# Méret által kontrollált termikus energiaterjedés vékony szilícium rétegekben

**Gambár Katalin**

Óbudai Egyetem, Kandó Kálmán Villamosmérnöki Kar, Mikroelektronikai és Technológia Intézet, Budapest, Tavaszmező utca 17., Magyarország

gambar.katalin@kvk.uni-obuda.hu

*A nanoeszközök működése szempontjából, pl. hőfejlődés és hűtés, megkérdőjelezhetetlen fontossága van a vékony filmekbeli termikus energiatranszport megértésének. Kísérleti megfigyelések és elméleti megfontolások igazolják, hogy vékony rétegekben a termikus energiaterjedés különbözik a Fourier-törvény által leírttól. Mivel a termikus energiahordozók átlagos szabad úthossza összemérhető a minta méretével – szélességével -, így mind a vezetési tartomány geometriai méretének csökkenése mind a falhatásoknak kifejezett hozzájárulásuk van a transzportfolyamathoz. Statisztikus fizikai vizsgálatok megerősítik, hogy Tzou eredeti* ötletén alapuló Anderson és Tamma által javasolt *kettős fáziskésésű egyenlet a tartománybeli termikus transzport leírására perspektivikus lehet a Fourier-egyenlet helyett. Chen, később Anderson és Tamma, falhatásokra vonatkozó vizsgálatai (fononok szóródása és visszaverődése) javasolják a tehetetlenség és a termikus ellenállás bevételét. a határfelületi egyenletekbe. A fluktuáció-disszipáció elmélet segítségével (a spektrum és a korrelációs függvény kiszámolásával) a jelterjedés módjai kifejthetők a leíró egyenletekből. Ily módon felismerhető, hogy a méret- és falhatások miként változtatják meg a dinamikát. Ez azt jelenti, hogy a terjedés lehet diffúzív vagy ballisztikus attól függően, hogy milyenek a tartomány és a határoló felületet megadó paraméter sereg. A diffúzív és ballisztikus viselkedés között pedig beazonosítható a dinamikaváltás.*

*Keywords:nanoskála, hőtranszport, fluktuáció*-disszipáció elmélet

# 1 Bevezetés

Mind a kísérleti megfigyelések [1-3], mind az numerikus számolási eredmények [4-6] egyaránt az sugallják, hogy a nanoskálájú transportok leírásához új matematikai modell szükséges. A mintaméret csökkenésével a diffúzív transzporton túl megjelenik a ballisztikus terjedés. Így teljesen nyilvánvalónak tűnik a helyes modellben, hogy a méret és a határoló felületek hatását egyaránt figyelembe kell venni [7-12]. Jelen munkában a termikus tehetetlenségi hatásokat a Tzou [13-15] majd később Andreson és Tamma által javasolt kettős fáziskésésű egyenlettel fogalmazzuk meg [16]. Ezek vezető egyenlete a fononok statisztikáját figyelembe vevő Boltzmann-féle transzportegyenleten nyugszik. Ezt a modellkeretetet elfogadjuk és a releváns fizikai fizikai egyenletekhez a méret és határfeltételeket figyelembe vesszük. A terjedési módusok hullámszám-frekvencia spektrumainak meghatározásához alkalmazzuk a fluktuáció-disszipáció elméletet, majd a spektrumok ismeretében a korrelációs függvényeket kiszámoljuk. Ezekből a terjedési mechanizmusokra következtetni tudunk.

# 2 A matematikai modell

## 2.1 Dinamikai egyenletek, mérethatások és határfeltételek

A nanorétegekbeli termikus energiaterjedés tanulmányozásához meg kell fogalmazni a leíró fizikai egyenleteket. A belsőenergia megmaradását a

$$\varrho c_v \frac{\partial T}{\partial t} + \frac{\partial q}{\partial x} = 0 \tag{1}$$

egyenlet fejezi ki, amelyben $T$ a hőmérséklet, $q$ a hőfluxus $x$ komponense, $\varrho$ a tömegsűrűség valamint $c_v$ a fajhő. Az általánosított konstitutív egyenlet az Anderson-Tamma modellből [16] származtatható

$$q + \tau \frac{\partial q}{\partial t} = K\left[\frac{\partial T}{\partial x} + \tau \frac{K_F}{K}\frac{\partial}{\partial t}\left(\frac{\partial T}{\partial x}\right)\right], \tag{2}$$

