

超晶格结构对铝硅界面热阻的影响

臧毅 马登科 杨诺*

(华中科技大学能源与动力工程学院, 湖北省武汉市珞瑜路 1037 号 邮编 430074)

(Email: nuo@hust.edu.cn)

摘要: 近年来, 提高微纳电子器件的散热和原子尺度界面热输运受到了广泛的关注, 很重要的原因是界面热阻导致的微纳电子器件发热制约了性能的稳定性。因此, 我们提出利用超晶格结构来降低界面热阻的方法。本文采用非平衡分子动力学模拟的方法, 研究了室温 (300K) 下硅同位素超晶格结构对铝硅界面热阻的影响。计算结果表明利用硅超晶格结构可以明显地降低铝硅界面热阻。并且对结果给予了讨论, 这有助于更好地理解界面传热的机制。

关键词: 分子动力学 界面热阻 超晶格 硅 铝

Abstract: In recent years, improving the micro/nano electronic devices heat dissipation and the thermal transport properties of the material interfaces has become a widespread concern. The important reason is that the thermal interfacial resistance results in the micro/nano electronic devices heating, which restricts the devices' performance. So we propose a method to decrease the thermal interface resistance by using superlattice structure. In this paper, the thermal interface resistance between Al and Si superlattice was simulated by a non-equilibrium molecular dynamics method. Our results show that using Si superlattice can decrease the thermal interface resistance obviously. And we also give some theory analysis, it is better for us to understand the mechanism of the interfacial heat transfer.

Keywords: Non-equilibrium molecular dynamics, Thermal interface resistance, Superlattice, Silicon, Aluminum

0 前言

材料间的界面, 在决定整体物理性能方面, 起着重要作用。比如, 我们可以利用晶体边界^[1], 异质结^[2]及聚合物^[3]等结构调制器件的热特性与机械性能。因此, 深入理解界面间热输运的物理机制, 对于提高电子器件及设备的性能尤为重要。例如, 集成芯片广泛应用于手机、电脑等生活必备的电子产品中, 因此加强其散热性能对于这些电子设备的使用功效尤为重要。

声子 (晶格振动) 是半导体中主要的热输运载体, 热量在不同材料间输运时, 会在界面处产生额外的声子的散射, 阻碍能量的传输。^[4]额外的 Kapitza 热阻^[5], 在提高纳米电子器件热输运方面, 将会产生大量的挑战。为了应对这些挑战, 研究者们给出了两种可行的方法, 分别是在界面处额外增加纳米尺度厚的薄层^[6, 7]以及调整界面粗糙度^[8-11]。实验结果表明界面热阻会随着界面粗糙度的增加而增加。^[8, 10]与此同时, 在理论方面, 也有一些计算界面热阻的理论模型, 包括声学失配模型 (AMM) ^[12, 13]和漫散射失配模

型 (DMM)^[12]。然而, 这些模型都有一定的限制条件, AMM 假定声子在界面处发生镜面反射和折射, 所以仅适用于长波长声子, 而 DMM 假定声子在界面处全部发生漫散射。

近年来, 分子动力学 (Molecular Dynamics, MD) 模拟成为研究界面结构传热的主要手段, 并且发现界面热阻与界面处层厚及层间原子组态有关。^[14-18]Stevens 等研究者用非平衡分子动力学 (Non-equilibrium Molecular Dynamics, NEMD) 研究了 LJ 势能结合的界面中, 缺陷及原子混杂对界面热阻的影响。^[19]Peter 等研究者利用分子动力学证实他们的实验发现, 在界面间加入有机纳米分子层强化界面间分子作用力, 可以有效地降低界面热阻。^[6]Wang 等在分子动力学模拟中引入电声相互作用, 计算出了室温下 Cu/Si 的界面热阻约为 $2.5\text{GW}^{-1}\text{m}^2\text{K}$, 这比其它没有包括电子-声子耦合过程的 MD 计算 ($\sim 2.22\text{GW}^{-1}\text{m}^2\text{K}$) 更加接近实验测量值。^[20]然而, 在界面区域声子如何相互作用仍然不清楚。因此, 设计一种可以明显降低界面热阻的结构, 以及充分理解界面区域内声子运输的机制, 是界面热运输方面的一大挑战。有研究者提出质量梯度界面 (MGI), 其研究结果表明这种结构可以明显降低界面热阻。^[21]说明通过改变原子质量可以调控界面处声子热运输。

