

微观下的热*

(中国科学院上海应用物理研究所 陈济舸、方海平 编译自 Ilari Maasilta, Austin J. Minnich.

Physics Today, 2014, (8): 27, 原文详见 <http://ptonline.aip.org>)

在日常生活中,热传导现象很常见。宏观上热传导被看作能量在温度梯度场下的扩散行为,而这一输运过程取决于傅里叶定律给出的材料热导率。由傅里叶定律与能量守恒定律所衍生出的热传导方程,则描绘了温度在时间与空间中的分布。

但是,这个宏观热传导方程留下了很多未解之谜。例如,为什么金刚石具有极高的热导率,而和它具有相同晶体结构的砷化镓则只具有普通的热导率?晶格振动被认为是固体热传导的主要物理机制,但在所有的振动模式中,究竟哪些对热传导起主要作用?不同振动模式的输运距离又是多少?

当前电子器件的设计越来越

小、越来越快,针对上述问题的研究具有重要的实际意义。例如,晶体管功放区间的温度变化比傅里叶定律给出的结果高了数十度,这种偏移将会极大地影响电子器件(如智能手机或信号增益器等)的可靠性与稳定性。因此,热的微观机制日益引起研究者的关注。

早在一个世纪前,Debye就提出了绝缘体中的热传导过程是由晶格中非局域的振动模式(声子)所决定的,此后一系列关于热输运的微观理论被相继提出,其中包括采用 Boltzmann 输运方程来描绘声子输运的理论,声子间相互作用的理论,声子被晶格缺陷所散射的理论等。1959年,Callaway等人提出用

声子的群速度、平均自由程等微观动力学参量来从微观上解释热导率(κ):

$$\kappa = \frac{1}{3} \int C_v v_g \Lambda_g d\omega,$$

这里 ω 表示频率, C_v 表示声子的比热, v_g 表示声子的群速度, Λ_g 表示声子的平均自由程。比热与群速度由声子的振动谱所决定,因此可以通过中子的非弹性碰撞等实验来测量得到。声子平均自由程由温度、频率、声子间相互作用以及晶格缺陷

所决定。声子平均自由程很难通过实验来直接测量,因此研究者们通常采用拟合实验数据与半经验模型参数的方式来得到,但这样的方法却具有很大的局限性。首先,这种方法没法预测热导率,它必须在已有实验的基础上来拟合模型参数;其次,这种方法强烈依赖于拟合的函数与方法。因此,对于绝大部分的晶体而言,声子的平均自由程仍然还是一个未知数。

声子研究是一个持续多年的挑战性问题。声子不像电子,没法通过外加磁场或者电场的方式进行控制。声子不像光子,没有一个能产生特定频率声子的放射源,同时也很难直接测量材料中声子的频率。声子之间具有强烈的非线性相互作用,但这种非线性作用却恰恰是固体材料中热阻的来源。幸运的是,现代计算机模拟与实验技术的进步为我们理解这一问题带来了新的希望。以下我们将从声子谱的计算与测量、热整流、反常热传导以及流体中的热输运这几个方面来介绍目前热传导研究中的最新进展。

声子谱的计算

研究者们采用密度泛函理论(DFT)来计算原子间的相互作用,从中提取出相互作用的四次方项(非线性项)来研究热导率。我们所熟悉的热的良导体(金刚石、硅、碳化硅等),其高热导率源于其具有较强的原子间相互作用以及小的原子量导致的高声子群速度。在通常的研究

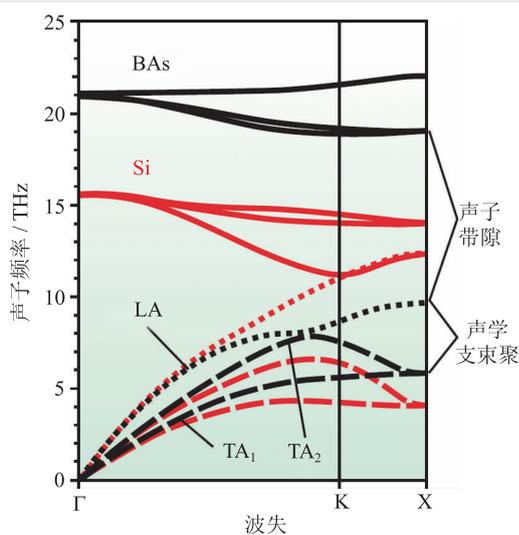


图1 硅与砷化镓的声子谱。与硅相比,砷化镓具有的声子带隙与声学支束聚增加了声子平均自由程,从而提高了热导率

* 应编辑部的邀请,译者增加了近期国内研究者在本领域的工作,见文中楷体字部分。

中，散射导致的平均自由程变化被忽视，因此在过去的40年间，新的高导热材料始终未能发现。直到去年，Reinecke等人通过第一性原理的计算提出，砷化硼具有极高的热导率(2000 W/m·K)，远高于类似材料硅的热导率(200 W/m·K)。

