

TDK Dolgozat

Geometriai hatások vizsgálata a fononok hővezetési
mechanizmusában

Győry Erika

Témavezető: Dr. Márkus Ferenc
egyetemi adjunktus
BME Fizikai Intézet,
Fizika Tanszék

BME

2013

Tartalomjegyzék

1. Bevezetés	2
2. Hővezetés makroszkopikus tartományban	2
3. Hővezetés mikroszkopikus tartományban	3
3.1. Cattaneo-egyenlet	4
3.2. Kettős fáziskésés egyenlete	4
4. Számítógépes modell	5
4.1. Parabolikus egyenlet szimulációja	6
4.2. Hiperbolikus egyenlet szimulációja	7
4.3. Kettős fáziskésés egyenletének szimulációja	11
5. Hővezetési tényező	12
5.1. Új formula kialakításának alap gondolata	16
5.2. Lehetséges közelítések vizsgálata	17
5.3. Összehasonlítás a mérési eredményekkel	25
6. Összefoglalás	26
Hivatkozások	27

1. Bevezetés

A hővezetés folyamata makroszkopikus körülmények között mindenki által jól ismert folyamat, de amint csökkenteni kezdjük a minta méretét, a vezetési tulajdonságok megváltoznak. Makroszkopikus tartományban a Fourier-törvényből levezethető egyenletekkel definiált transzportfolyamatok megfelelnek a valóságnak. Mikroszkopikus mérettartományba érve azonban a hővezetésért felelős fononok kölcsönhatásokban mutatott viselkedése módosul és az eddig alkalmazott összefüggések érvényüket veszítik. Ezért fontos egy olyan egyenlet bevezetése, amivel hasonló pontossággal írhatók le ezek a folyamatok nano-rendszerekben is. Erre a Boltzmann-egyenlet megfelelő, de az abban szereplő eloszlásfüggvényekkel nehéz volna számolni, ezért közelítő modellek bevezetésére van szükség. Ezen modellek vizsgálatát és összehasonlítását végzem számítógépes szimulációk segítségével. A téma alapos körüljárása közben fontos volt a hővezetési tényező részletes elemzése is. A makroszkopikus és mikroszkopikus tartomány közötti átmenetet egy mérettől és szabad úthossztól függő koefficiens bevezetése adja, melyre egy új formula bevezetését tudtam javasolni az elvégzett vizsgálatok alapján.

2. Hővezetés makroszkopikus tartományban

A makroszkopikus körülmények között érvényes Fourier-törvény lineáris kapcsolatot határoz meg a hőmérsékleti gradiens és a hőfluxus között, ahol az arányossági tényezőt a hővezetési együttható (λ) képezi:

$$\mathbf{q} = -\lambda \nabla T. \quad (1)$$

Az energiamegmaradással összevetve és egy hőforrások nélküli rendszert véve a transzportfolyamatot leíró, úgynevezett parabolikus egyenletet kapjuk:

$$\rho c_v \frac{\partial T}{\partial t} = \nabla(\lambda \nabla T), \quad (2)$$

ahol ρ a sűrűséget, c_v pedig a fajhőt jelöli. Ezzel az egyenlettel a hétköznapi hővezetéssel kapcsolatos problémák mind megoldhatók, de ha méretben elkezdjük csökkenteni a rendszert, hamar elérjük azt a határt, ahonnan kezdve az egyenlet fizikailag valótlan megoldásokat produkál. Ennek oka, hogy a diffúzió jellegű terjedési mechanizmus helyett a ballisztikus viselkedés jelenik meg. Ez magában foglalja egyfelől a fononok akadálytalan "repülését", másrészt a fononok határoló felületeken való reflexióját. A Fourier-törvény alapján egy megjelenő hőhatás az egész rendszeren belül

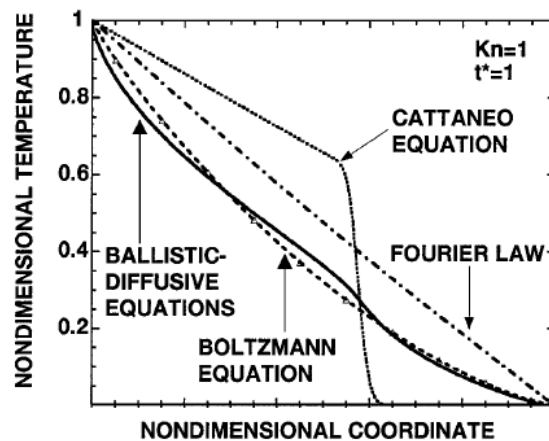
azonnali változásokhoz vezet, amihez a hőhatásnak végtelen sebességgel kéne tudnia terjedni. Azonban a természetben ez nincs így, a hőhatás véges sebességgel terjed és a rendszer távolabbi részein csak bizonyos relaxációs idő eltelte után érezhető.

3. Hővezetés mikroszkopikus tartományban

A határt, ahonnan kezdve a parabolikus egyenletet érdemes módosítani, a Knudsen-számmal tudjuk jellemezni, ami a fononok átlagos szabad úthossza (l) és a rendszer méretét jellemző paraméter (L) hányadosaként definiálható: $Kn = l/L$ [1, 2]. Durva szabályként megfogalmazható, hogy amíg a Knudsen-szám egynél kisebb értéket vesz fel, addig a makroszkopikus tartományban vagyunk, melyben az ütközések a jellemző folyamatok. Amikor ez az érték egy fölé nő a ballisztikus tartományba érünk, ahol a fononok domináns kölcsönhatása a fallal való ütközés, hiszen a rendszeren az atomokkal való ütközés nélkül is áthaladhatnak. A ballisztikus tartományt is leíró modell vezethető be a Boltzmann-egyenlet relaxációs idő közelítésével [3, 4]

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla_{\mathbf{r}} f = -\frac{f - f_0}{\tau(\omega)}, \quad (3)$$

ahol f az eloszlásfüggvény, f_0 az egyensúlyi eloszlás, \mathbf{v} a fononok csoportsebessége, τ pedig egy frekvenciától függő relaxációs idő.



1. ábra. Kialakult hőmérsékletprofilok a különböző modellek alapján. [3]

Az 1. ábrán látható, hogy a különböző modellek alapján számolt hőmérsékleti profilok hogyan viszonyulnak egymáshoz. Legpontosabb eredményt a Boltzmann-egyenlettel kaphatjuk, de mivel az egy eloszlásokat tartalmazó összefüggés, ezért szükséges olyan közelítések bevezetése, melyekkel már számítógépes szimulációkra alkalmas differenciál-egyenleteket tartalmaznak.

3.1. Cattaneo-egyenlet

Történetileg az első, véges hatássebességet is magába foglaló modell megalkotása, Cattaneo nevéhez fűződik, aki a konstitutív egyenletben a hőfluxus és a hőmérsékletgradiens közötti összefüggésbe egy relaxációs időt (τ) tartalmazó tagot is feltételezett: [1, 2]

$$\tau \frac{\partial \mathbf{q}}{\partial t} = -(\mathbf{q} + \lambda \nabla T). \quad (4)$$

Ezt összevetve az energiamegmaradással, egy hullámeqyenletet kapunk, melyet a hővezetés hiperbolikus vagy másnéven telegráf egyenletének neveznek:

$$\tau \frac{\partial^2 T}{\partial t^2} + \frac{\partial T}{\partial t} - \chi \nabla^2 T = 0, \quad (5)$$

ahol $\chi = \frac{\lambda}{\rho c_v}$. Az egyenletből észrevehető, hogy kis relaxációs idők esetén, tehát, amikor a második időderiváltat tartalmazó tag fizikai okok miatt elhanyagolhatóvá válik, akkor a parabolikus egyenletet kapjuk vissza. A Cattaneo-egyenlet már hullámszerűnek tételezi fel a hő terjedését, de a klasszikus irreverzibilis termodinamikával nincs teljes összhangban, ugyanis vannak olyan paramétertartományok, melyek esetén a második főtétel sérül. Az entrópia mindenkor növekedését nem tudja biztosítani ez a modell.

3.2. Kettős fáziskésés egyenlete

A kettős fáziskésés egyenletében a Fourier-törvény az alábbi összefüggéssel lett helyettesítve [5, 6]

$$\mathbf{q}(\mathbf{x}, t + \tau_q) = -k \nabla \theta(\mathbf{x}, t + \tau_\theta), \quad (6)$$

ahol k pozitív szám, τ_q a hőfluxus, τ_θ pedig a hőmérsékletgradiens fáziskésése. A gradiens fáziskésését a fononok szóródása és kölcsönhatása okozza. A hőfluxus fáziskésése pedig a hiperbolikus egyenletből már ismert relaxációs idő, ami a hőmérsékleti tehetetlenséget veszi figyelembe. Ha $\tau_\theta > \tau_q$, a térfogatban létrejött hőmérsékletgradiens a hőterjedés következménye, ellenkező esetben pedig a hőterjedés jön létre az előzetesen kialakult hőmérsékleti gradiens hatására [7]. Tehát a relaxációs idők viszonya határozza meg, hogy a folyamatban mi a kiváltó ok illetve a létrejött hatás. A (6) egyenlet elsőrendű közelítése vezet minket az alábbi formulához:

$$\mathbf{q}(\mathbf{r}, t) + \tau_q \frac{\partial \mathbf{q}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = -\lambda \left(\nabla T(\mathbf{r}, t) + \tau_\theta \frac{\partial}{\partial t} (\nabla T(\mathbf{r}, t)) \right). \quad (7)$$

A szakirodalomban erre az egyenletre szokás úgy hivatkozni, mint a kettős fáziskésés egyenletére.

4. Számítógépes modell

A szimulációk során egy végeelem módszeren alapuló szoftvert, a Comsol Multiphysics programcsomagot használtam. A módszer lényege, hogy a kívánt síkbeli vagy térbeli geometriát véges darabszámú kisebb elemekre bontjuk, így a parciális differenciálegyenletek közelítő megoldása numerikusan elvégezhető. A szoftver nagy előnye, hogy rengeteg fizikai háttér és az ezeket leíró differenciálegyenletek már eleve beépültek, így ha a felhasználó ezen egyszerűbb egyenleteket tartalmazó problémát szeretne szimulálni, akkor csak a beépített modulok közül kell kiválasztani a megfelelőt és a modell mögötti fizika automatikusan felépül. Nano-rétegekben a hővezetés egyenletei bonyolódhatnak, már nem írhatók le olyan egyszerűen, ahogyan a Comsol beépített hővezetése megkívánná. A felhasználónak ebben az esetben lehetősége van matematikai modulok közül válogatni, melyek teljesen általános differenciálegyenleteket tartalmaznak és a paraméterek megfelelő megválasztásával ezen egyenleteket a saját problémánknak megfelelővé alakíthatjuk át. Ezeknek a hővezetési egyenleteknek az általános parciális differenciálegyenlet modult választottam (Mathematics - PDE Interfaces - Coefficient Form PDE):

$$e_a \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} + d_a \frac{\partial u}{\partial t} + \nabla(-c\nabla u - \alpha u + \gamma) + \beta\nabla u + au = f. \quad (8)$$

Mindhárom szimulált egyenlet esetén az α, β, γ és a paraméterek zérus értéket vesznek fel, a többi koefficiens eltér a különböző esetekben, pontos értéküket a megfelelő egyenleteknél fogom ismertetni.