本文提出利用硅超晶格结构来降低铝硅界面热阻。通过非平衡分子动力学模拟, 计算了超晶格硅与铝界面结构的热阻。研究了超晶格周期长度和掺杂原子质量对界面热阻的影响, 并基于理论模型, 对结果给出了分析。本文首先介绍如何通过 NEMD 方法模拟铝硅超晶格界面结构。第二部分, 对模拟结果进行一定分析和讨论; 第三部分是结论。

1 模拟方法及模型

1.1 非平衡分子动力学模拟

分子动力学模拟一般包括平衡分子动力学 (Equilibrium Molecular Dynamics, EMD) 和非平衡分子动力学。EMD 不需要加入温度梯度, 而是基于 Green-Kubo 公式来计算得到相关热学参数, 因此无需热源和冷源, 只需让系统保持在平衡态即可。NEMD 的模拟过程需要在体系两端引入不同温度的热浴, 分别作为热源和冷源, 建立起温度梯度, 通过足够长的时间演化, 使系统达到稳态, 最后根据记录得到的热流和温度梯度即可求得界面热阻。本文采用 NEMD 的方法计算超晶格硅与铝界面热阻。因为计算这种界面结构, 外加热源形成温度梯度可以更好地得到计算结果。

本文采用 2NN MEAM 势函数描述原子间的相互作用。因为 2NN MEAM 势函数可以广泛地应用于体心立方, 面心立方及密排六方的晶格结构。^[22, 23]同时, 2NN MEAM 包含较长程的原子相互作用力, 次近邻原子的影响也纳入计算, 相比于 MEAM 及 SW^[24] 势函数可以更加准确的描述界面能以及界面的弛豫过程。

模拟计算使用 Fortran 编写的程序, 通过 Velocity Verlet 算法^[25]对牛顿运动方程进行时间演化。在计算之前, 对结构进行了充分的弛豫过程。系统在微正则系综(NVE)下运行 20ps, 使原子充分运动释放界面能。随后 20ps, 利用 Nosé-Hoover 热浴^[26]将原子加热至 300K, 然后在采集数据之前继续保持 60ps。模拟的时间步长取为 1fs。

在垂直于界面方向, 通过在界面两侧引入温度不同的热浴, 建立起温度梯度。如图 1 所示, 铝中红色阴影部分代表引入的高温热源, 硅中蓝色阴影部分代表引入的低温热源。模拟时间需要设置的足够长使得系统能够达到稳态, 这个过程需要 0.524ns。当温

度分布稳定后，开始沿垂直界面的方向记录每层原子的温度 ($T=\sum m_i v_i^2/2$) 和热流 J 。热学量在随后的 2.2ns 过程中进行平均。模拟结束后，通过所得到的温度梯度，可以计算出界面温差，进而求得界面热阻。

界面热阻 R 定义为：

$$R = \frac{A \cdot \Delta T}{J} \quad (1)$$

其中 ΔT 为界面温差， A 为界面的截面积。

跨界面热流的计算：

$$J = \frac{1}{N_t} \sum_{i=1}^{N_t} \frac{\Delta \varepsilon_i}{2\Delta t} \quad (2)$$

其中 $\Delta \varepsilon$ 为在每个时间步长 Δt 中从热源中进入/流出系统的能量。 N_t 为开始采集数据起的步数。

1.2 计算模型

硅超晶格与铝界面结构如图 1 所示，构建了“三明治”形结构。本文研究在[100]晶向的 Al/Si 界面热阻。为了界面面积失配最小，依据铝硅的晶格常数 0.407nm(Al)及 0.543nm (Si)，铝硅晶胞数分别选取 8×8 及 6×6，在长度方向，即[100]晶向选取铝晶胞数 20，硅晶胞数 15。本文中，仅就这一尺寸（即 Al 8×8×20，硅 6×6×15）进行研究。

图 1 所示，我们利用硅的同位素构建了硅超晶格结构，中间部分（紫色原子）代表 Al；两侧是硅超晶格结构，其中黄色原子指 ^{28}Si ，绿色原子指 Si 的同位素。整层 ^{28}Si 与整层 Si 的同位素所构成的结构代表硅超晶格结构的一个周期，图中所显示的周期是由 8 层原子所构成的，分别包含 4 层 ^{28}Si 及 4 层 ^{28}Si 的同位素。