amely magában foglalja a tehetetlenségi effektusokat. Itt $\tau$ a tehetetlenséggel kapcsolatos relaxációs idő, $K$ a közeg hővezetési együtthatója. A $K_F$ együttható pedig egy, a hővezetés folyamatához kötődő további vezetési együttható. A kísérleti eredmények [17,18] mutatják, valamint Alvarez and Jou [19] tanulmányai – azaz, hogy a fononok átlagos szabad úthosszai miként befolyásolják a transzportot – matematikailag igazolják a $K$ és a $K_F$ vezetési együtthatók vékony rétegekre (filmekre) vonatkozó vastagságfüggését:

$$K(\{Kn\}) = \frac{K}{2\pi^2\{Kn\}^2}\left[\sqrt{1 + 4\pi^2\{Kn\}^2} - 1\right], \tag{3}$$

$$K_F(\{Kn\}) = \frac{K_F}{2\pi^2\{Kn\}^2}\left[\sqrt{1+4\pi^2\{Kn\}^2}-1\right]. \tag{4}$$

A kifejezésekben $\{Kn\}$ a Knudsen-szám, amely a fononok átlagos szabad úthosszának és az $L$ rétegvastagságnak a hányadosa:

$$\{Kn\} = \frac{l}{L}. \tag{5}$$

A fenti, $L$ –től függő, vezetési együtthatók nagy mintavastagság esetében, $L \to \infty$, átmennek a mindenirányban kiterjedt test vezetési együtthatójába. Meg kell említsük, hogy a vezetési együtthatók méretfüggő volta ellenére a rétegvastagság mégsincs teljes körűen figyelembe véve, mert a falhatások explicit módon nem jelennek meg. A fononok határfelületen történő visszaverődésére és szórására [4,20] vonatkozó elemzések az alábbi egyenletre vezetnek

$$\tau_b \frac{\partial T}{\partial t} + T = T_h - qR, \tag{6}$$

ahol a $\tau_b$ együttható a falon történő hőmérsékletrelaxáció jelenségéhez tartozik. Így a mérhető fluktuáló $T_h$ falhőmérsékletet egy rétegekből származó visszahatás módosítja. A $-qR$ tag a felületi termikus ellenállást írja le, ahol $R$ a hatásra jellemző paraméter. A kontakt termikus ellenállás létrejötte kísérletileg igazolt jelenség [21].

## 2.2 Változótranszformációk

A terjedési módusok vizsgálatának egy lehetséges vizsgálati technikája az időkorrelációs függvényeken keresztül történik. Ehhez először az $S(k,\omega)$ hullámszám-frekvencia spektrumot kell kiszámolni, majd ezt követően ennek inverz Fourier-transzformációja adja a $C(k,t)$ időkorrelációs függvényt. A matematikai eljárásban célszerű dimenziótlan változókat, változótranszformációval bevezetni [22-24]. A $T_0$ referencia hőmérséklet bevezetésével a $T$ hőmérésklet helyett az

$$a_1 = \frac{T}{T_0}, \tag{7}$$

a $q$ hőáram helyett az

$$a_2 = \left(\frac{\tau}{T_0^2 K \varrho c_v}\right)^{1/2} q, \tag{8}$$

valamint a $T_h$ fluktuáló falhőmérséklet helyett az

$$a_3 = \frac{T_h}{T_0} \tag{9}$$

Mennyiségeket bevezetni. A fizikai egyenletek újrafogalmazhatóak ezekkel a változókkal, azaz ez (1) egyenletbeli energiamérleg

$$\frac{\partial a_1}{\partial t} + \left(\frac{K(\{Kn\})}{\varrho c_v \tau}\right)^{1/2} \frac{\partial a_2}{\partial x} = 0, \tag{10}$$

a (2) egyenletbeli konstitutív egyenlet

$$\frac{1}{\tau} a_2 + \frac{\partial a_2}{\partial t} = -\left(\frac{K(\{Kn\})}{\varrho c_v \tau}\right)^{1/2} \left[\frac{\partial a_1}{\partial x} + \tau \frac{K_F(\{Kn\})}{K(\{Kn\})} \frac{\partial}{\partial t}\left(\frac{\partial a_1}{\partial x}\right)\right], \tag{11}$$

valamint a (6) egyeneletbeli határfelületi hatás

$$\tau_b T_0 \frac{\partial a_1}{\partial t} + T_0 a_1 = T_0 a_3 - \left(\frac{T_0^2 K(\{Kn\}) \varrho c_v}{\tau}\right)^{1/2} R a_2 \tag{12}$$

alakot ölti.

