Wärmeübergangswiderstände
Teil 1 - Theoretisches

Michael Horn von Hoegen
Experimentelle Physik
Universität Duisburg-Essen

Ringvorlesung Thermoelektrik, 11. Januar 2019

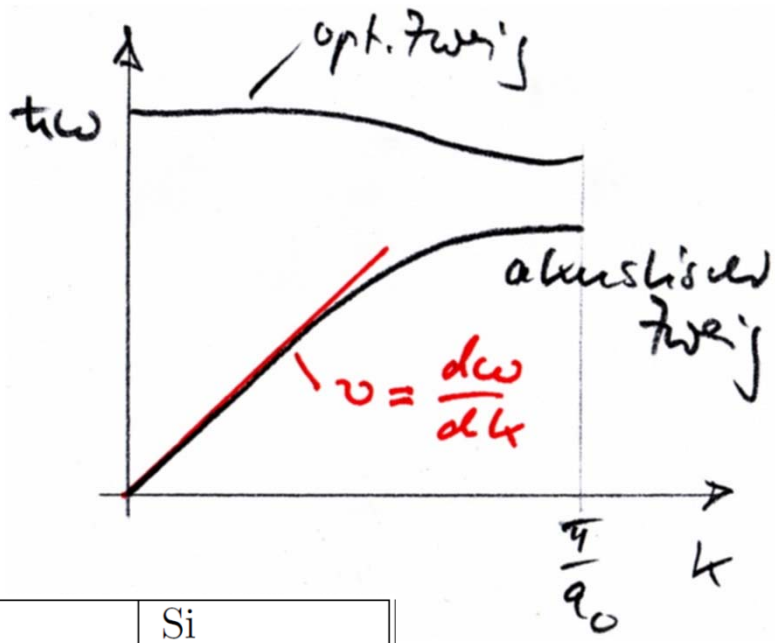
Phononischer Wärmetransport

- **Phononen:** quantisierte Gitterschwingungen

$E = \hbar\omega$ Energie

$\vec{p} = \hbar\vec{k}$ Impuls

$v = d\omega/dk$ Schallgeschwindigkeit

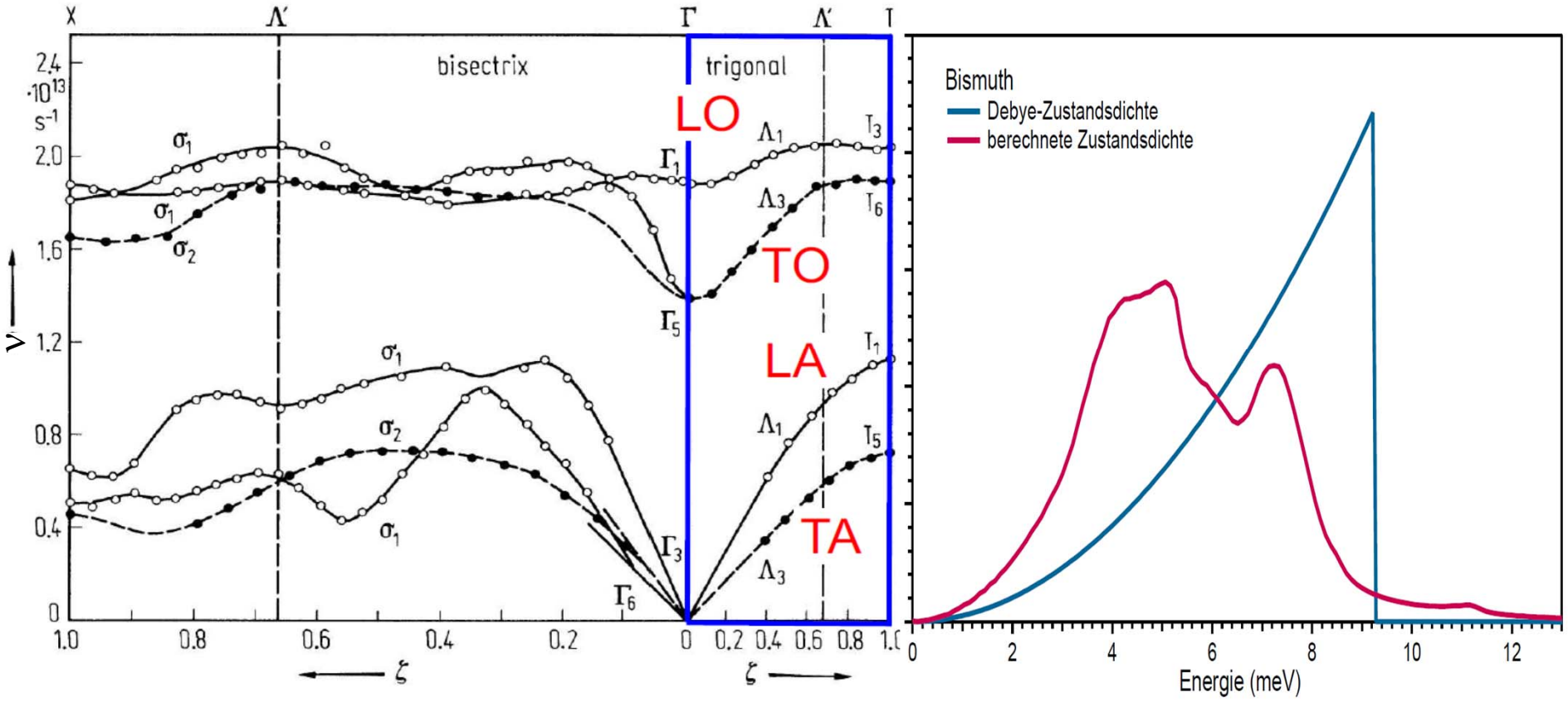


- Drei akustische **Moden**:
  - eine longitudinal
  - zwei transversal

	Bi	Si
TA-Phononen: v_t [m/s]	1074	5845
LA-Phononen: v_l [m/s]	1972	8433
effektive Schallgeschwindigkeit v_0 [m/s]	1198	6356
Atomdichte n [m^{-3}]	2.8×10^{28}	5×10^{28}
Debye-Frequenz ω_D [s^{-1}]	1.42×10^{13}	9.13×10^{13}
Debye-Temperatur Θ_D [K]	109	698

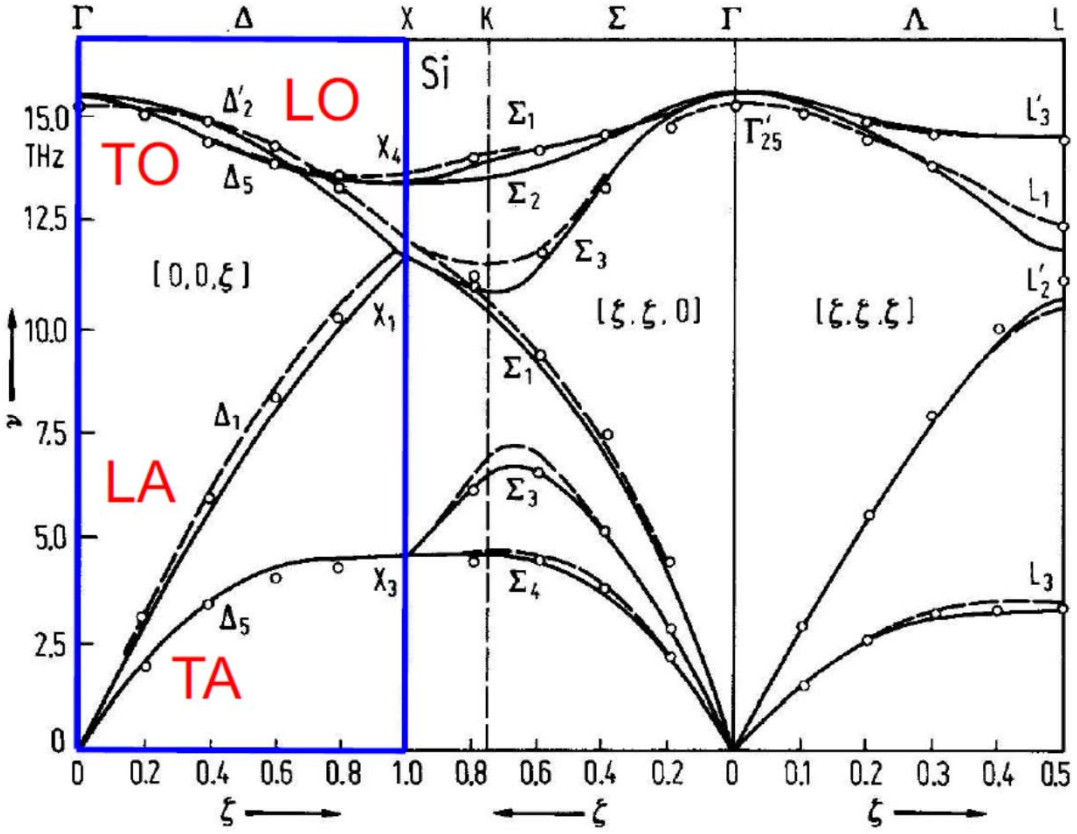
- Drei optische **Moden** (Schwingungen innerhalb der Einheitszelle)

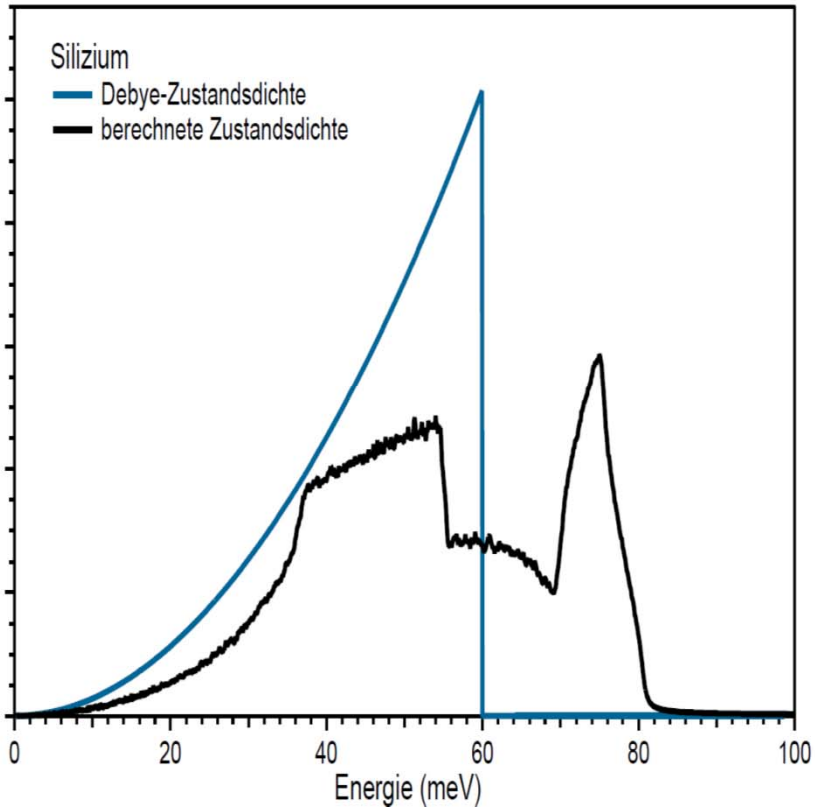
Dispersion & DOS von Bismut



Maximalfrequenz: ~2 THz = 10 meV

Dispersion & DOS von Silizium



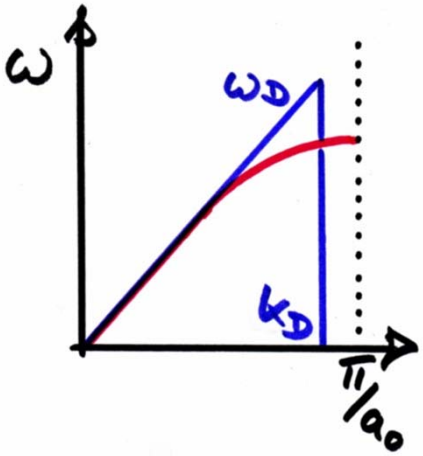


Maximalfrequenz: ~15 THz = 80 meV

Debye-Modell

- Annahme einer vereinfachten Phononendispersion $\omega = v\,|\vec{k}\,|$ erlaubt Bestimmung der Zustandsdichte (DOS)

[1] $$D(\omega) = \frac{V}{2\pi^2 N}\frac{\omega^2}{v^3}$$

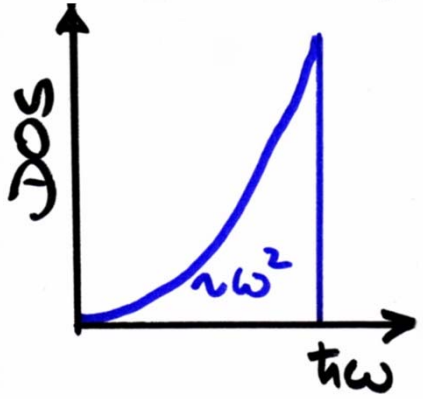


- Einführung der Debye-Frequenz erhält Anzahl der 3N Freiheitsgrade

[2] $$\omega_D = v_0 (6\pi^2 n)^{1/3}$$

mit $n = N/V$ Teilchendichte, v_0 gemittelte Schall-geschwindigkeit ergibt sich die DOS

[3] $$D(\omega) = \frac{3\omega^2}{\omega_D^3} \quad \text{für } \omega < \omega_D$$



- Mit der Debye-Frequenz ist die Debye-Temperatur verknüpft

[4] $$k_B \Theta_D = \hbar \omega_D$$

die eine einfache Abschätzung einer dominanten Phononen-Wellenläge erlaubt

[5] $$\lambda_d = a_0\,\Theta_D / T$$

	Bi	Si
Debye-Frequenz ω_D [s^{-1}]	1.42×10^{13}	9.13×10^{13}
Debye-Temperatur Θ_D [K]	109	698

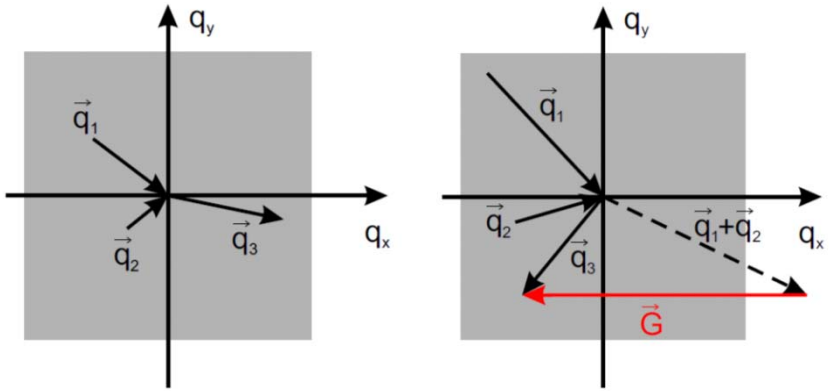
Wärmeleitfähigkeit

- **Freie Weglänge** der Phononen l_{ph} wird durch Umklapp-Prozesse bestimmt und führt zur endlichen Wärmeleitfähigkeit κ:

[6] $$\kappa = \frac{1}{3} c_p v l_{ph}$$

[7] $$= \frac{1}{3} c_p v^2 \tau_{ph}$$

mit c_p der spezifischen Wärmekapazität und τ_{ph} der Streuzeit

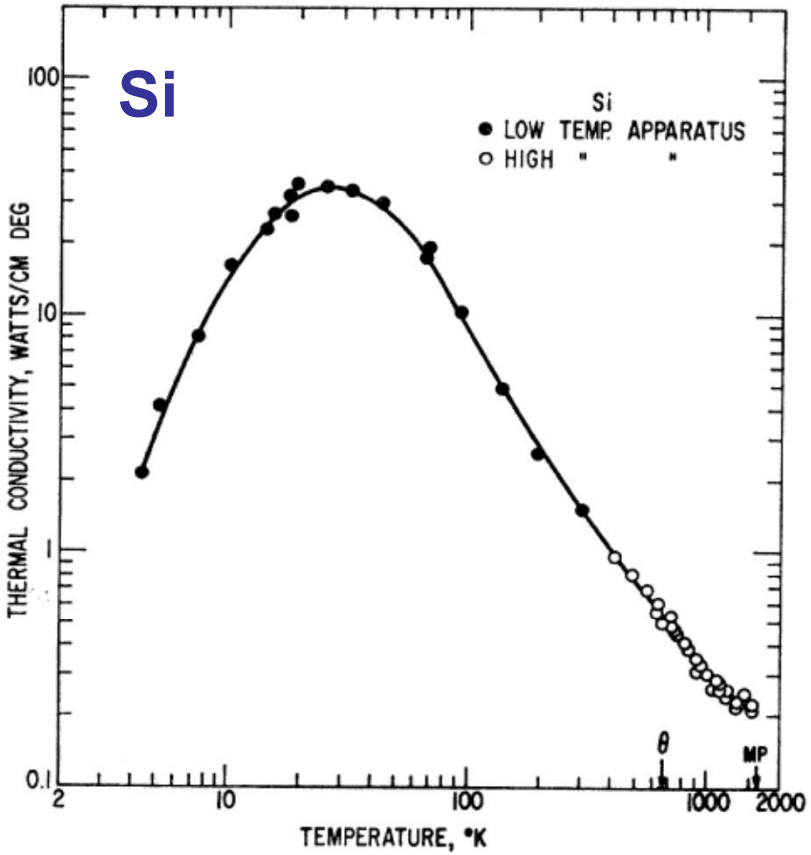


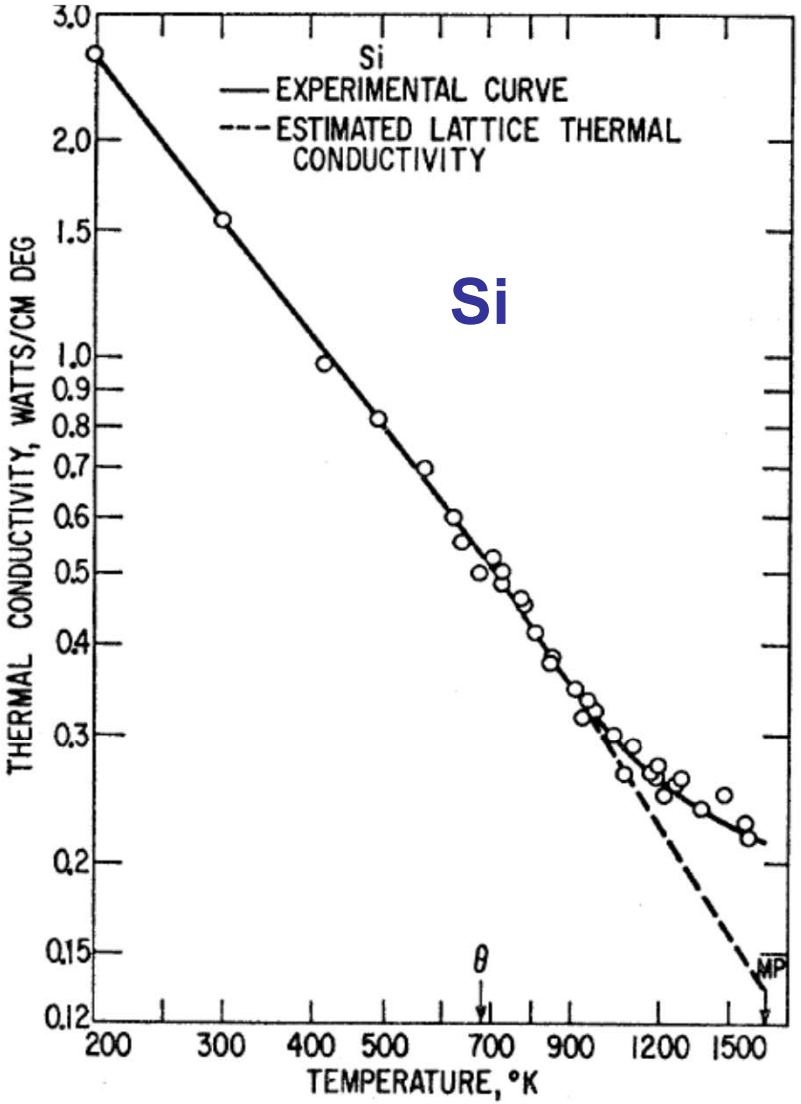
Material	κ_{phon} [W/(K m)]	c [J/(m^3 K)]	v_{eff} [m/s]	l [nm]	τ [ps]
Bi	1.9	1.19×10^6	1198	4	3.3
Si	156	1.63×10^6	6356	45	7.1

Einige Materialkonstanten für Bi und Si, sowie die sich daraus ergebenden mittleren freien Wellenlängen l und Streuzeiten τ der Phononen bei Raumtemperatur. Die Werte für die phononische Wärmeleitfähigkeit κ_{phon} und die spezifische Wärmekapazität c stammen aus [112], die effektive Schallgeschwindigkeit aus Kap. 2.2.

Temperaturabhängigkeit Silizium

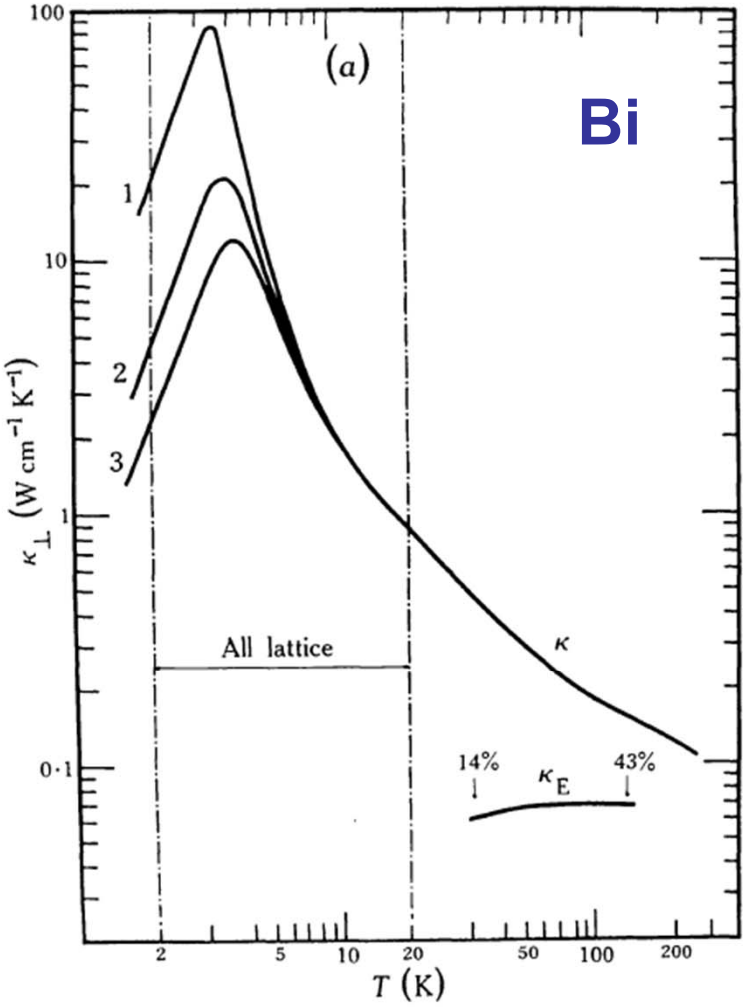
- **Reduzierung der Umklapp-Prozesse** führt zu Erhöhung der Wärmeleitfähigkeit bei tiefen Temperaturen:

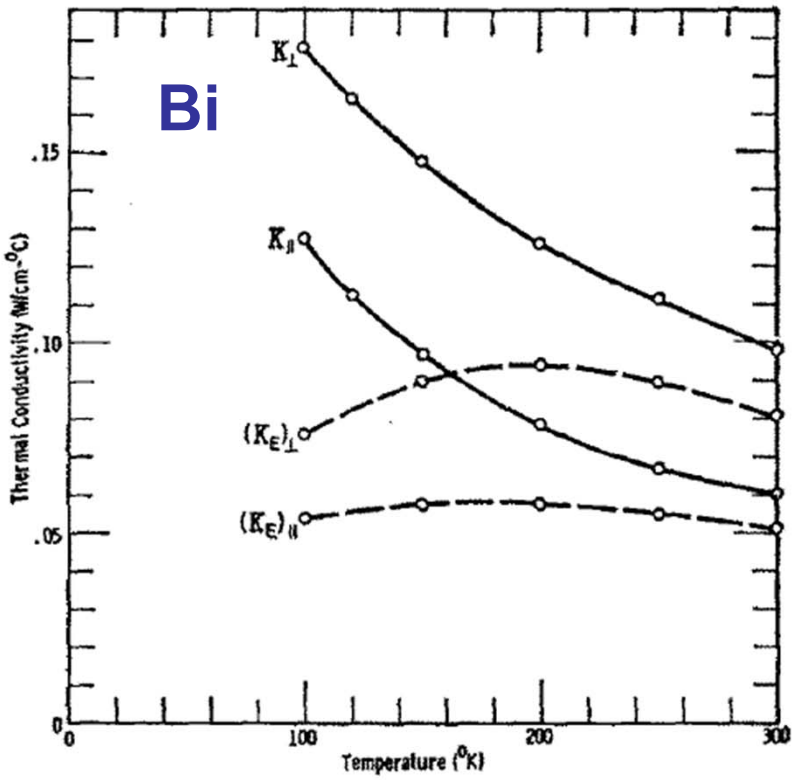




Temperaturabhängigkeit Bismut

- **Reduzierung der Umklapp-Prozesse** führt zu Erhöhung der Wärmeleitfähigkeit bei tiefen Temperaturen:



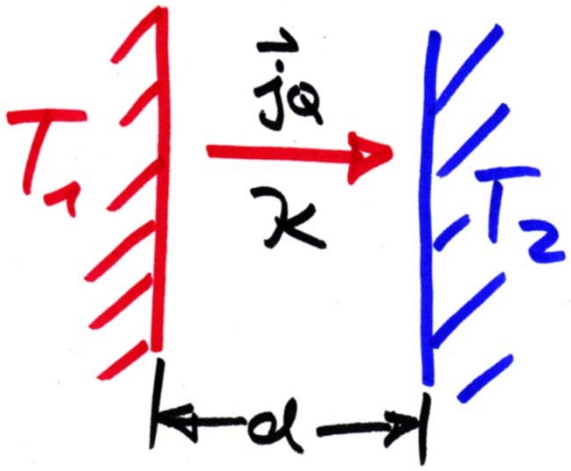


Wärmetransport

- **Fourier´sche Gesetz:**

[8] $$\dot{Q} = \frac{\kappa}{d} \cdot A \cdot (T_1 - T_2)$$

für den Wärmestrom $\dot{Q}$ durch eine Schicht der Dicke d zwischen Quelle mit T_1 und Senke mit T_2 und Fläche A.