A futási geometriának egy egyszerű négyzet alapú hasábot választottam, mely $100 \text{ nm} \times 10 \text{ nm} \times 10 \text{ nm}$ méretű. A hosszabbik oldal mentén vizsgáltam a hőterjedést olyan módon, hogy az $x=0$ síkban lévő lapját fűtöttem, az ezzel szemközti oldal hőmérsékletét pedig szobahőmérsékleten tartottam (293.15 K). Az egész geometria kezdetben szobahőmérsékletű. Az első oldalra a fűtést fokozatosan kellett rákapcsolni, ellenkező esetben a nagy hőmérsékleti különbségek miatt a szoftver a transzportfolyamat első pillanatában numerikus hibát vét [8]. Ezen problémának a részletes elemzése a szakdolgozatomban már bemutatásra került, itt csak felírnám a hőmérsékleti felfutást, mellyel a kezdeti numerikus hiba kiküszöbölhető:

$$T = T_0 \cdot (1 - e^{-\epsilon t}), \quad (9)$$

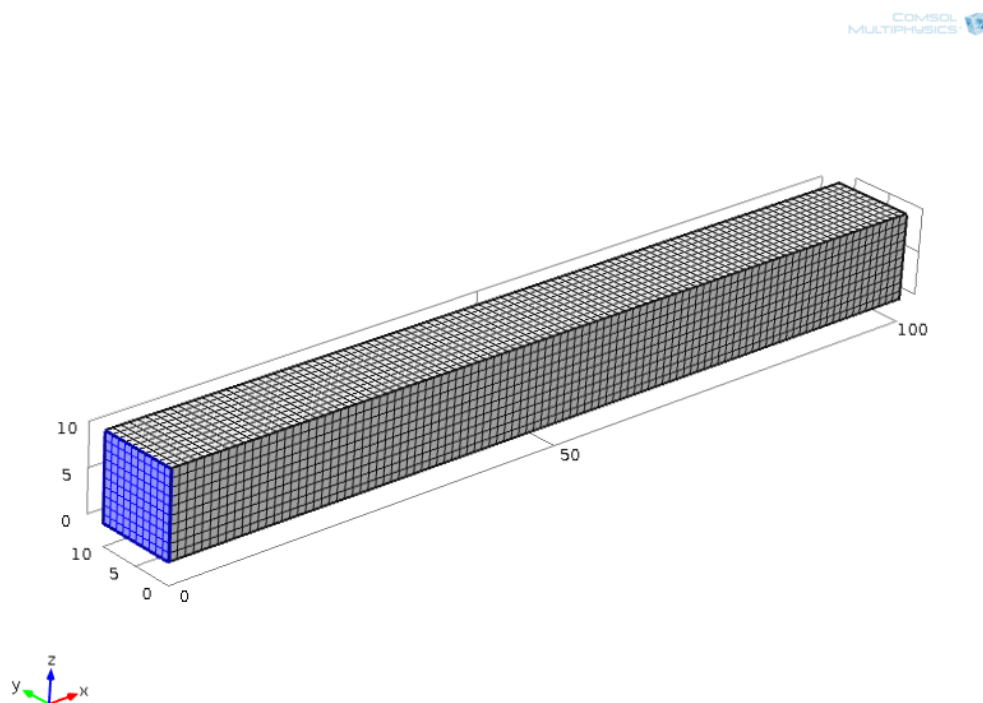
ahol a $T_0 = 50$ fokos hőmérséklet különbségnek felel meg, ϵ értéke pedig $2 \cdot 10^{12} \text{ 1/s}$.

A modell anyagának szilíciumot választottam, melynek jellemző paramétereit a 1. táblázat foglalja össze.

Paraméter	Jelölés	Érték	Mértékegység
Hővezetési tényező	λ	120	$\frac{W}{mK}$
Sűrűség	ρ	2329	$\frac{kg}{m^3}$
Fajhő	C_p	700	$\frac{J}{kgK}$

1. táblázat. A szilíciumra jellemző paraméterek értékei és mértékegységei

A geometria behálózásához hexaédres metódust választottam, ahol a véges elemek négyszög alapú hasábok, az elemek száma tízezres nagyságrendbe esik. A behálózott geometria 2. ábrán látható, melyen kézzel jelöltem a fűtött oldalt.



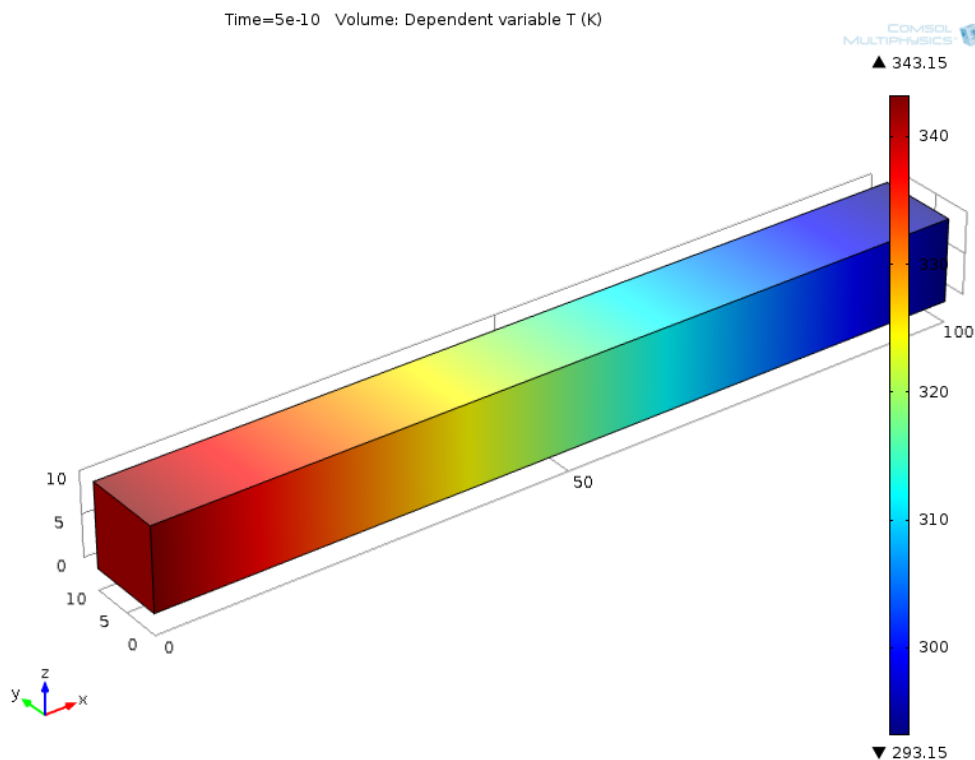
2. ábra. A behálózott geometria. Kézzel jelölve a fűtött oldalt

A szimulációkban a hővezetés első $5 \cdot 10^{-10}$ másodpercét modelleztem $1 \cdot 10^{-11}$ másodperces lépésközzel, mert ilyen kis geometria esetén ez az idő már elég, ahhoz hogy beálljon a termikus egyensúly.

4.1. Parabolikus egyenlet szimulációja

A számítógépes szimulációkat a parabolikus egyenlettel leírt hővezetési folyamat modellezésével kezdtem, így tanulmányozható az egyenletek evolúciója illetve a köz-

tük lévő eltérések is nagyobb hangsúlyt fognak kapni. Bár erre az egyenletre létezik beépített hővezetési modul, mégis a matematikai modult alkalmaztam, hogy a paraméterek értékei jobban összehasonlíthatóak legyenek a különböző egyenleteknél. Ebben az esetben $e_a = 0$, $d_a = 1$, $c = \lambda/(\rho C_p)$, amivel a (8) egyenlet a parabolikus egyenletté egyszerűsödik. Az eredményt a 3. ábrán, az x tengely mentén kialakuló hőmérsékleti eloszlást a szimuláció minden egyes időpillanatára pedig a 4. ábrán mutatom be.

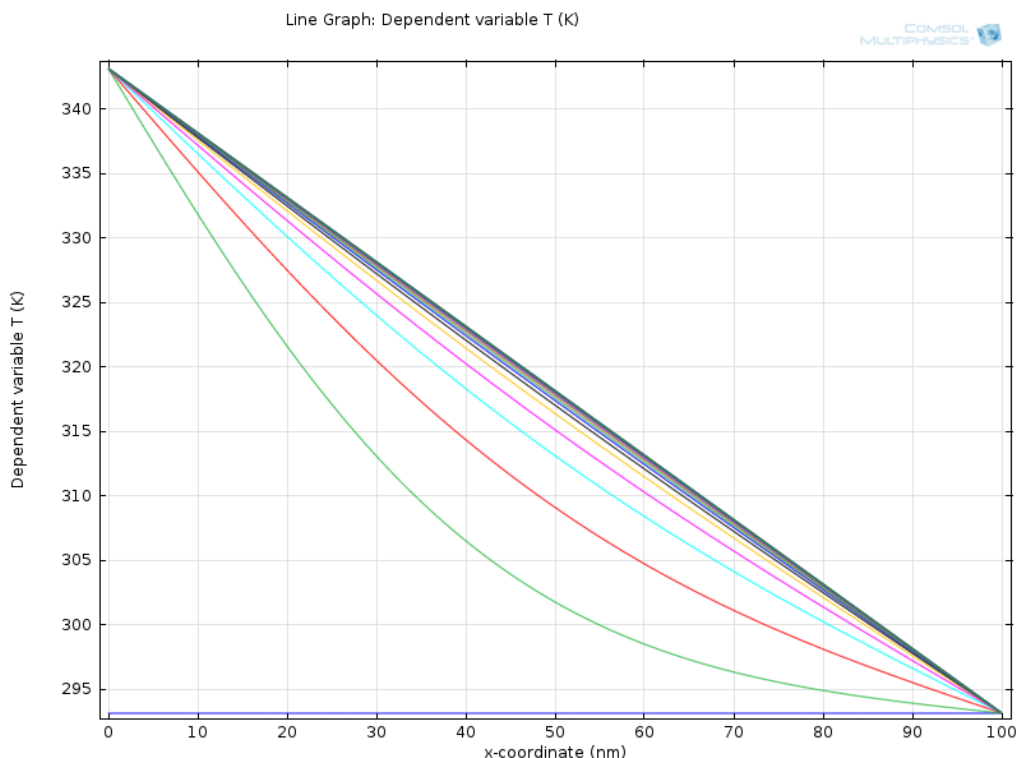


3. ábra. A parabolikus egyenlet alapján kialakuló hőmérsékleti eloszlás.

