效应的影 响, 在同一个温度下, $k_b > k_{0.83 \mu\text{m}} > k_{0.42 \mu\text{m}}$, 而三者之间的差距随着温度的增大而不断减小, 这是因为随着温度增大, 散射自由程快速衰减到一个小值, 此时硅纳米薄膜的 $Kn \ll 1$, 无论是在 $0.83 \mu\text{m}$ 还是 $0.42 \mu\text{m}$ 的硅纳米薄膜中, 扩散输运都成为了导热过程的主导, 两者的热导率都将接近体材料的热导率.

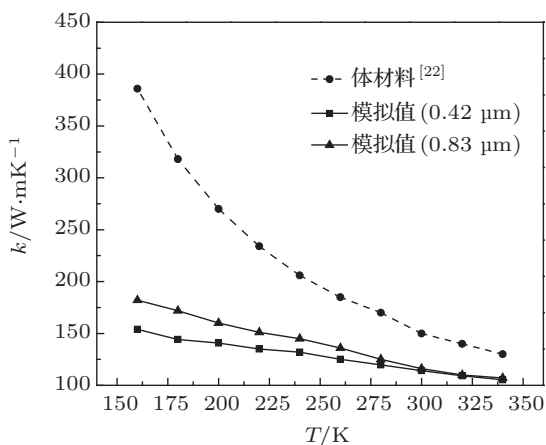


图 5 热导率随温度的变化

3.2 硅纳米薄膜中瞬态弹道扩散导热

图 6 为瞬态模拟中不同时刻的温度分布, 可以看到由于弹道输运的作用, 与稳态导热相似, 边界出现了温度跳跃; 随着时间的推移, 薄膜内温度分布逐渐接近线性分布, 同时边界温度跳跃也在不断变小, 在 45 ps 时温度分布已经十分接近稳态弹道扩散导热. 受到声子群速度限制, 边界的温度激励并不能瞬时到达另一侧, 而是随着时间推移逐渐影响到整个薄膜, 这与 Joshi 和 Majumdar^[3] 以及 Chen^[4] 在边界施加阶跃温度激励后所得到的温度分布是符合的, 这种导热现象称作热波 (heat wave)^[3]. 基于傅里叶导热定律 $q = -k\nabla T$ 的瞬态温度方程是一个抛物线扩散方程, $\partial T / \partial t = a\Delta T$ (a 为热扩散率), 将会得到热扰动传播速度无穷大的非物理的结果. 在快速导热过程中, 例如激光脉冲加热, 傅里叶导热定律不再适用. Cattaneo 和 Vernotte 对傅里叶导热定律进行弛豫修正, $q + \tau\partial q / \partial t = -k\nabla T$, 通过这样的修正, 瞬态导热过程中的温度控制方程就是一个有阻尼项的双曲波动方程——CV 方程, $\tau\partial^2 T / \partial t^2 + \partial T / \partial t = a\Delta T$

(τ 为弛豫时间); 但 CV 方程存在着问题, 比如在处理热波叠加的问题时会出现“负绝对温度”这一不符合物理真实的结果^[28]. 此后, 又有许多人提出了自己的方程式描述热波现象, 如 Chen^[4] 提出的弹道扩散方程 $\tau\partial^2 T / \partial t^2 + \partial T / \partial t = a\Delta T - \nabla \cdot q_b$ (其中 q_b 为弹道热流), 力图将弹道输运和热波包含在一个方程组中; Naqvi 和 Waldenstrom^[29] 根据 Fokker-Plank 方程得到一个热导率随时间变化的模型 $\partial T / \partial t = (1 - e^{-t/\tau})\Delta T$; Alvarez 和 Jou^[5,30] 根据非平衡热力学得到 $(1/4)\partial^2 T / \partial t^2 + \partial T / \partial t = (Kn^2/3)\Delta T$. 文献 [6, 31] 使用热质的概念来研究瞬态导热问题, 得到 $\frac{\tau}{k} \frac{\partial q}{\partial t} + 2 \frac{l_{av}}{k} \frac{\partial q}{\partial x} - b \frac{\partial T}{\partial x} + \frac{\partial T}{\partial x} + \frac{q}{k} = 0$ (其中 b 为热质的漂移速度与热波速度之比). 各种模型从不同的角度出发, 得到了形式各异的方程, 但是都缺乏对弹道输运与热波之间关系的探讨. 在图 6 中还可以看到, 本文模拟得到的热波图像在波前位置的温度变化曲线是光滑的, 这与 CV 方程得到的温度曲线在波前位置会出现一个突然的温度变化有很大的不同. 包括 Chen^[4], Naqvi 等^[28] 和文献 [5, 31] 理论模型求解结果中也并未在波前位置出现温度突变, 数值计算中 Joshi 和 Majumdar^[3] 对声子辐射方程的求解和 Lacroix 等^[15] 的声子直接蒙特卡罗模拟也是如此. 值得注意的是, Chen^[4] 的弹道扩散方程以及 Joshi 和 Majumdar^[3] 的声子辐射方程都可以从线性声子玻尔兹曼方程推导出来, 瞬态计算结果的这种差别还需要进一步深入探讨.