本文中，通过改变超晶格结构的周期长度以及构建硅超晶格结构的硅同位素质量，来研究硅超晶格与铝结构的界面热阻。本文中，我们分别选取 4 层、8 层及 14 层硅作为一个超晶格周期进行研究；构建超晶格结构硅的同位素的相对原子质量分别选取了 29、30、32、34、36、42、56 及 72。模拟过程中在 xyz 三个维度均采用周期性边界条件。

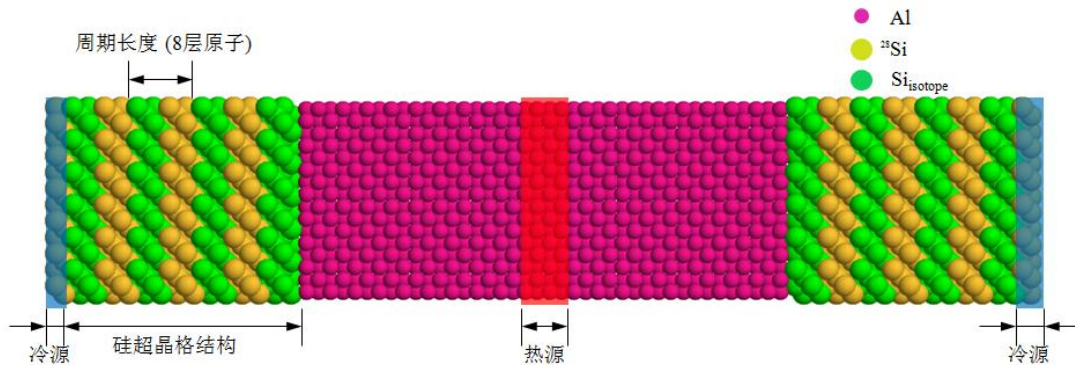


图 1 硅超晶格与铝界面结构

2 模拟结果及分析

图 2 给出了模拟结束后，硅超晶格与铝界面结构的典型温度分布。从图中发现，在界面区域，温度变化较大，这主要是由原子的无序排列所造成的。因此，我们利用远离界面处的温度来定义界面处的温度差，即远离界面处材料中的温度梯度进行线性拟合，并外推至界面处，如图 2 中的红线所示。这样可以得到两侧界面的温度差 $\Delta T_{fit,1}$ 和 $\Delta T_{fit,2}$ ，界面处的温度差可以定义为， $\Delta T_{fit}=(\Delta T_{fit,1}+\Delta T_{fit,2})/2$ 。然后通过计算界面热阻的公式 (1)，可以计算出硅超晶格与铝的界面热阻。另外，图中 ΔT_{total} 代表界面结构总的温差，用来得到界面结构的总热阻。