- **moderner** für die Wärmestromdichte $\vec{j}_Q$:

[9] $$\vec{j}_Q = -\kappa \nabla T(\vec{r})$$

- **Wärmeleitungsgleichung**:

[10] $$\rho \, c_p \, \frac{\partial}{\partial t} T(\vec{r},t) = -\kappa \, \nabla^2 T(\vec{r},t) + A(\vec{r},t)$$

Dichte — Spez. Wärme-kapazität — Wärme-leitfähigkeit — Quell-term

1-dim. Wärmetransport

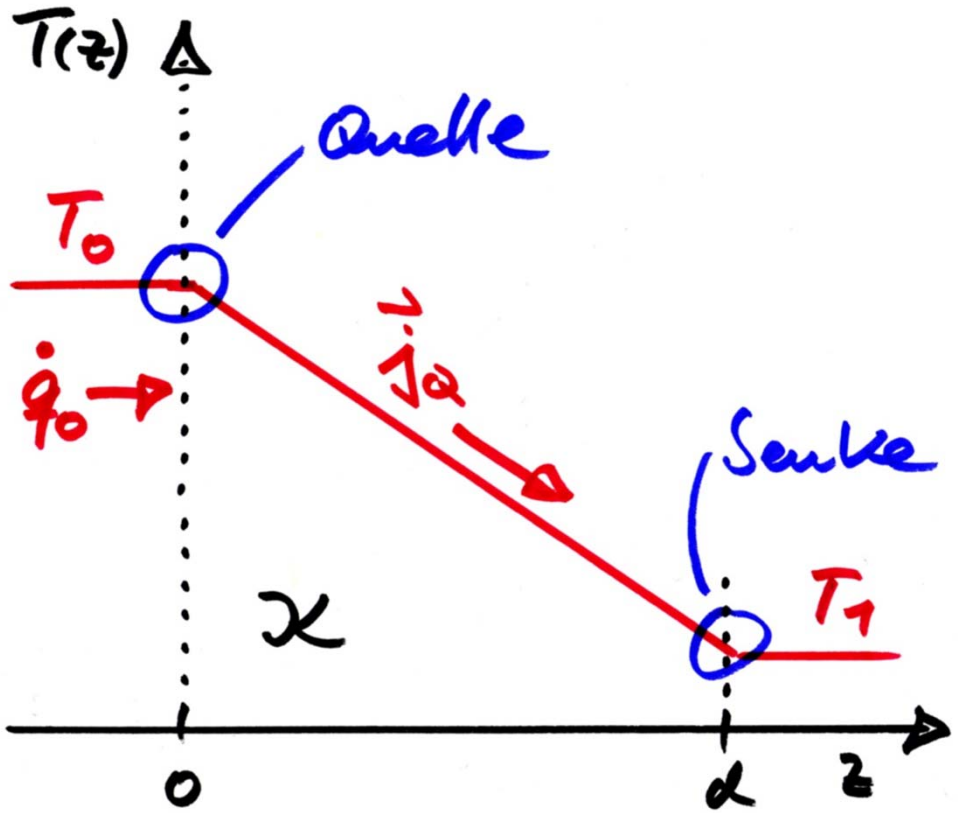
- **Wärmeleitungsgleichung**:

[11] $$\rho\, c_p \frac{\partial}{\partial t} T(z,t) = -\kappa \frac{\partial^2}{\partial z^2} T(z,t) + A(\vec{r},t)$$

- **Stationäre Lösung trivial**:

[12] $$T(z) = T_0 - \frac{\Delta T}{d} \cdot z$$

[13] $$j = \frac{\Delta T \cdot \kappa}{d}$$

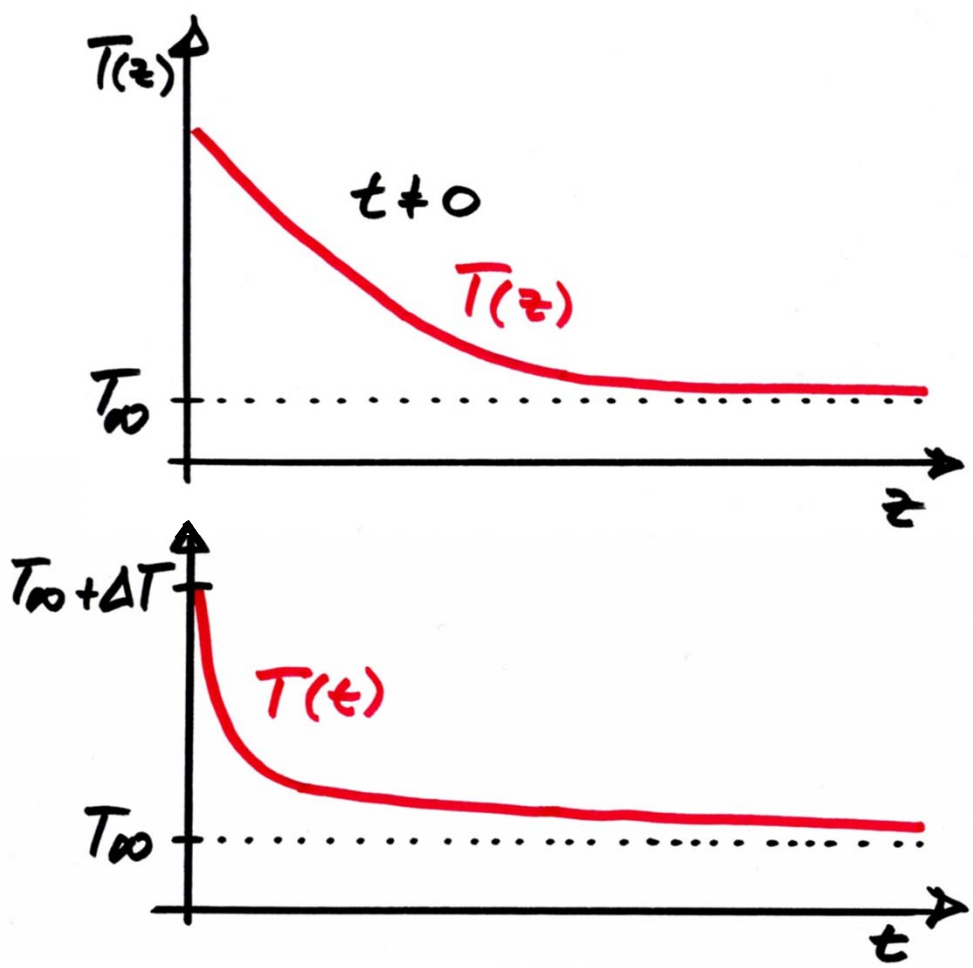


1-dim. Wärmetransport

- **Zeitabhängige Lösung nach Puls auf Oberfläche komplizierter**:

[14] $$T(z,t=0)=T_\infty, \quad T(z=0,t=0)=T_\infty+\Delta T$$

[15] $$T(z,t)=T_\infty+\Delta T\cdot erfc\left(\frac{z}{2\sqrt{\kappa t}}\right)$$

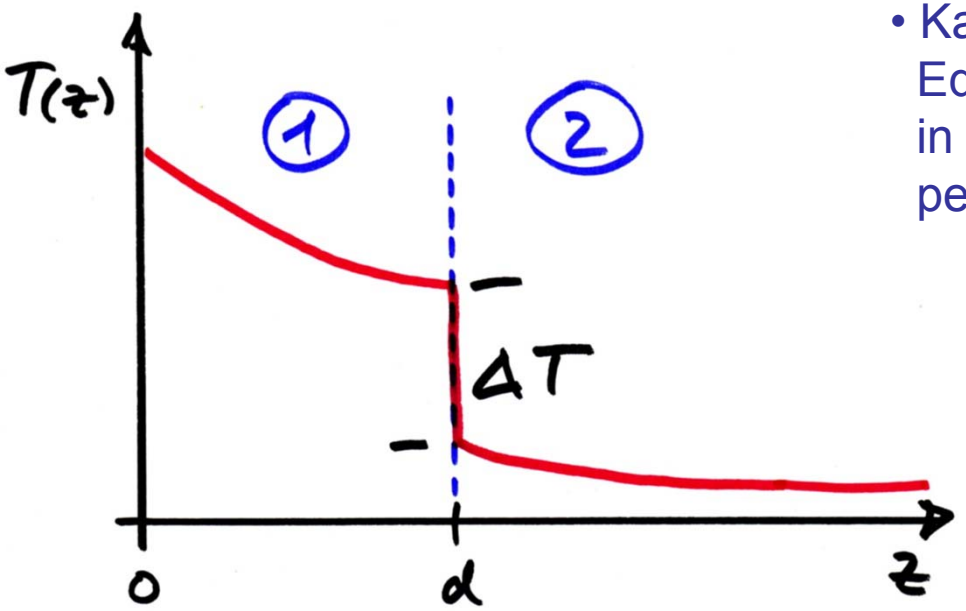


1-dim. Wärmetransport über Grenzflächen

- Wegen der **Unstetigkeit** der **elastischen Konstanten** ist Grenzfläche eine **Barriere** gegen **Phononentransport**
- **Kapitza – Leitfähigkeit** oder Thermal Boundary Conductivity σ_{TBC}

[16] $$\sigma_{TBC} = \frac{\dot{Q}}{A \cdot \Delta T}$$ Temperatur-sprung

$$\left(\kappa = \frac{\dot{Q}}{A \cdot |\nabla T|} \right)$$ Vergleich mit Wärmeleitfähigkeit



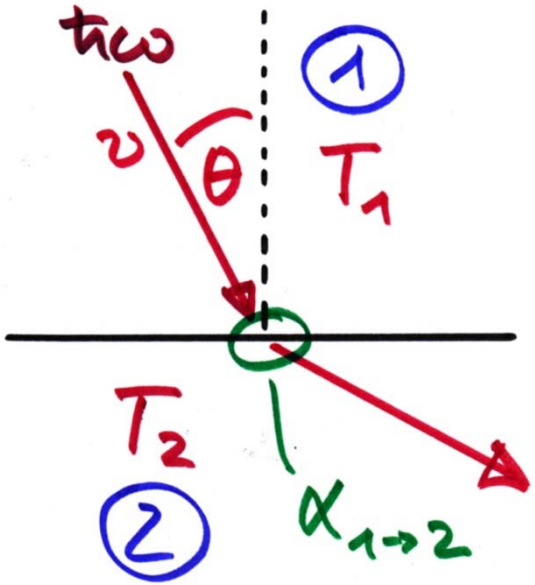
- $\sigma_{TBC} \sim 10^8 – 10^9$ $Wm^{-2}K^{-1}$
- Kapitzalänge $l_K = \kappa / \sigma_{TBC}$ gibt das Equivalent des Grenzflächenwiderstands in Einheiten der Wärmeleitung des perfekten Festkörpers

Berechnung von σ_{TBC}

- **Wärmestromdichte** $\dot{Q}_{1\to 2}/A$ vom Film ins Substrat

[17]
$$\frac{\dot{Q}_{1\to 2}}{A} = \frac{1}{2}\sum_{j}\int_{0}^{\pi/2} d\theta \int_{0}^{\omega_D} d\omega\; N_j(\omega,T)\,\hbar\omega\,\alpha_{1\to 2}(\theta, j, \omega)\,v_j\,\cos\theta\,\sin\theta$$

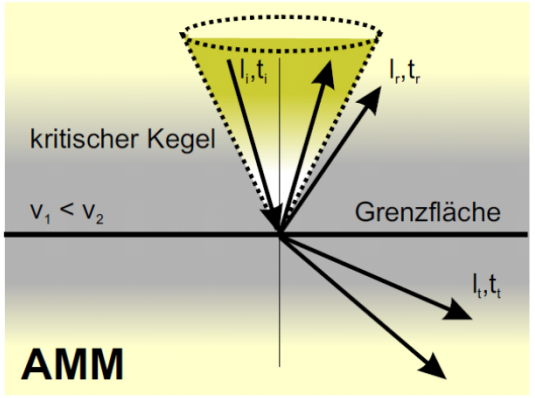
- $\sum_j$: j Phonon moden
- $N_j(\omega,T)$: Besetzungszahl
- $\hbar\omega$: Energie
- $\alpha_{1\to 2}(\theta, j, \omega)$: Transmissionswahrscheinlichkeit über Grenzfläche
- v_j: Geschwindigkeit



UNIVERSITÄT DUISBURG ESSEN

Acoustic Mismatch Model (AMM)

- **Elastizitätstheorie** des **Kontinuums**
- **glatte Grenzflächen, keine diffuse Streuung**
- **Impulserhaltung** beim Übergang über Grenzfläche
- Spiegelnde **Reflektion** oder **Brechung** an der Grenzfläche (Snells Law)



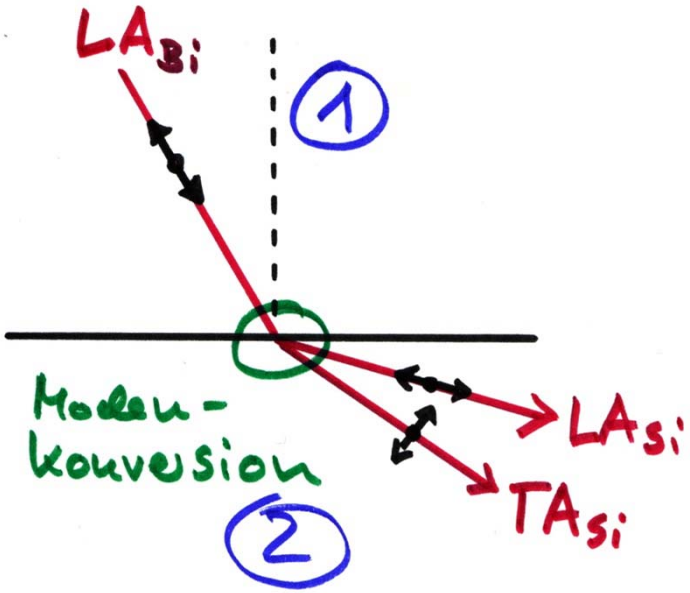
- Für $v_1 < v_2$ tritt auch **Totalreflektion** auf.
  Kritischer Winkel $\sin\theta_1^{crit} = v_1/v_2$
- Transmission für $\theta = 0°$ durch akustische Impedanz $Z = \rho \cdot v$ gegeben:

[18] $$\alpha_{1\to 2}(0) = \frac{4 Z_{Bi} Z_{Si}}{(Z_{Bi} + Z_{Si})^2}$$

Polarisation	Z_{Bi} [kg/(m^{2}s)]	Z_{Si} [kg/(m^{2}s)]	
longitudinal	1.9306×10^7	1.9632×10^7	$\alpha_{ll}^t(0) = 0.999$
transversal	1.0514×10^7	1.3607×10^7	$\alpha_{tt}^t(0) = 0.984$

Acoustic Mismatch Model (AMM)

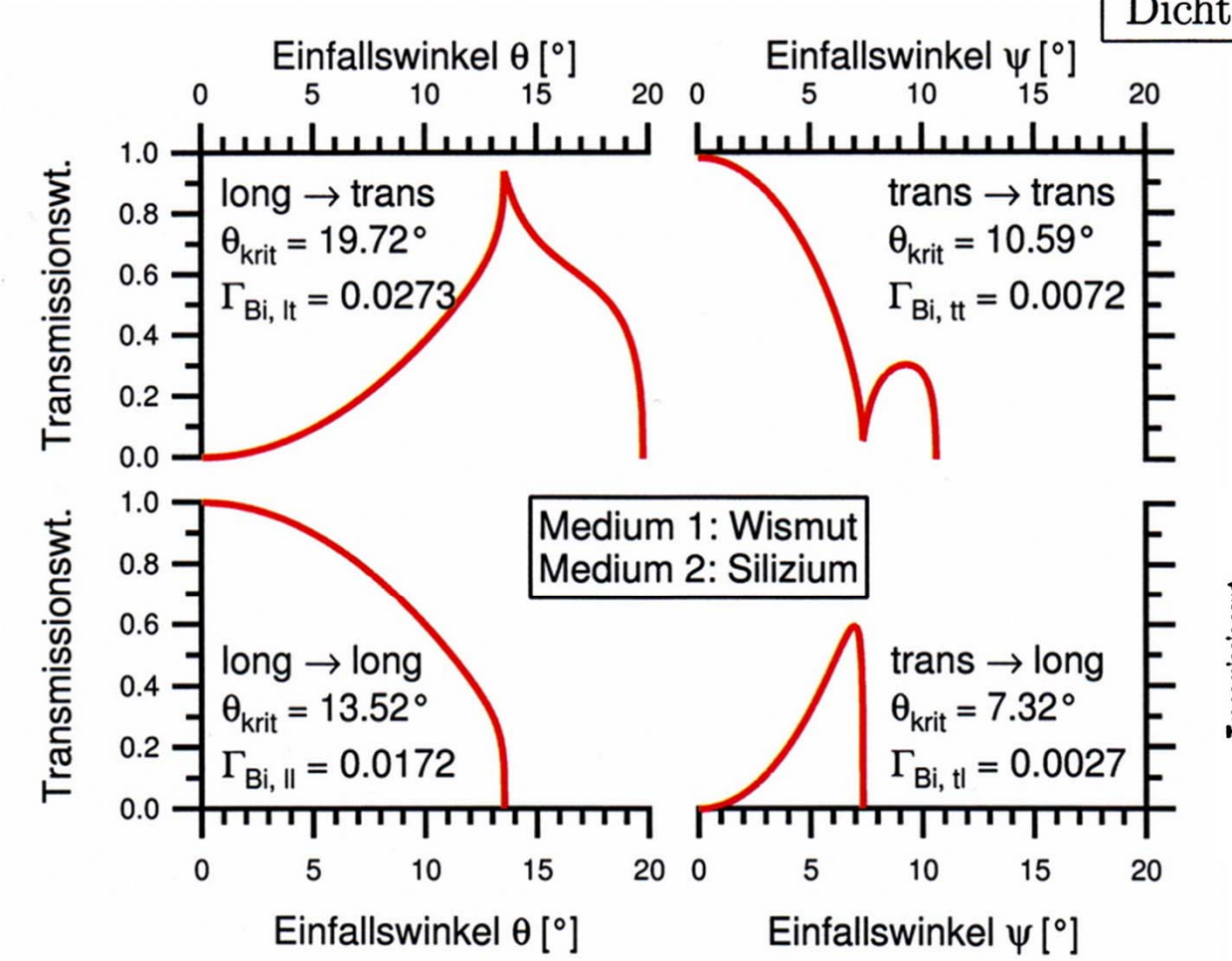
- **Modenkonversion** für nicht-senkrechten Einfall
- akustische **Fresnel-**Gleichungen der E-Dynamik:
  - ⊥ und || Komponente der Verrückungen identisch auf beiden Seiten der Grenzfläche
  - Projektion des Spannungstensors auf die Grenzflächennormale stetig

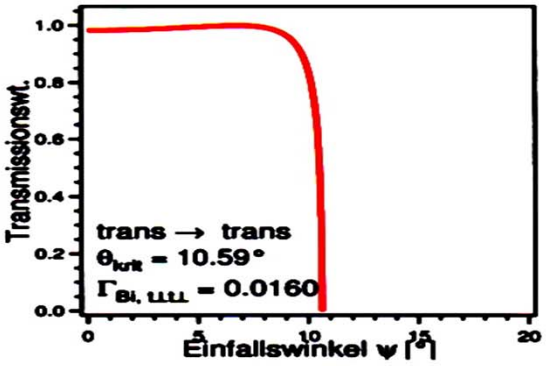


Acoustic Mismatch Model (AMM)

- Transmission, Reflektion & Konversion

	Bi	Si
TA-Phononen [m/s]	1074	5845
LA-Phononen [m/s]	1972	8433
Dichte [kg m^{-3}]	9790	2328





Acoustic Mismatch Model (AMM)

- Integration über Halbkugel aller einfallenden Phononenrichtungen

[18] $$\Gamma_j = \int_0^{\pi/2} d\theta\, \alpha_{1\to 2}(\theta, j) \cos\theta \sin\theta$$

ergibt Anteil der transmittierten Phononen:

$$\begin{aligned} \Gamma_{\mathrm{Bi,l}} &= \Gamma_{\mathrm{Bi,ll}} + \Gamma_{\mathrm{Bi,lt}} = 0.0445 \\ \Gamma_{\mathrm{Bi,t}} &= \Gamma_{\mathrm{Bi,tl}} + \Gamma_{\mathrm{Bi,tt}} = 0.0099 \\ \Gamma_{\mathrm{Bi,t}\perp} &= 0.0160 \end{aligned}$$

- Damit kann das Integral zur Wärmestromdichte $\dot{Q}_{1\to 2}/A$ aus dem Film ins Substrat geschrieben werden:

[19] $$\frac{\dot{Q}_{1\to 2}}{A} = \frac{1}{2}\sum_j v_j\, \Gamma_j \underbrace{\int_0^{\omega_D} d\omega\, N_j(\omega, T)\, \hbar\omega}_{u(T)}$$

mit $u_1(T)$ die Energiedichte im Film bei Temperatur T.

Acoustic Mismatch Model (AMM)

- Mit Ausnutzung des detaillierten Gleichgewichts kann die Thermal Boundary Conductivity σ_{TBC} berechnet werden:

[20] $$\sigma_{TBC}(T_1,T_2) = \frac{\dot{Q}^{netto}_{1\to 2}(T_1,T_2)}{A\cdot(T_1-T_2)} = \frac{1}{2}\sum_j v_j\ \Gamma_j \frac{u(T_1)-u(T_2)}{T_1-T_2}$$

- Energiedichte $u(T)$ mit der dimensionslosen Funktion $g(\Theta_D/T)$:

[21] $$u(T) = \frac{k_B^4 T^4}{2\pi^2\hbar^3 v_j^3} \underbrace{\int_0^{\Theta_D/T} dx\ \frac{x^3}{e^x-1}}_{g(\Theta_D/T)}$$

- Beides zusammen ergibt:

[22] $$\sigma_{TBC}(T_1,T_2) = \frac{k_B^4}{2\pi^2\hbar^3}\left(\sum_j \frac{\Gamma_j}{v_j^2}\right)\frac{T_1^4 g(\Theta_D/T_1) - T_2^4 g(\Theta_D/T_2))}{T_1-T_2}$$

Acoustic Mismatch Model (AMM)

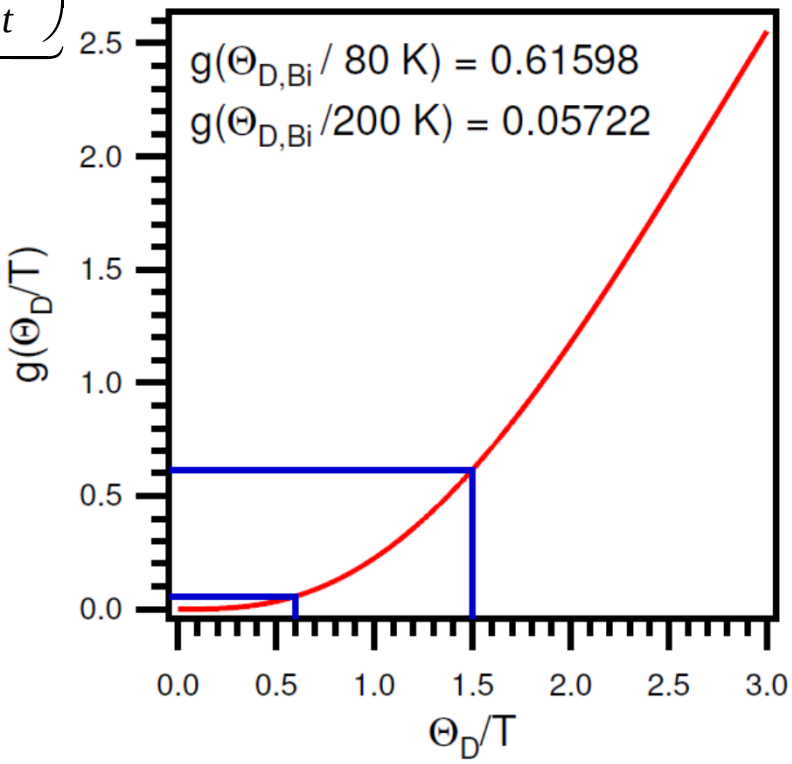
- **Beispiel:** σ_{TBC} von Bi @ 200K zu Si @ 80K :

[23] $$\sigma_{TBC}(T_1,T_2) = \frac{k_B^4}{2\pi^2\hbar^3}\left(\sum_j \frac{\Gamma_j}{v_j^2}\right)\frac{(200\,\mathrm{K})^4 g(0.6) - (80\,\mathrm{K})^4 g(1.5)}{200\,\mathrm{K} - 80\,\mathrm{K}}$$

[24] $$= \frac{k_B^4}{2\pi^2\hbar^3}\underbrace{\left(\frac{\Gamma_{Bi,l}}{v_{Bi,l}^2} + \frac{\Gamma_{Bi,t}}{v_{Bi,t}^2} + \frac{\Gamma_{Bi,t\perp}}{v_{Bi,t}^2}\right)}_{3.39\times10^{-8}\,(\mathrm{s/m})^2}\cdot(\ldots)$$

$$= 1409\ \mathrm{W/(Kcm^2)}$$

- Die Funktion $g(\Theta_D/T)$ zur Berechnung der Energiedichte $u(T)$, ausgewertet für T = 80 K und T = 200 K mit Θ_{Bi} = 120 K.



Acoustic Mismatch Model (AMM)

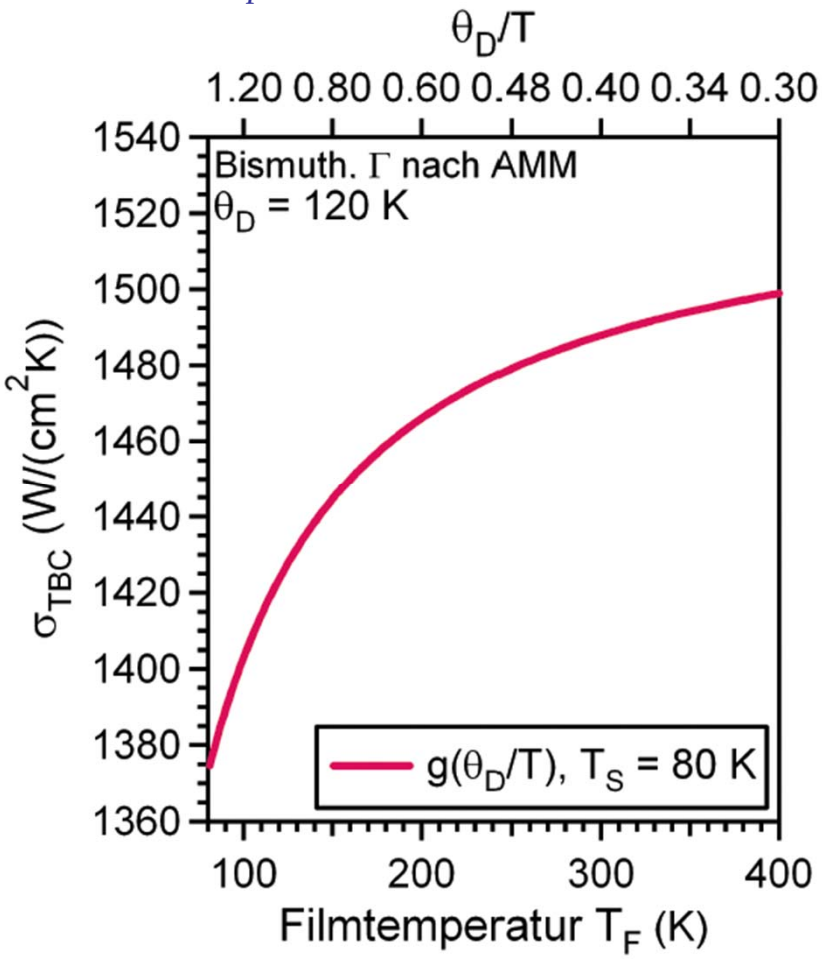
- Für kleine Temperaturdifferenz $T_2 - T_1$ entspricht der Bruch in Wärmestromdichte [20] der Ableitung der Energiedichte nach der Temperatur.

  Dies ist per Definition die spezifische Wärmekapazität c_p des Materials.