## 2.3 Spektrumok, korrelációs függvények

A fluktuáció-disszipáció elmélet alkalmazásához a (10) és (11) egyenleteket Forier-transzformáljuk

$$\omega \hat{a}_1 + \left(\frac{K(\{Kn\})}{\varrho c_v \tau}\right)^{1/2} k \hat{a}_2 = 0, \tag{13}$$

$$\hat{a}_2 + i\omega\tau\hat{a}_2 = -\left(\frac{K(\{Kn\})\tau}{\varrho c_v}\right)^{1/2} \left[ik\hat{a}_1 - \tau \frac{K_F(\{Kn\})}{K(\{Kn\})} \omega k \hat{a}_1\right] + \hat{f}, \tag{14}$$

ahol $\hat{a}_1$ és $\hat{a}_2$ jelölik a Fourier-transzformált mennyiségeket, míg $\hat{f}$ a fluxus gaussi sztochasztikus fluktuációját jelenti. E két egyenletből a spektrum

$$S(k, \omega) = \frac{K(\{Kn\}) k^2}{\left(\frac{K(\{Kn\})}{\varrho c_v} k^2 - \tau\omega^2\right)^2 + \left(1 + \tau \frac{K_F(\{Kn\})}{\varrho c_v} k^2\right)^2 \omega^2} \tag{15}$$

kiszámolható. A véges mintaméret a Knudsen-számon keresztül megjelenik, ennek ellenére a határfeltételek hatásai mégis hiányzanak.

A határfeltételek bevitelét úgy érjük el, hogy fél-Fourier-transzformáljuk (csak *k* hullámszámra) a (10) és (12) egyenleteket, majd ezt követően kell a kapott egyenletet Laplace-transzformálni. Az egyenletek megoldásával a határfelületek által kontrollált hullámszám-frekvencia spektrumhoz jutunk:

$$S_b(k, \omega) = \left[\left(1 + \sigma\tau_b - \varrho c_v R \frac{\omega}{k}\right)^2 + \left(\tau_b \omega + \frac{\varrho c_v R \sigma}{k}\right)^2\right]$$

$$\times \frac{K(\{Kn\})k^2}{\left(\frac{K(\{Kn\})}{\varrho c_v}k^2 - \tau\omega^2\right)^2 + \left(1 + \frac{\tau K_F(\{Kn\})}{\varrho c_v}k^2\right)^2 \omega^2} \quad (16)$$

Az így kapott spektrum a rendszer dinamikai kritikus jelenségeit is tartalmazza. A (16) –ban a [...]-beli tényező ad egy extra hozzájárulást a nagyobb $\omega$ frekvenciákhoz. Ez nagyfrekvenciákra arányos $\omega^2$-tel, míg a második tényező $\omega^4$-nel csökken, így összességében nagyon nagy $\omega$ értékekre $S_b(k,\omega \to \infty) \to 0$, ahogy annak lennie is kell. Az $S_b(k,\omega)$ spektrum az $R = 0$ and $\tau_b = 0$ feltételeknél átmegy a "határfelület mentes" esetbe vastag minták esetében.

A $C(k,t)$ időkorrelációs függvényhez az $S(k,\omega)$ spektrum inverz Fourier-transzformációjával jutunk:

$$C(k,t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} S(k,\omega) e^{i\omega t}\, d\omega. \quad (17)$$

A korrelációs függvények tanulmányozásával a különböző terjedési módusok osztályozhatók. Az elvégzett számolások és elemzések után kijelenhetjük, hogy az irodalom [4,19] javaslatának megfelelően a leszármaztatott formulák figyelembe veszik mind a rendszer jellemző méretét mind a határfeltételeket egyaránt.

# 3 A termikus energiaterjedés módusai

## 3.1 Spektrumok szerinti osztályozás

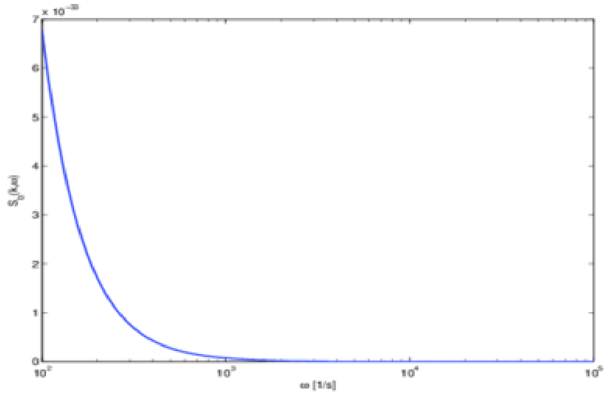
A numerikus számolásokban a szilícium adataival (1. Táblázat) számolunk, mert a legtöbb kísérleti megfigyelést e témában erre végezték el.