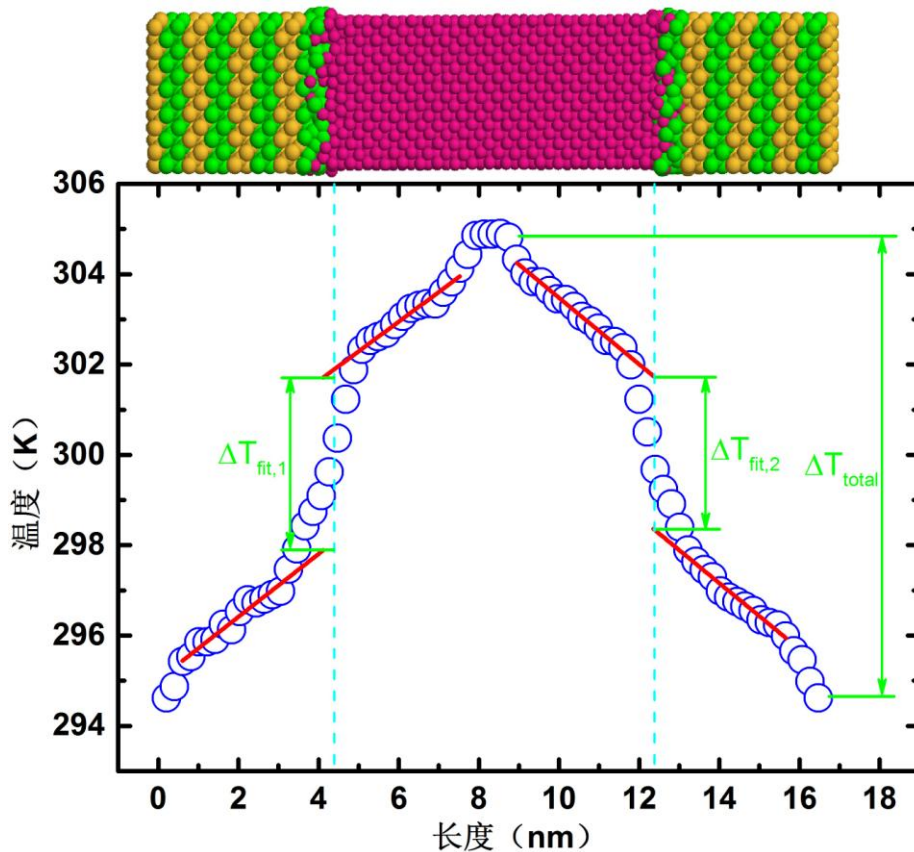


图 2 硅超晶格与铝界面结构的温度梯度

根据以上方法，本文研究了硅超晶格结构与铝的界面热阻。界面热阻的计算结果如图 3 所示。从计算结果发现，硅超晶格周期长度以及构建硅超晶格的硅同位素对界面热阻都有一定的影响。总结为以下两点：

(1) 硅同位素质量一定时，硅超晶格周期长度增大，界面热阻将也会减小。

研究表明超晶格结构有很低的热导率，随着超晶格周期长度的增加，超晶格结构材料的热导率呈现先下降后增加的趋势。^[27, 28]其中热导率最低值对应的超晶格周期长度，与声子波长以及材料的晶格常数有关。有研究显示关于硅及硅的同位素所构成超晶格硅纳米线的热导率，有着相同的规律。^[29]超晶格结构热导率变化的这一规律，使我们相信铝硅超晶格界面结构也许与晶格常数及声子波长有关。硅晶格常数为 0.357nm，则本文

所计算的 4 层、8 层及 14 层作为硅一个超晶格周期对于的长度分别为 0.543nm、1.09nm 及 1.9075nm。室温下，大多数材料中声子波长约在 1~2nm 范围^[30]，1.09nm 及 1.9075nm 周期更加接近硅中声子波长，越接近，越利用声子热运输。因为周期长度与声子波长越接近，越有利于声子在传输过程中产生集体共振，可以加强热运输，进而降低界面温差，提高界面间的传热性能，降低界面热阻。

(2) 硅超晶格周期长度一定时，增大硅同位素质量，相应的界面热阻也会减小。

对于此现象，我们可以用相关理论模型给予一定的解释。声学失配模型（AMM）给出计算声子透射率的公式，

$$\alpha_{1 \rightarrow 2} = \frac{4Z_1 Z_2}{(Z_1 + Z_2)^2} \quad (3)$$

式中 $Z_i = \rho_i c_i$ 指材料的声学阻抗， ρ 为材料质量密度， c 为声子的群速度。

对于此关系式，我们知道当 $Z_1 = Z_2$ 时，透射率 α 有最大值；若 Z_1 与 Z_2 偏差越大，则透射率 α 会越小。对于硅超晶格结构，不同质量间可以类似地看成界面，质量失配增大会降低硅超晶格结构内类界面声子透射率，从而降低本身热导率。

利用漫射失配模型（DMM）计算界面间热导（超晶格内）时，有类似 AMM 计算透射率的关系，即材料间态密度（DOS, Density of State）偏差越大，界面热导会越低，从而结构热导率会更低。先前对硅超晶格纳米线研究也指明，硅同位素质量越大，其态密度与纯硅的失配程度越大，进而对应的超晶格结构热导率越低。^[29]

根据以上分析，硅超晶格结构中硅的同位素质量增大，将会使硅超晶格结构中温度梯度加大，而冷热源两端温差不变，这样将使铝硅界面处温差降低，从而降低界面热阻，提升界面处热运输。