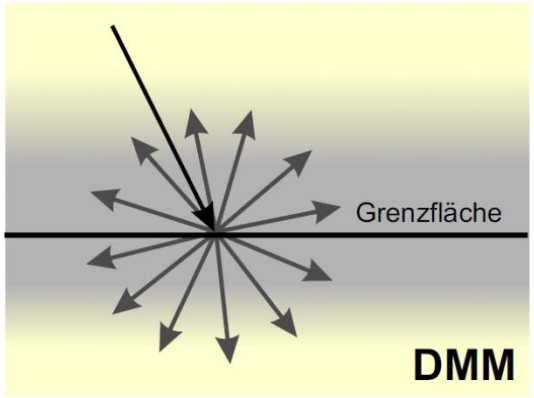
- Damit kann die Thermal Boundary Conductivity σ_{TBC} leicht berechnet werden:

[25] $$\sigma_{TBC}(T) = \frac{1}{2}\sum_j v_j \, \Gamma_j \, c_p(T)$$

- Da c_p zu tieferen T abnimmt, ist damit auch σ_{TBC} temperaturabhängig



Diffuse Mismatch Model (DMM)



- Bei diffuser Streuung der Phononen an der Grenzfläche ist das „Diffuse Mismatch Model“ zu verwenden.
- Phononen vergessen, wo sie herkommen.
  Energie ist einzige Erhaltungsgröße.
- Verhältnis der Zustandsdichten $D(\omega)$ im Film zu Substrat entscheidet über Übergangswahrscheinlichkeit „Fermis Goldene Regel“
- Transmissionswahrscheilichkeit hängt somit weder vom Winkel noch Mode j, sondern nur von der Frequenz ω ab.

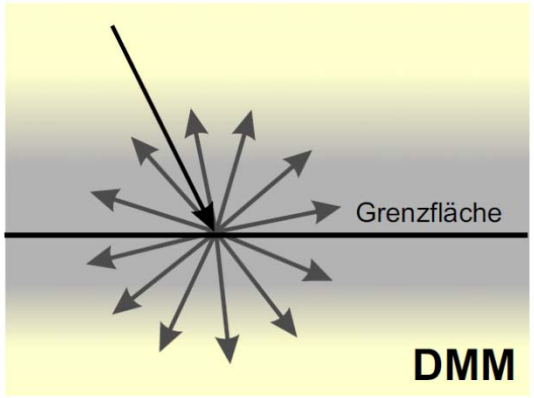
$$[26] \qquad \alpha_{1\to 2}(\omega) = \frac{\sum_j \nu_{sub,j} D_{sub,j}(\omega,T)}{\sum_j \nu_{sub,j} D_{sub,j}(\omega,T) + \sum_j \nu_{film,j} D_{film,j}(\omega,T)}$$

- Im Rahmen der Debye Näherung $D(\omega) = \frac{V}{2\pi^2}\frac{\omega^2}{v^3}$

$$[27] \qquad \alpha_{1\to 2} = \frac{\sum_j \nu_{sub,j}^{-2}}{\sum_j \nu_{sub,j}^{-2} + \sum_j \nu_{film,j}^{-2}}$$

Diffuse Mismatch Model (DMM)

- Integration über den Winkel θ gibt die räumlich gemittelte Transmissionswahrscheinlichkeit.



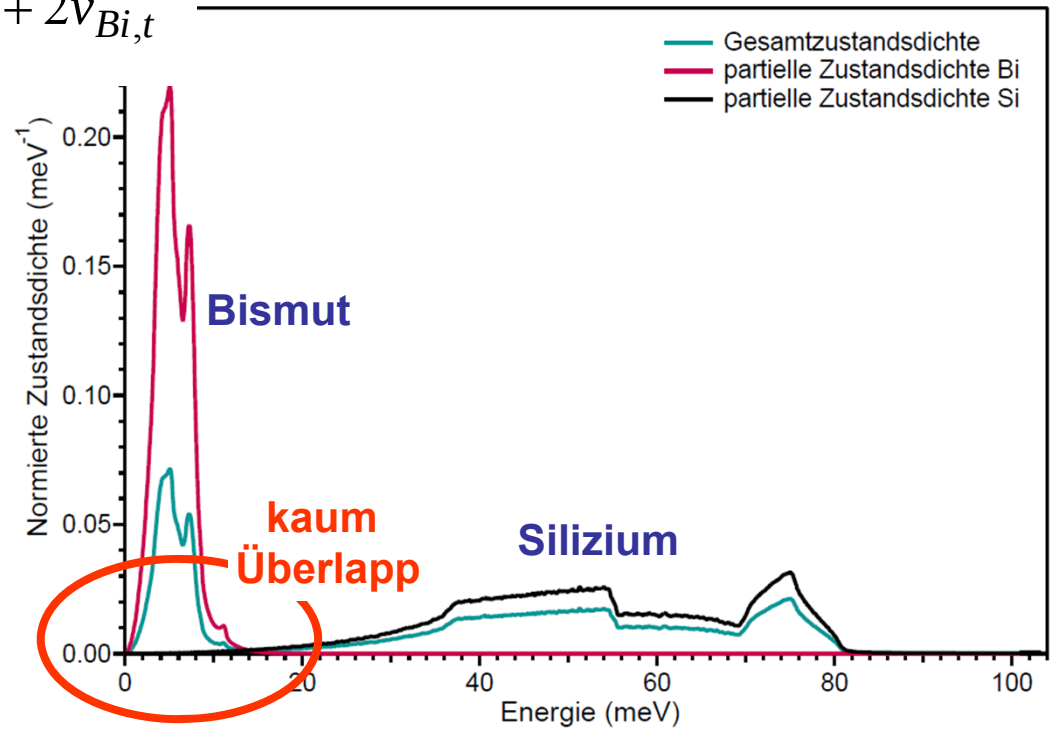
$$[28] \quad \Gamma = \frac{1}{2} \frac{\sum_j v_{sub,j}^{-2}}{\sum_j v_{sub,j}^{-2} + \sum_j v_{film,j}^{-2}}$$

$$[29] \quad \Gamma_{DMM} = \frac{1}{2} \frac{v_{Si,l}^{-2} + 2v_{Si,t}^{-2}}{v_{Si,l}^{-2} + 2v_{Si,t}^{-2} + v_{Bi,l}^{-2} + 2v_{Bi,t}^{-2}}$$

- Mit den Schallgeschwindigkeiten für Si und Bi ergibt sich:

$$\Gamma_{DMM} \approx 0.0176$$

- Wegen des geringen Überlapps der DOSs ist Γ_{DMM} so klein.



Diffuse Mismatch Model (DMM)

- Analog zum AMM (siehe Eq.22) berechnen wir mit der gemittelten Übergangswahrscheinlichkeit die Thermal Boundary Conductivity σ_{TBC} :

[30] $$\sigma_{TBC}(T_1,T_2) = \frac{k_B^4}{2\pi^2\hbar^3}\left(\sum_j \frac{\Gamma_{DMM}}{v_{Bi,j}^2}\right)\cdot\frac{T_1^4 g(\Theta_D/T_1) - T_2^4 g(\Theta_D/T_2))}{T_1 - T_2}$$

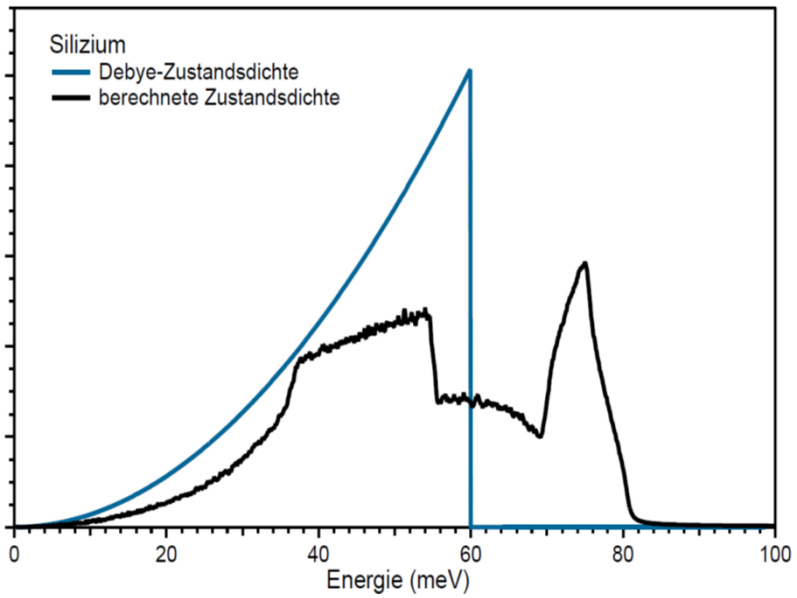
[31] $$= \frac{k_B^4}{4\pi^2\hbar^3}\Gamma_{\mathrm{DMM}}\left(\frac{1}{v_{Bi,l}^2}+\frac{2}{v_{Bi,t}^2}\right)\cdot(\ldots)$$

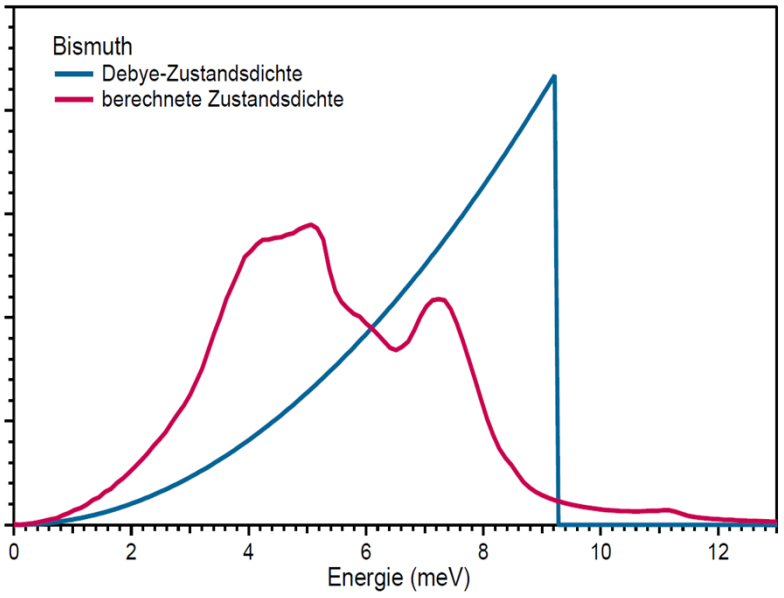
$$= 1520\ \mathrm{W/(K\,cm^2)}$$

- Werte von σ_{TBC} ähnlich für AMM und DMM, wenn im Rahmen der Debye-Näherung gerechnet wird, da in beiden Fällen die Schallgeschwindigkeiten $v_{\mathrm{film,j}}$ bzw. $v_{\mathrm{sub,j}}$ die entscheidenden Größen darstellen.

Diffuse Mismatch Model (DMM)

- Exaktes Ergebnis bei Verwendung der realen elementspezifischen modenselektiven DOS $D(\omega,j)$





- was uns jetzt aber zu weit geht….

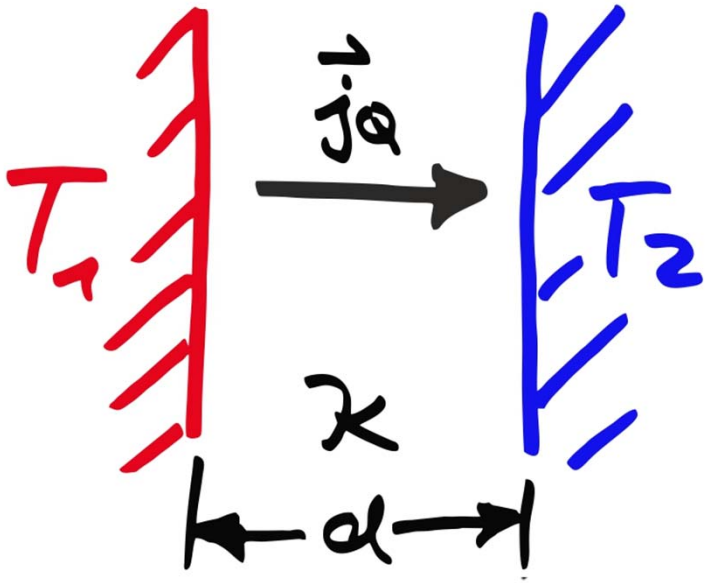
Wärmeübergangswiderstände
Teil 2 - Experimentelles

Michael Horn von Hoegen
Experimentelle Physik
Universität Duisburg-Essen

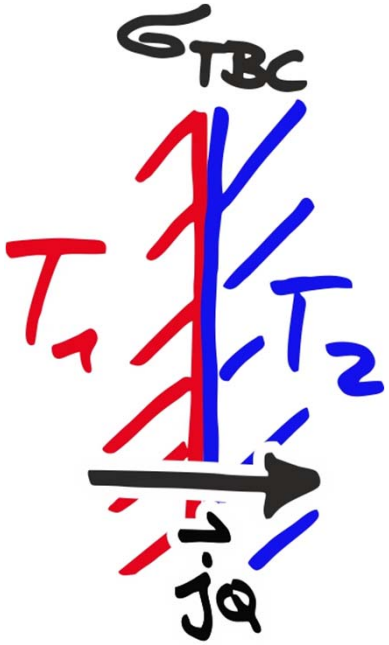
Ringvorlesung Thermoelektrik, 11. Januar 2019

Fragestellung

Wärmeleitfähigkeit dünner Filme



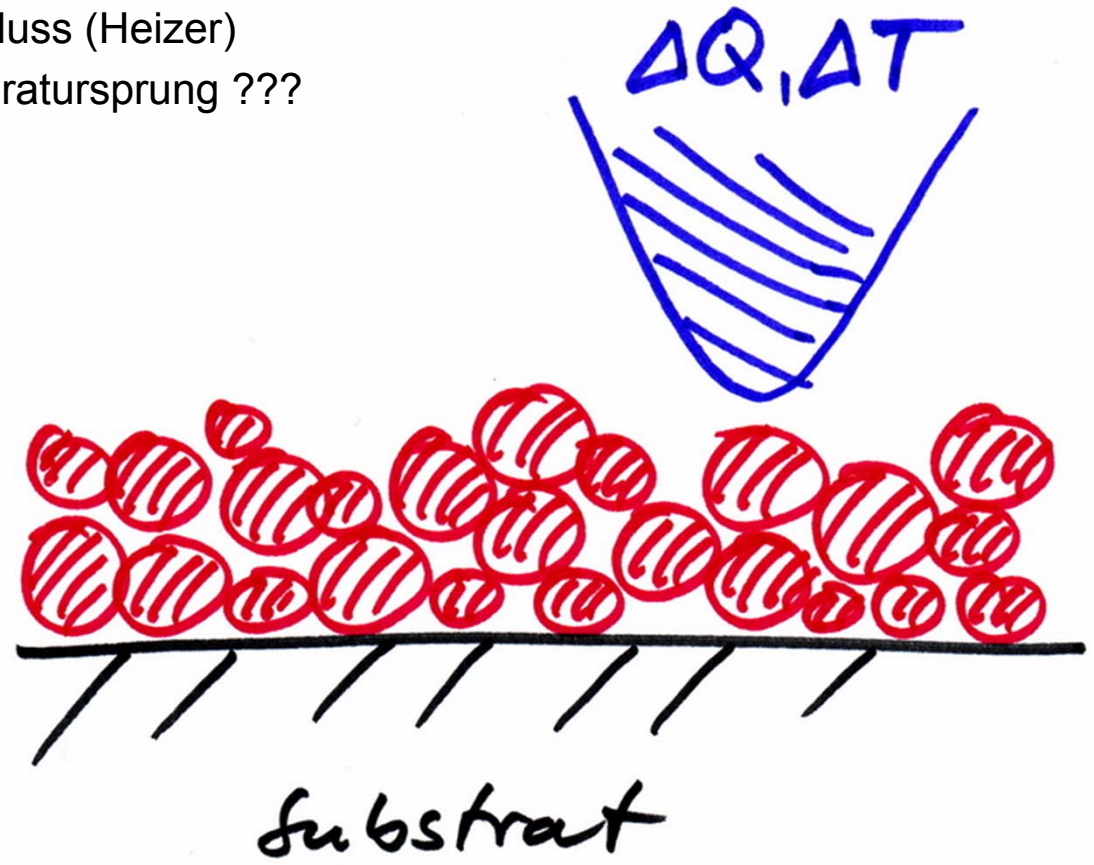
Wärmeleitfähigkeit von Grenzflächen



Messung von Wärmeleitfähigkeit

Messung von Wärmeübergangswiderständen an Nanostrukturen

- makroskopische Messung mit Heizern und Temperatursensoren fällt aus
- Keine Kontakte möglich an Nanostruktur
- Vielleicht mit dem STM - aber:
  - Unbekannter Wärmefluss (Heizer)
  - Messung vom Temperatursprung ???

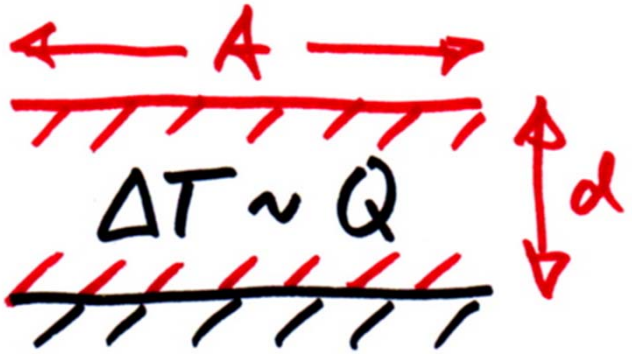


Messung von Wärmeleitfähigkeit

Kontaktlose Messung mit Fernsonde (erstmal für dünne Hetero-Filme)

- Eintrag von Wärmemenge Q in sehr kurzer Zeit durch fs-Laserpuls
  => transienter Temperatursprung:

$$\Delta T = \frac{Q}{c\rho V} = \frac{Q}{c\rho A d}$$



mit c spezifische Wärmekapazität
ρ Dichte
A Fläche
d Schichtdicke

- ΔT unabhängig von d für d << Absorptionstiefe $1/\alpha$
  & unabhängig von A
  da Q ~ A·d

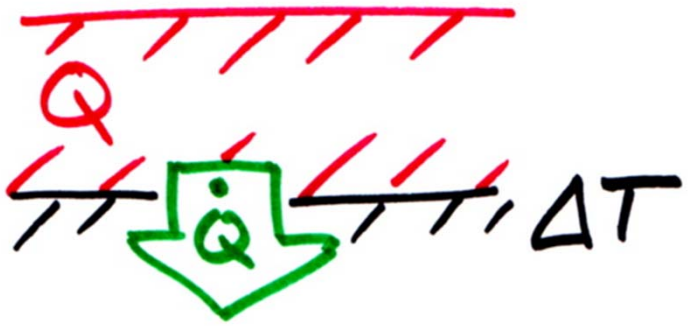
Transientes Abkühlverhalten

Abkühlverhalten ist gegeben durch Wärmeleitfähigkeit an der Grenzfläche

- Wärmefluss dQ/dt gegeben durch Thermal Boundary Conductivity σ_{TBC}:

$$\dot{Q} = -\sigma_{TBC} A \cdot \Delta T$$

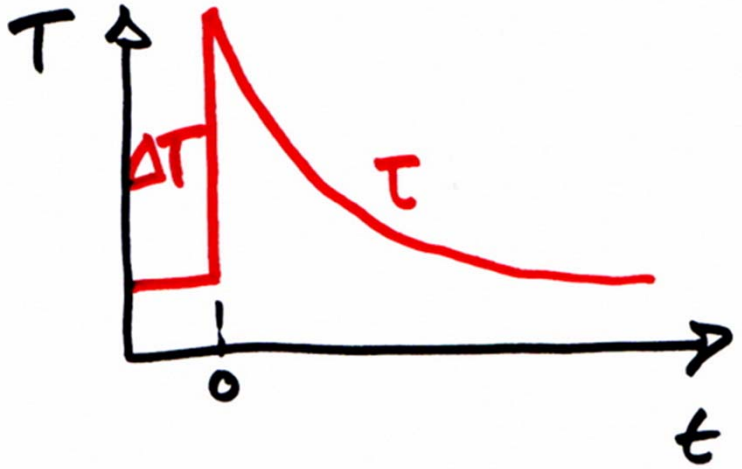
$$= -\sigma_{TBC} \frac{Q}{c\rho d}$$



- Ansatz durch exponentiellen Zerfall von T:

$$Q(t) = Q_0 \, e^{-t/\tau}$$

mit $$\tau = \frac{c\rho d}{\sigma_{TBC}}$$



unabhängig von der eingetragenen Wärmemenge Q_0, die abhängig ist von:

- Laserfluence, Fokussierung
- Reflektion & Absorption
- elektronischen Verlusten
- …

UNIVERSITÄT DUISBURG ESSEN

Transientes Abkühlverhalten

- Bestimmung der Thermal Boundary Conductivity σ_{TBC} :

$$\sigma_{TBC} = \frac{c_p \rho d}{\tau}$$

aus dem Experiment

Aber wie messen wir das?

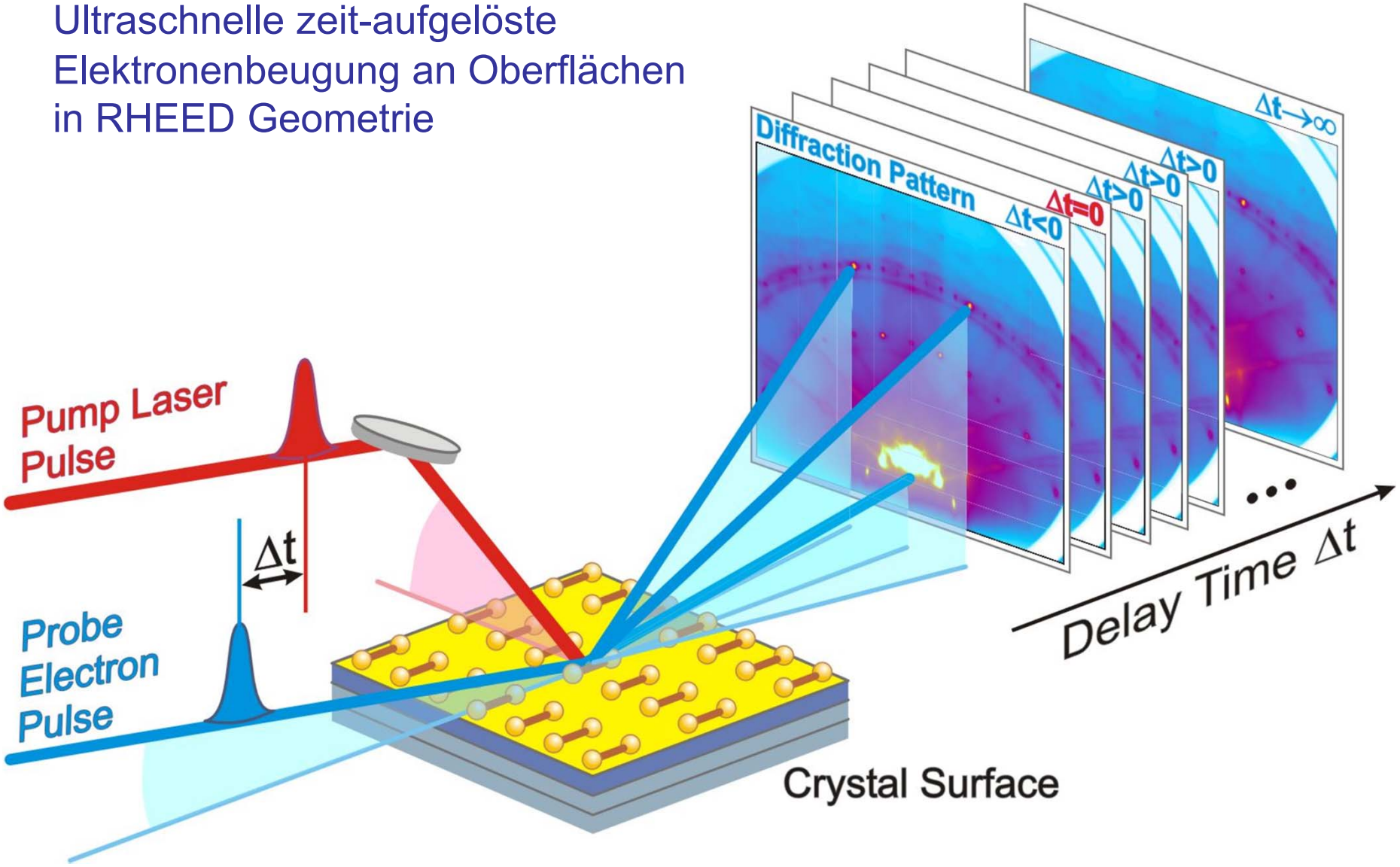
- Pump-Probe Experiment mit Anregung durch fs- Laserpuls
  &
  Abfrage nach Δt durch eine Sonde, die Temperaturänderungen misst

- z.B. Thermoreflectance, Bandgap, oder
  ultraschnelle Beugung von Elektronen oder x-Rays (Debye Waller Effekt)

UNIVERSITÄT DUISBURG ESSEN

TR-RHEED in Pump-Probe Setup

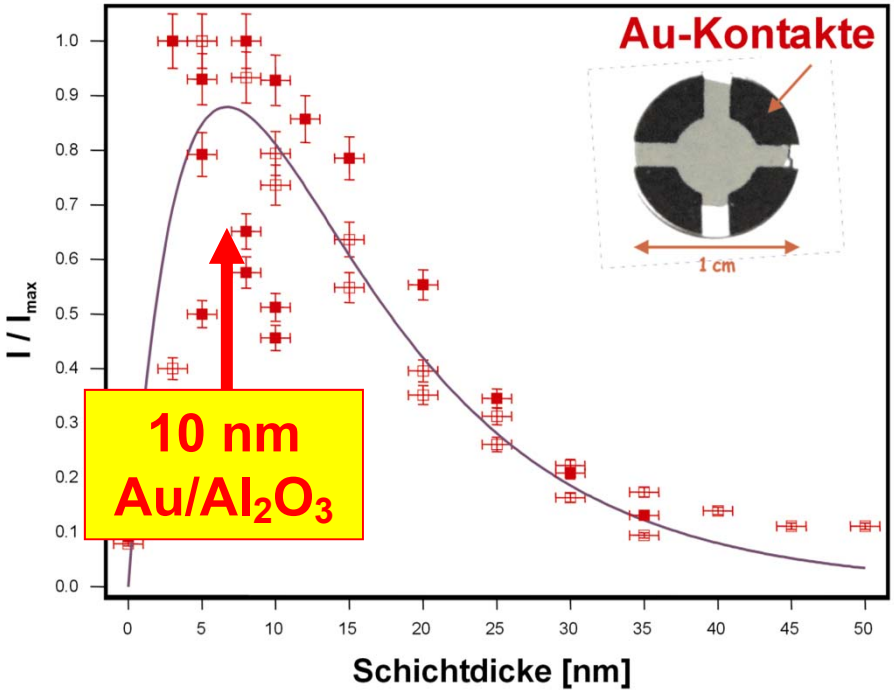
Ultraschnelle zeit-aufgelöste
Elektronenbeugung an Oberflächen
in RHEED Geometrie