| **Mennyiség** | Név | Kísérleti értékek |
|---|---|---|
| c | fajhő | 710 J / kg·K |
| ρ | sűrűség | 2230 kg/m$^3$ |
| K | hővezetési együttható | 149 W/m·K |
| $K_F$ | Heat cond. retardation | 10 W/m·K |
| τ | relaxációs idő | $10^{-8}$ s |
| $\tau_b$ | határfelületi relaxációs idő | $5\cdot10^{-10}$ s |
| l | Fononok átlagos szabad úthossza | $200\cdot10^{-9}$m |
| L | mintaszélesség | $60\cdot10^{-9}$ m |

| | | |
|---|---|---|
| R | termikus kontakt ellenállás | $10^{-8}..10^{-6}$ $m^2K/W$ |
| σ | Csillapítási tényező | $10^{-8}$ 1/s |

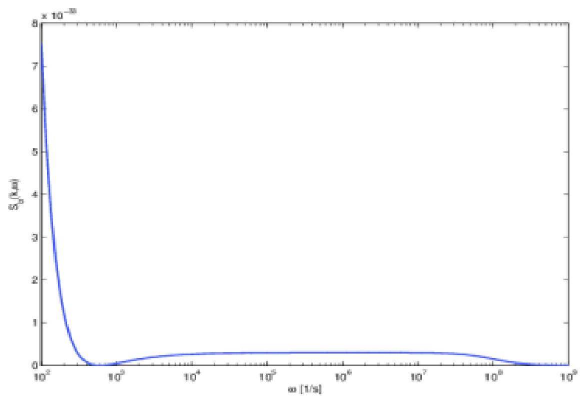
*1. Táblázat A számolásban használt paraméterek értékei*

E rövid tanulmányban bemutatjuk, hogy k=1000 1/m hullámszám esetében az Anderson-Tamma modell spektruma egy termikus transzportbeli dinamikai fázisátmenet mutat nanoskálájú szilícium mintában. Az 1. ábra a határfeltételek nélküli diffúz terjedéshez tartozó spektrumot mutatja.



*1. Ábra Az A-T modell határfeltételek nélküli spektruma k = 1000 1/m hullámszám mellett*

A határfeltételeket “bekapcsolva”, a 2. ábrán jól láthatóan, széles tartományban nagyfrekvenciás módusok jelennek meg.

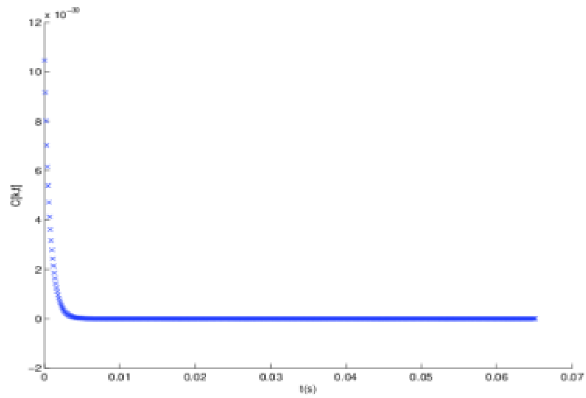


*2. Ábra Az A-T modell határfeltételeket figyelembe vevő spektruma k = 1000 1/m hullámszám mellett*

Nyilvánvaló, hogy a nagyfrekvenciák megjelenése (az ezekhez tartozó időskála jellemzően $\sim 10^{-10}$) új transzport tulajdonságot jelent.

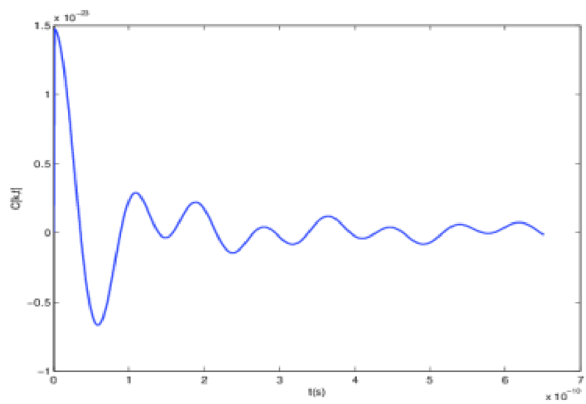
## 3.2 Korrelációs függvények szerinti osztályozás – dinamikai fázisátalakulás

Az 1. ábrán látható spektrumból a korrelációs függvényt kiszámolva egy monoton csökkenő görbe rajzolódik ki (3. ábra), amely a diffúz terjedést egyértelműsíti.