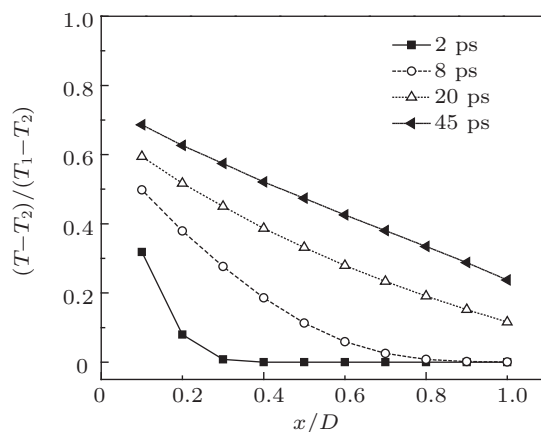


图 6 薄膜内温度分布随时间的变化 ($Kn = 1$)

图 7 是薄膜内三个不同位置处温度随时间的变化. 因为热波传播速度有限, 三个位置都不会在初始时刻就受到边界温度激励的影响. 计算得到波前传播速度 $v_{wf} \cong 6400 \text{ m/s}$ 与模拟中的声速 v_s 相

同, 与通常认为的热波传播速度为 $v_s/\sqrt{3}$ 不符. 这是因为 $v_s/\sqrt{3}$ 是热波波包的传播速度, 而本文中计算的波前速度应与模拟中的声子群速 6400 m/s 相同. Ackerman 等^[32] 在固体氦边界受到温度激励的实验中测到了与图 7 相近的温度分布.

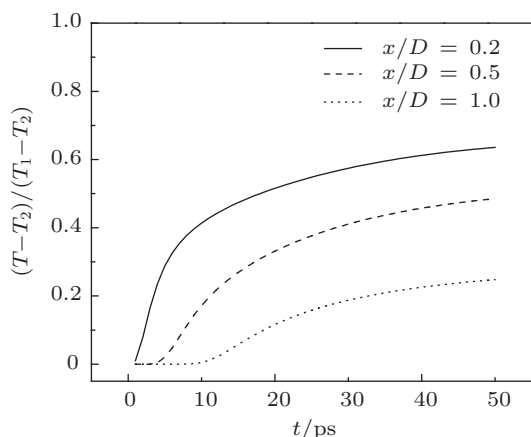


图 7 薄膜内不同位置处温度随时间的变化 ($Kn = 1$)

图 8 比较了不同 Kn 的纳米薄膜在同一时刻的温度分布. 可以看到 Kn 越大, 热波在薄膜中的影响范围就越大. 当 $Kn = 0.1$ 时温度激励的影响到达 $x/D = 0.3$ 的位置, $Kn = 0.3$ 时温度激励的影响到达 $x/D = 0.5$ 的位置, $Kn = 1.0$ 时温度激励的影响则覆盖了整个薄膜. 由于在模拟中声子的群速度不随 Kn 改变, 当 Kn 变小, 薄膜的厚度增大, 热波在薄膜中的影响范围就会减小. 同时发现在所模拟的时刻 ($t = 20$ ps), 在 Kn 较大的薄膜中, 边界温度跳跃的值反而较小. 这与稳态导热中边界温度跳跃随着 Kn 的减小而减小并不矛盾. 因为在瞬态导热中, Kn 越小, 温度激励的影响范围就越小, 导热过程达到稳定所需要的时间越长, $t = 20$ ps 时, 与 $Kn = 1.0$ 的薄膜相比, $Kn = 0.1$ 和 $Kn = 0.3$ 的薄膜中的温度分布都还远偏离稳定状态, 同时在小 Kn 的薄膜中, 边界温度跳跃的值随时间衰减的速度更快, 到达稳态时, Kn 较小的薄膜的边界温度跳跃会变得更小.