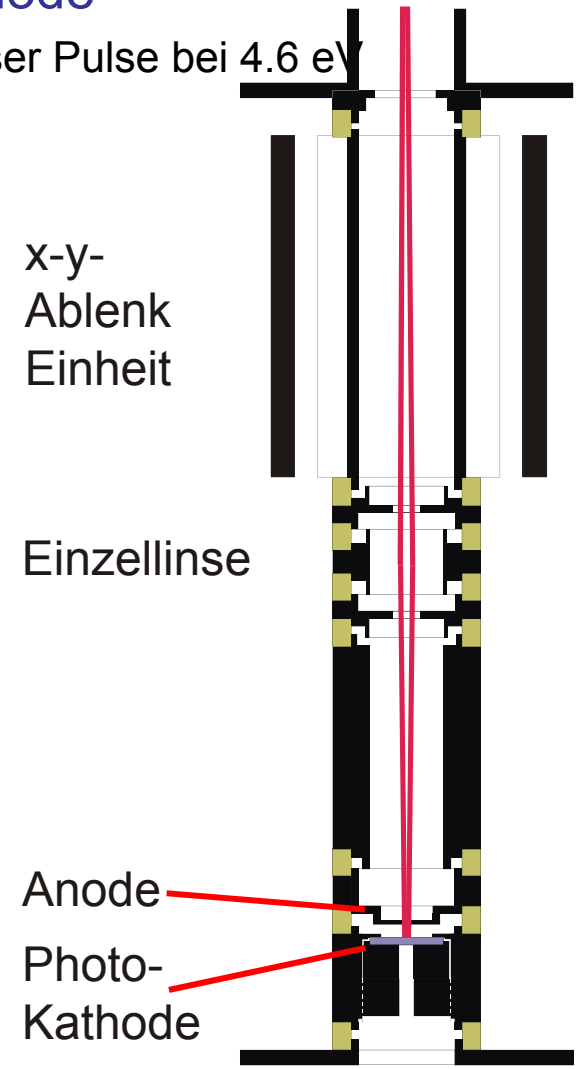


Gepulste RHEED Elektronenkanone

Kurze Elektronen Pulse aus einer Photokathode

- via externen Photoeffekt ausgelöst durch 50 fs Laser Pulse bei 4.6 eV
- 5 – 25 keV Elektronen
- fine-focus LEED Kanone
- streifender Einfall für Oberflächenempfindlichkeit





A. Janzen, Horn von Hoegen et al., Rev. Sci. Inst. **78**, 013906 (2007)

UNIVERSITÄT DUISBURG ESSEN

Experimenteller Aufbau

Si(001) oder Si(111) im UHV

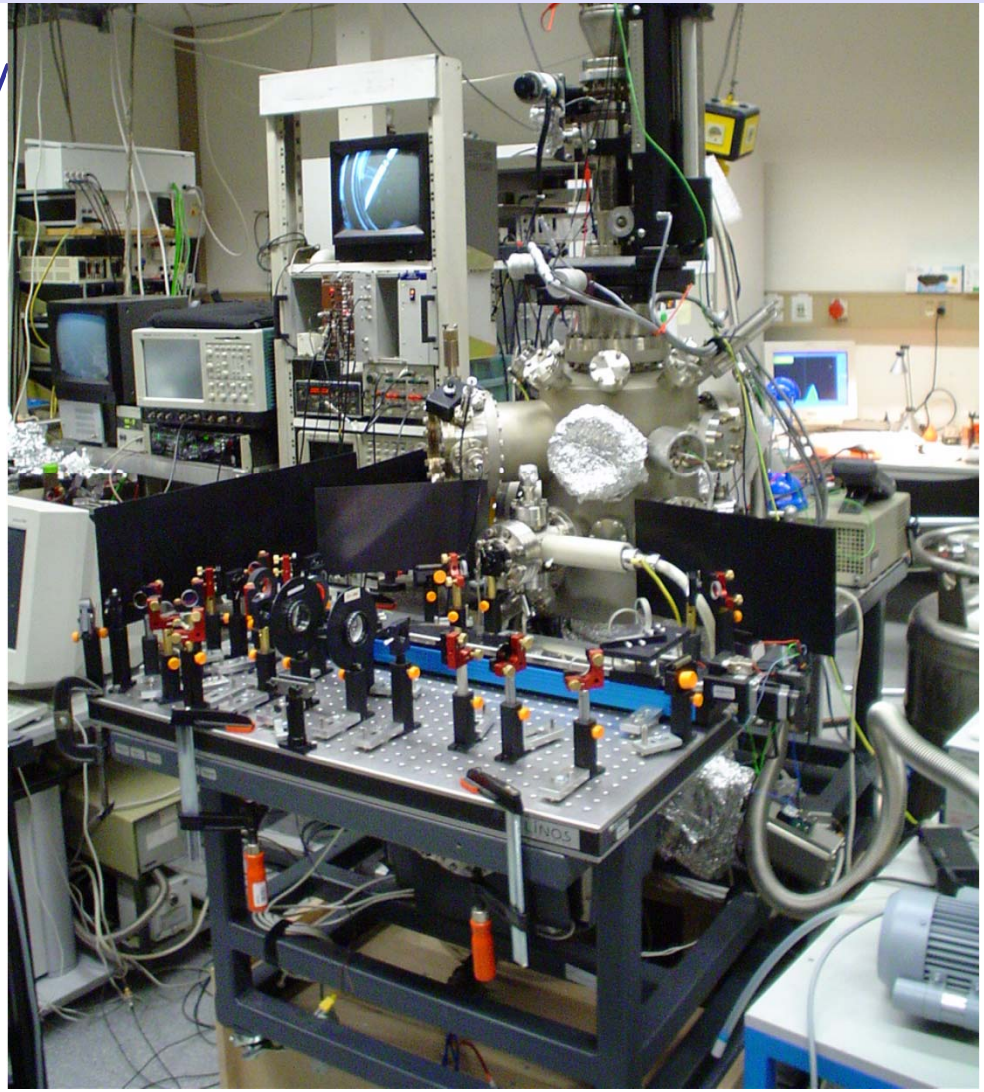
- 10 K (Liquid He)
- 77 - 300 K (Liquid N_2)
- 1400°C

50 fs Laser Pulse

- Ti-Saphire Lasersystem
- 0.5 mJ pro Pulse
- 5 kHz Repetitionsrate
- 800 nm, 1.45 eV

MCP-RHEED in UHV

- 5 - 25 keV Elektronen bei 6°- 2° streifendem Einfall
- Gekühlte CCD Kamera



A. Janzen, B. Krenzer, P. Zhou, D. von der Linde, and M. Horn von Hoegen
Surf. Sci. **600**, 4094 (2006)

Temperatur Sonde

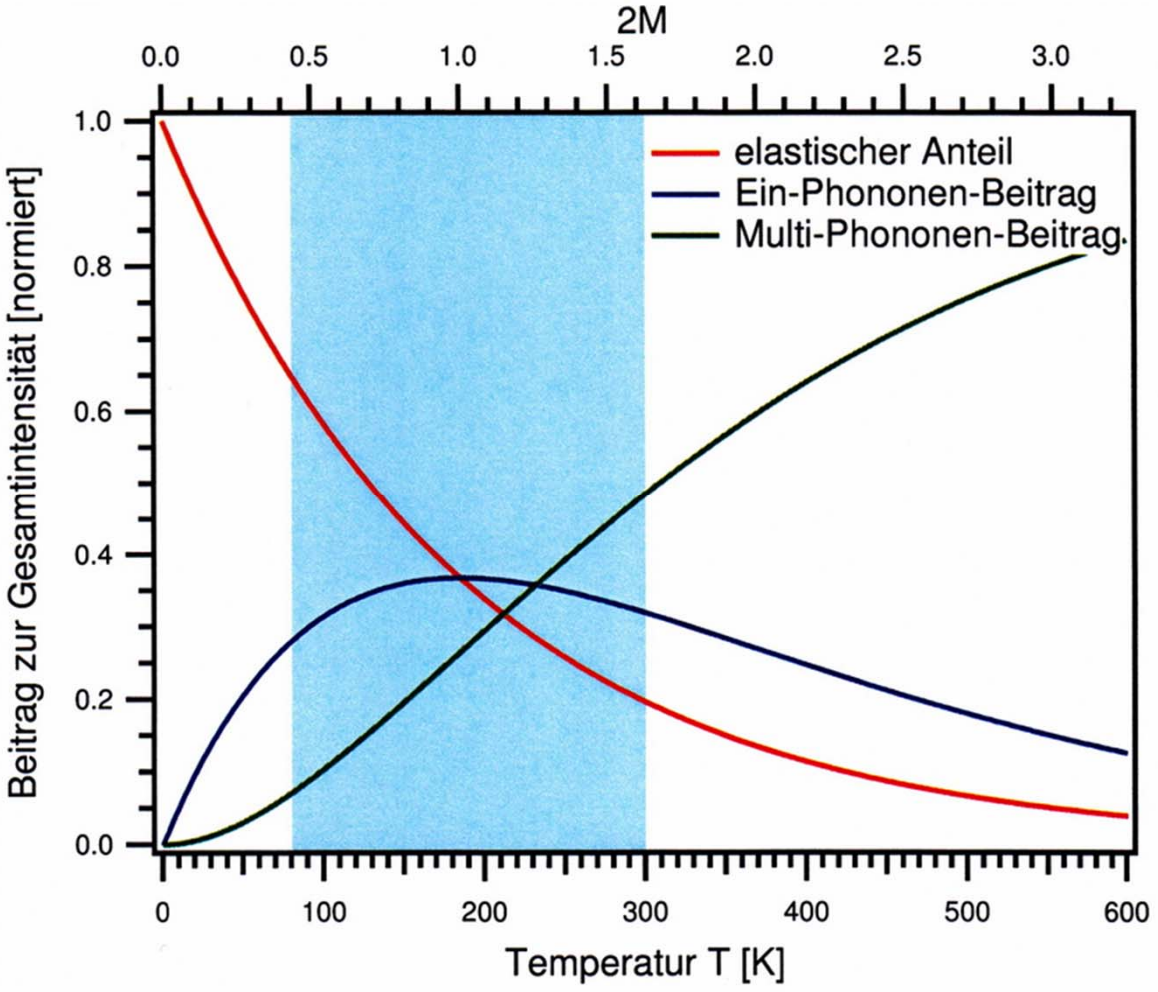
Debye-Waller Effekt:

$$I(T) = I_0 \cdot e^{-\left\langle \vec{K}\vec{u} \right\rangle^2} = I_0 \cdot \exp(-\tfrac{1}{3} K^2 u^2) = I_0 \cdot \exp -2M$$

Oberflächen Debye Temperatur:

$$u^2 \propto T / \Theta_D^2$$

Abnahme der Reflexintensität ohne Reflex-Verbreiterung



Temperatur Sonde

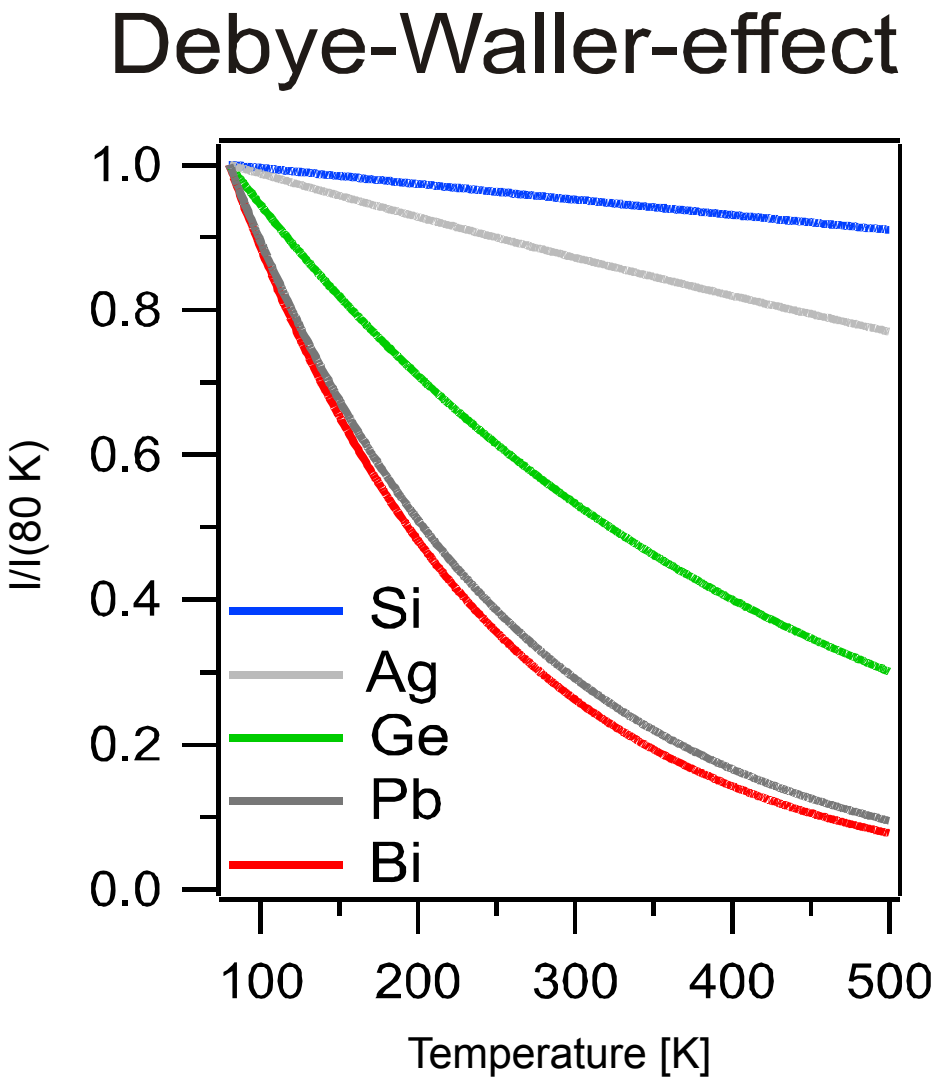
Debye-Waller Effekt:

$$I(T) = I_0 \cdot \exp(-\tfrac{1}{3} K^2 u^2)$$

Oberflächen Debye Temperatur:

$$u^2 \propto T / \Theta_D^2$$

Abnahme der Reflexintensität ohne Reflex-Verbreiterung



Temperatur Sonde

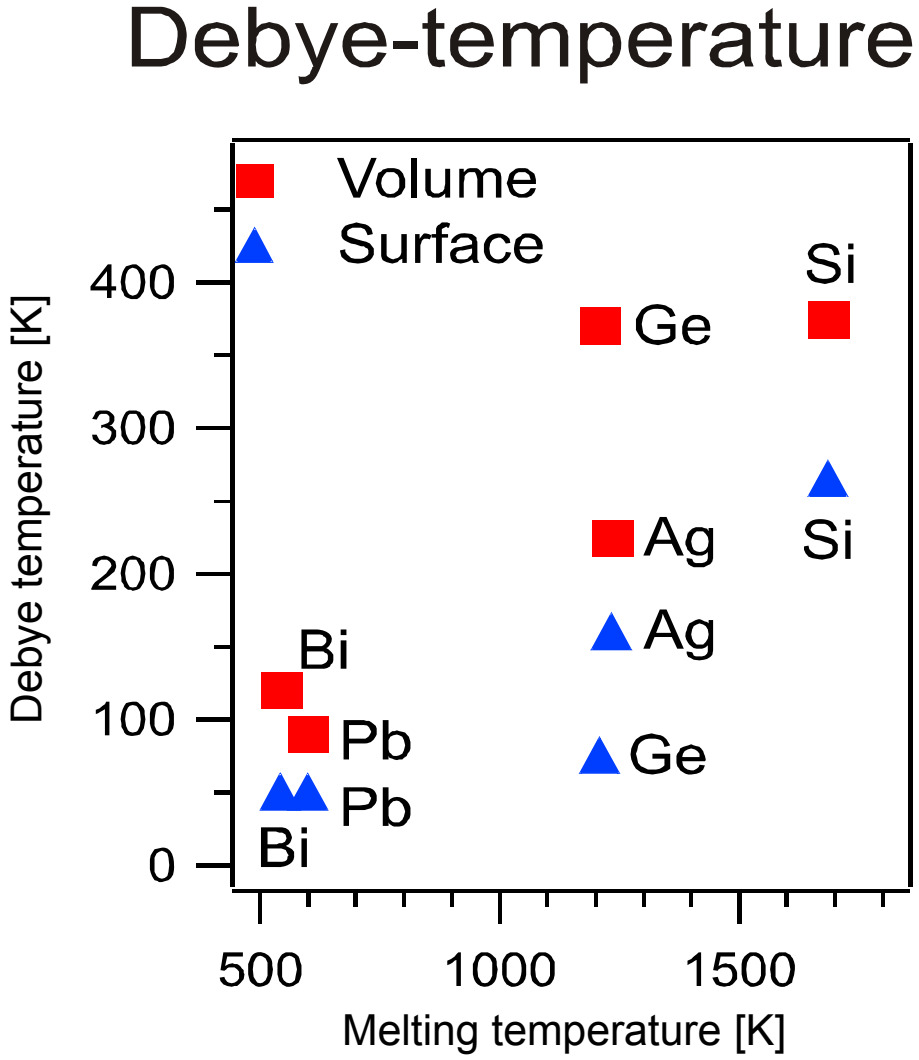
Debye-Waller Effekt:

$$I(T) = I_0 \cdot \exp(-\tfrac{1}{3} K^2 u^2)$$

Oberflächen Debye Temperatur:

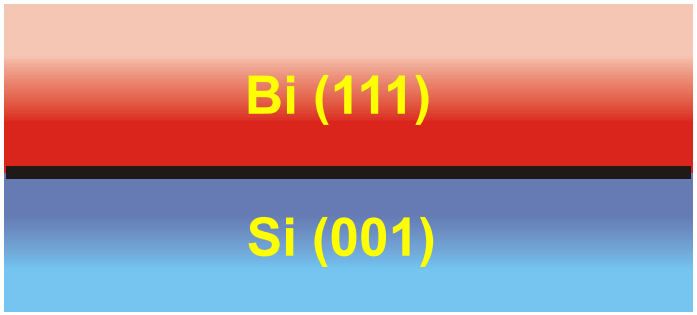
$$u^2 \propto T / \Theta_D^2$$

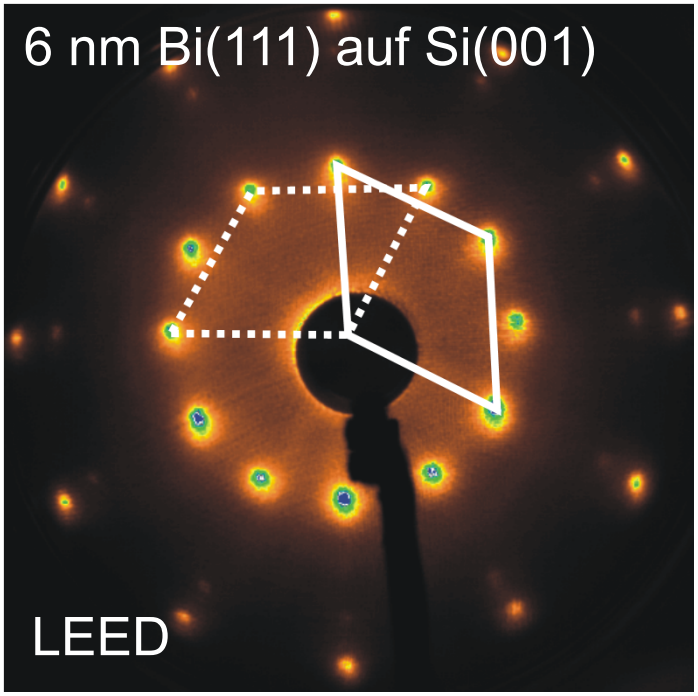
Abnahme der Reflexintensität ohne Reflex-Verbreiterung



UNIVERSITÄT DUISBURG ESSEN

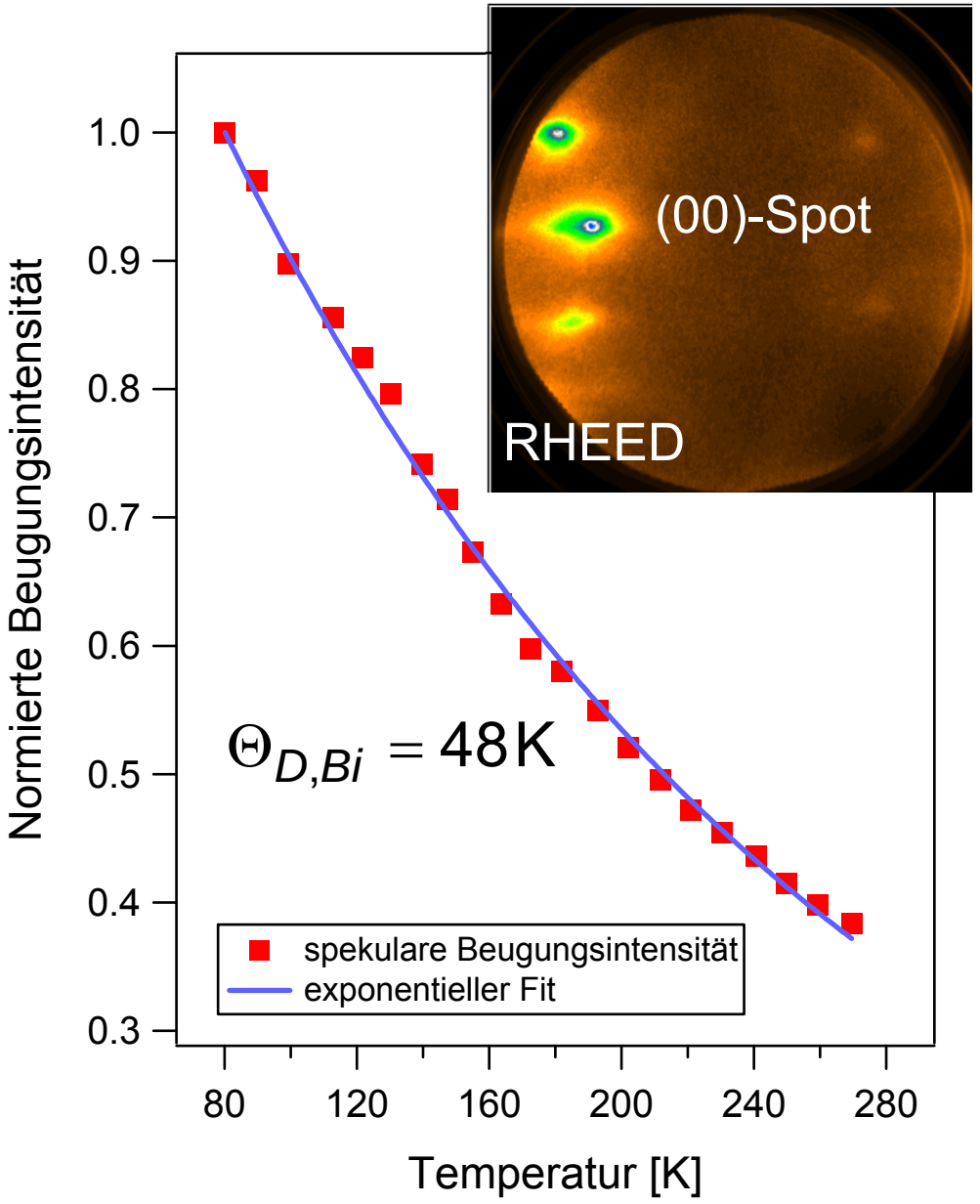
Epitaktische Bi(111)-Filme auf Si





$$\lambda_{\mathrm{Bi,800nm}} = 13\,\mathrm{nm}$$

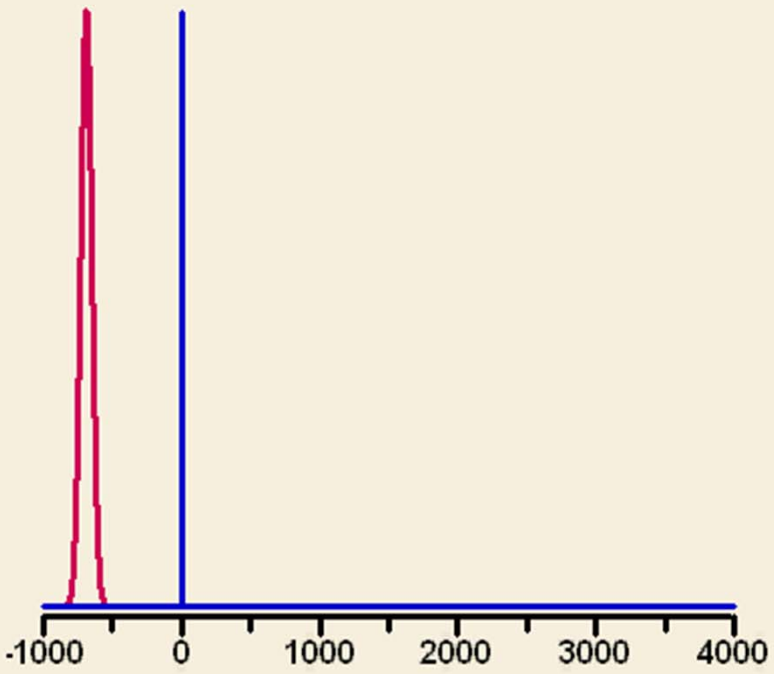
M. Kammler, Diploma Thesis, Uni Hannover (1996)
G. Jnawali et al., Phys. Rev. B **74**, 195340 (2006)

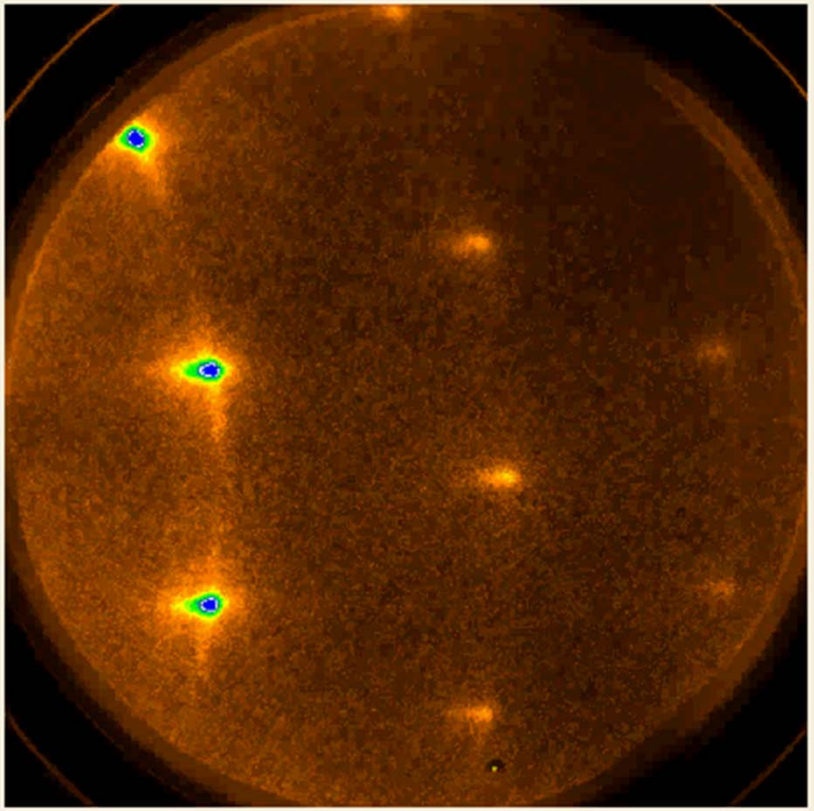


Transienter Intensitätseinbruch

Bi on Si(111)