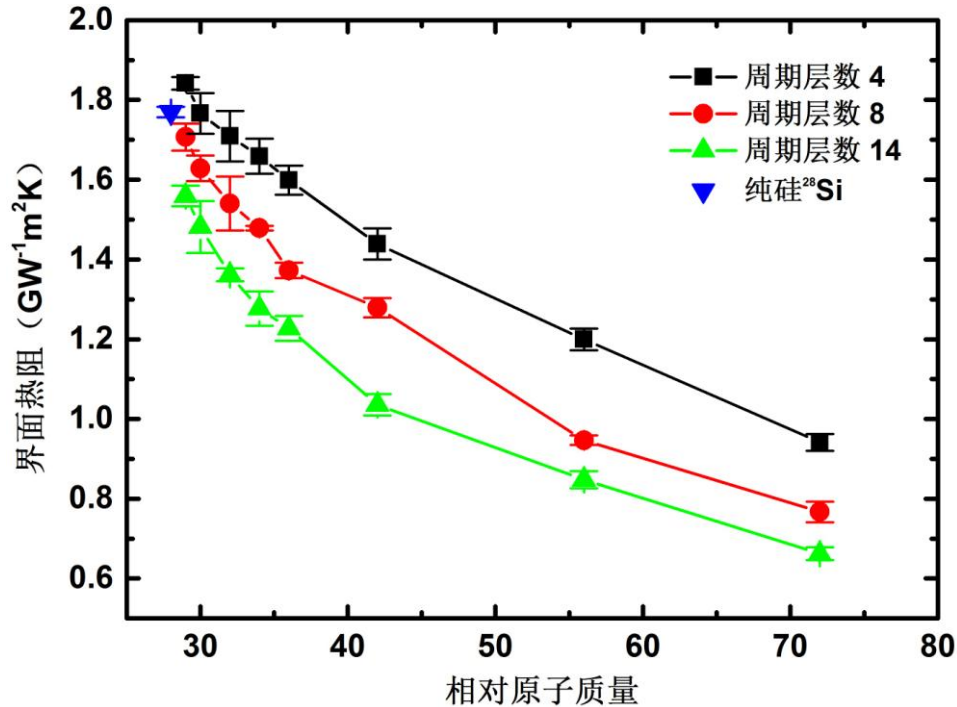


图 3 不同硅同位素质量及不同硅超晶格周期对应的硅超晶格与铝的界面热阻值

此外，根据总的界面温差 ΔT_{total} ，我们还计算了系统的总热阻如图 4 所示。铝硅超晶格结构的总热阻与铝纯硅结构的总热阻相比，有增大也有减小，除去个别点，总的变化范围在 10% 以内。因此，我们利用超晶格结构降低铝硅界面热阻同时，系统总的热阻变化不大。这样可以保证系统整体热输运稳定的情况下，来提升材料间界面处热输运性能。