A futási eredmények megfelelnek a Fourier-törvényről tanultaknak, szépen látszik, ahogyan pillanatról pillanatra kiegyenlítődik a hőmérséklet, míg végül el nem éri az egyensúlyi állapotnak megfelelő lineáris egyenest.

4.2. Hiperbolikus egyenlet szimulációja

A hiperbolikus egyenletben a parabolikushoz képest megjelent egy idő szerinti második deriváltat tartalmazó tag is, emiatt a (8) egyenletben szereplő e_a paraméter már zérustól különbözni fog. Ez a koefficiens lesz a relaxációs idő. A relaxációs idő függvényében a szimulációs eredmények eltérnek egymástól, ezeket a különböző

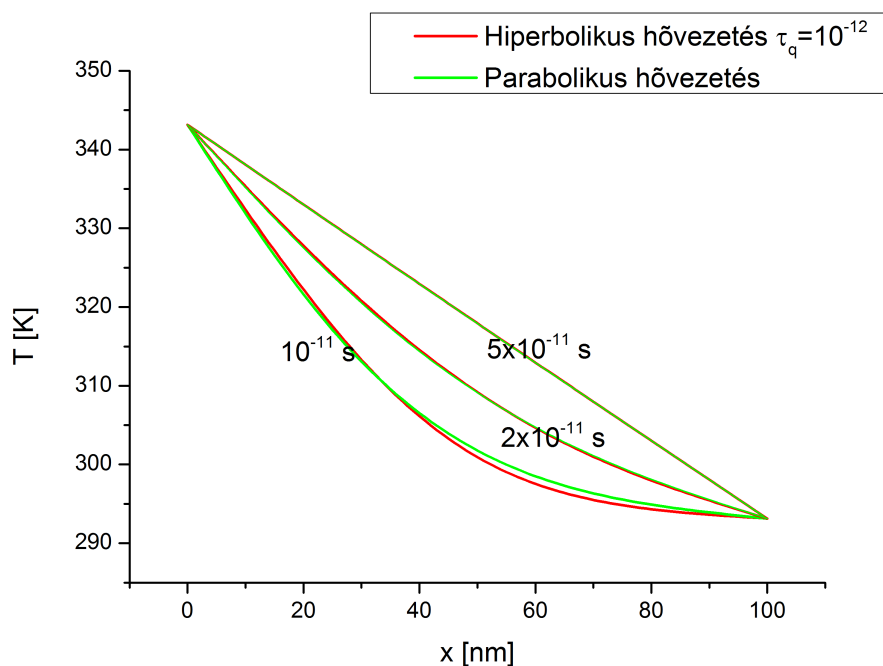


4. ábra. A parabolikus egyenlet alapján kialakult hőmérsékleti profil a különböző időpillanatokban.

viselkedési sémákat fogom megmutatni az alábbiakban néhány jellemző relaxációs időn keresztül.

Ha a relaxációs idő nagyon kicsi, a hiperbolikus egyenletben a második deriváltas tag elhanyagolhatóvá válik és visszakapjuk a parabolikus egyenletet. A határ ahonnan a két egyenlet egymástól megkülönböztethetővé válik $\tau_q = 1 \cdot 10^{-12}$ s-nál van. Ebben az esetben a két hőmérsékleti profil csak a szimuláció első időpillanatában ($1 \cdot 10^{-11}$ s) különbözik egymástól és ekkor is csak alig. A legnagyobb eltérés a két görbe között 0.63 K. A $2 \cdot 10^{-11}$ s-os időpillanattól kezdve pedig a két görbesereg teljesen ekvivalens egymással. Ezeket az eredményeket mutatja be a 5. ábra. Természetesen, ha tovább csökkentem a relaxációs idő értékét, akkor már hamarabbi időpillanatokban is teljes egyezést mutat a két hőmérsékleti profil.

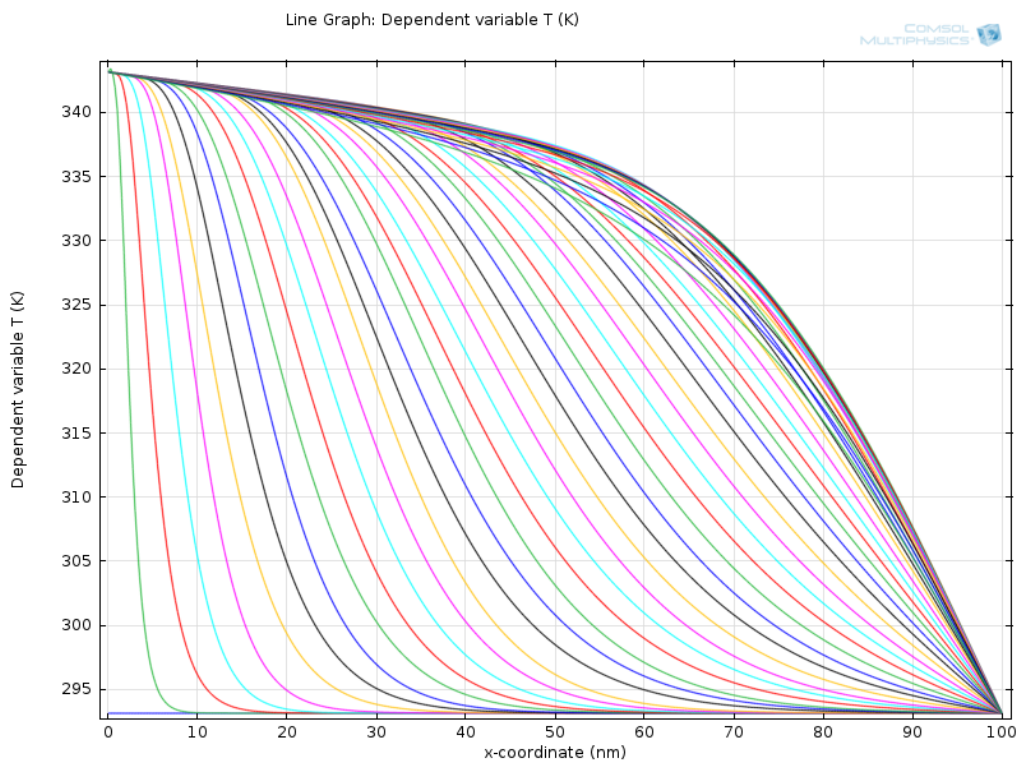
Ha a relaxációs idő értékét növelni kezdem, akkor látható igazán a fő különbség a két egyenlet által leírt transzportfolyamatban, ekkor ugyanis a hiperbolikus egyenletnél, az elméleti várakozásoknak megfelelően, hullámszerűen hatol a hőmérséklet a geometriába. A hőhatás ilyenkor véges sebességgel indul meg és definiálható egy behatolási mélység is. A hullámfront mögötti hőmérséklet jóval magasabb, mint azt



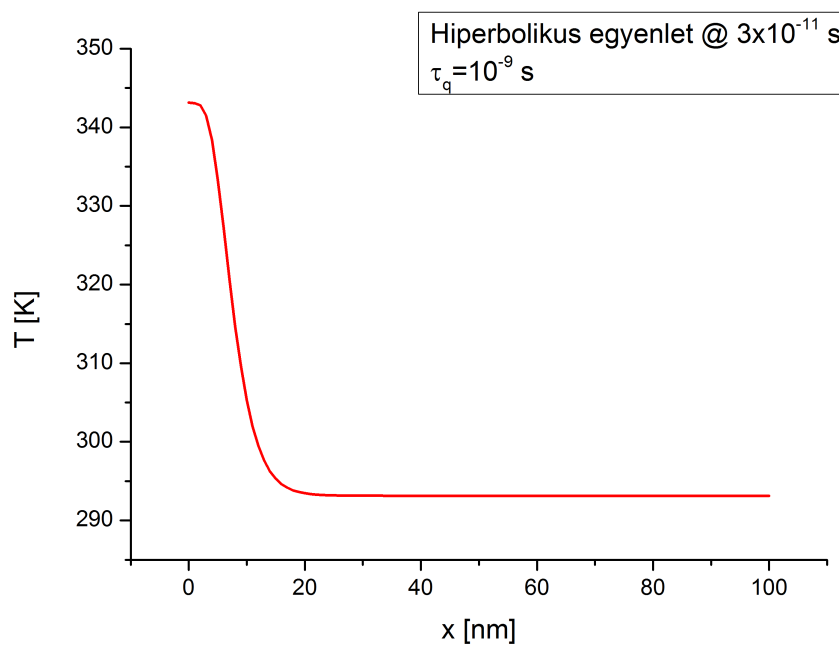
5. ábra. A parabolikus és hiperbolikus egyenlet összehasonlítása kis relaxációs idők esetén.

a parabolikus egyenletből várnánk, hiszen ugyanaz a hőmennyiség jelen esetben kisebb térfogatban oszlik meg. Az $1 \cdot 10^{-9} s$ értékű relaxációs időnél szimulált hővezetés a 6. ábrán látható. Az eddig leírtakon kívül, az ábráról leolvasható, hogy hosszabb idő eltelte után a 'kipúposodás' megszűnik és a stacionárius állapot felé kezdenek a görbék visszalaposodni. A behatolási mélység illetve a hullámviselkedés jobb szemléltetése érdekében egyetlen időpillanat hőmérsékleti eloszlását is ábrázoltam (7. ábra).

A relaxációs idő értékét tovább növelve elérjük a hiperbolikus egyenlet érvényességi körét, ekkor ugyanis a hőmérséklet a fűtési hőmérséklet fölé növekedik, ami nyilvánvalóan ellentmond a fizikai képünknek és ezzel együtt a termodinamika 2. főtételeének is. Ennek problematikáját és okát az elméleti bevezetőben említettem, illetve a szakdolgozatomban bővebben is kifejtettem. Nagyobb relaxációs idők esetén, a hő lassabban is terjed, kisebb a behatolása az anyagba, ami numerikus hibákhoz vezet, ezért ezeknél a szimulációknál, a hibák elkerülésére sokkal finomabb hálót kellett építenem (kisebb elemekből épült fel, ezért sokszorosára nőtt az elemszám). Ezzel a numerikus hibákat ki tudtam küszöbölni, a túlfűtést azonban nem, hiszen az az egyenlet hiányosságából fakad. Ezen hiányosság kiküszöbölésére kezdtem el a



6. ábra. A hiperbolikus egyenlet szimulációja kis relaxációs idők esetén.



7. ábra. A hullámfront szemléltetése

kettős fáziskésés egyenletével foglalkozni.