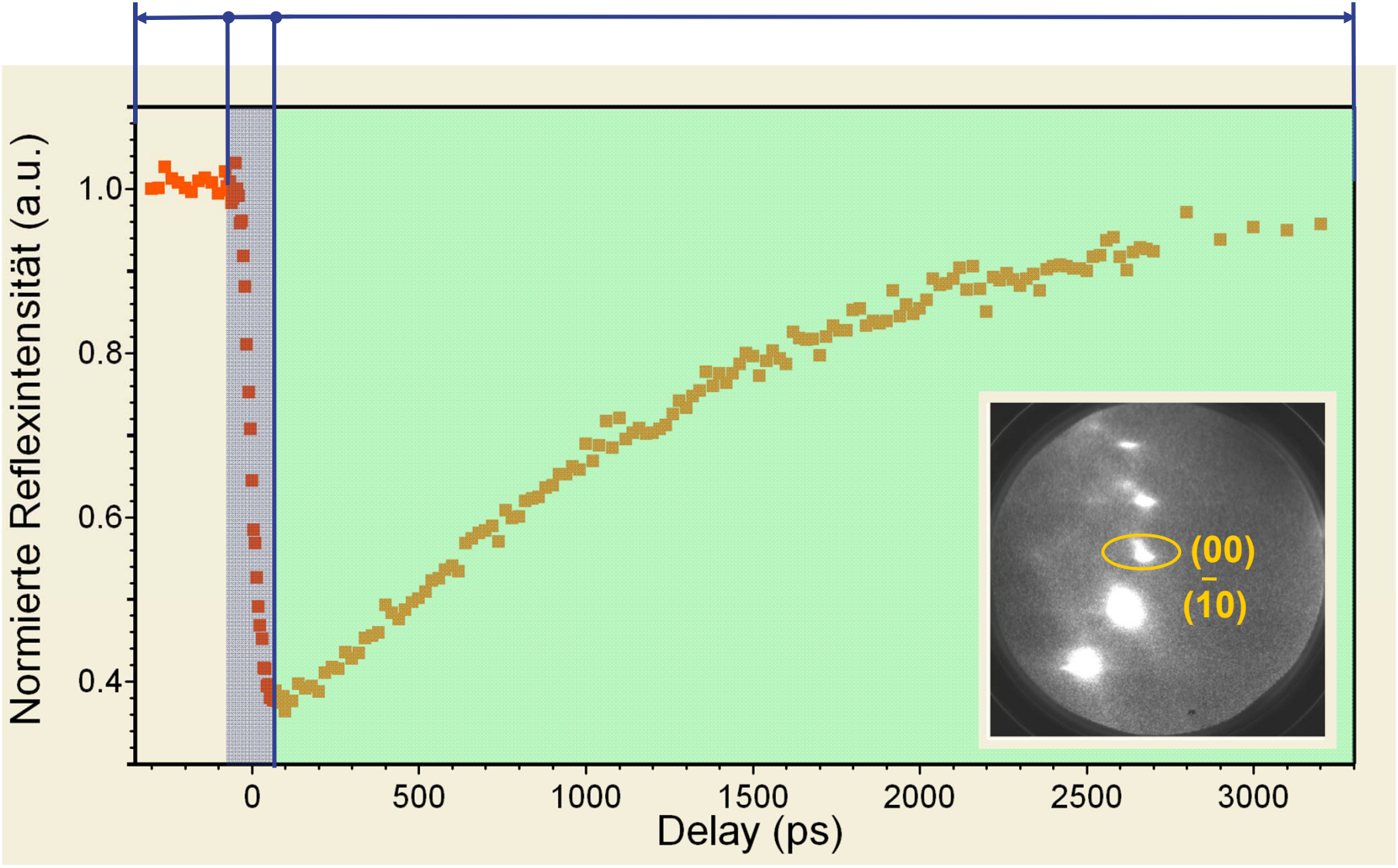
- Pump Fluenz: 2.3 mJ/cm^2
- Elektronenenergie: 7.0 keV, α = 5°, $\Delta k_{\perp,00}$= 7.5 Å^{-1}





UNIVERSITÄT DUISBURG ESSEN

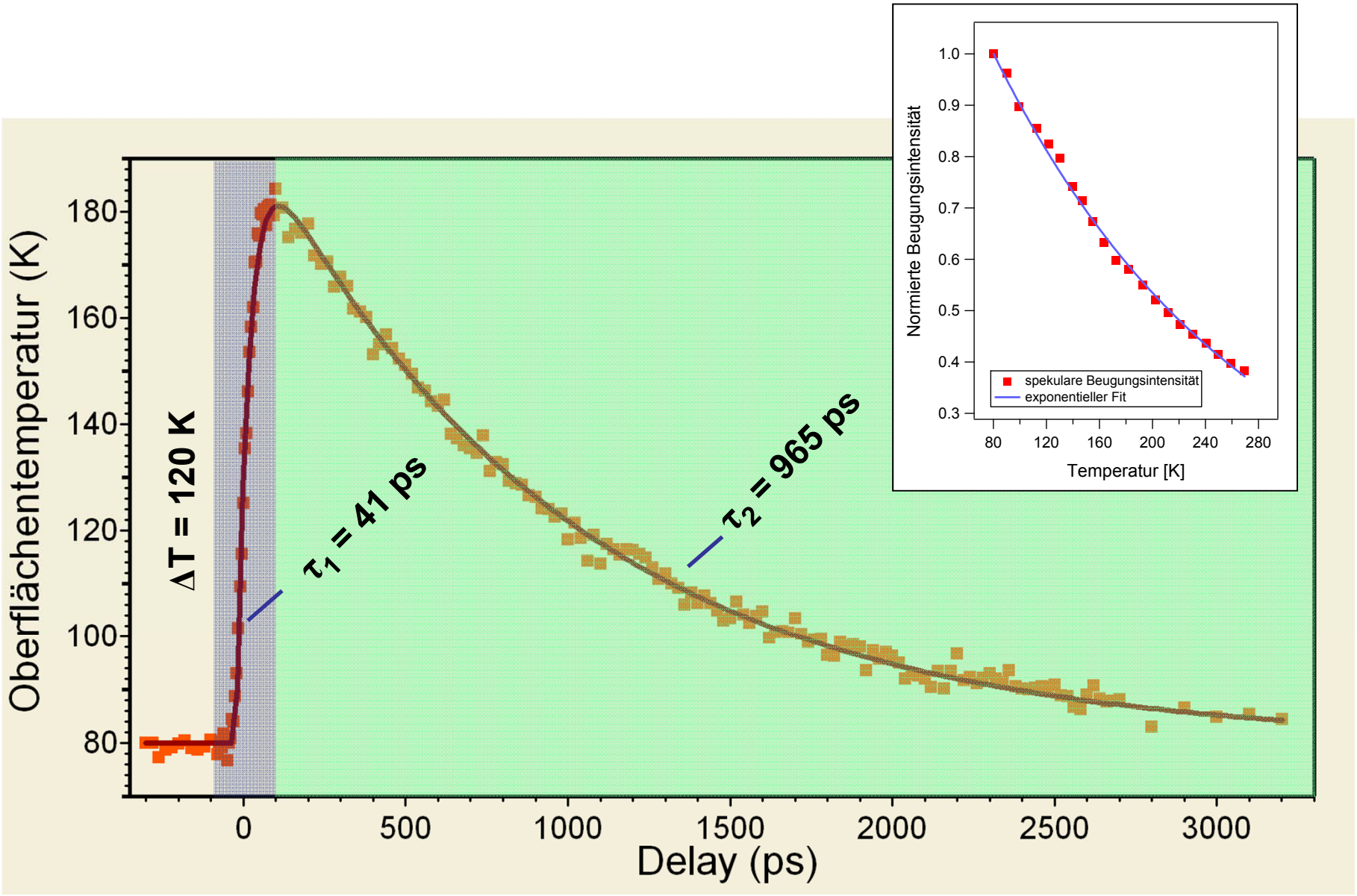
Transienter Intensitätseinbruch



B. Krenzer et al., *New J. Phys*. **8**,190 (2006), A. Janzen et al., *Surf. Sci*. **600**, 4094 **(**2006).

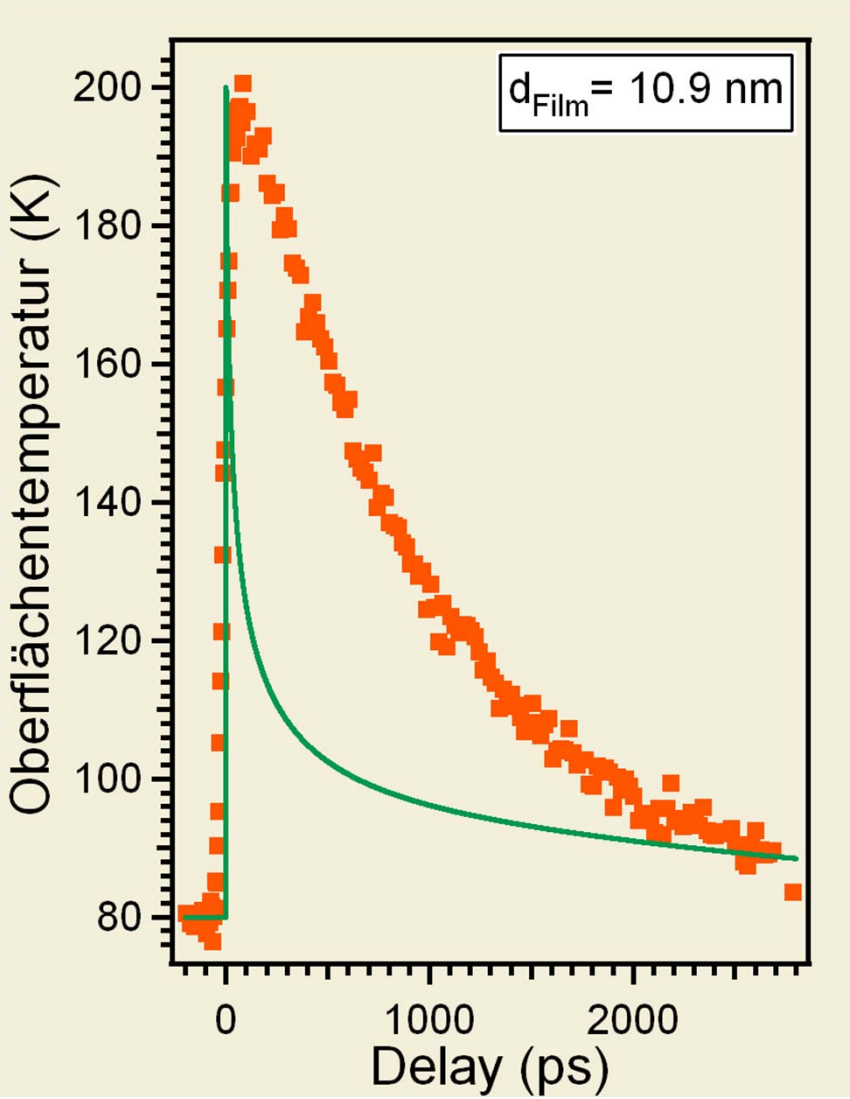
UNIVERSITÄT DUISBURG ESSEN

Transientes Heizen nach fs-Laser Puls



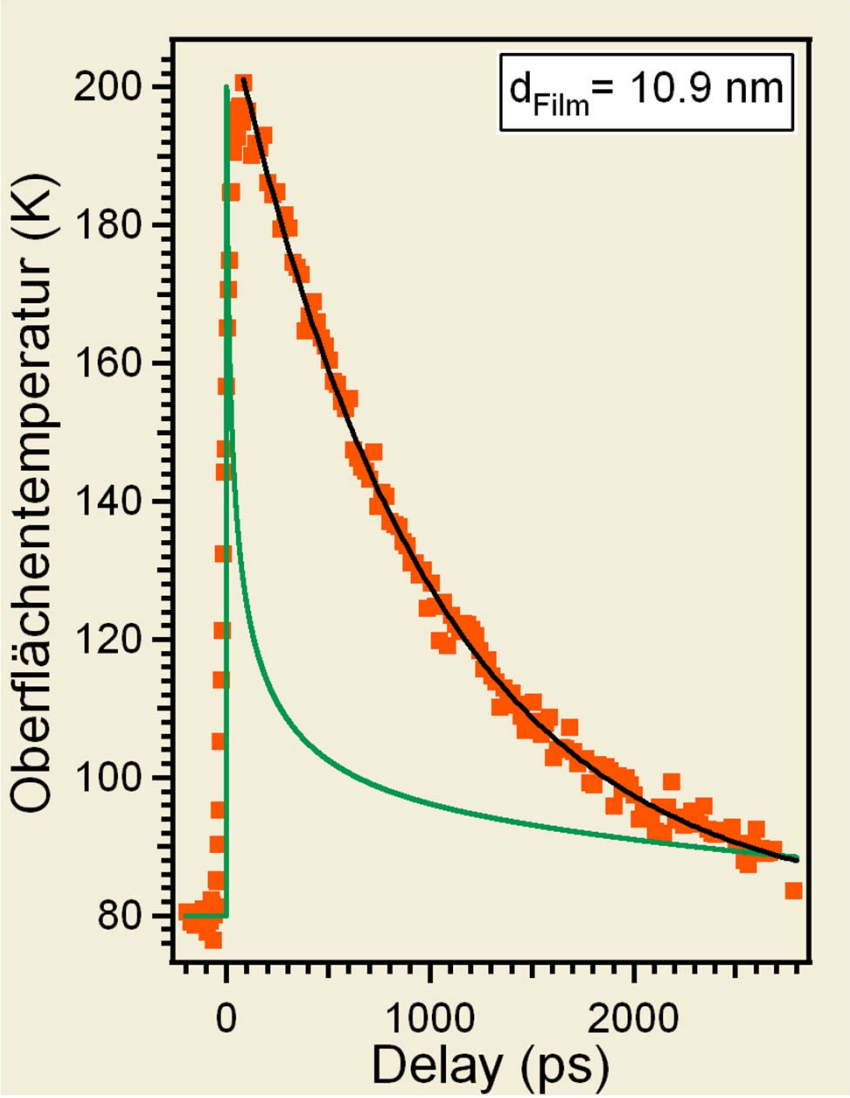
B. Krenzer et al., *New J. Phys*. **8**,190 (2006), A. Janzen et al., *Surf. Sci*. **600**, 4094 **(**2006).

Transientes Heizen nach fs-Laser Puls

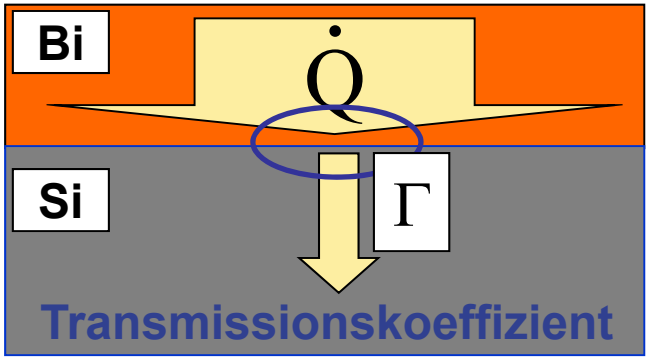


- Wärmediffusionsmodell für Bi-bulk ist viel schneller

Transientes Heizen nach fs-Laser Puls



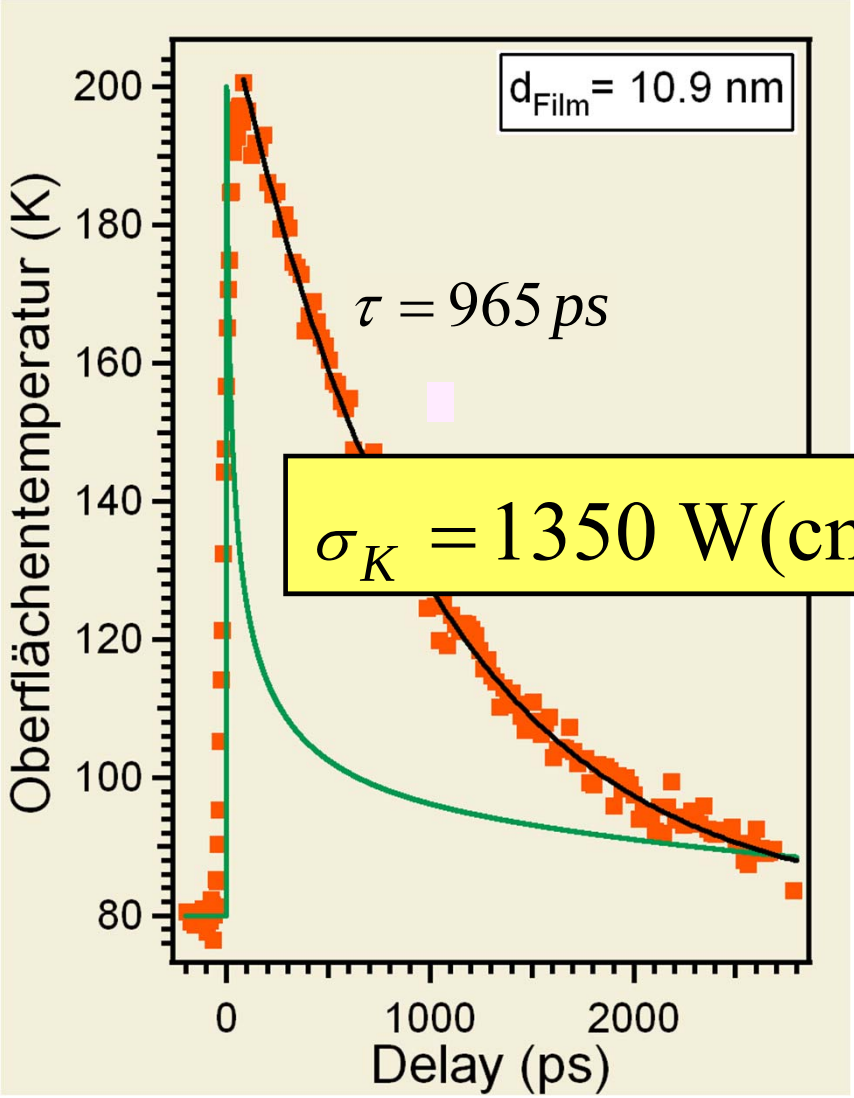
- Wärmediffusionsmodell für Bi-bulk ist viel schneller
- Interface: Barriere mit σ_K
- Thermal Boundary Conductance



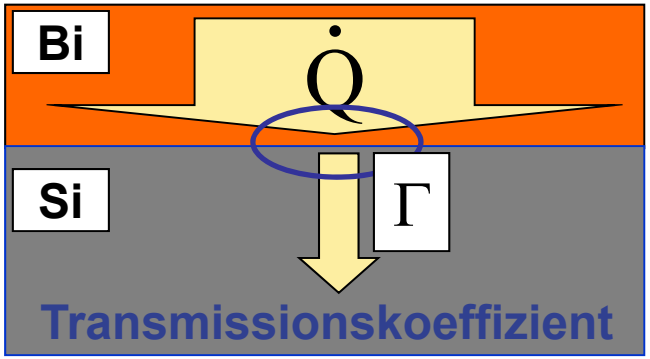
$$\sigma_{TBC} = -\frac{\dot{Q}}{A\Delta T}$$

E.T. Swartz, R.O. Pohl,
Rev. Mod. Phys. **61**, 605 (1989).

Transientes Heizen nach fs-Laser Puls



- Wärmediffusionsmodell für Bi-bulk ist viel schneller
- Interface: Barriere mit σ_K
- Thermal Boundary Conductance

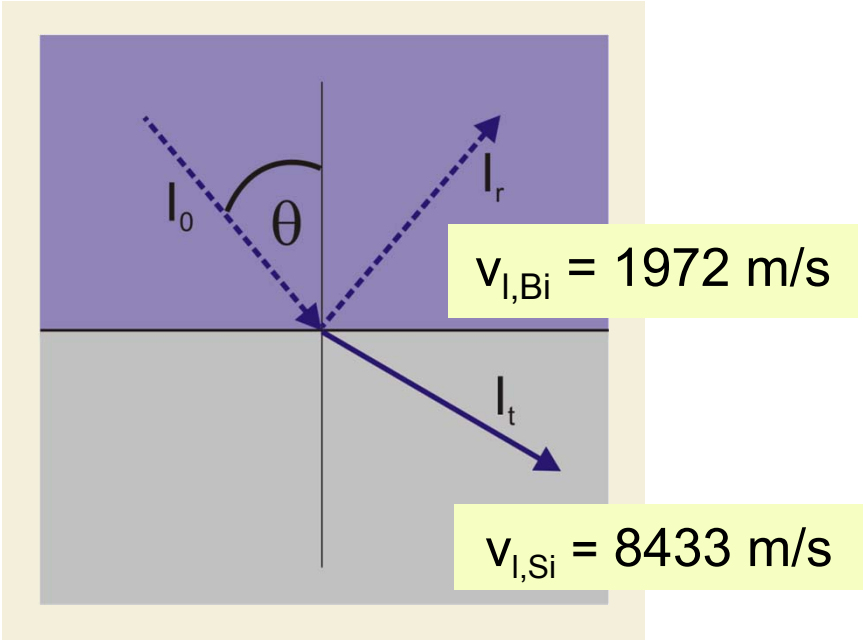


$$\tau = \frac{\rho \cdot c_p}{\sigma_{\mathrm{TBC}}} \cdot d$$

E.T. Swartz, R.O. Pohl,
Rev. Mod. Phys. **61**, 605 (1989).

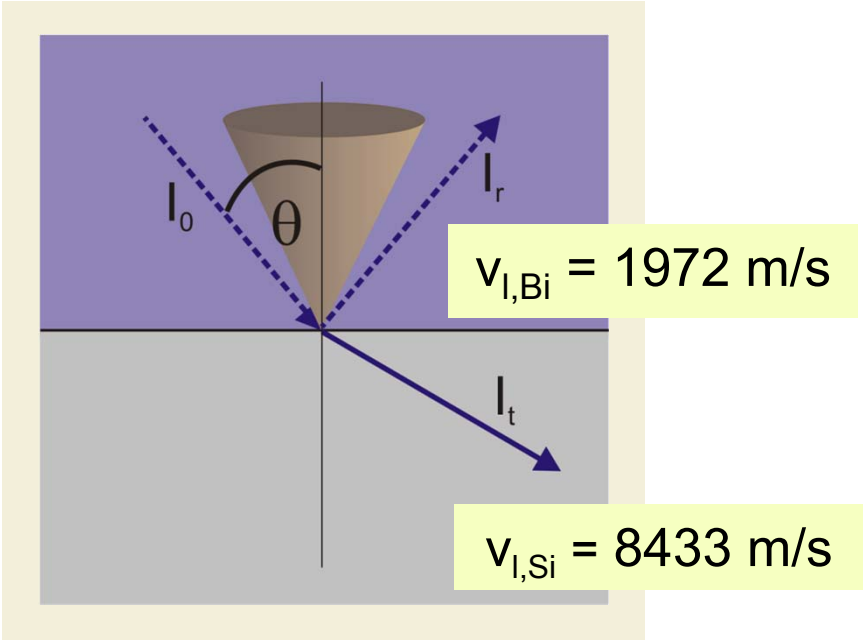
Acoustic Mismatch Model (AMM)

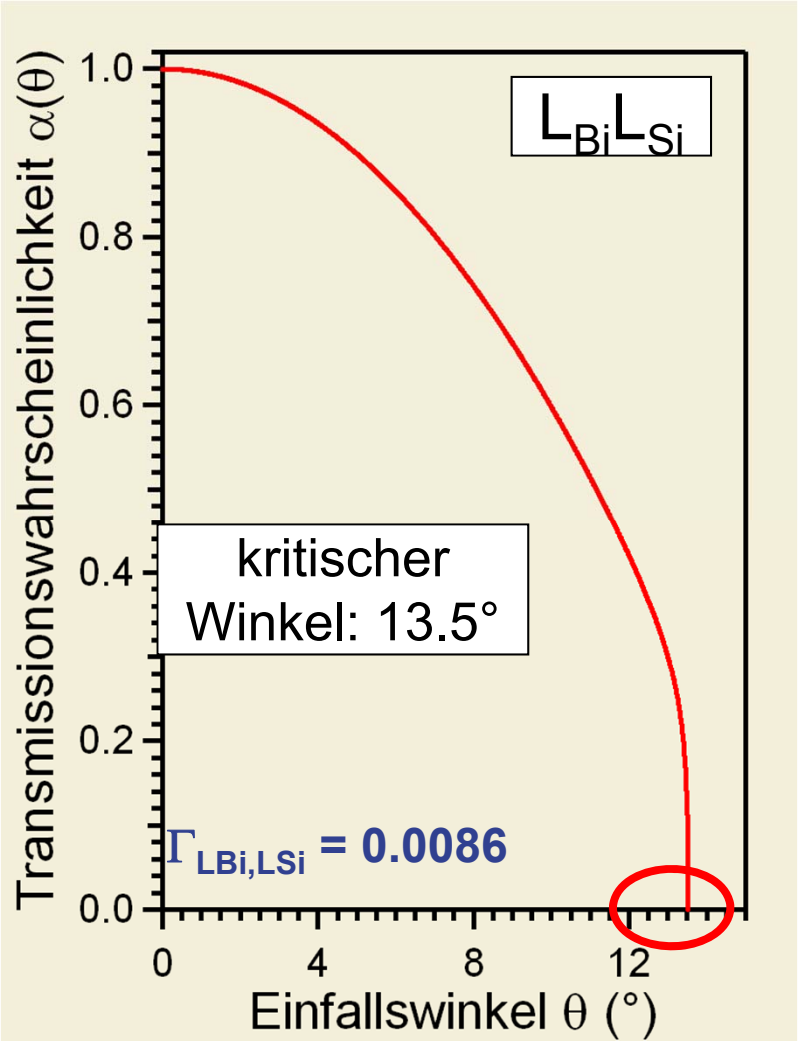
- Phononen: elastische Wellen
- Impulserhalt an der Grenzfläche
- Snells Law:
  Reflektion, Transmission, Brechung
  & Modenkonversion



Acoustic Mismatch Model (AMM)

- Wegen $v_{Bi} < v_{Si}$ =>Totalreflexion für $\alpha > 7.5°$, 11°, 13.5° oder 20° (je nach Mode)

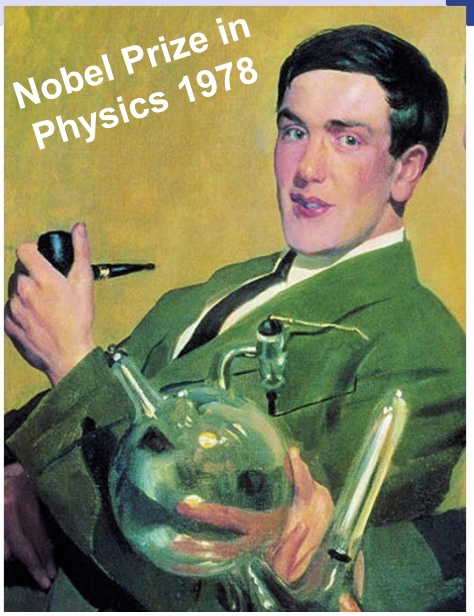




B. Krenzer et al., *New J. Phys*. **8**,190 (2006).

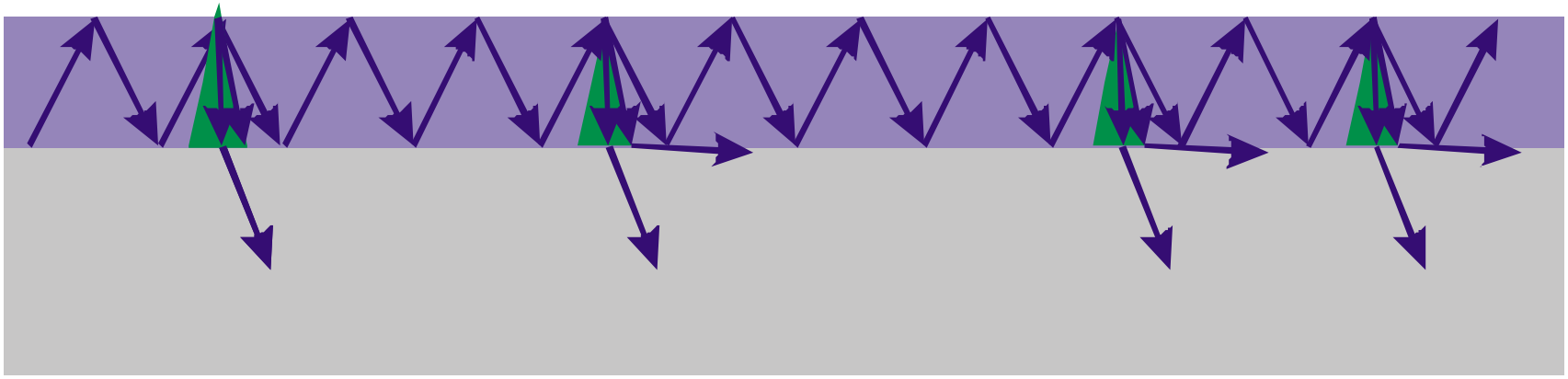
UNIVERSITÄT DUISBURG ESSEN

Acoustic Mismatch Model (AMM)



Pyotr Leonidovich Kapitsa

- Nur Phononen innerhalb eines kritischen Kegels können Bi-Film verlassen
- Nur 1 aus 100 Phononen gelingt dies …
- Thermal Boundary Resistance der Grenzfläche entspricht der Kapitzalänge: $l_K = K / \sigma_{TBC}$, hier 550 nm !
  => Grenzflächen extrem effektiv
- **Wärme bleibt im Bi-Film gefangen!**
- *Kapitza resistance* is the thermal resistance (which causes a temperature discontinuity) at the interface between liquid helium and a solid.