*3. Ábra Az A-T modell határfeltételek nélküli korrelációs függvénye k = 1000 1/m hullámszám mellett*

Érdemes figyelni a jellemző időskálára: $\sim \mathbf{0,01}$ s. Ezt követően elvégezzük a 2. ábrán látható spektrummal a korrelációs függvény kiszámolását. A kapott eredmény görbéjének az előzőtől való különbözősége nyilvánvaló a 4. ábrán. A megjelent oszcilláció ballisztikus terjedésre utal.

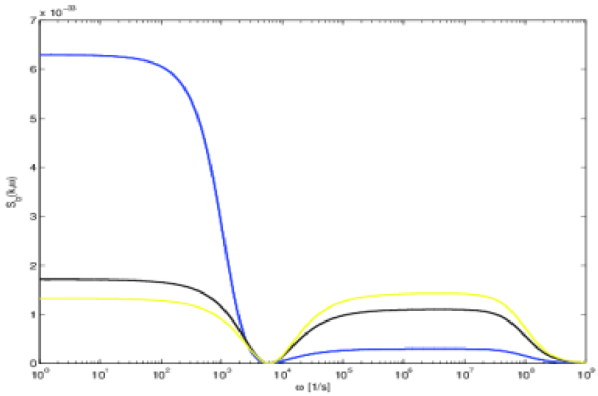



*4. Ábra Az A-T modell határfeltételeket figyelembe vevő korrelációs függvénye k = 1000 1/m hullámszám mellett*

A jellemző időskála $\sim 10^{-10}$s, amely megerősíti a pusztán vizuális különbséget.

## 3.3 Kis Knudsen-számok esete

A kis mintaméret, a határfüggő Anderson-Tamma modell biztosítja a termikus transzport ballisztikus jelleget. Ugyanakkor növekvő mintaméret esetén a megoldásoknak át kell menniük a kiterjedt testekre jellemző diffúz megoldásokba. Mivel a Knudsen-számot a fononok átlagos szabad úthosszának és a minta méretének hányadosával definiáltuk, azért ez az állítás ekvivalens a $Kn \to 0$ határátmenettel. Nagy mintákra a spektrum a várakozással ellentétesenen viselkedik, ahogy az az 5. ábrán látható. A kiterjedt test felé növelve a mintát – szemben elvárásainkkal – a második platók egyre emelkednek, egyre dominánsabbá téve az oszcillációkhoz tartozó nagyfrekvenciákat [23].



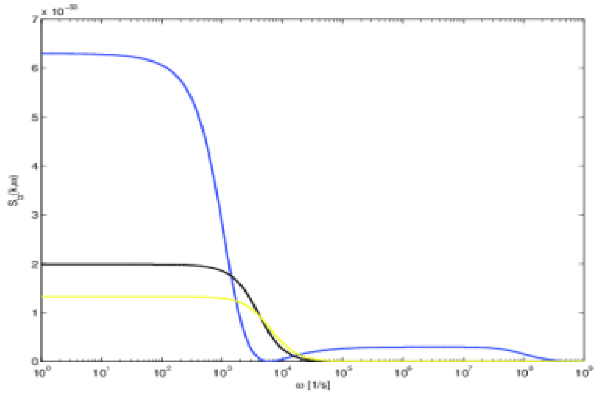
*5. Ábra Spektrumok különböző mintaméretek esetén: 100 nm [kék], 400 nm [fekete] és 800 nm [sárga]*

Ez azt jelenti, hogy a konstans értékű kontakt termikus ellenállás feltételezése nem lehet helyes.

A probléma lehetséges feloldását egy méretfüggő kontakt termikus ellenállás használatára $R(L)$ Kocsis [23] javasolta. Ennek megfelelően a nagyobb mintaméret esetben a spektrumbeli nagyfrekvenciás hozzájárulás csökkenthető az

$$R(L) = R_0 \exp\left(-\frac{|L - L_0|}{aL_0}\right) \tag{18}$$

függvény bevezetésével, ahol $R_0$ a kontakt thermikus ellenállás együtthatója, $L_0$ egy referencia mintaméret és $a$ egy skálaparaméter.