4.3. Kettős fáziskésés egyenletének szimulációja

A kettős fáziskésés egyenlete, a hiperbolikushoz képest egy olyan taggal több, amiben vegyesen szerepel idő és hely szerinti derivált is, ráadásul utóbbi második rendben ((7) egyenlet). Ilyen tagot azonban a (8) kifejezés nem tartalmaz, ezért sokat kellett tanulmányoznom a Comsol-t, illetve annak a különböző fórumait, hogyan lehetne mégis egy ilyen fajta egyenletet szimulálni. Végül arra a döntésre jutottam, hogy a vegyes tagot, mint forrást fogom figyelembe venni, mellyel az egyenletben szereplő paraméterek az alábbiak szerint alakulnak:

$$c = \frac{\lambda}{\rho C_p},$$

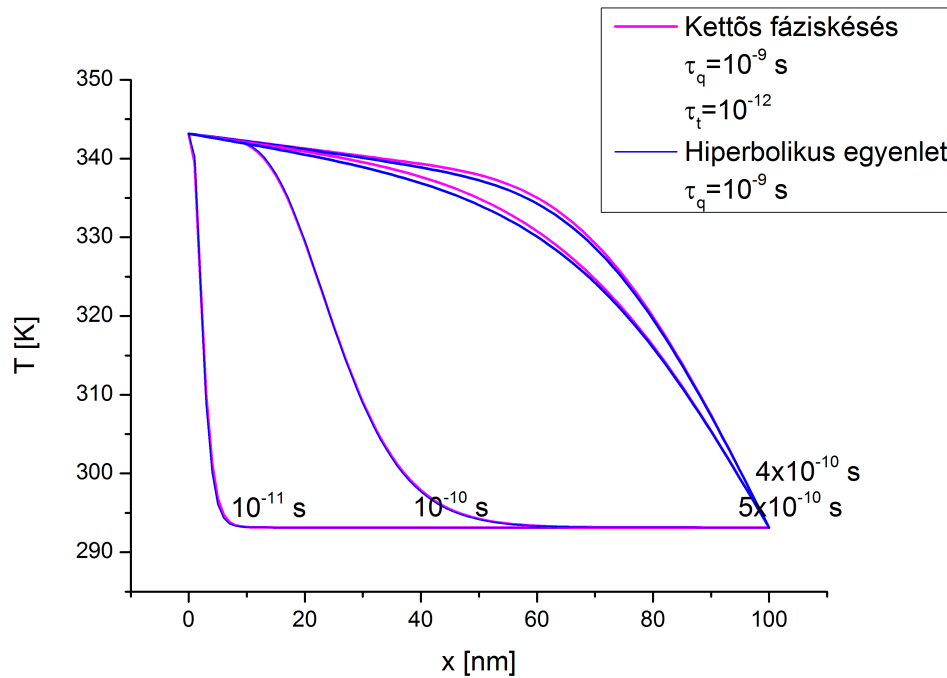
$$e_a = \tau_q,$$

$$d_a = 1,$$

$$f = \frac{\lambda \tau_t}{\rho C_p} \frac{\partial}{\partial t} \frac{\partial^2 T}{\partial x^2}.$$

Ha az új relaxációs időt kicsinek választjuk, akkor a forrástag elhanyagolhatóvá válik és visszakapjuk a hiperbolikus egyenletet. A $\tau_t = 10^{-12}$ s-os értéket beállítva a két egyenlet futási eredményei között csak nagyon kis különbségek vannak, és azok is csak a futás vége felé jelentkeznek. Kezdetben a két görbe azonos, amint az a 8. ábrán látszódik is.

A legfontosabb kérdés a kettős fáziskésés egyenlete kapcsán, hogy ki tudja-e küszöbölni azt a hiányosságot, ami a hiperbolikus egyenletnél felmerült, azaz a második fáziskéséses tag elegendő-e ahhoz, hogy a túlfűtést megakadályozza. Ehhez olyan τ_q értéket választottam, aminél a hiperbolikus egyenlet már fizikailag valótlan megoldást ad ($\tau_q = 10^{-7}$ s). Várakozásom az volt, hogy kis τ_t értékek esetén a forrástag, annyira kicsi, hogy érdemben nem tud hozzájárulni a hiperbolikus egyenlet javításához, viszont nagyobb értékek esetén elvárom a javulást. Ezért először két különböző értékű relaxációs időt vettem, egy kisebbet ($\tau_t = 10^{-12}$ s) és egy nagyobbat ($\tau_t = 10^{-7}$ s). Vegyük először a kisebb értékkel való szimulációt, melynek futási eredménye a 9. ábrán látható. Észrevehető, hogy a túlfűtés jelensége nem tűnt el, hiszen a maximális hőmérséklet jóval a fűtési érték felett van. Ez megfelel a várakozásinknak, hiszen a forrástag előtt álló koefficiensek így 10^{-17} nagyságrendbe esnek, mely elhanyagolhatónak tekinthető. A másik szembeutó jelenség pedig az, hogy ebben



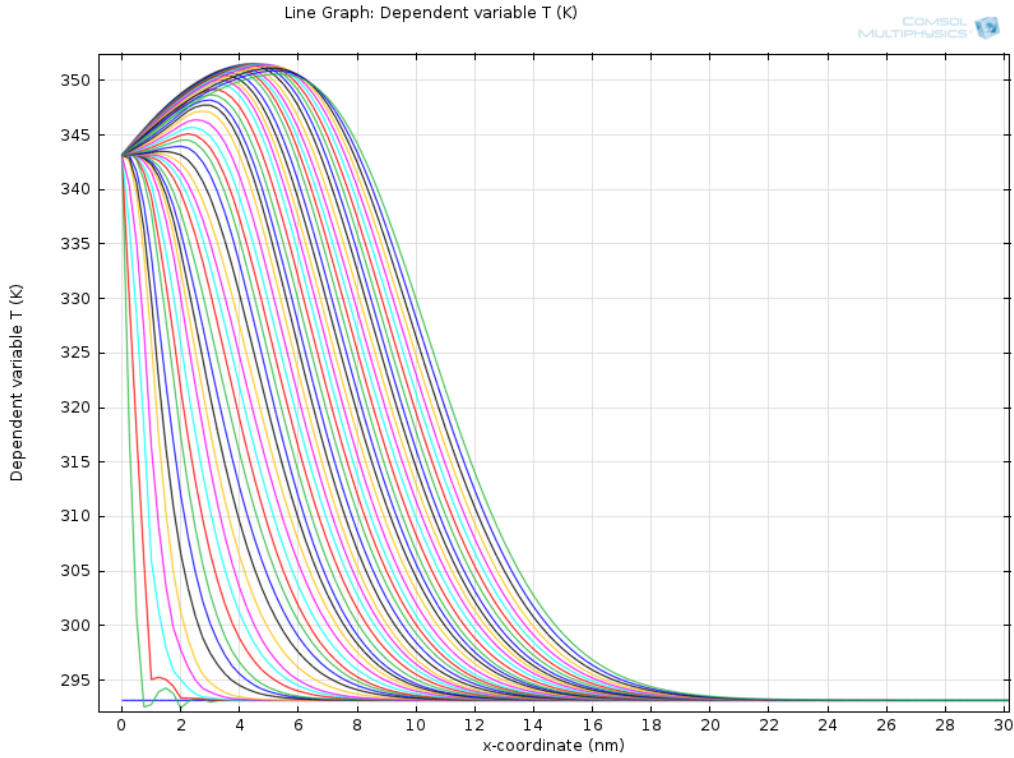
8. ábra. A hiperbolikus egyenlet és a kettős fáziskésés egyenletének összehasonlítása kis relaxációs idők esetén.

az esetben a szimulációs idő nem elég ahhoz, hogy a stacionárius állapot beálljon. Ennek oka, hogy ilyen kis relaxációs időknél a hő terjedésének sebessége nagyon lecsökken. A nagyobb relaxációs idővel számolva, elvárásaimnak megfelelően, a túlfűtés jelensége eltűnt, a 10. ábrán látható módon, tehát ez az egyenlet valóban jobban működik nano-rétegek hővezetésére vonatkozóan, mint az eddig megismertek.

Ezek után kerestem azt a τ_t értéket, ami határvonalként szolgál a két viselkedési forma között, tehát annonnan kezdve a forrástag már nem hanyagolható el és a futási eredmények a kettős fáziskésést reprezentálják. Ezt $\tau_t = 10^{-8}$ s-nál találtam meg, ahol a túlfűtés mértéke szemmel már észre sem vehető. Az adatok kiértékelése után vált nyilvánvalóvá, hogy ekkor a fűtési hőmérséklet (343.15 K) helyett, ennél 0.82 K-nel többet kapunk maximális értéknek. Elmondható tehát, hogy ezen érték fölött a hővezetés eddigi hibái kiküszöbölhetőek az új egyenlet használatával.

5. Hővezetési tényező

Az eddigi szimulációkban a hővezetési tényező értékét állandó anyagi paraméterként kezeltem, a valóságban azonban függvénye a hőmérsékletnek, szabad úthossz-



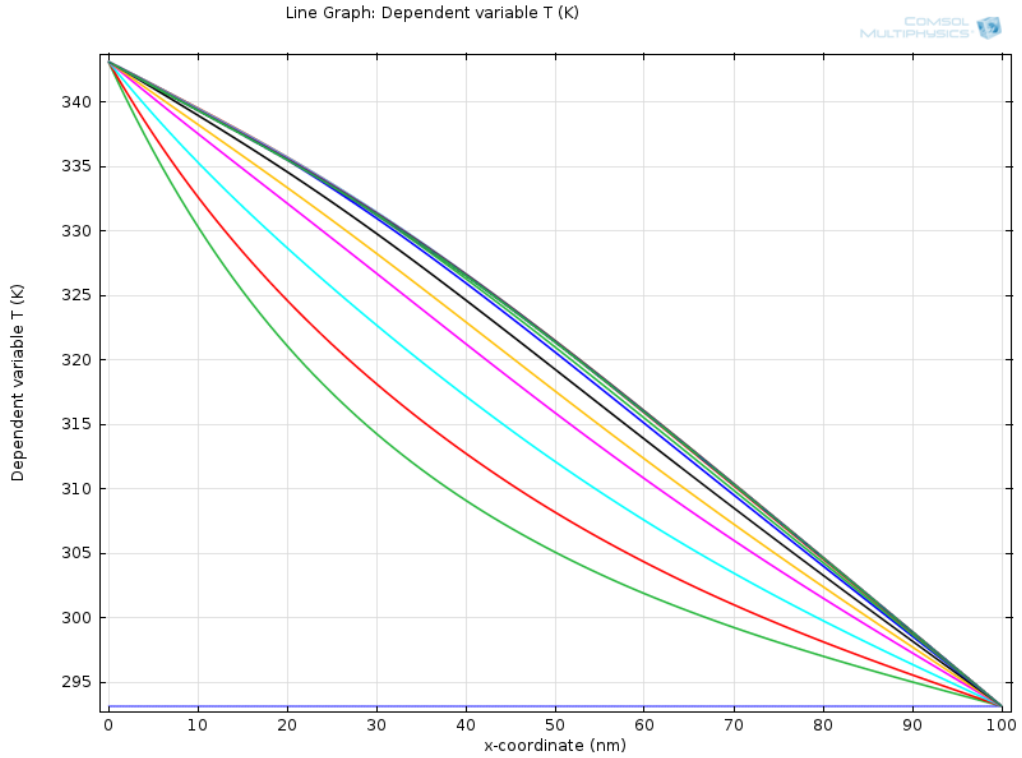
9. ábra. A kettős fáziskésés egyenletének szimulációs eredménye alacsony τ_t érték esetén