Material - Parameter

	Reflektivität	Absorption	Dichte	Wärmeleitfähigkeit	Spezifische Wärmekapazität
	r (%)	α ($10^6 m^{-1}$)	ρ (kg/m^3)	K (W/(K m))	c (J/(K kg))
Bi	90	58.8	9780	7.9 [a]	122
Si	30	0.077	2328	1000.0 [b]	722

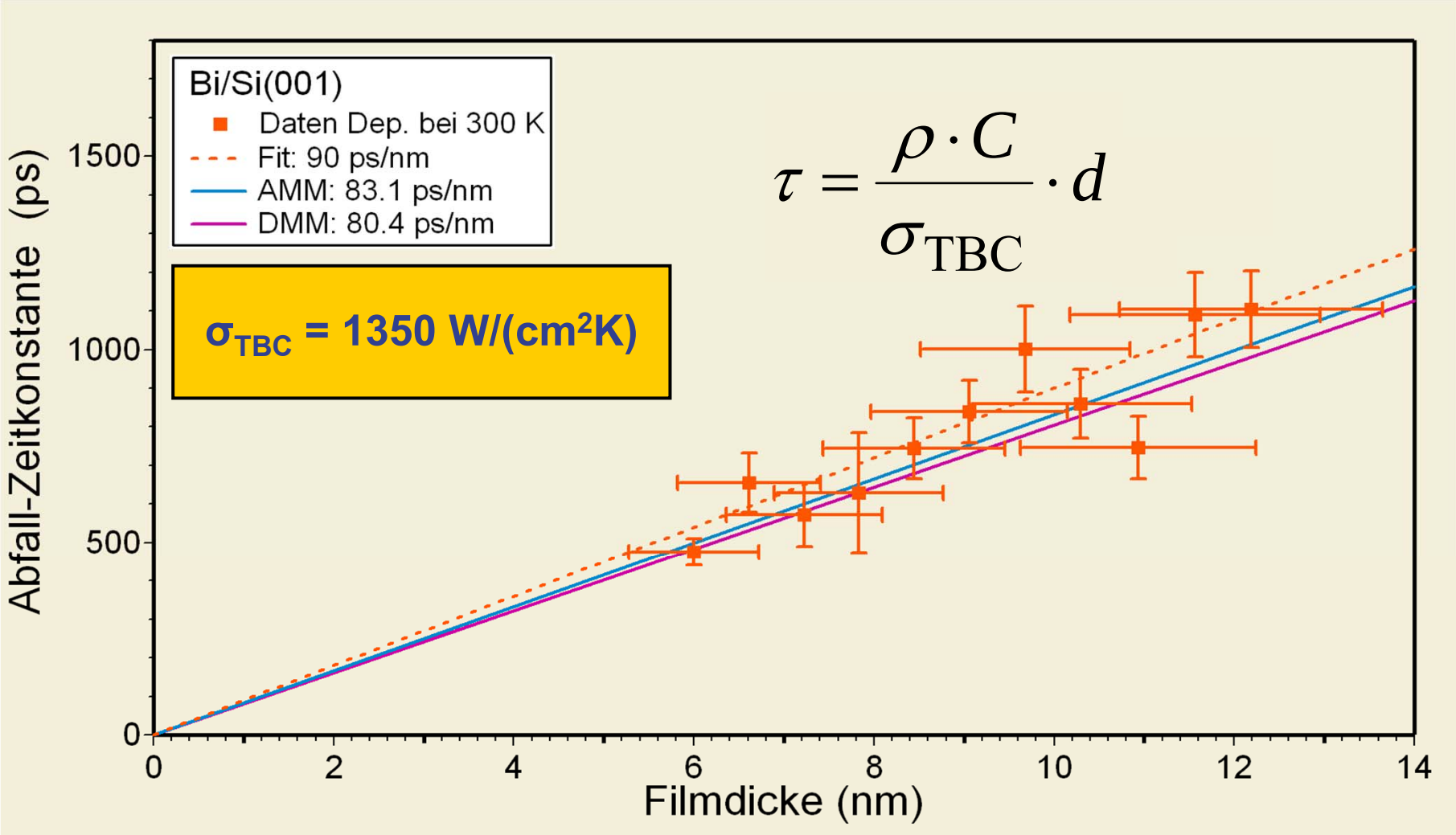
[a] at 300 K.
[b] at 80 K.

Schallgeschwindigkeiten

	Bi	Si
TA-Phononen [m/s]	1074	5845
LA-Phononen [m/s]	1972	8433
Dichte [kg m^{-3}]	9790	2328

UNIVERSITÄT DUISBURG ESSEN

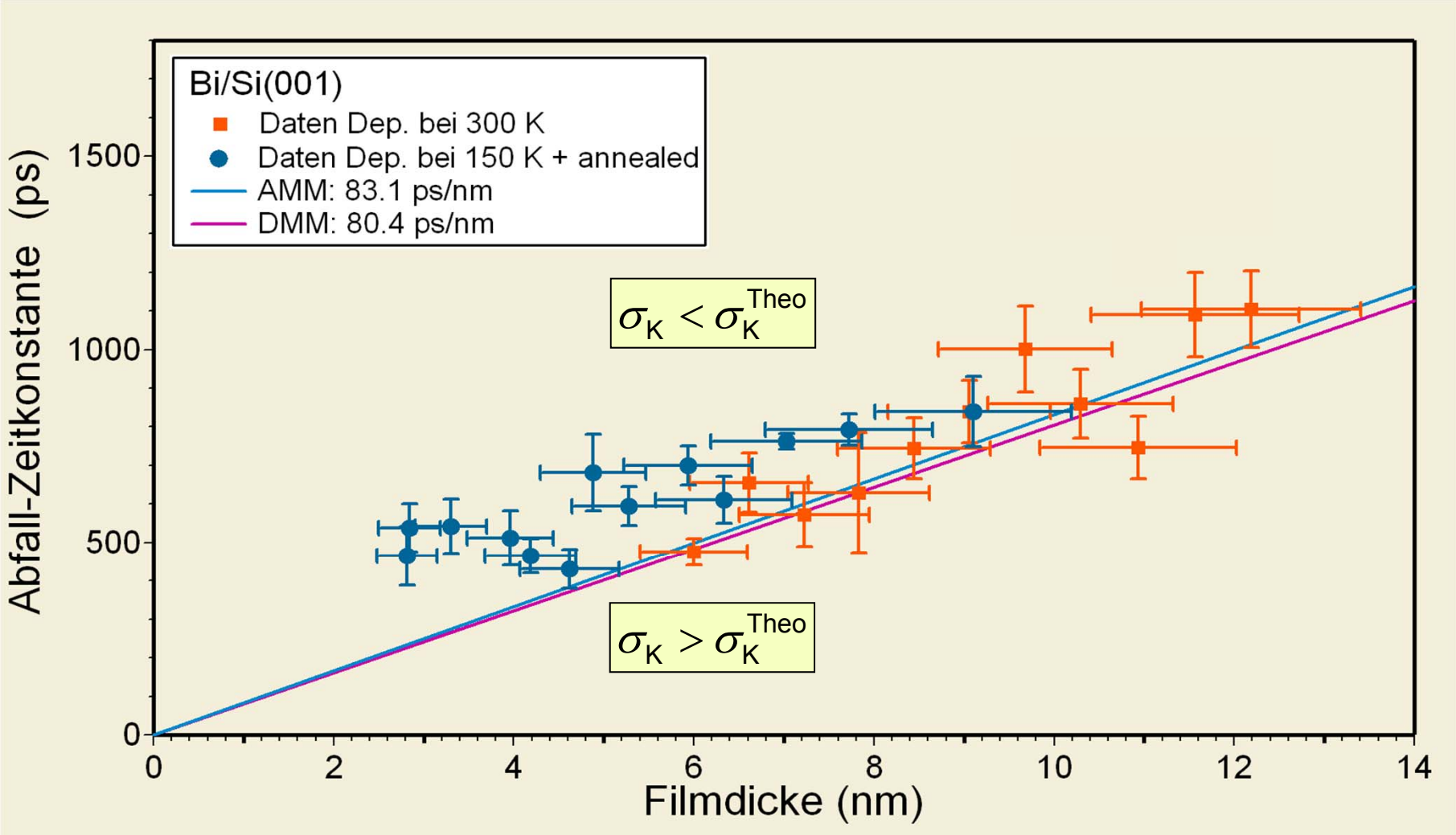
Bi(111) Filme auf Si(001)



A. Hanisch et al. *Phys. Rev. B* **77**, 12 (2008).

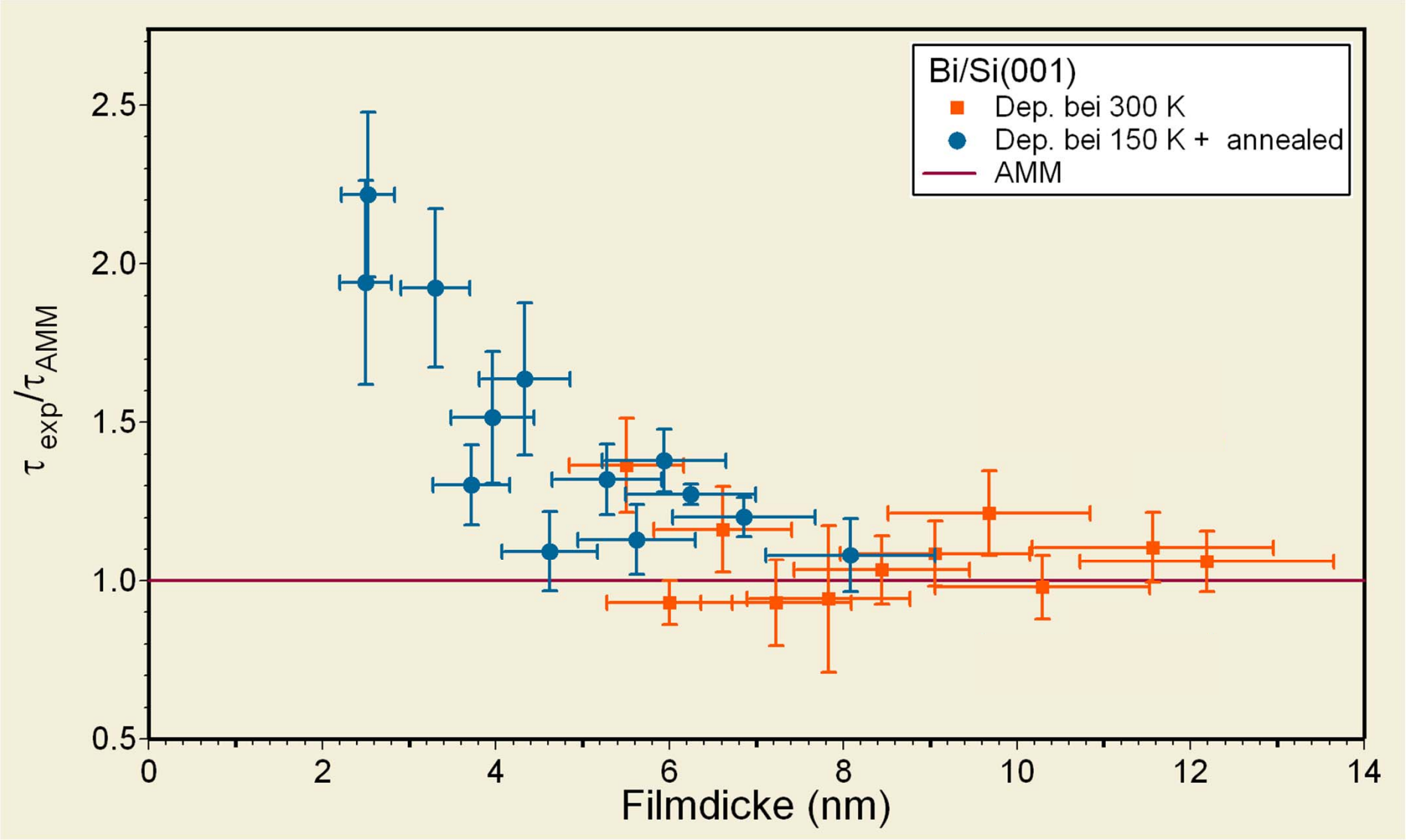
UNIVERSITÄT DUISBURG ESSEN

Bi(111) Filme auf Si(001)



UNIVERSITÄT DUISBURG ESSEN

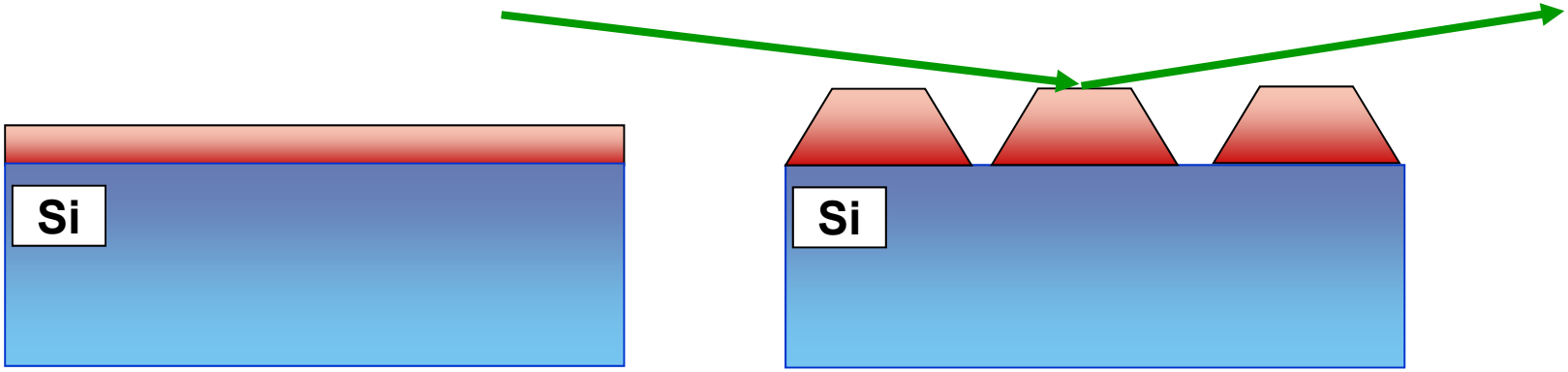
Bi(111) Filme auf Si(001)



Abweichung vom AMM für Bi(111)/Si(001)

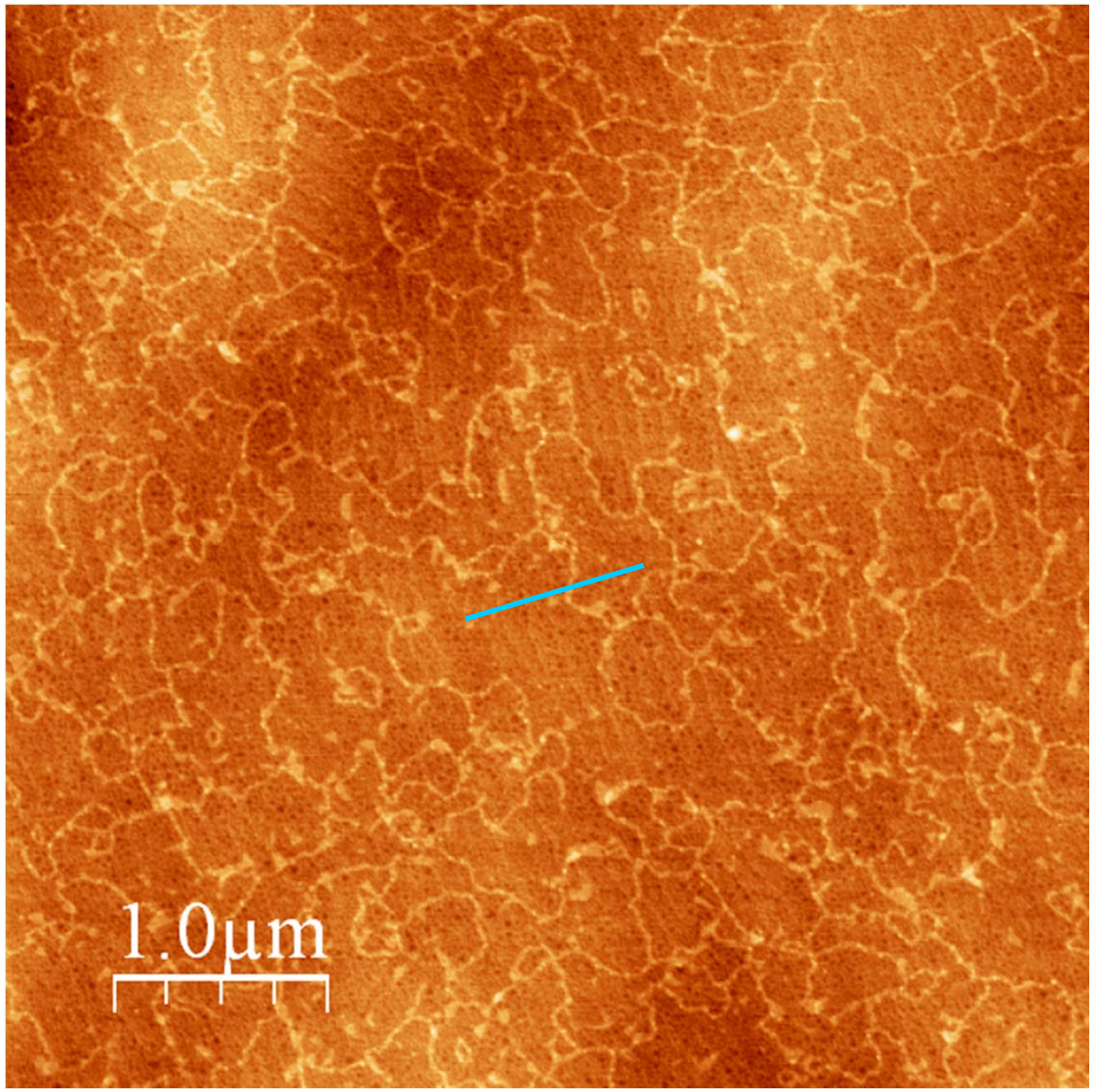
Stark angestiegener Wärmewiderstand für Filme < 6nm

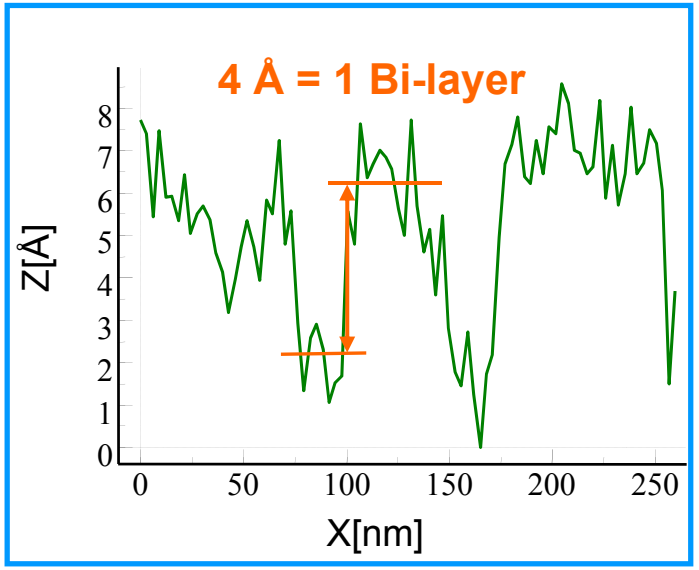
- Ultradünne Filme wirklich geschlossen? Oder bilden sich Inseln?

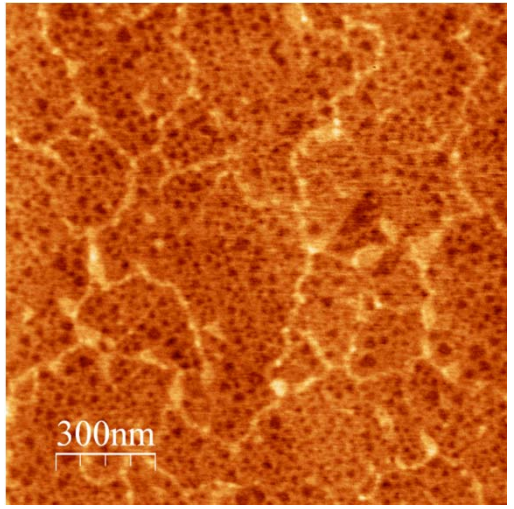


UNIVERSITÄT DUISBURG ESSEN

Bi(111) Filme auf Si(001)

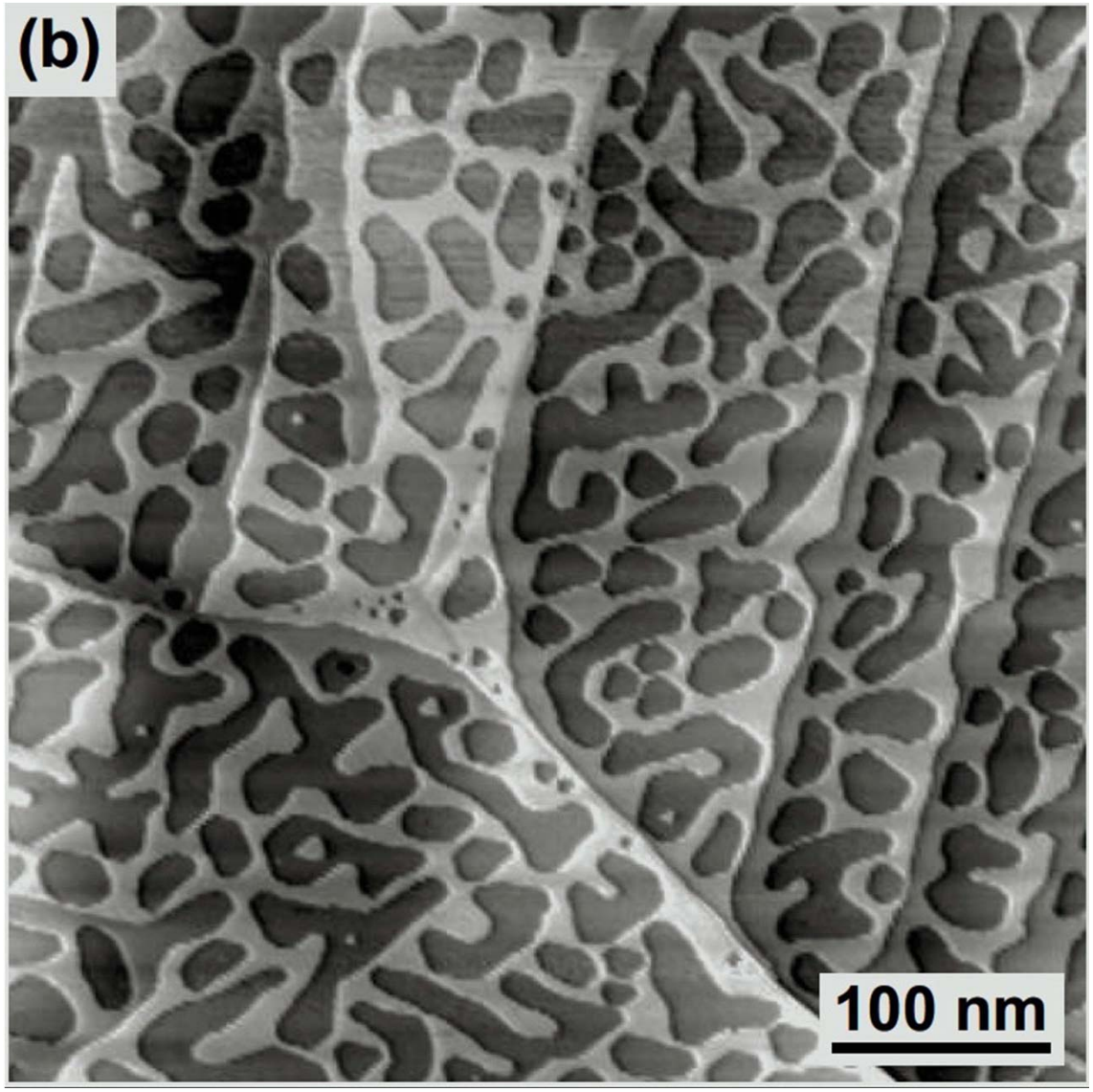


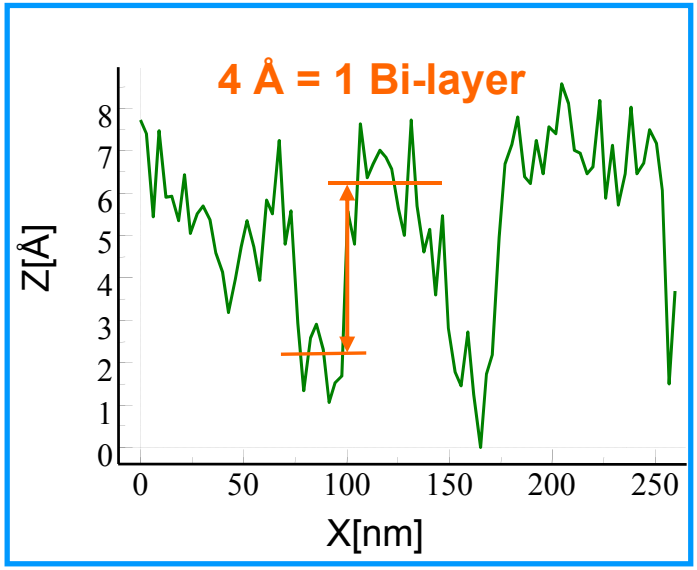




UNIVERSITÄT DUISBURG ESSEN

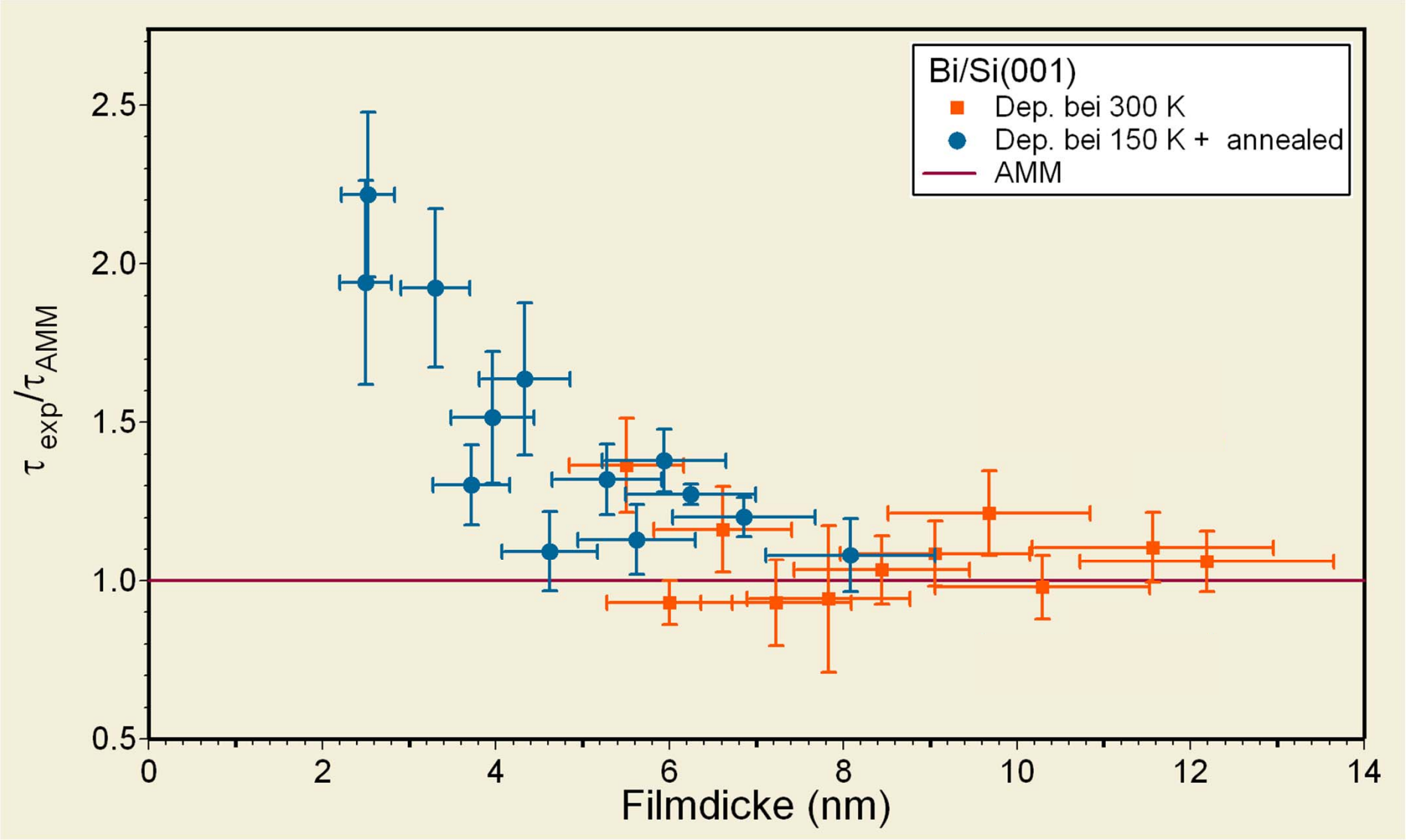
STM: 2.5 nm Bi(111)/Si(001)