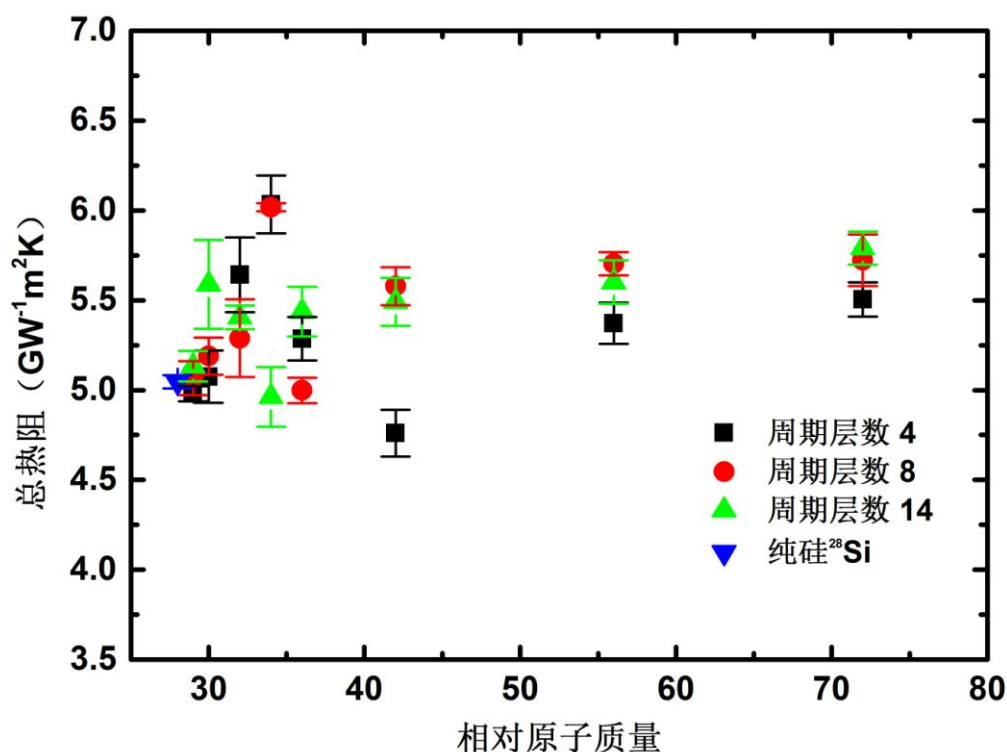


图 4 系统的总热阻

3 结 论

本文采用非平衡分子动力学方法模拟了硅超晶格结构与铝的界面热输运过程。通过计算发现，利用硅超晶格结构可以明显地降低铝硅界面热阻。我们研究了硅超晶格周期长度以及够成硅超晶格硅的同位素质量对界面热阻的影响，计算结果表明（1）硅同位素质量一定时，硅超晶格周期长度增大，界面热阻将会减小。（2）硅超晶格周期长度一定时，增大硅同位素质量，相应的界面热阻也会减小。此外，与铝纯硅结构相比，系统的总热阻变化不大，从而在提高界面热输运的同时，也保证了系统内总的热输运性能。

本文提出了一种提高界面热导的新思路，即利用超晶格结构来提升界面处热输运性能。根据我们这一思路，即利用质量失配提升界面热导，进一步可以研究晶格失配以及晶格失配和质量失配共同作用对界面热阻有什么影响，比如，研究硅锗超晶格结构对界面热阻有什么样的影响。进一步研究可以加深我们对界面热输运机制的认识，及同种材料内和材料间声子散射过程的认识。

致谢

本工作得到以下科研经费的支持：国家自然科学基金 (51576076) (杨诺)。本工作所做的模拟计算工作得到了国家超级计算机中心 (天津) 和 SCTS/CGCL 高性能计算中心的大力支持。

参考文献

- [1] P. K. Schelling. *Kapitza conductance and phonon scattering at grain boundaries by simulation*. Journal of Applied Physics, 2004, **95**(11): 6082-6091.
- [2] G. Chen. *Thermal conductivity and ballistic-phonon transport in the cross-plane direction of superlattices*. Physical Review B, 1998, **57**(23): 14958-14973.
- [3] R. S. Prasher, X. J. Hu, Y. Chalopin, N. Mingo, K. Lofgreen, S. Volz, F. Cleri, and P. Keblinski. *Turning carbon nanotubes from exceptional heat conductors into insulators*. Physical Review Letters, 2009, **102**(10): 105901-105904.
- [4] D. G. Cahill, P. V. Braun, G. Chen, D. R. Clarke, S. Fan, et al. *Nanoscale thermal transport. II. 2003–2012*. Applied Physics Reviews, 2014, **1**(1): 011305-011349.
- [5] P. Kapitza. *The study of heat transfer in helium II*. Journal of Physics, USSR, 1941, **4**(1-6): 181-210.
- [6] P. J. O'Brien, S. Shenogin, J. Liu, P. K. Chow, D. Laurencin, P. H. Mutin, M. Yamaguchi, P. Keblinski, and G. Ramanath. *Bonding-induced thermal conductance enhancement at inorganic heterointerfaces using nanomolecular monolayers*. Nature Materials, 2013, **12**(2): 118-122.
- [7] M. D. Losego, M. E. Grady, N. R. Sottos, D. G. Cahill, and P. V. Braun. *Effects of chemical bonding on heat transport across interfaces*. Nature Materials, 2012, **11**(6): 502-506.
- [8] P. E. Hopkins, J. C. Duda, C. W. Petz, and J. A. Floro. *Controlling thermal conductance through quantum dot roughening at interfaces*. Physical Review B, 2011, **84**(3): 035438-035444.
- [9] P. E. Hopkins, M. Baraket, E. V. Barnat, T. E. Beechem, S. P. Kearney, J. C. Duda, J. T. Robinson, and S. G. Walton. *Manipulating Thermal Conductance at Metal–Graphene Contacts via Chemical Functionalization*. Nano Letters, 2012, **12**(2): 590-595.
- [10] P. E. Hopkins, L. M. Phinney, J. R. Serrano, and T. E. Beechem. *Effects of surface roughness and oxide layer on the thermal boundary conductance at aluminum/silicon interfaces*. Physical Review B, 2010, **82**(8): 085307-085311.
- [11] P. E. Hopkins, J. C. Duda, S. P. Clark, C. P. Hains, T. J. Rotter, L. M. Phinney, and G. Balakrishnan. *Effect of dislocation density on thermal boundary conductance across GaSb/GaAs interfaces*. Applied Physics Letters, 2011, **98**(16): 161913-161915.
- [12] E. T. Swartz and R. O. Pohl. *Thermal boundary resistance*. Reviews of Modern Physics, 1989, **61**(3): 605-668.
- [13] Z. Liang, K. Sasikumar, and P. Keblinski. *Thermal transport across a substrate-thin-film interface: effects of film thickness and surface roughness*. Physical Review Letters, 2014, **113**(6): 065901-065905.
- [14] S. Merabia and K. Termentzidis. *Thermal boundary conductance across rough interfaces probed by*