nak és a geometriának is. Ballisztikus és makroszkopikus tartományban a hőfluxus különbözőféleképpen írható fel, első esetben: $q = \Lambda \Delta T$, ahol Λ a hővezetéssel összefüggő koefficiens. Diffúzív transzport esetén pedig: $q = \lambda \Delta T / L$, ahol λ a hővezetési együttható, L pedig a rendszer mérete. A λ hővezetési együttható arányos a szabad úthosszal, míg Λ független attól. A fenti két egyenlet összevetéséből megállapítható, hogy a hőfluxus ballisztikus esetben csak a hőmérséklet-különbségtől függ, diffúzív esetben azonban a rendszer mérete is befolyásoló tényező. A két tartomány közötti átmenetet egy hőmérséklettől, szabad úthossztól és a rendszer méretétől függő hővezetési tényező adja meg [1]:

$$q = \lambda \left(T, \frac{l}{L} \right) \frac{\Delta T}{L}. \quad (10)$$

Ebben az egyenletben szereplő hővezetési tényező $l/L \rightarrow 0$ határértékben $\lambda(T)$ -t adja meg, $l/L \rightarrow \infty$ esetben pedig ΛL -t.

Megmutatható, hogy stacionárius állapotban, ahol a körfrekvencia zérus, lehetővé válik egy hullámszámfüggő hővezetési tényező bevezetése ($k = 2\pi/L$). Ekkor



10. ábra. A kettős fáziskésés egyenletének szimulációs eredménye magas τ_t érték esetén

megkapható a hővezetési tényező mérettől való függése [9]:

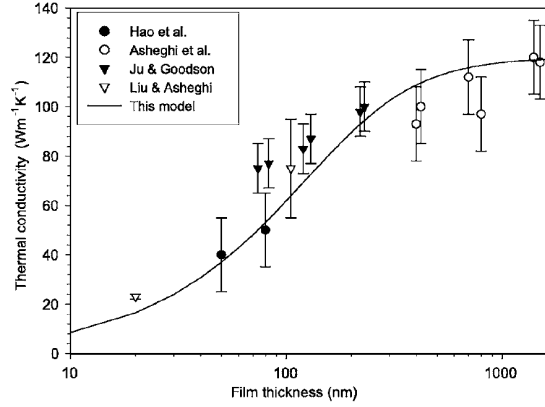
$$\lambda\left(T, \frac{l}{L}\right) = \frac{\lambda(T)L^2}{2\pi^2 l^2} \left(\sqrt{1 + 4\left(\frac{\pi l}{L}\right)^2} - 1 \right). \quad (11)$$

A minta méretének függvényében a (11) összefüggés szerinti hővezetési együttható, a kísérleti eredményekkel jól összevethetően, a 11. ábrán látható.

A grafikonon jól látszik, hogy a hővezetési tényező értéke telítésbe megy, így amikor a rendszer mérete sokkal nagyobb a szabad úthossznál, a hővezetési tényező többé már nem függ a mérettől, hanem a klasszikusan definiált értékhez tart. Amikor a méret csökkentésével elérjük a szabad úthossz közeli tartományt, illetve az alá megyünk, a hővezetési tényező csökkenni kezd, és 0 rétegvastagságnál 0-hoz tart.

Azonban a gyökös formula is csak egy közelítés, a hővezetési tényező pontos függése lánctörtes alakban adható meg:

$$\lambda(\omega, k) = \frac{\lambda(T)}{1 + i\omega\tau_1 + \frac{k^2 l_1^2}{1 + i\omega\tau_2 + \frac{k^2 l_2^2}{1 + i\omega\tau_3 + \frac{k^2 l_3^2}{1 + i\omega\tau_4 + \dots}}}}, \quad (12)$$



11. ábra. A szilícium hővezetési együtthatója a rétegvastagság függvényében [9]

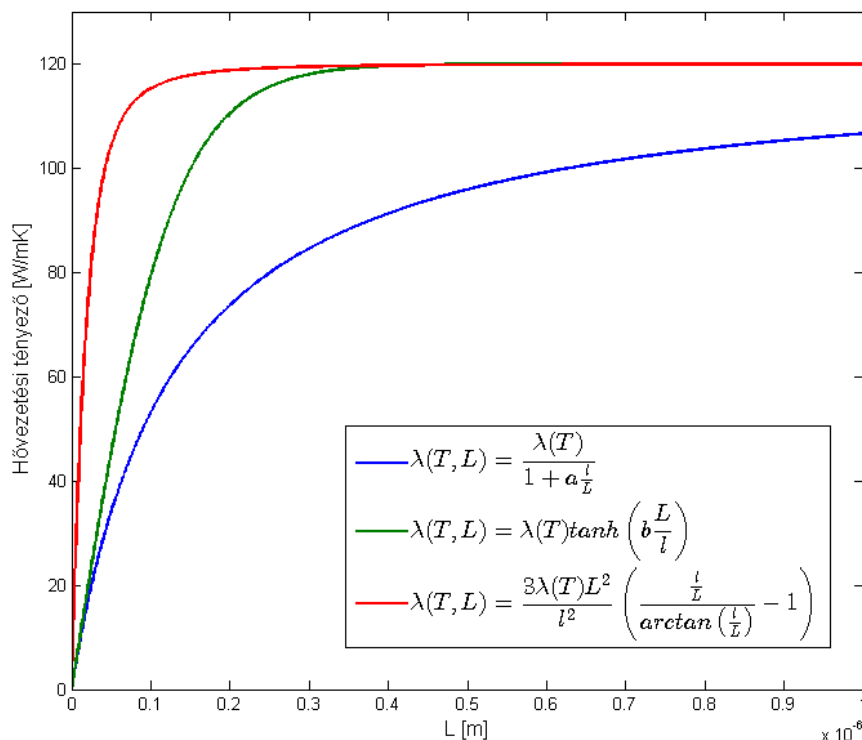
ahol ω a körfrekvencia, k a hullámszám, τ értékei a relaxációs időkre vonatkoznak, l -k pedig szabad úthosszakat jelölnek. Ebből a gyökös formulát megkaphatjuk, ha stacionárius állapotot tételezünk fel, azaz $\omega = 0$ és a szabad úthossz mindegyik rendjét azonosan $l/2$ -vel teszünk egyenlővé.

Az alkalmazott közelítések meglehetősen változatosak, a különböző cikkekben különböző értékeket adnak meg például a szabad úthossz különböző rendjeinek [10, 11]. Mivel a paraméter-seregre egyelőre nincs egyértelmű fizikai kritérium megfogalmazva, így ez egyben azt is lehetővé teszi, hogy azokat szabadon módosíthassuk a jobb egyezést eléréndő. Ezekből a különbözőségekből adódik, hogy a (11) formula érvényét veszti, és más képletekkel számolható a hővezetési együttható méretfüggése. Az irodalomban több lehetséges formula is felvetődött, de –meglepő módon– egyik esetben sem történt további vizsgálódás. Néhány ezekből a heurisztikus ötletekből, összehasonlító ábrával együtt (12. ábra):

$$\lambda\left(T, \frac{l}{L}\right) = \frac{\lambda(T)}{1 + a\frac{l}{L}}, \quad (13)$$

$$\lambda\left(T, \frac{l}{L}\right) = \lambda(T)\tanh\left(b\frac{L}{l}\right), \quad (14)$$

$$\lambda\left(T, \frac{l}{L}\right) = \frac{3\lambda(T)L^2}{l^2} \left(\frac{\frac{l}{L}}{\arctan\left(\frac{l}{L}\right)} - 1 \right). \quad (15)$$



12. ábra. A hővezetési együttható méretfüggése a különböző ötletek alapján. (A tömbi hővezetési tényező 120 W/mK , a szabad úthossz 40 nm , $a = \pi$, $b = 1/\pi$)

5.1. Új formula kialakításának alap gondolata

Tekintsünk egymás mellé helyezett rétegeket, és vizsgáljuk, hogy a rétegek saját hővezetési tényezője milyen kapcsolatban áll a rétegekből felépített rendszer hővezetési tényezőjével. Az nyilvánvaló, hogy a nagy rendszer a kis rétegekből felépíthető, így a hővezetési tényezőre is kell léteznie valamiféle additív szabálynak:

$$\lambda_{(A \oplus B) \oplus C} = \lambda_{A \oplus (B \oplus C)}.$$

Triviális, hogy az egyszerű összegzés nem megfelelő megoldás, mert nincs felső korlátja, miközben a tömbi anyag hővezetési tényezője egy véges érték. Így egy olyan függvényt kell találnunk, aminek van additív szabálya, és aminek a végtelenben véges értéke van. A további vizsgálódásaim oka, hogy a (11) egyenlet szerint leírt hővezetési együtthatóra semmiféle additív szabály nem érvényes. A kitűzött cél tehát egy olyan matematikai összefüggés felírása, mely a lánctörtes függvény menetét jól visszaadja, és ugyanakkor rendelkezik additív szabállyal.

Ezt a gondolatmenetet figyelembe véve a heurisztikus ötletek közül a (14) kiemelkedik, amelynek több oka is van:

- A \tanh függvény telítésbe megy, tehát az alakja megfelel a támasztott elvárásoknak. Nullában nullához tart, végtelenben pedig a megfelelő véges értéket vesz fel.
- Létezik additivitási szabálya:

$$\tanh(x + y) = \frac{\tanh(x) + \tanh(y)}{1 + \tanh(x)\tanh(y)}. \quad (16)$$

- Előállítható exponenciálisokból, melyet számítógéppel gyorsabban tudunk számolni, mint egy gyökös formulát, ezzel a műveletigény csökkenthető.
- Létezik lánctörtes alakja, így a (12)-es, közelítéseket még nem tartalmazó formulával összevethető. A \tanh függvény lánctörtes alakja [12]:

$$\tanh(x) = \frac{x}{1 + \frac{x^2}{3 + \frac{x^2}{5 + \dots}}}. \quad (17)$$

A felsorolt előnyös tulajdonságok késztettek arra, hogy a hővezetési tényező (12) formuláját úgy alakítsam és olyan közelítéseket alkalmazzak, ami a $\tanh(x)$ függvényhez a lehető legközelebb visz. Így a megálmodott hővezetési tényező az alábbi alakban írható fel:

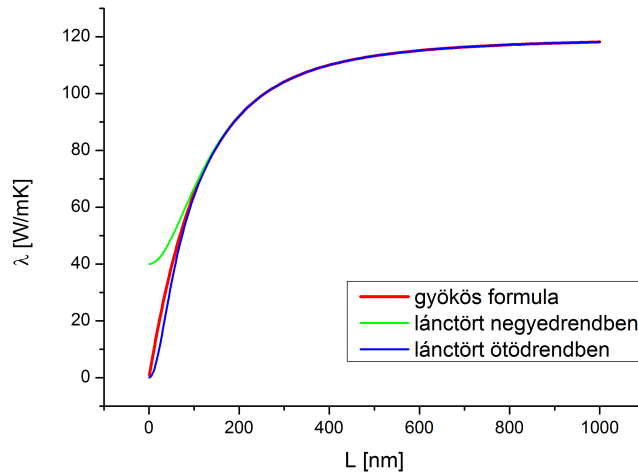
$$\lambda(T, \frac{l}{L}) = \lambda_0(T)\tanh\left(\frac{L}{l\pi}\right). \quad (18)$$

A továbbiakban szobahőmérsékletet tételezek fel, így a hőmérséklettől való függés elhanyagolható. A tömbi hővezetési együttható értéke 120 W/mK , a szabad úthossz pedig 40 nm (szilícium).