*5. Ábra Spektrumok méretfüggő $R(L)$ kontakt termikus ellenállás és különböző mintaméretek esetén: 100 nm [kék], 400 nm [fekete] és 800 nm [sárga]*

A 6. ábrán egyértelműen látható, hogy a méretfüggő kontakt termikus ellenállás miként módosítja a spketrumot abba az irányba, hogy nagyobb mintaméret esetén a kierjedt testekre jellemző (határfeltételek nélküli) spektrumhoz tartson. Így a korrelációs függvény a 3. Ábrához hasonlatossá válik, azaz a ballisztikus terjedés egyre inkább a háttérbe szorul és a diffúv transzport lesz a domináns. Ez megfelel a rendszeren belüli dinamikaváltásnak.

# 4 Összefoglalás

Rámutattunk a spektrum és a korrelációs függvény analízisével, hogy a méret, de különösen a falhatás következtében a termikus energia terjedési mechanizmusában megjelenik egy dinamikai fázisátalakulás, azaz a diffúzív terjedési jelleg átcsap ballisztikus (hullámszerű) terjedési jellegbe.

A hőmérséklet minden transzport jellegű fizikai folyamatban így vagy úgy megjelenik, ezért nanoméretekben is kiemelten fontos a termikus energia terjedés valamint hatásának vizsgálata.

**References**

[1] J. Wang, J.-S. Wang: Appl. Phys. Lett. **88** (2006) 111909
[2] D. G. Cahill, W. K. Ford, K. E. Goodson, G. D. Mahan, A. Majumdar, H. J. Maris, R. Merlin, S. R. Phillpot: J. Appl. Phys. **93** (2003) 793
[3] E. Brown, L. Hao, J. C. Gallop, J. C. Macfarlane: Appl. Phys. Lett. **87** 023107 (2005)
[4] G. Chen: Phys. Rev. Lett. **86** (2001) 2297
[5] A. S. Henry, G. Chen: J. Comput. Theor. Nanosci. **5** (2008) 1
[6] G. Chen: "*Nanoscale Energy Transport and Conversion"*, Oxford Univ. Press, 2005
[7] G. D. Mahan, F. Claro: Phys. Rev. B **38** (1988) 1963

[8] F. X. Alvarez, D. Jou, A. Sellitto: J. Appl. Phys. **105** (2009) 014317
[9] D. Jou, A. Sellitto, F. X. Alvarez: Proc. R. Soc A **467** (2011) 2520
[10] D. D. Joseph, L. Preziosi: Rev. Mod. Phys. **61** (1989) 41
[11] G. Lebon, M. Grmela, C. Dubois: C. R. Mechanique **339** (2011) 324
[12] G. Lebon, H. Machrafi, M. Grmela, Ch. Dubois: Proc. R. Soc. A **467** (2011) 3241
[13] D. Y. Tzou: Int. J. Heat Mass Transfer **38** (1995) 3231
[14] D. Y. Tzou, "*Macro- to microscale heat transfer: the lagging behavior*", Taylor and Francis, Washington, 1997
[15] D. Y. Tzou, Z.-Y. Guo: Int. J. Thermal Sci**. 49** (2010) 1133
[16] C. D. R. Anderson, K. K. Tamma: Phys. Rev. Lett. **96** (2006) 184301
[17] W. Liu, M. Asheghi: Appl. Phys. Lett. **84** (2004) 3819
[18] Y. S. Ju, K. E. Goodson: Appl. Phys. Lett. **74** (1999) 3005
[19] F. X. Alvarez, D. Jou: Appl. Phys. Lett. **90** (2007) 083109
[20] F. X. Alvarez, D. Jou: J. Heat Transfer **132** (2010) 012404
[21] Z. Chen, W. Jang, W. Bao, C. N. Lau, C. Dames, Appl. Phys. Lett. **95** (2009) 161910
[22] A. J. McKane, F. Vázquez, Phys. Rev. E **64** (2001) 046116
[23] F. Márkus, K. Gambár: Intl. J. Heat and Mass Transfer **56** (2013) 495
[24] Gy. Kocsis, F. Márkus: "*Dynamical phase transitions on nanoscale*" (Therminic Proceedings IEEE/Therminic2016 22nd International Workshop on Thermal Investigations of ICs and Systems, ISBN 978-1-5090-5450-3; ISBN 978-1-5090-5451-0), Budapest, 2016, pp. 283-286