砷化硼极高的热导率能通过图1的声子谱来理解。在大部分材料(如图1中的硅)中，声子散射过程牵涉到光学支部分，如一个光学支声子散射成为两个声学支声子。而在砷化硼的声子谱中，光学支与声学支之间具有声子带隙，抑制了散射过程。砷化硼的声学支束聚在一起，束聚效应同样抑制了散射。因为砷化硼的声子平均自由程高达1 μm，从而具有极高的热导率。

声子谱的测量

MFP 频谱技术是一种通过测量分子平均自由程的分布以及热导率随平均自由程分布的依赖关系，从而来研究声子振动谱的实验手段。它基于一个简单的原理，即热流的耗散取决于系统热程的大小(热程即系统温差存在的长度)。如图2(a)所示，如果热程远大于声子的平均自由程，声子运输是一个随机扩散的过程，热传导满足傅里叶定律。如果热程远小于声子平均自由程，声子是弹道扩散的行为，同时热传导不满足傅里叶定律。

Johnson等人采用这种方式研究了硅薄膜的热传导。由图2(b)所示，两束具有正弦相干的激光打在硅薄膜上形成冷热相间的条纹，硅薄膜的相对热导率($\kappa_{\text{硅薄膜}}/\kappa_{\text{硅晶体}}$)随条纹间距而变化。他们发现，体系的热导率在条纹距离大于5 μm的情况下保持不变(满足傅里叶定律)，而当条纹距离减小到与部分声子的平均自由程可比拟的程度时，硅薄膜的热导率也随之下降(傅里叶定律

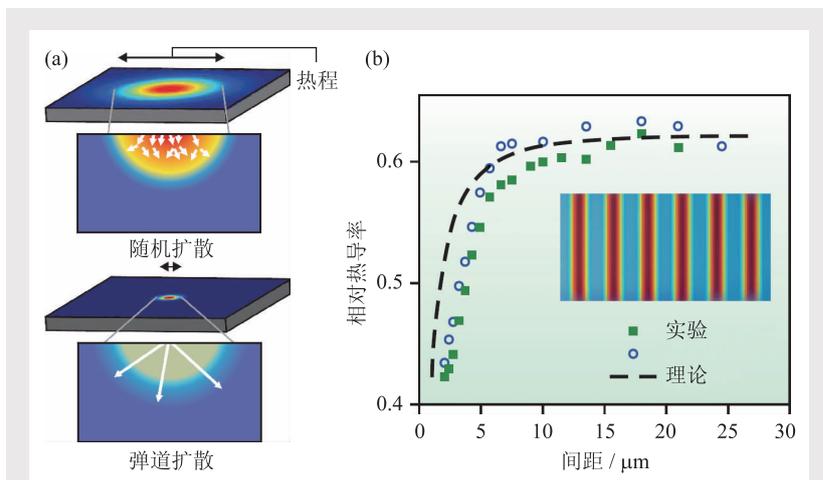


图2 (a)随着热程的减小，声子运输渐渐由随机扩散转变为弹道扩散；(b)通过激光产生瞬时冷热条纹来测量硅薄膜的热导率。在冷热条纹间距小于5 μm的情况下，热导率迅速减小，不再满足傅里叶定律

失效)。Minnich采用 Boltzmann 输运方程代替傅里叶定律来研究这个系统的热输运，得到了与实验一致的结果。通过调节热距和条纹间距的方法为实验学家提供了一种间接研究声子谱的手段。

热整流

热整流是指热输运效率依赖于热流方向的一种现象，它基于改变声子振动谱在不同方向重叠大小的方式来实现对体系热导率的调控。热整流材料在某一个方向具有较高的热导率，而在相反方向具有较低的热导率。在微纳尺度实现热整流是目前热学研究的热点，它意味着我们能够像控制电流一样制造出相应的热二极管、热三极管、热逻辑门甚至是热逻辑器件为基础的“热计算机”等的热学器件。同济大学的李保文等人最近在 *Review of Modern Physics* 上发表了关于声子学与热调控的综述文章，在其中详细讨论了微纳尺度实现热调控的最新进展。

反常热传导

反常热传导是指在动量守恒的低维晶格(如石墨烯、碳纳米管)中热导率随尺寸发散的现象，而三维

晶格体系则是满足傅里叶定律的正常热传导。厦门大学的赵鸿研究组提出，在具有非对称相互作用势的低维晶格中，因为流与流之间的交叉耦合可能会破坏反常热传导。这一结果已经引起了国际学术界的重视。最近同济大学的李保文研究组则在理论上解析给出了反常能量输运导致反常热传导的证据。

流体中的热输运

在实际应用中，流体中热输运热现象(水冷或液冷)同样非常普遍，它包括声子热传导与流体热对流两种效应，它们共同决定体系的热输运能力。中国科学院上海应用物理研究所的方海平研究组的最新研究表明，由于热传导和热输运的竞争，表面的微观结构会对固液界面热输运效率产生意想不到的影响。

热传导这一研究涉及到能源、环境、材料、物理、化学等多个交叉领域，有着实验和理论紧密结合的特点。尽管它经过了上百年的探索，但直到现在仍然属于一个新兴的研究领域。在能源危机和环境危机的今天，研究热的微观机制，对于降低能耗、节约资源和保护环境尤为重要。