5.2. Lehetséges közelítések vizsgálata

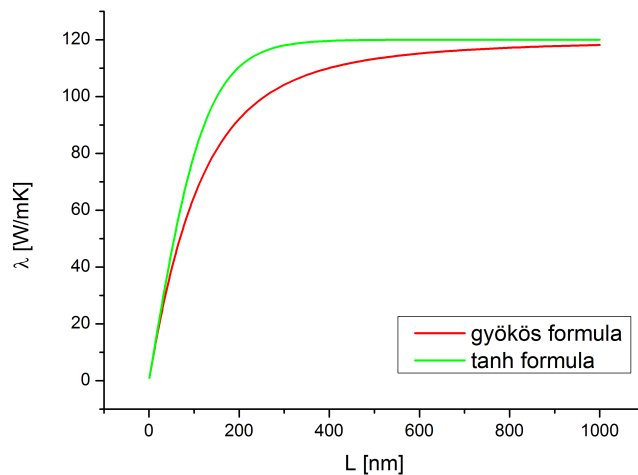
A vizsgálódást annak összehasonlításával kezdtem, hogy az elérni kívánt kifejezés mennyiben tér el a gyökös formulától, illetve egyszerűbb szimulációkat lefuttatva, mekkora különbségek adódnak a hőmérsékletprofilban. Ezzel képet kaphattam arról, hogy mennyire voltak jogosak a használt egyszerűsítő feltételezések. A lánctörtet egyre magasabb rendekig számoltam, és azt tapasztaltam, hogy a páros számú rendek nem adnak megfelelő függvénymenetet, hiszen zérusban véges hővezetési együtthatóhoz vezetnek, mely a fizikai képünkkel ellentmond. Így a továbbiakban a páratlan rendeket veszem csak számításba. A lánctörtet már ötödik rendben számolva,

a gyökös formulához nagyon közeli eredmény adódott (13. ábra). Növelve a rendek számát, nyilván közelebb kerülünk a görbéhez, de a számítási idő radikálisan nőni kezd, így az ötödik rend egy jó kompromisszum a pontosság és a számolási gyorsaság között.



13. ábra. A lánctörtes formula összehasonlítása a gyökös képlettel.

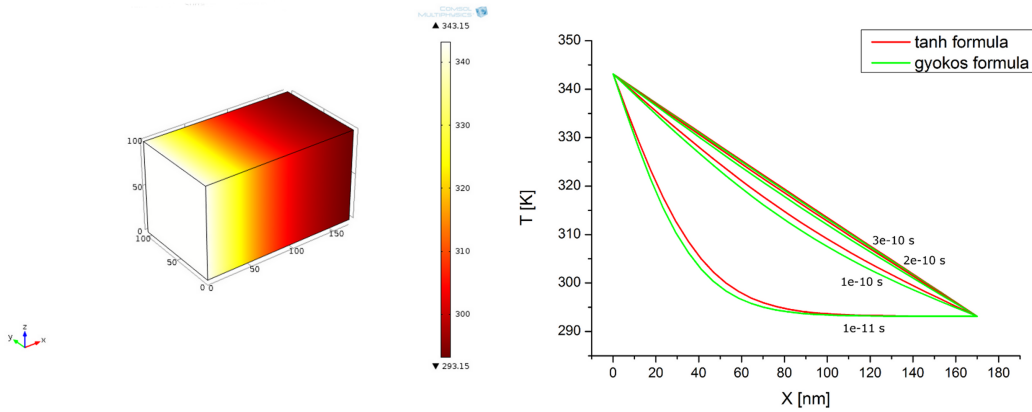
Ezután a gyökös képletet vettem össze a tanh-s formulával (14. ábra).



14. ábra. A tanh és gyökös formula összehasonlítása

Azért, hogy az is láthatóvá váljon, hogy ez a különbség a kialakuló hőmérsékletekben mekkora eltérést okoz, számítógépes szimulációkat végeztem. Mivel a két

görbe közötti eltérés 170 nm-nél volt maximális, így egy ilyen méretű téglatest alakú geometriát használtam a szimulációknál. Az X koordináta irányában melegítettem a testet, a másik két irányban termikusan szigeteltem. A geometria nagyon kis mérete miatt a hőterjedés első $6 \cdot 10^{-11}$ s-t vizsgáltam. Mindkét hővezetési együtthatóval elvégeztem a számolásokat, majd négy időpillanatot kiválasztva ábrázoltam az aktuális hőmérsékleti profilokat (15. ábra). Az eredményekből jól látszódik, hogy a kialakuló hőmérsékletprofilban csak csekély eltérések vannak. A legnagyobb különbséget $1 \cdot 10^{-11}$ s-nál találtam, mindössze 2.33 K, ami 0.68 százalékos eltérést jelent. A két különböző hővezetési együtthatóval számolva majdnem azonos hőmérsékleti eloszlás alakul ki, tehát a tanh formula bevezetésére és alkalmazására nincs fizikai akadály, így megkezdhető a lánc törtes formula alakítása a megfelelő közelítésekkel.



15. ábra. Bal oldalon: A geometriában kialakult hőmérséklet eloszlás. Jobb oldalon: Pillanatnyi hőmérséklet eloszlások összehasonlítása.

A lánc törtes formula képletében a szabad úthossznak különböző rendjei szerepeltek. Ezeket a rendeket a hivatkozott cikkekben különböző alakokban adták meg. Volt olyan cikk, ahol minden rendet azonosan $l/2$ -nek választották [9]. Más cikkben a szabad úthosszal egyenlő minden rend [11], vagy éppen a szabad úthossz negyedével [10]. Előfordultak olyan közelítések is, ahol a különböző rendeket valamilyen rekurzív formulával adták meg, ilyenek a [10]-beli rekurzív:

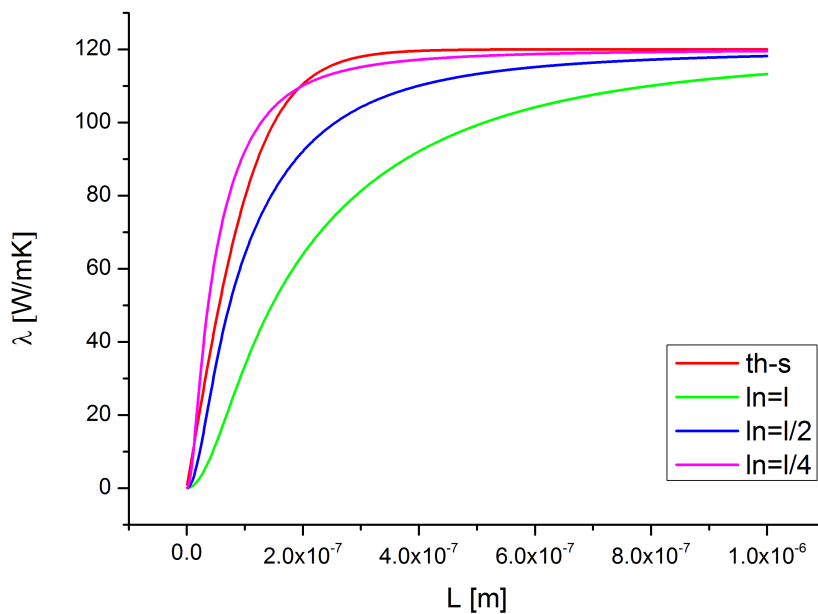
$$l_n^2 = \alpha_{n+1} l^2, \text{ ahol } \alpha_{n+1} = n^2 [(2n+1) \cdot (2n-1)]^{-1}$$

és a [13]-beli Hess-féle rekurzív:

$$l_n^2 = a_n l^2, \text{ ahol } a_n = \frac{n^2}{(2n+1)(2n-1)} \frac{\omega_1^2}{\omega_{n-1} \omega_n}$$

összefüggések.

Ezek a különbségek vezettek oda, hogy érdemes vizsgálni a görbe menetének szabad úthossztól való függését. Először olyan struktúrákat vizsgáltam, ahol azonosak az egyes rendek. Az említett irodalomban az l , $l/2$ és $l/4$ értékeket vették a közelítések alapjául, így azt vizsgáltam, hogy ezen szabad úthossz paraméterek mellett a görbe mennyire közelíti meg a kívánt tanh görbét. A lánctörteket ezeknél a számolásoknál is ötödrendig közelítettem, és az értékeit egy általam írt Matlab kóddal számoltattam. Az eredmények a 16. ábrán foglalhatók össze.

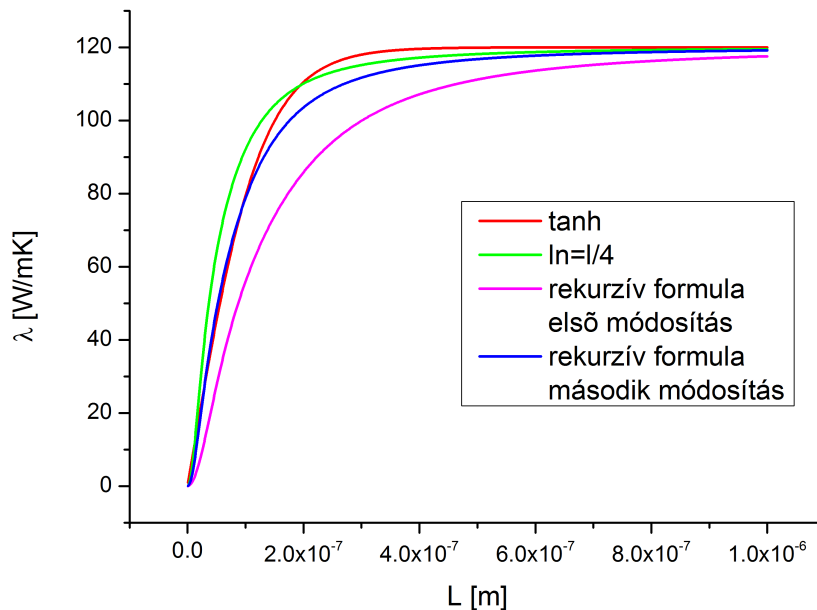


16. ábra. A különböző szabad úthossz értékekkel számolt görbék menete a tanh görbéhez képest

Az ábráról leolvasható, hogy a tanh görbénkhez az $l_n = l/4$ képlettel számolt hővezetési együttható van a legközelebb. Bár a feldolgozott irodalomban, ennél alacsonyabb értékeket nem említettek, megnéztem, hogy javítható-e az egybeesés ha pl. $l_n = l/5$. Ezekben az esetekben szintén távolabb kerültünk a görbétől, így a további vizsgálódások alapjául az $l/4$ szabad úthossz értéket vehettem.