- molecular dynamics*. Physical Review B, 2014, **89**(5): 054309-054317.
- [15] S. Lu and A. J. H. McGaughey. *Thermal conductance of superlattice junctions*. AIP Advances, 2015, **5**(5): 053205.
- [16] X. W. Zhou, R. E. Jones, C. J. Kimmer, J. C. Duda, and P. E. Hopkins. *Relationship of thermal boundary conductance to structure from an analytical model plus molecular dynamics simulations*. Physical Review B, 2013, **87**(9): 094303-094319.
- [17] M. Hu and D. Poulikakos. *Graphene mediated thermal resistance reduction at strongly coupled interfaces*. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2013, **62**: 205-213.
- [18] M. Hu, J. V. Goicochea, B. Michel, and D. Poulikakos. *Water nanoconfinement induced thermal enhancement at hydrophilic quartz interfaces*. Nano Letter, 2010, **10**(1): 279-285.
- [19] R. J. Stevens, L. V. Zhigilei, and P. M. Norris. *Effects of temperature and disorder on thermal boundary conductance at solid–solid interfaces: Nonequilibrium molecular dynamics simulations*. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2007, **50**(19-20): 3977-3989.
- [20] Y. Wang, X. Ruan, and A. K. Roy. *Two-temperature nonequilibrium molecular dynamics simulation of thermal transport across metal-nonmetal interfaces*. Physical Review B, 2012, **85**(20): 205311-205319.
- [21] Y. Zhou, X. Zhang, and M. Hu. *An excellent candidate for largely reducing interfacial thermal resistance: a nano-confined mass graded interface*. Nanoscale, 2016, **8**(4): 1994-2002.
- [22] C.-M. Lee, K.-W. Park, B.-J. Lee, Y. Shibutani, and J.-C. Lee. *Structural disordering of amorphous alloys: A molecular dynamics analysis*. Scripta Materialia, 2009, **61**(9): 911-914.
- [23] B.-J. Lee, W.-S. Ko, H.-K. Kim, and E.-H. Kim. *The modified embedded-atom method interatomic potentials and recent progress in atomistic simulations*. Calphad, 2010, **34**(4): 510-522.
- [24] F. H. Stillinger and T. A. Weber. *Computer simulation of local order in condensed phases of silicon*. Physical Review B, 1985, **31**(8): 5262-5271.
- [25] W. C. Swope. *A computer simulation method for the calculation of equilibrium constants for the formation of physical clusters of molecules: Application to small water clusters*. The Journal of Chemical Physics, 1982, **76**(1): 637-649.
- [26] N. Yang, X. Xu, G. Zhang, and B. Li. *Thermal transport in nanostructures*. AIP Advances, 2012, **2**(4): 041410-041433.
- [27] J. Ravichandran, A. K. Yadav, R. Cheaito, P. B. Rossen, A. Soukiassian, et al. *Crossover from incoherent to coherent phonon scattering in epitaxial oxide superlattices*. Nature Materials, 2014, **13**(2): 168-172.
- [28] M. Maldovan. *Phonon wave interference and thermal bandgap materials*. Nature Materials, 2015, **14**(7): 667-674.
- [29] N. Yang, G. Zhang, and B. Li. *Ultralow thermal conductivity of isotope-doped silicon nanowires*. Nano letters, 2008, **8**(1): 276-280.
- [30] G. Chen, D. Borca-Tasciuc, and R. Yang. *Nanoscale heat transfer*. Encyclopedia of Nanoscience and Nanotechnology, 2004, **17**: 429-459.