如图 9 所示, 在不同 Kn 的薄膜内, $x/D = 0.5$ 处的温度随着时间的变化. 在 50 ps 时, $Kn = 1.0$ 的薄膜中温度随着时间的变化渐渐趋于稳定, $Kn = 0.3$ 的薄膜在 $x/D = 0.5$ 处开始受到边界温度激励的影响, $Kn = 0.1$ 的薄膜在 $x/D = 0.5$ 处尚未“感受”到边界的温度激励. 可以更直接地看到, 薄膜中的瞬态导热过程达到稳定所需时间随着 Kn 的减小而增大. 当 Kn 变大, 微空间尺度上的弹道输运用增

强, 薄膜中的热波现象变得更为显著; 当 Kn 无穷大, 在一个瞬态的完全弹道导热过程中, 将在薄膜中观察到无衰减的热波, 反之当 Kn 趋近于 0 时, 导热过程由扩散输运控制从而满足傅里叶导热定律, 在薄膜就不会观察到热波现象.

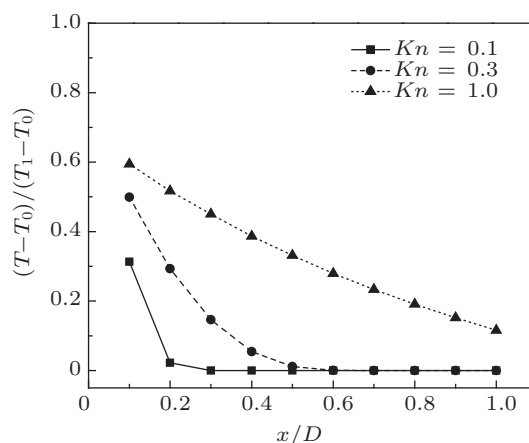


图 8 薄膜内温度分布 ($t = 20$ ps)

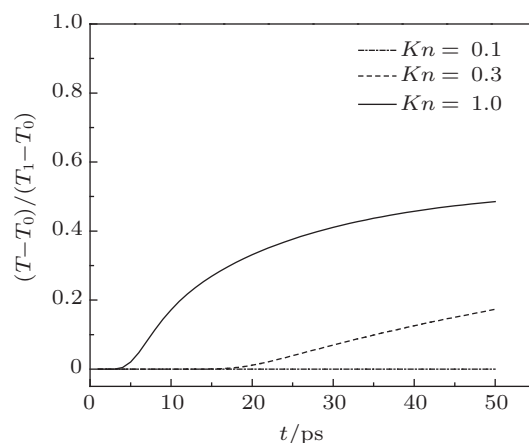


图 9 薄膜内某一位置温度随时间的变化 ($x/D = 0.5$)

4 结论

1) 本文通过建立散射概率函数描述声子输运中的散射过程, 提出了一种模拟弹道扩散导热的蒙特卡罗方法. 该方法对边界发射的声子束进行跟踪, 声子束的散射通过根据散射概率函数的随机抽样过程模拟, 并由统计声子束分布获得薄膜内的能量密度分布, 进而由能量密度与温度的关系式得到温度分布. 采用该方法成功模拟了硅纳米薄膜中的稳态和瞬态弹道扩散导热.

2) 通过硅纳米薄膜中的稳态导热模拟发现, 弹道输运会引起显著的边界温度跳跃, 其值随着 Kn

的增大而增大; 计算的硅纳米薄膜热导率随着厚度的增大而增大, 与此同时热导率随薄膜厚度增大的速率减小, 反映了薄膜厚度很小时, 导热为弹道输运传导, 而厚度很大时, 导热为扩散输运传导; 模拟得到的热导率与文献中实验值和理论模型符合, 验证了使用该方法模拟弹道扩散导热的可靠性.

3) 通过硅纳米薄膜中的瞬态导热模拟发现, 边

界处存在温度跳跃, 并且随着时间的推移而减小; 边界温度激励的波前传播速度为声速, 在瞬态弹道扩散导热过程中出现热波现象; 微空间尺度上的弹道输运与微时间尺度上的热波现象之间存在联系, 当 Kn 增大, 弹道输运的增强导致热波现象更为显著.