Ezután eltekintettem attól a közelítéstől, hogy a szabad úthossz egyes rendjei azonosak, tehát a rekurzív formulák vizsgálata felé vettem az irányt. Az első említett rekurzív formulával azonnal problémába ütköztem. Ha α_1 értékét szerettem

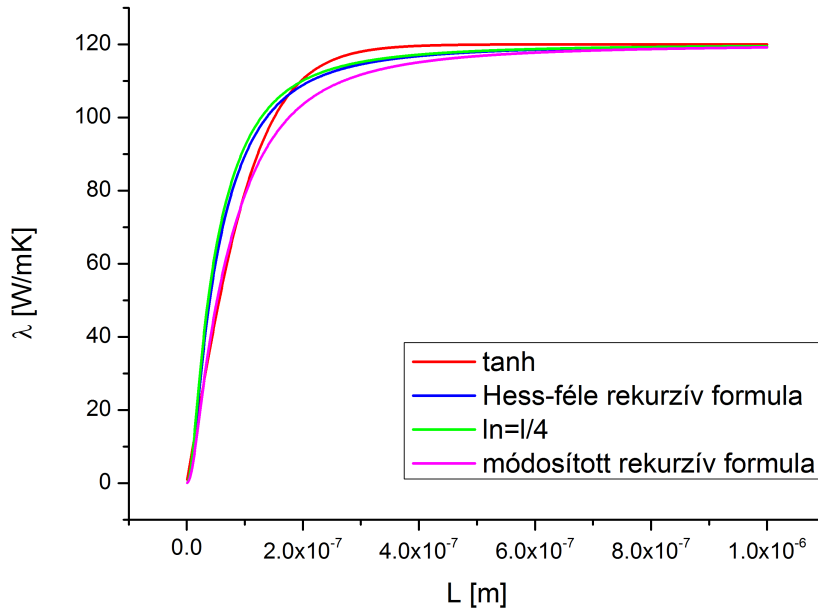
volna megkapni, akkor a képletbe az $n=0$ értéket kell behelyettesíteni, akkor azonban α_1 értékére zérus adódik, ami zérus hővezetési tényezőhöz vezetne. Ez nyilvánvalóan rossz megoldás. Vélhetően a cikkben elírás történt, és a rekurzív formulában az n -ed rendű együtthatót nem az előző rend $(n-1)$ értékeiből, hanem az adott rend n értékéből számoljuk. Ezzel a zérus érték kizárható. Az irodalomban nem találtam arra semmiféle utalást vagy javítást, hogy a képlet hogyan lenne érvényes. Ha a rekurzív formulában még egy apró módosítást is végrehajtunk, akkor a tanh görbéhez még közelebb kerülhetünk. Az említett módosítás pedig az, hogy az α_n együtthatónak is a négyzetét szerepeltetjük a képletben. Ezekkel a képletekkel is elvégeztem az összehasonlításokat, melynek eredményét a 17. ábra mutatja.



17. ábra. A rekurzív formula módosításainak összehasonlítása a tanh görbével és az $l/4$ szabad úthosszal számolt görbével

Ezután [13] cikkben szereplő rekurzív formulát vizsgáltam, azzal a közelítéssel, hogy a körfrekvenciás tagot elhanyagoltam. Összehasonlításképpen egy grafikonon (18. ábra) ábrázoltam az eddigi eredmények közül azokat, amelyek a tanh görbénket a legjobban megközelítik.

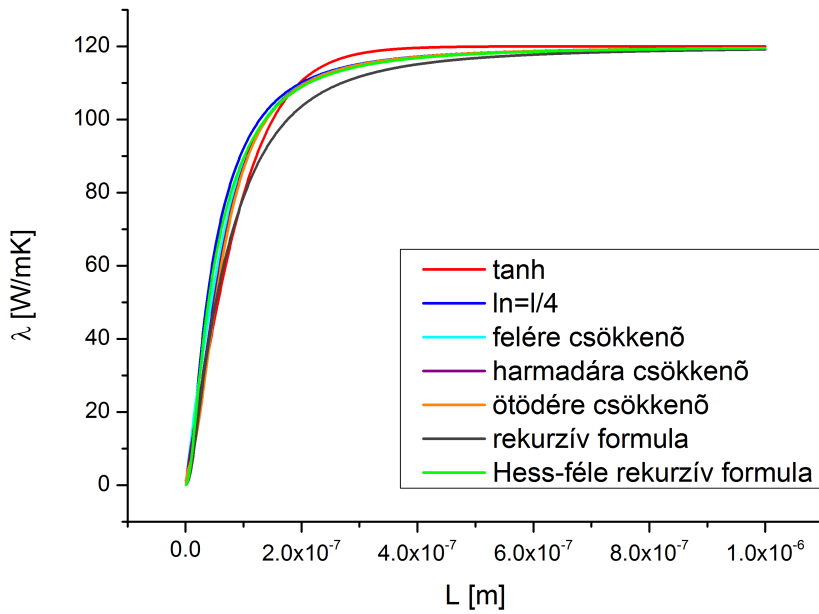
Ezek a görbék már kielégítően közel kerülnek a kívánt tanh formulával számolt hővezetési együtthatóhoz, de a rekurzív formulák ötletén felbuzdulva további képletekkel próbálkoztam, hogy még az eddiginél is pontosabb egyezést érhessek el. Olyan



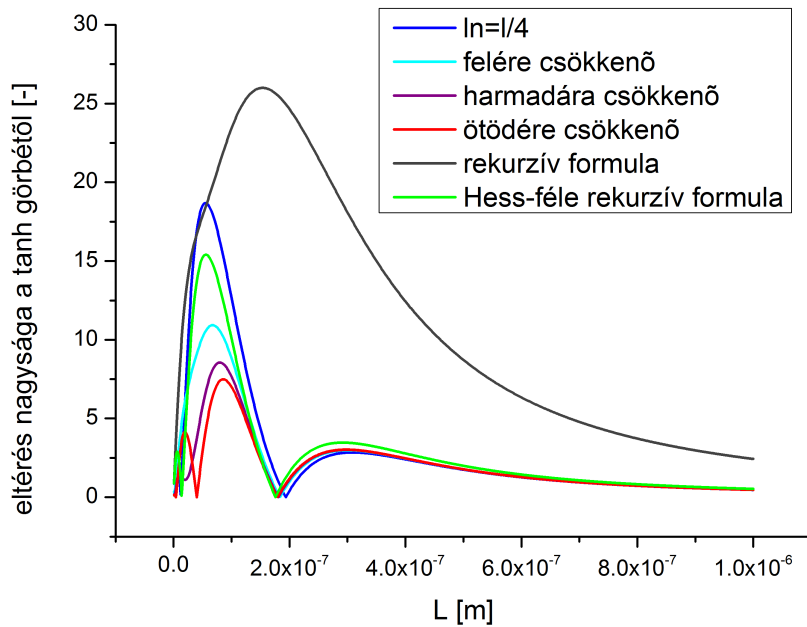
18. ábra. Az eddigi legjobb közelítések összehasonlítása

formulákat vizsgáltam, ahol az egymást követő szabad úthosszak mindig azonos hányadukra csökkennek. Mivel a legjobb egyezést az $l_n = l/4$ értéknél kaptuk, így a szabad úthossz első rendjét ezzel az értékkel feleltettem meg. A további rendeket többféleképpen számoltam: minden rend az előző rend felére, harmadára, ötödére csökken. Ezeket szintén ábrázoltam a tanh függvénnyel összevetve, az előző formulákat is az ábrán hagyva (19. ábra).

Az ábráról szemrevételezéssel elég nehéz lenne megmondani, hogy melyik az a formula, mely a tanh görbéhez legközelebbi görbét produkálja, hiszen nagyon közel vannak egymáshoz. Ezért minden pontban kiszámoltam a tanh görbétől való eltérésüket, vettem ezek abszolút értékét és ábrázoltam egy grafikonon (20. ábra). Leolvasható, hogy a módosított rekurzív formula van legtávolabb az elérni kívánt tanh görbétől, az eltérése minden tartományon jóval a többi görbe eltérésén felül van. A többi görbe azonos mértékben tér el a tanh-tól a 200 nm feletti tartományon. Ezért a kiválasztásomat az fogja megszabni, hogy melyik képlettel számolt görbéhez tartozik a legkisebb eltérés 200 nm alatt. Eredményül azt kaptam, hogy a tanh görbét legjobban azzal a formulával számolt hővezetési együttható közelíti meg, melyben a szabad úthossz különböző rendjei az $l/4$ értékről indulva minden lépésben az ötödére csökkennek.



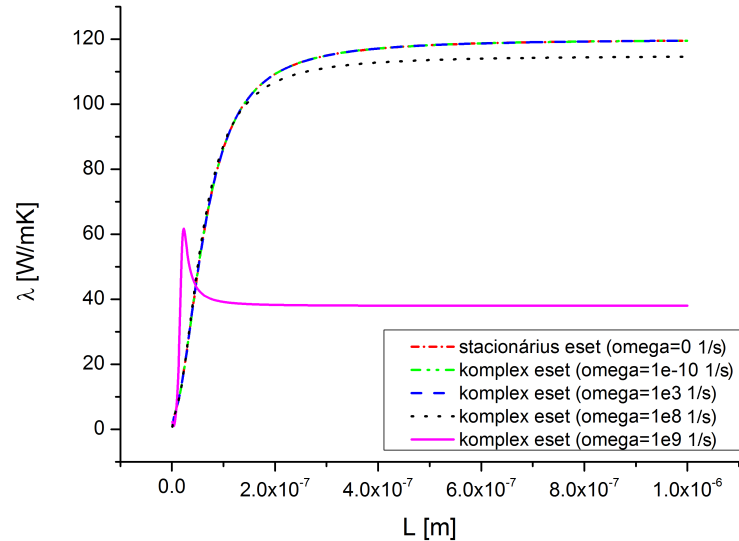
19. ábra. A hat legjobb közelítés összehasonlítása



20. ábra. A hat legjobb közelítés tanh görbétől való eltérésének az összehasonlítása

A (11) formula előállításához, a korábbiakban említetteknek megfelelően, két közelítést használtak az irodalomban. Az elsőt, melyben a szabad úthossz különböző

rendjeire vonatkozott, az előzőekben vizsgáltam, így már csak azt kell ellenőriznem, hogy helyes-e stacionárius esetet venni és a komplex tagokat elhanyagolni a lánc törtes formulából. Ahhoz, hogy a körfrekvencia függvényében tudjam vizsgálni a hővezetési együtthatót, a relaxációs idő (τ) értékéről kellene, hogy információval rendelkezni. A dolgozatom első részében a hővezetés egyenleteit tanulmányozva, a relaxációs idő értékét $3 \cdot 10^{-9}$ s-nak becsültem, így jelen számolásokba is ez az érték kerül behelyettesítésre. A frekvencia értékéről semmilyen információnk sincsen, így azt széles határok között módosítottam és megfigyeltem, hogyan hat ez a változtatás a görbe alakjára.



21. ábra. A körfrekvencia változtatásának hatása a hővezetési együttható értékeire.

A 21. ábrán látható a számolt eredmény. Ha a frekvencia értékét csökkenteni kezdtem, akkor nem kaptam eltérést az $\omega = 0$ görbétől, egyre közelebb kerülünk a stacionárius állapothoz (hiszen egyre csökkenő frekvencia szorozódik az amúgy is kicsi relaxációs idővel, így egyre kisebb számot kapunk). Így a frekvencia értékének növelésével kialakult hővezetési tényező vizsgálata felé vettem az irányt. A körfrekvencia értékét 10^7 1/s-ig változtattam és nemhogy szignifikáns, de semmilyen eltérést nem tapasztaltam a stacionárius esettől. Elvégeztem a számolásokat még tágabb határok között, azt tapasztaltam, hogy egy nagyságrenddel növelve az értékét (10^8 1/s), a 200 nm-s tartomány fölött négy százalékos eltérés tapasztalható, ekkor a görbe telítési értéke nem 120 W/mK , hanem annál 4.88 W/mK -nel kevesebb. Ha nagyságrendileg még egyet léptem felfelé (10^9 1/s), akkor az eddigiektől eltérő alakú görbét

kaptam, amelyben egy hirtelen kezdeti felugrás után konstans 40 W/mK a hővezetési tényező értéke erre a módusra. Több nagyságrenddel növelve még a frekvenciát, a kezdeti kiugrás eltűnik és egy elejétől kezdve konstans 40 W/mK értéket kapunk. Ezen frekvenciás fononok járuléka nem jelentős a hővezetésben, olyan kis számban vannak jelen, hogy hatásuk kiátlagolódik. A nagyfrekvenciás fononok hővezetésben játszott szerepének megértéséhez további diszkusszióra volna szükség, mely jelen dolgozatnak nem témája. A kis hányaduk miatt jogosnak találtam azt a közelítést, hogy a komplex tagok elhanyagolhatók a képletből.

5.3. Összehasonlítás a mérési eredményekkel

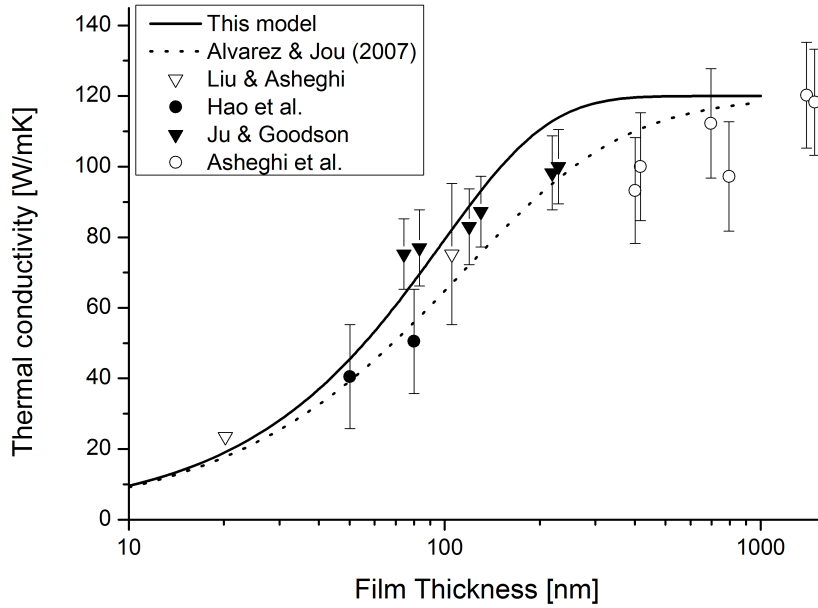
Az előző elgondolások alapján az általam helyesnek ítélt hővezetési tényező az alábbi alakot ölti:

$$\lambda(l, L) = \frac{120}{1 + \frac{k^2 l_0^2}{1 + \frac{k^2 l_1^2}{1 + \frac{k^2 l_2^2}{1 + \dots}}}} \quad , \quad (19)$$

ahol $l_0 = l/4$ és $l_n = l_{n-1}/5$

A formula helyességének ellenőrzésében az utolsó pontot a mérési eredményekkel való összevetés jelentette. A mérési pontokat a 11. ábra adta. Az ezen a grafikonon feldolgozott irodalmat és mérési eredményeket igyekeztem összegyűjteni [14, 15, 16], de az említett cikkek mért adatokat nem tartalmaztak, csak ábrákat, így azokat kénytelenek voltam a grafikonokról leolvasni. A legpontosabb leolvasást úgy érhettem el, hogy a képről pixelenként olvastam le a mérési pontokat és azok hibáját. A leolvasás során figyelni kellett arra, hogy a méret az ábrán logaritmikus skálán van megadva. A pixelek nanométerrre való átkonvertálása után már a saját görbém is illeszteni tudtam a grafikonra, melyen a szaggatott vonal a gyökös formulával vett értékeket, a vastag vonal pedig az általam vizsgált tanh görbét jelzi.

Az ábráról leolvasható, hogy a két görbe különböző mérési tartományon illeszkedik jól a mérési pontokra. Az összes mérési ponttól való eltérésük, azaz, hogy hány pontot nem érintenek mérési hibán belül sem, megegyezik. A mérési eredmények viszonylag nagy hibáját az okozta, hogy a szilícium kristály termikus hővezetése érzékeny a hibahelyek számával szemben, melyek kontrollálatlanul keletkezhetnek a feldolgozási folyamatok alatt.



22. ábra. A tanh függvény összevetése a mérési eredményekkel.

6. Összefoglalás

Dolgozatomban vizsgáltam a nano-rétegek hővezetését leíró egyenletek elméleti háttérét, fizikai valóság alapját ill. érvényességi köreiket. A valóságot legpontosabban leíró modellnek a kettős fáziskésést tartalmazó bizonyult, ahol a hőfluxus és a hőmérsékletgradiens is egy saját relaxációs idővel jellemezhető. Ezzel a feltétellel már kiküszöbölhetőek a hiperbolikus egyenletben szereplő hiányosságok. Ezután a hővezetési tényező vizsgálatának folyamatát mutattam be, mely végén sikerült egy olyan képlettel leírni a koefficiens, ami a valóságot ugyanolyan jól leírja, mint az eddig alkalmazott összefüggések, azonban van egy nagy előnye, az additivitás. Ennek megértése legkönnyebben egy példán keresztül szemléltethető: Képzeljük el azt az esetet, hogy egy 5 nm-s rétegen akarunk hővezetési együtthatót vagy hőmérsékletet mérni. Ilyen kis méretben a klasszikus mérések nem alkalmazhatók viszont az összeadási szabályt kihasználva ezen réteg hővezetése is mérhetővé válik. Elegendő pl. egy 100 és 105 nm vastagságú réteget mérni és a tanh függvény additivitási szabályából adódik az 5 nm-es szelet koefficiense. Ezen eredményeimből cikket is írtam, melyet a Elsevier kiadó Thin Solid Films című folyóiratába nyújtottam be és jelenleg a bírálati fázisban tart.

Hivatkozások

- [1] G. Lebon, D. Jou, J. Casas-Vázquez, *Understanding Non-equilibrium Thermodynamics* (Springer, Berlin, Heidelberg, 2008)
- [2] D. Jou, J. Casas-Vázquez, G. Lebon, *Extended Irreversible Thermodynamics* (Springer, Berlin, Heidelberg, 1993, 1996, 2001)
- [3] G. Chen *Ballistic-diffusive Heat-Conduction Equations*, Phys. Rev. Lett. **86**, 2297 (2001)
- [4] F. X. Alvarez, D. Jou *Boundary Conditions and Evolution of Ballistic Heat Transport*, Journal of Heat Transfer, **132**, 012404-1 (2010)
- [5] D. Y. Tzou *A unified approach for heat conduction from macro to micro-scales*, J. Heat Transfer **117**, 8-16 (1995)
- [6] R. Quintanilla, R. Racke *A note stability in dual-phase-lag heat conduction*, Int. J. Heat and Mass Transfer, **49**, 1209-1213 (2006)
- [7] M. Xu, L. Wang *Dual-phase-lagging heat conduction based on Boltzmann transport equation* Int.J. Heat and Mass **48** 5616-5624 (2005)
- [8] Györy Erika *Határfelület és méret által kontrollált transzportjelenségek számítógépes modellezése*, Szakdolgozat, BME (2012)
- [9] F.X. Alvarez, D.Jou *Memory and nonlocal effects in heat transport: From diffusive to ballistic regimes*, Appl. Phys. Lett. **90**, 083109 (2007)
- [10] D. Jou, J. Casas-Vázquez, G. Lebon, M. Grmela *A phenomenological scaling approach for heat transport in nano-systems*, Appl. Math. Lett. **18**, 963-967 (2005)
- [11] F.X. Alvarez, D. Jou *Size and frequency dependence of effective thermal conductivity in nanosystems*, J. Appl. Phys. **103**, 094321 (2008)
- [12] <http://functions.wolfram.com/ElementaryFunctions/Tanh/introductions/Tanh/ShowAll.html>
- [13] S. Hess *On nonlocal constitutive relations, continued fraction expansions for the wave vector dependent diffusion coefficient*, Z. Naturforsch., **32.a**, 678-684 (1977)

- [14] Y. S. Ju, K. E. Goodson *Phonon scattering in silicon films with thickness of order 100 nm*, Appl. Phys. Lett **74**, 3005 (1999)
- [15] M. Asheghi, Y. K. Leung, S. S. Wong, K. E. Goodson *Phonon-boundary scattering in thin silicon layers*, Appl. Phys. Lett **71** 1798-1800 (1997)
- [16] M. Asheghi, K. Kurabayashi, R. Kasnavi, K. E. Goodson *Thermal conduction in doped single-crystal silicon films*, J. Appl. Phys. **91**, 5079 (2002)