- [1] Flik M, Choi B I, Goodson K E 1992 *J. Heat Trans. T. Asme* **114** 666
- [2] Ziman J M 1968 *Electrons and Phonons* (Oxford: Oxford University Press) p15
- [3] Joshi A A, Majumdar A 1993 *J. Appl. Phys. Lett.* **74** 31
- [4] Chen G 2000 *Phys. Rev. Lett.* **86** 2297
- [5] Alvarez F X, Jou D 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 083109
- [6] Dong Y, Cao B Y, Guo Z Y 2011 *J. Appl. Phys.* **110** 063504
- [7] Ye Z Q, Cao B Y, Guo Z Y 2014 *Carbon* **66** 567
- [8] Wu G Q, Kong X R, Sun Z W, Wang Y H 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 1 (in Chinese) [吴国强, 孔宪仁, 孙兆伟, 王亚辉 2006 物理学报 **55** 1]
- [9] Jiaung W S, Ho J R 2008 *Phys. Rev. E* **77** 066710
- [10] Klitsner T, van Cleve J E, Fischer H E, Pohl R O 1988 *Phys. Rev. B* **38** 7576
- [11] Peterson R B 1994 *J. Heat Trans.-T ASME* **116** 815
- [12] Chen Y F, Li D Y, Lukes J R, Majumdar A 2005 *J. Heat Trans. T. Asme* **127** 1129
- [13] Wang Z, Zhao R J, Chen Y F 2010 *Sci. China Tech. Sci.* **53** 429
- [14] Jeng M S, Yang R G, Song D, Chen G 2008 *J. Heat Trans. T. Asme* **130** 042410
- [15] Lacroix D, Joulain K, Lemonnier D 2005 *Phys. Rev. B* **72** 064305
- [16] Siegel R, Howell J R 1992 *Thermal Radiation Heat Transfer* (Washington, D.C.: Hemisphere Publish Corporation)
- [17] Cao B Y, Kong J, Xu Y, Yung K L, Cai A 2013 *Heat Transfer Eng.* **34** 2131
- [18] Huang K (adapted by Han R Q) 1988 *Solid Physics* (Beijing: High Education Press) pp122-133 (in Chinese) [黄昆原著, (韩汝琦改编) 1988 固体物理 (北京: 高等教育出版社) 第 122—133 页]
- [19] Ju Y S, Goodson K E 1999 *Appl. Phys. Lett.* **74** 3005
- [20] Liu W, Asheghi M 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 3819
- [21] Asheghi M, Leung Y K, Wong S S, Goodson K E 1997 *Appl. Phys. Lett.* **71** 1798
- [22] Ju Y S, Kurabayashi K, Goodson K E 1999 *Thin Solid Films* **339** 160
- [23] Majumdar A 1993 *J. Heat Trans. T. Asme* **115** 7
- [24] Li B W, Wang J 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 044301
- [25] Yang N, Zhang C, Li B W 2010 *Nano Today* **5** 85
- [26] Rieder Z, Lebowitz J L, Lieb E 1967 *J. Math. Phys.* **8** 1073
- [27] Bruesch P 1982 *Phonons: Theory and Experiment* (Vol.3) (Berlin: Springer-Verlag, Berlin Heidelberg)
- [28] Körner C, Bergmann H W 1998 *Appl. Phys. A* **67** 397
- [29] Naqvi K R, Waldenstrom S 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 065901
- [30] Alvarez F X, Jou D 2010 *J. Heat Trans. T. Asme* **132** 012404
- [31] Cao B Y, Guo Z Y 2007 *J. Appl. Phys.* **102** 53503
- [32] Ackerman C C, Bertman B, Fairbank H A, Guyer R A 1966 *Phys. Rev. Lett.* **16** 789

Monte Carlo simulation of phonon ballistic diffusive heat conduction in silicon nanofilm*

Hua Yu-Chao Dong Yuan Cao Bing-Yang[†]

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

(Received 23 May 2013; revised manuscript received 20 September 2013)

Abstract

A Monte Carlo (MC) method is proposed by establishing a new model of phonon scattering processes with random sampling according to a scattering probability function. The MC scheme is used to simulate steady and transient ballistic-diffusive heat conduction in silicon nanofilm. In the MC simulations, we trace the phonon bundles that emit into media from the boundaries, and obtain the temperature profiles through statistics of the distribution of phonon bundles. It is found that the size effect of phonon transport leads to a boundary temperature jump which increases with the Knudsen number increasing. The thermal conductivity of the silicon nanofilm is calculated and the results suggest that nanofilm thermal conductivity increases with film thickness increasing, which is in good agreement with the experimental data as well as the results from the theoretical model. The temperature profiles vary with time in the transient simulations, which shows that the heat wave is related to not only time scale but also spatial scale. When the spatial scale becomes smaller, the ballistic transport is more dominant, which leads to stronger heat waves.

Keywords: nanofilm, ballistic-diffusive heat conduction, Monte Carlo simulation, size effect

PACS: 44.10.+i, 05.10.Ln, 66.70.-f

DOI: 10.7498/aps.62.244401

* Project supported by the National Nature Foundation of China (Grant Nos. 51322603, 51321002, 51136001), the Program for New Century Excellent Talents in University, China, and the Initiative Scientific Research Program of Tsinghua University, China.

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