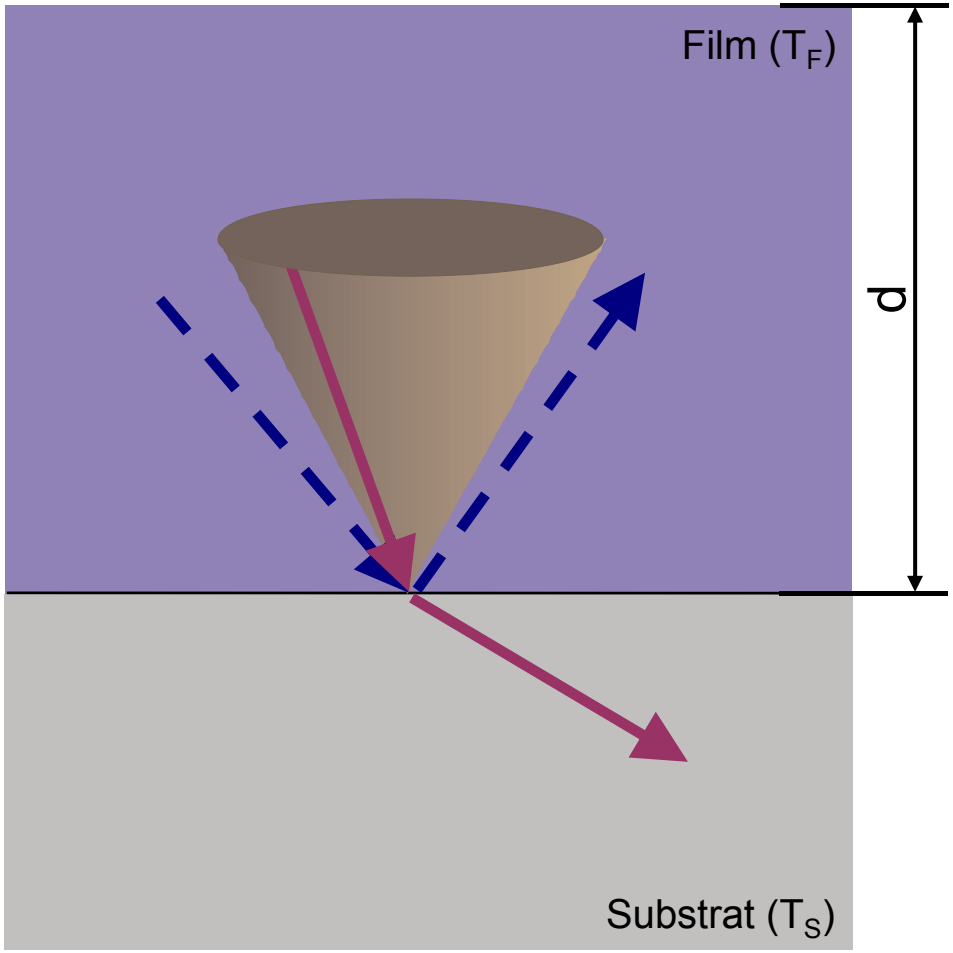


UNIVERSITÄT DUISBURG ESSEN

Bi(111) Filme auf Si(001)



B.O.Frost Modell

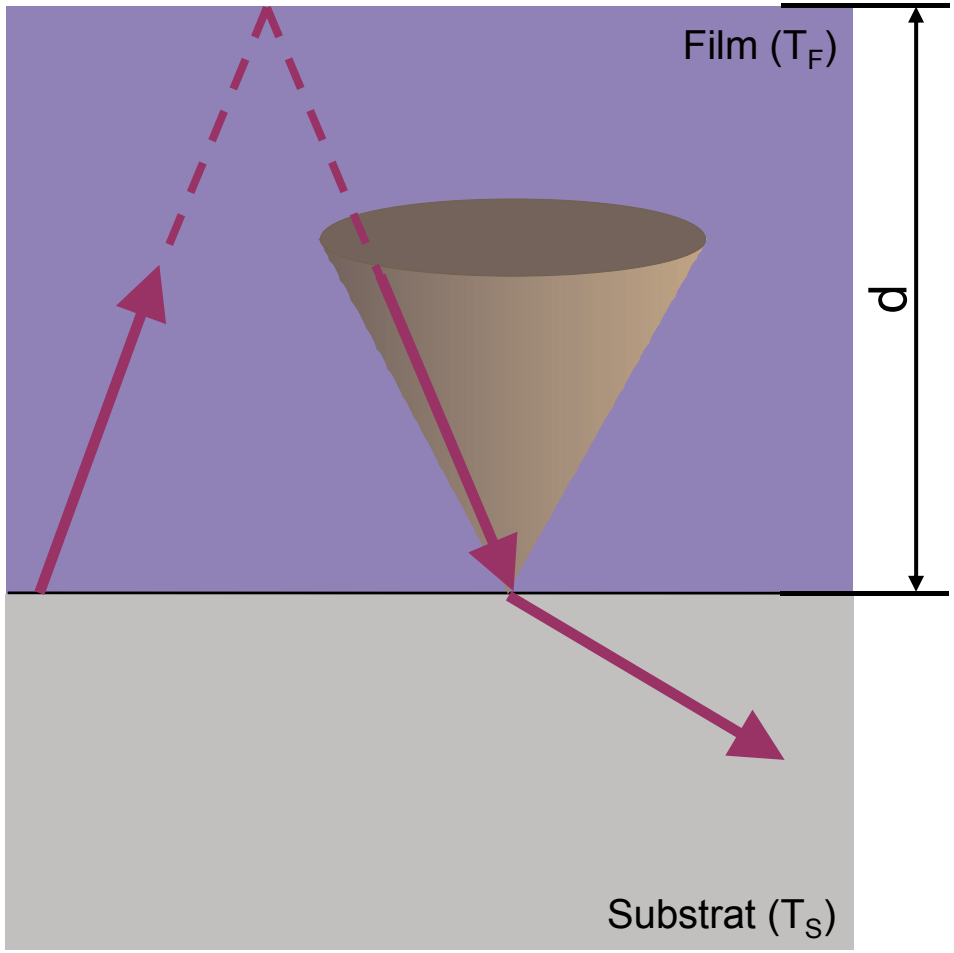


Phononen außerhalb des Kegels

Phononen innerhalb des Kegels

B.O.Frost Modell

Entvölkerung des kritischen Kegels



Phononen außerhalb des Kegels

Phononen innerhalb des Kegels

- **Entvölkerung** des kritischen Kegels nach

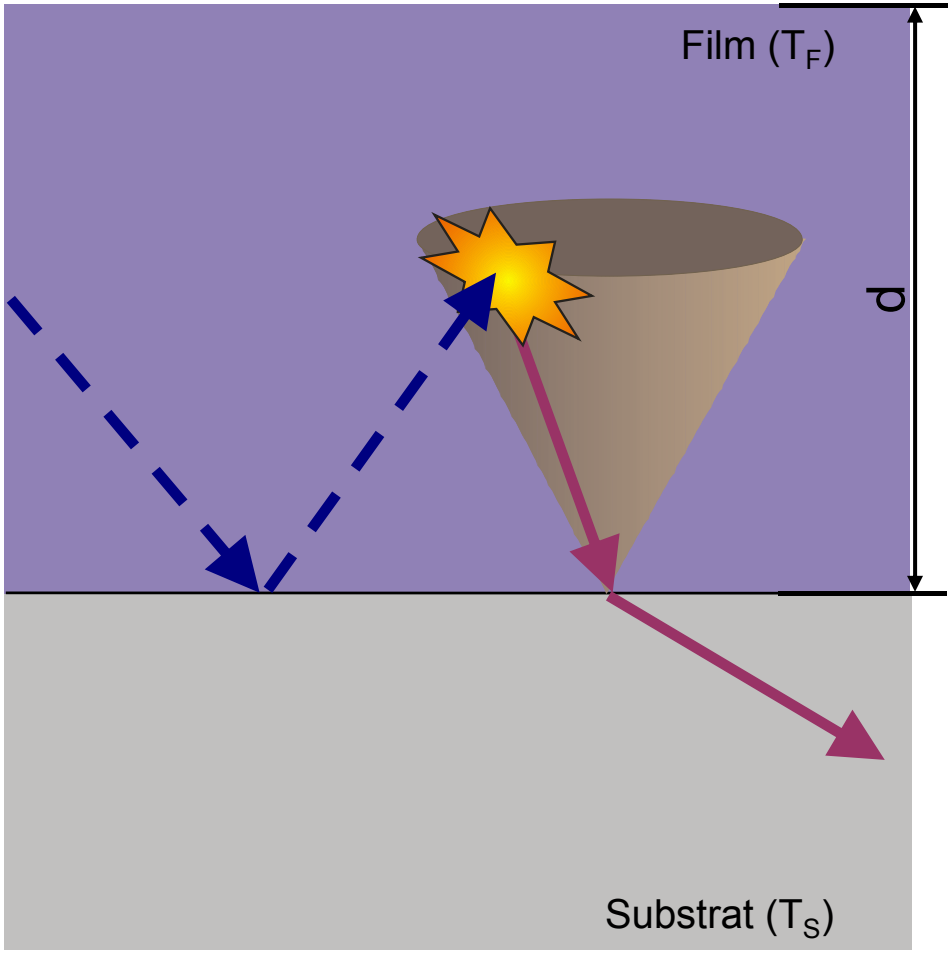
$$\tau_{depop} = 2d/v$$

- Für v = 1972 m/s, d = 3 nm

$$\tau_{depop} = \mathbf{3\ ps}$$

B.O.Frost Modell

Bevölkerung des kritischen Kegels



Phononen außerhalb des Kegels

Phononen innerhalb des Kegels

- **Entvölkerung** des kritischen Kegels nach

  $\tau_{depop} = 2d/v$

  - Für v = 1972 m/s, d = 3 nm

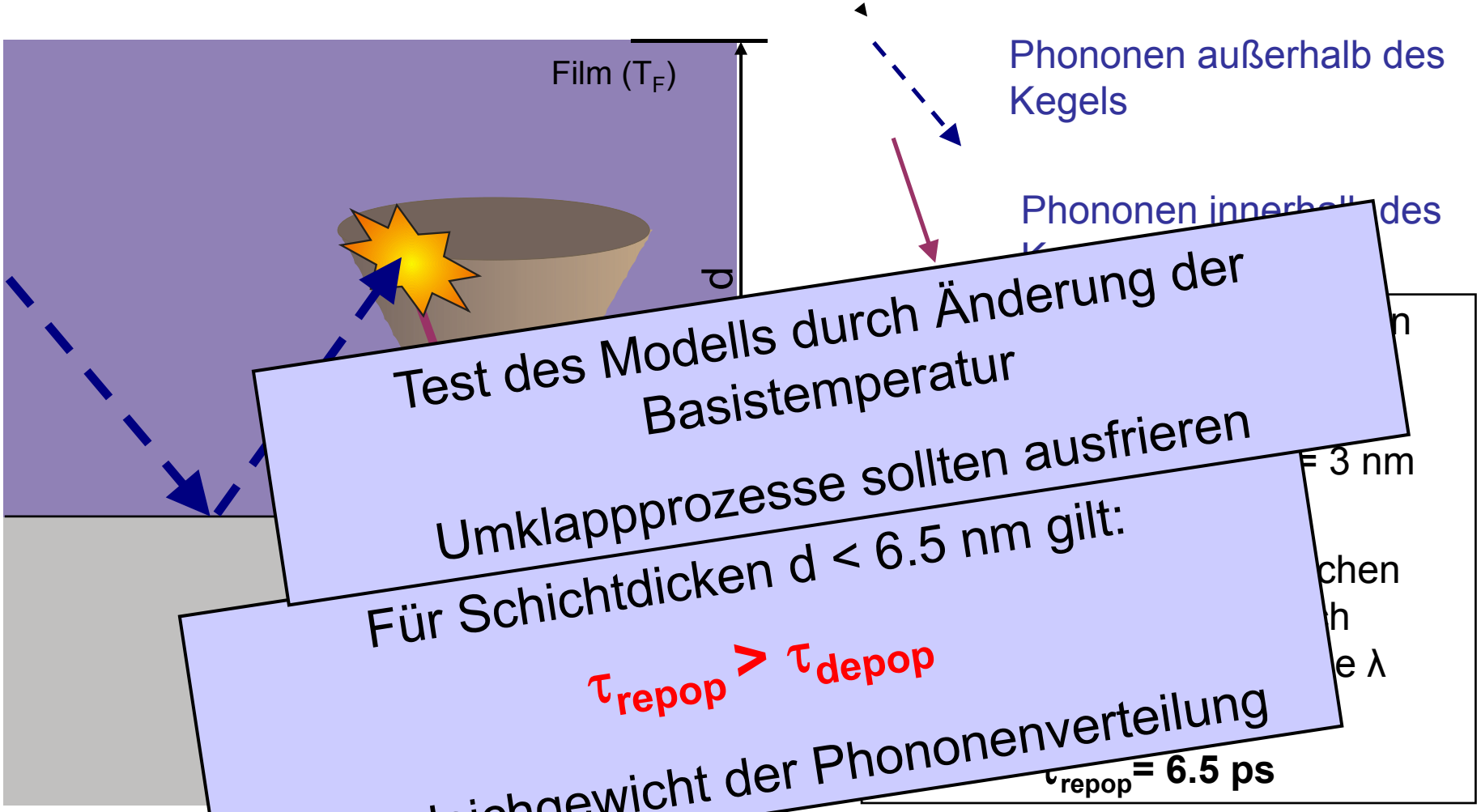
  $\tau_{depop} = \mathbf{3\ ps}$

- **Bevölkerung** des kritischen Kegels durch Stöße nach mittleren freien Weglänge λ
  - Für λ = 13 nm (150 K)

  $\tau_{repop} = \mathbf{6.5\ ps}$

B.O.Frost Modell

Bevölkerung des kritischen Kegels



Test des Modells durch Änderung der Basistemperatur

Umklappprozesse sollten ausfrieren

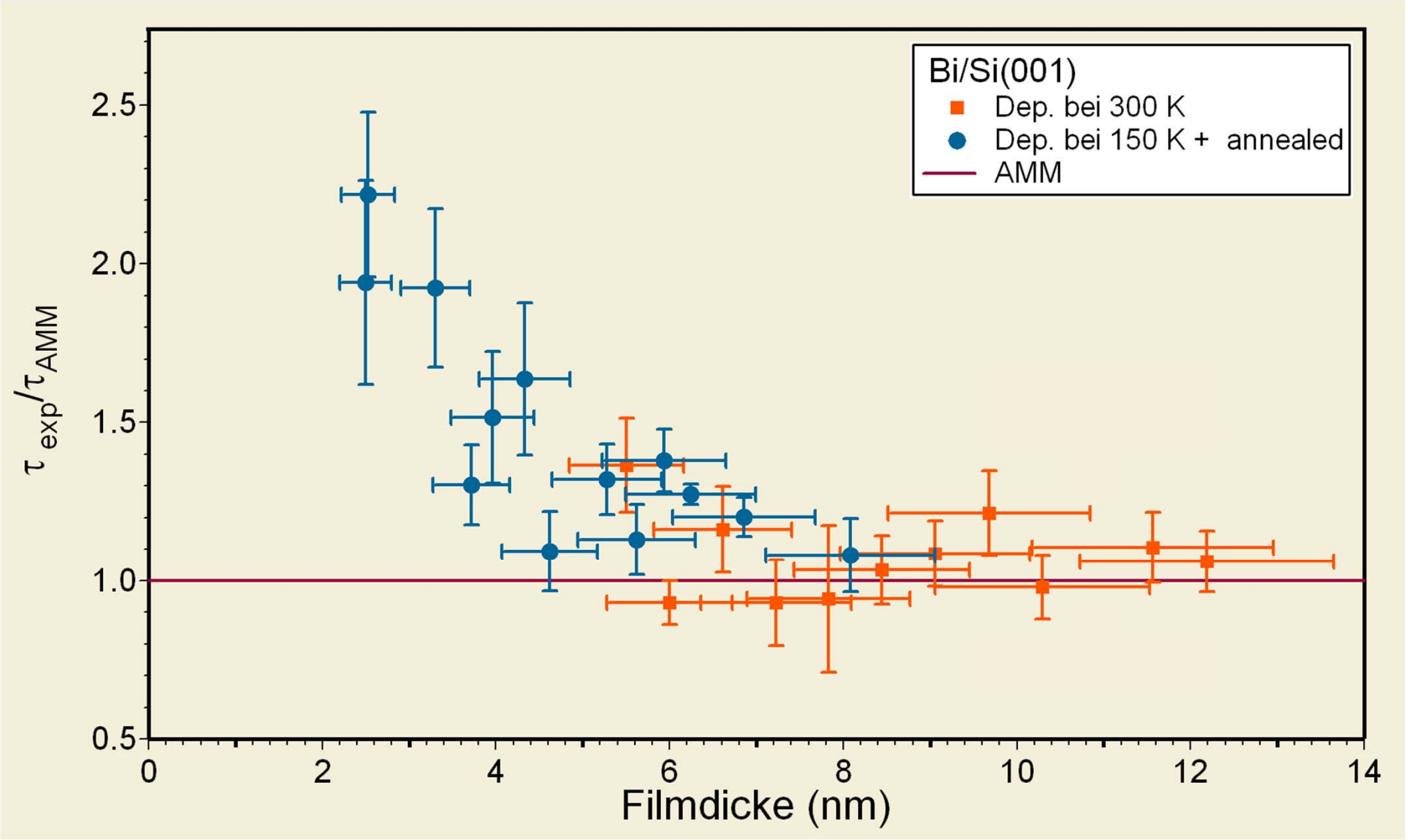
Für Schichtdicken d < 6.5 nm gilt:

$\tau_{repop} > \tau_{depop}$

Nichtgleichgewicht der Phononenverteilung

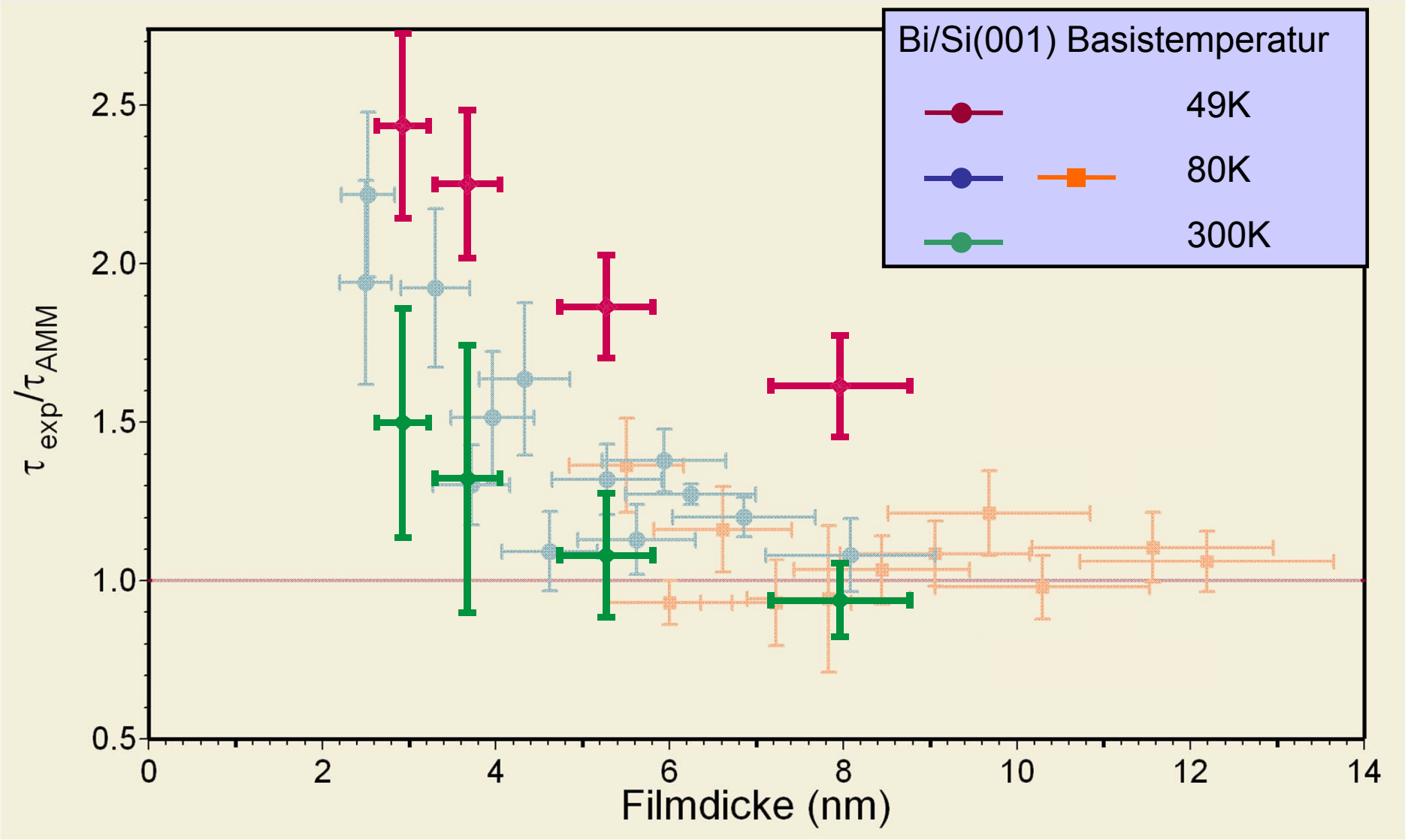
UNIVERSITÄT DUISBURG ESSEN

B.O.Frost Modell



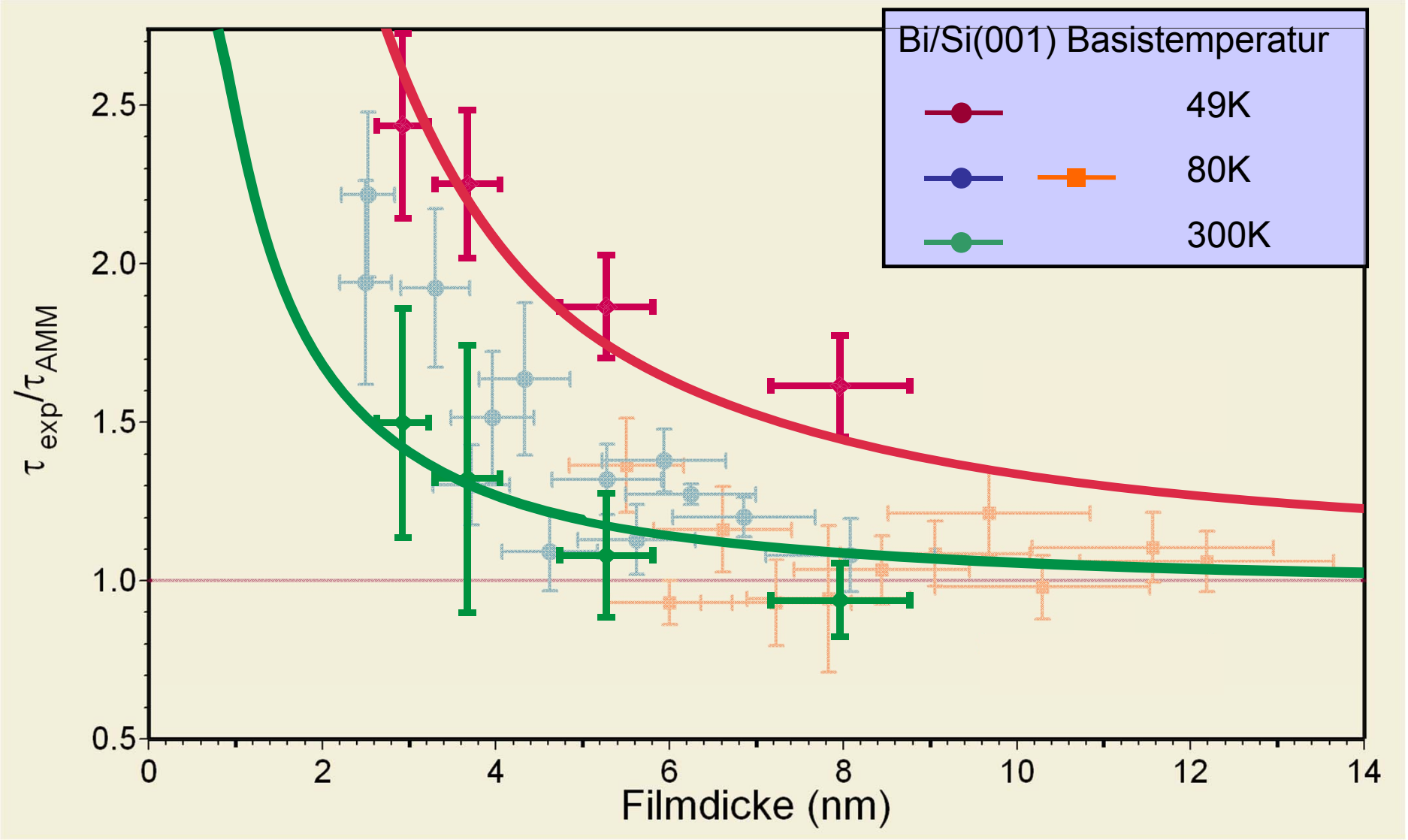
UNIVERSITÄT DUISBURG ESSEN

B.O.Frost Modell im Test



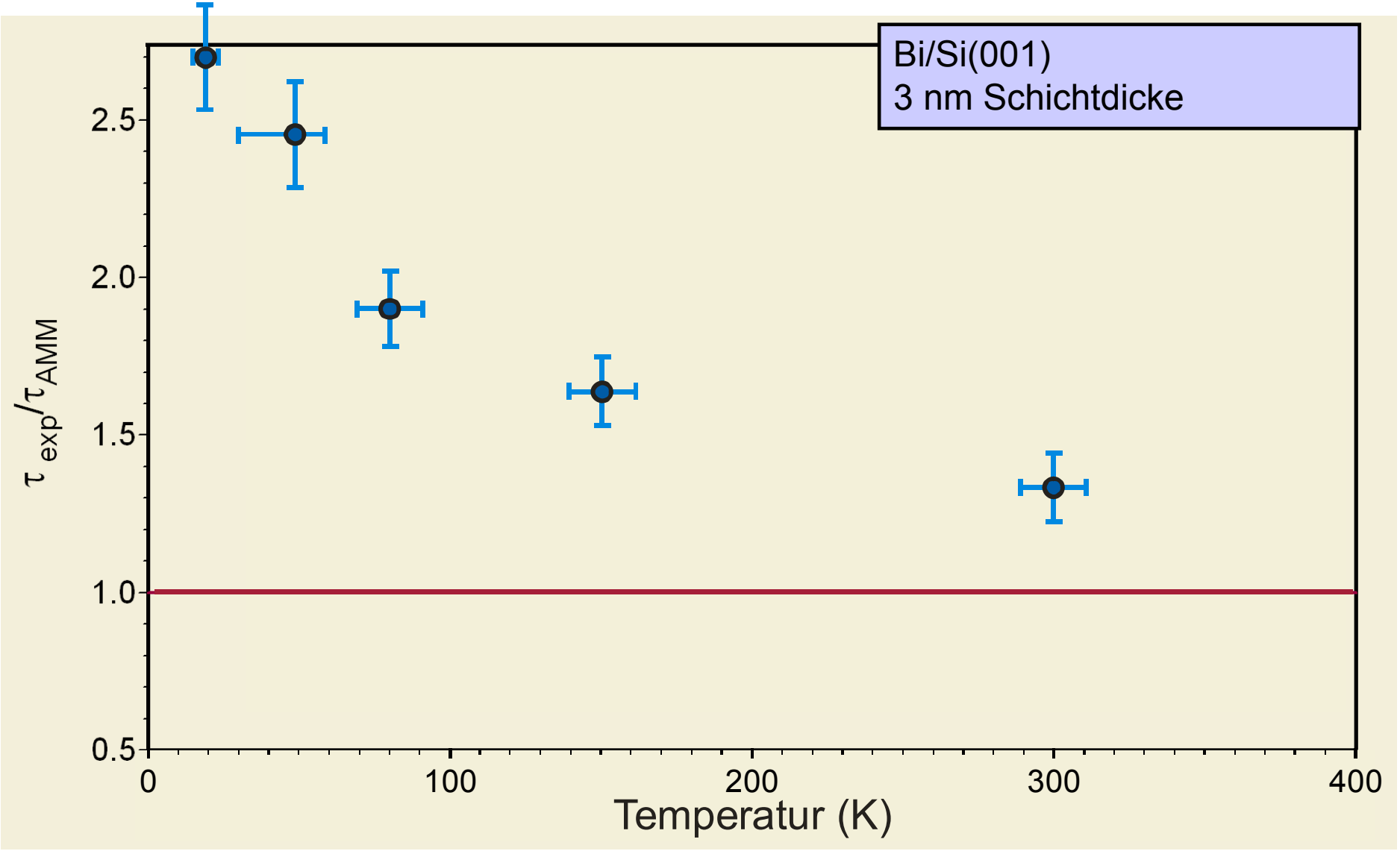
UNIVERSITÄT DUISBURG ESSEN

B.O.Frost Modell „approved“



UNIVERSITÄT DUISBURG ESSEN

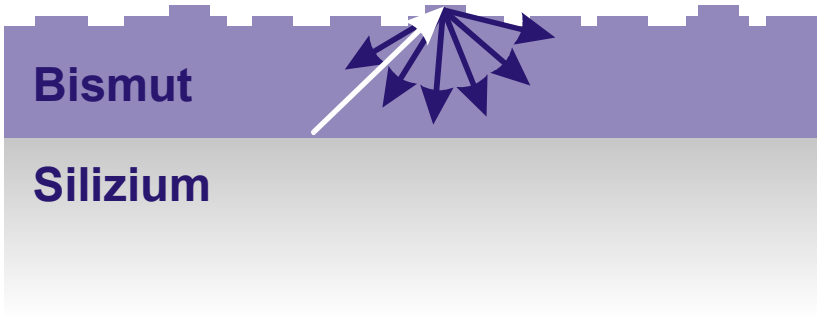
Ausfrieren der Umklapp-Prozesse

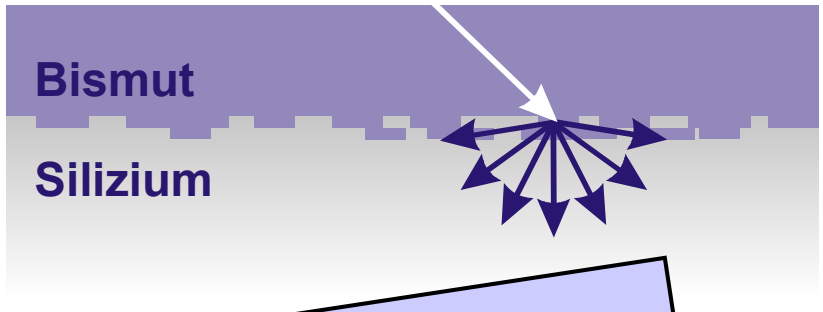


B.O.Frost Modell - paradox

Paradox:

- Perfekte Filme mit glatten abrupten Ober- und Grenzflächen zeigen höchsten Wärmewiderstand
- Aufrauhen von Ober- oder Grenzfläche sollte schnellere Repopulation des kritischen Kegels erlauben & Impulserhaltung beim Phononendurchgang ist nicht mehr gegeben



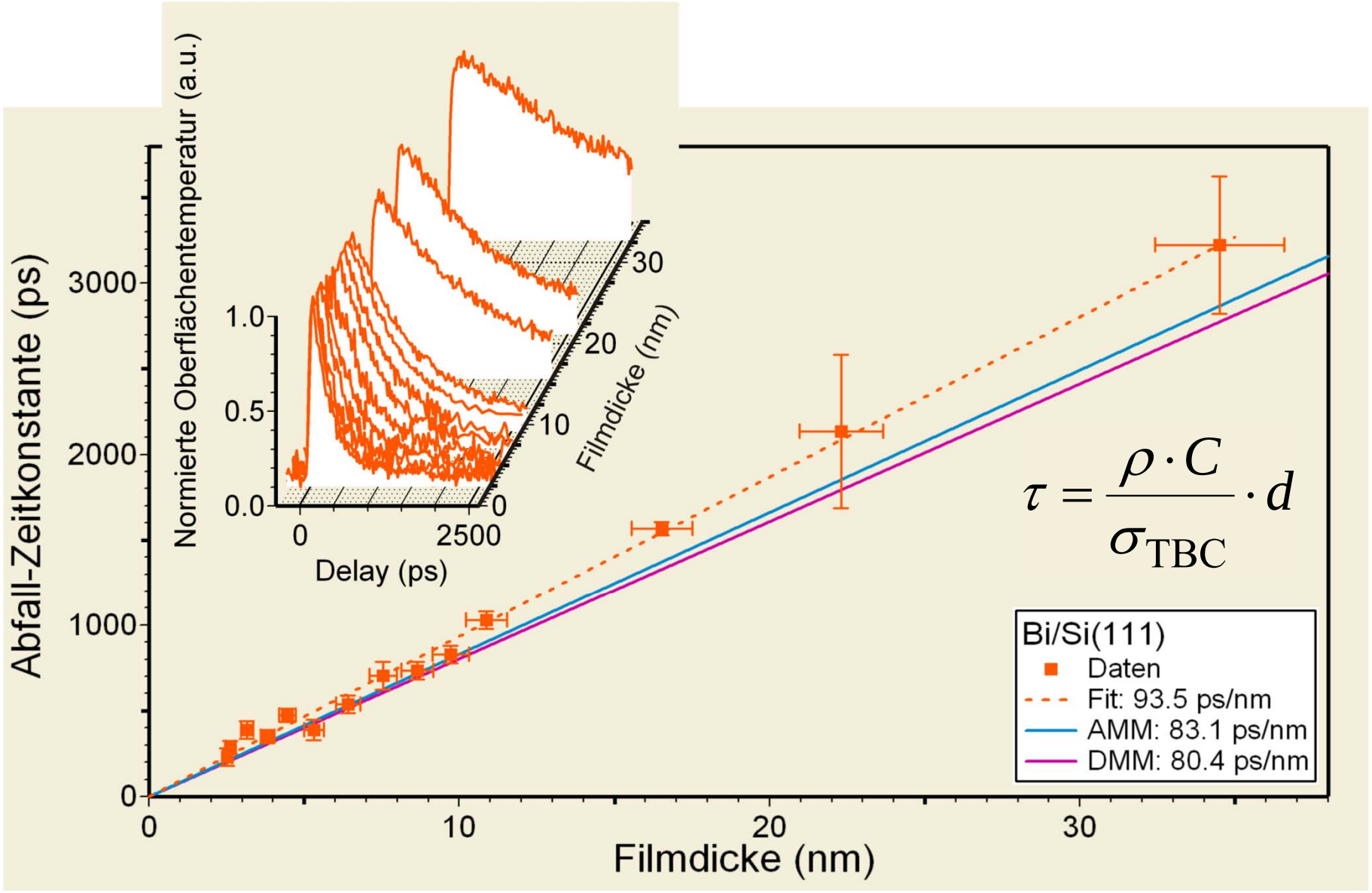


Diffuse Streuung:

Diffuse Mismatch Modell (**DMM**)

UNIVERSITÄT DUISBURG ESSEN

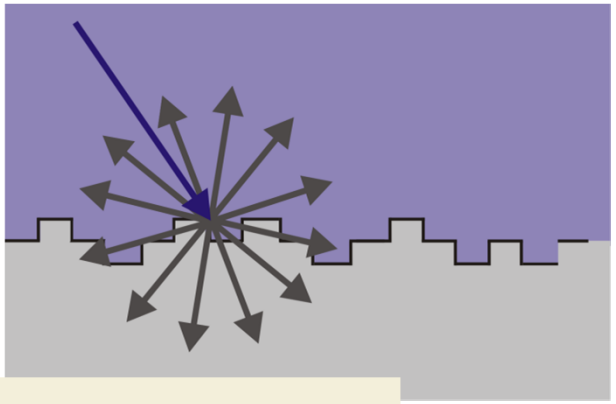
Bi(111) Filme auf Si(111)-(7x7)

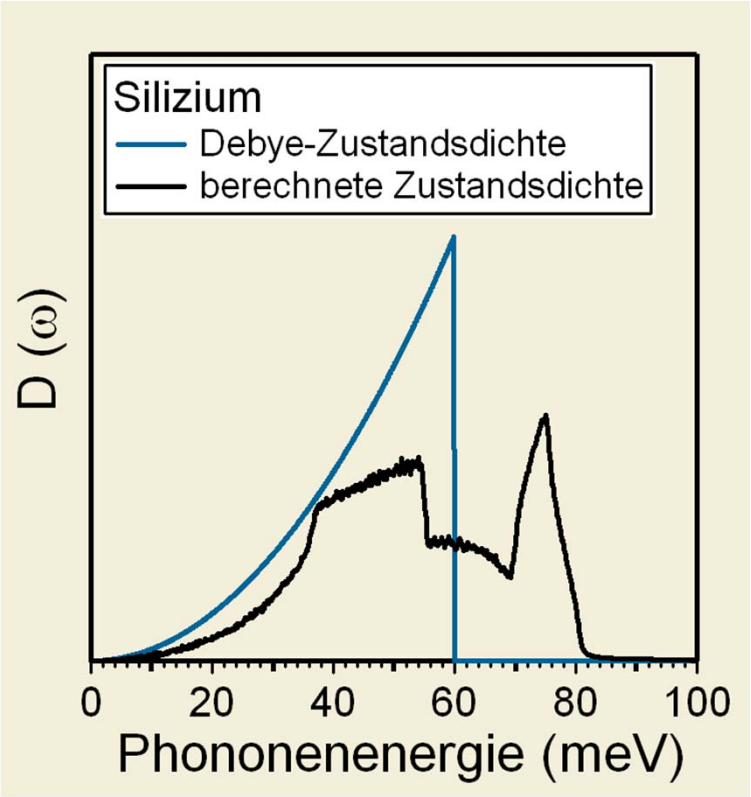


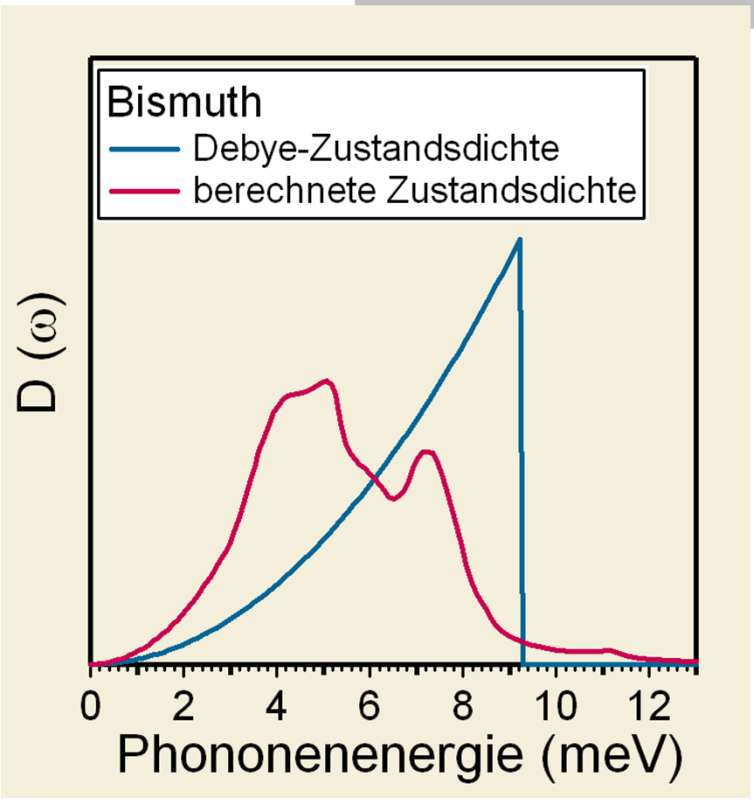
B. Krenzer et al. *Phys. Rev. B* **80**, 024307 (2009)

Diffuse Mismatch Model (DMM)

- Streuung an der Grenzfläche
- Phonon benötigt freien Zustand
- Endzustand von Zustandsdichte D(ω) abhängig

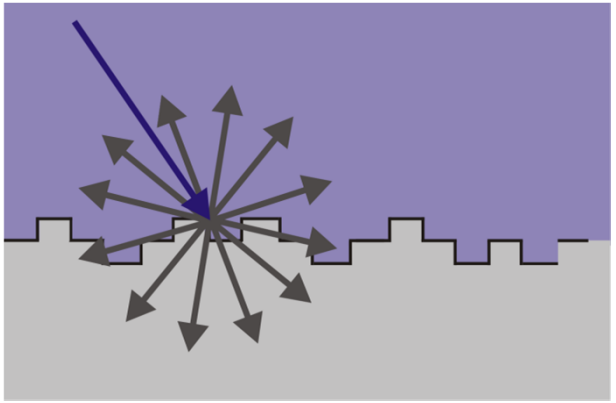


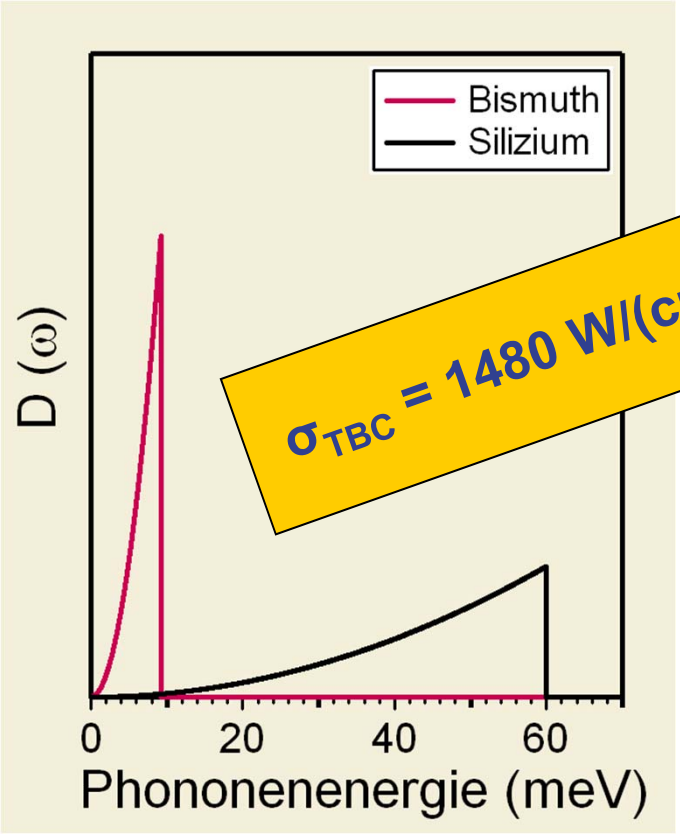




Diffuse Mismatch Model (DMM)

- Streuung an der Grenzfläche
- Endzustand von D(ω) abhängig
- **Debye-Modell**

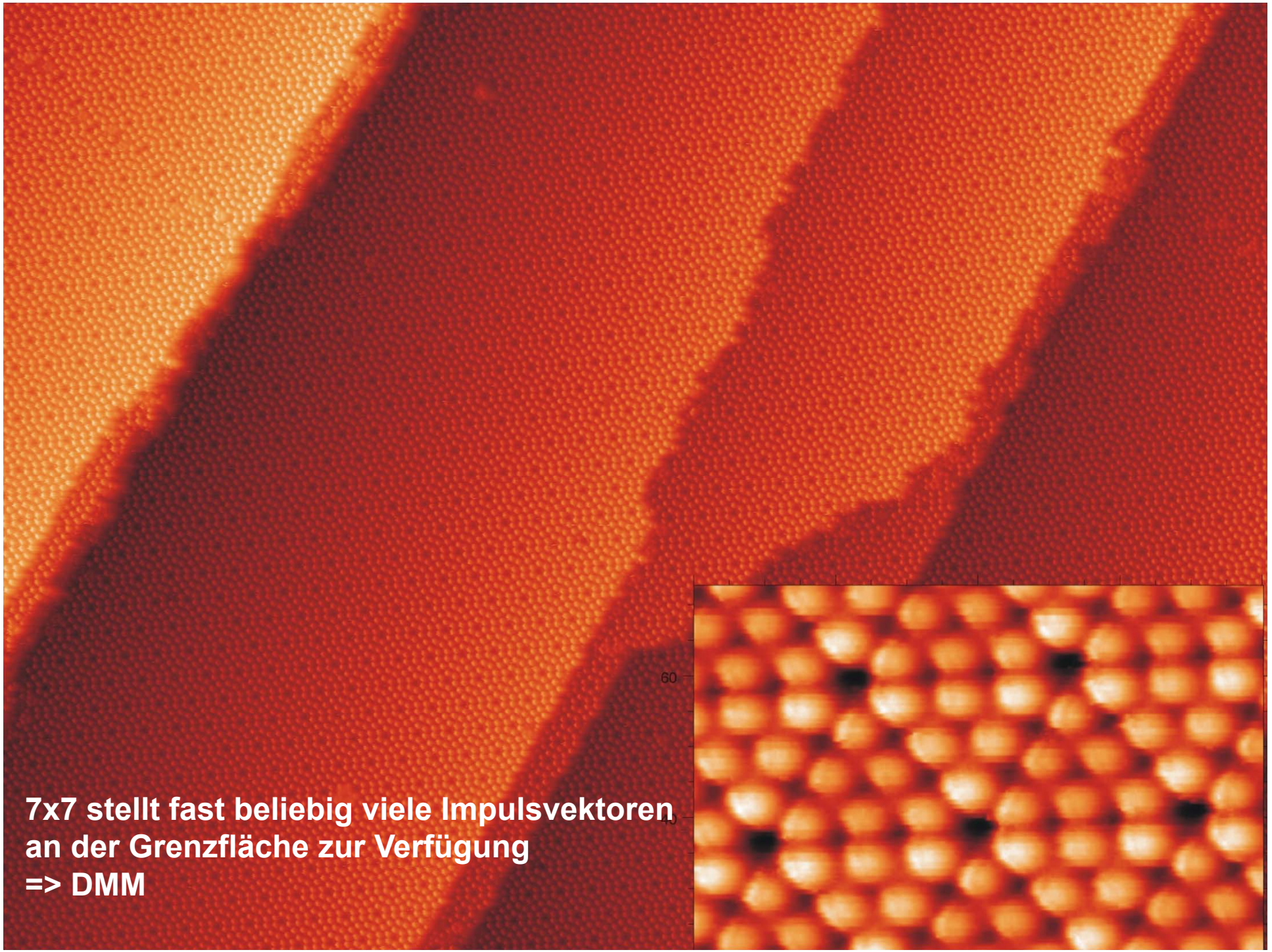




σ_{TBC} = 1480 W/(cm²K)

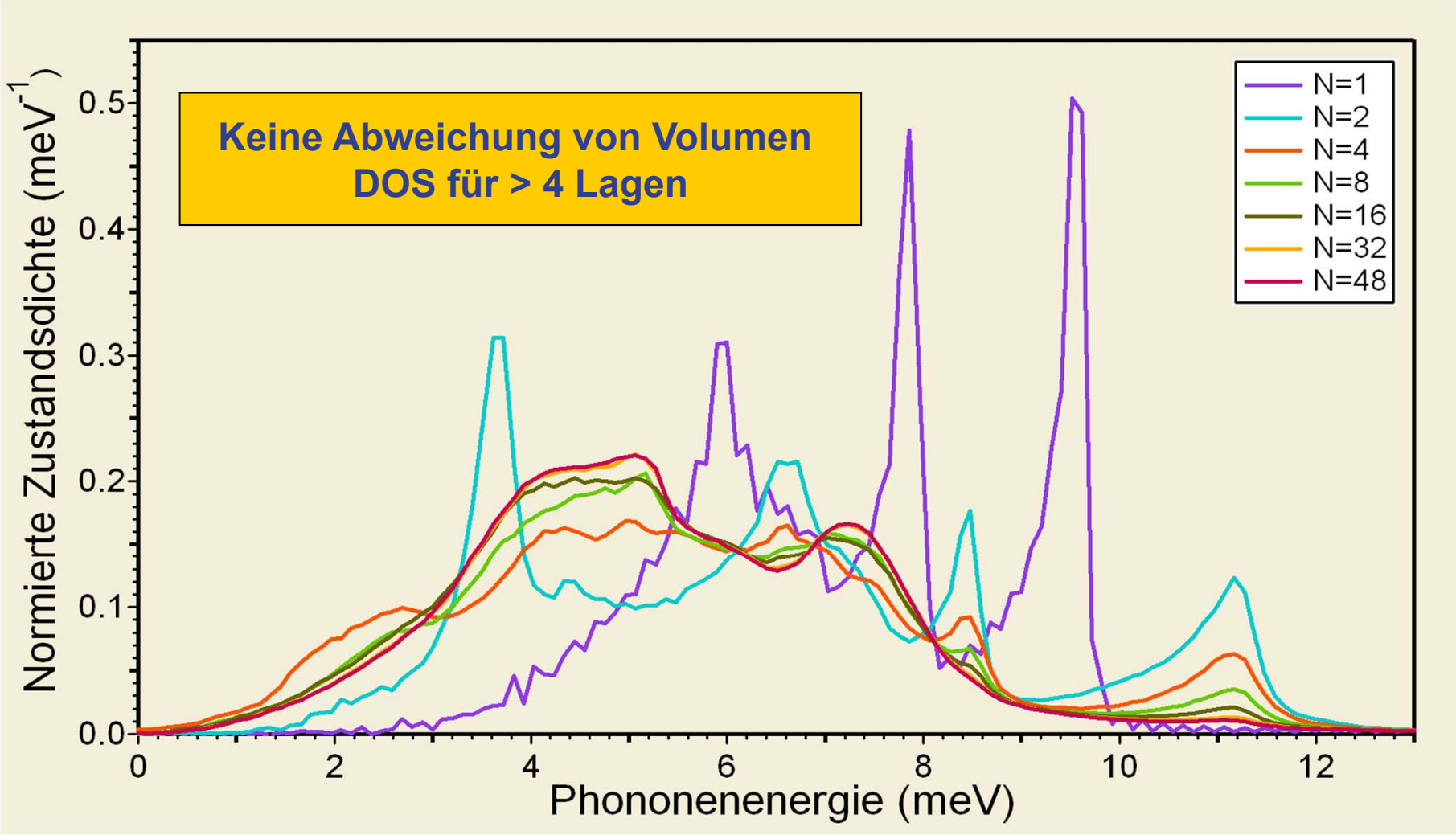
$$\Gamma_S = \frac{1}{2} \frac{\sum_i v_{S,i}^{-2}}{\sum_i (v_{F,i}^{-2} + v_{S,i}^{-2})}$$

i = Phononenmode



7x7 stellt fast beliebig viele Impulsvektoren an der Grenzfläche zur Verfügung
=> DMM

Finite Size Effekte in DOS?



B. Krenzer et al., *PRB* **80**, 024307 (2009).

UNIVERSITÄT DUISBURG ESSEN

Manipulation des Wärmetransports

DMM

- Si(111)-(7x7) Oberfläche stellt beliebige Impulsüberträge an der Grenzfläche zur Verfügung
- Damit werden die Phononen diffus gestreut: **DMM** gilt
- Schnelles Abkühlen - geringer Wärmewiderstand

AMM

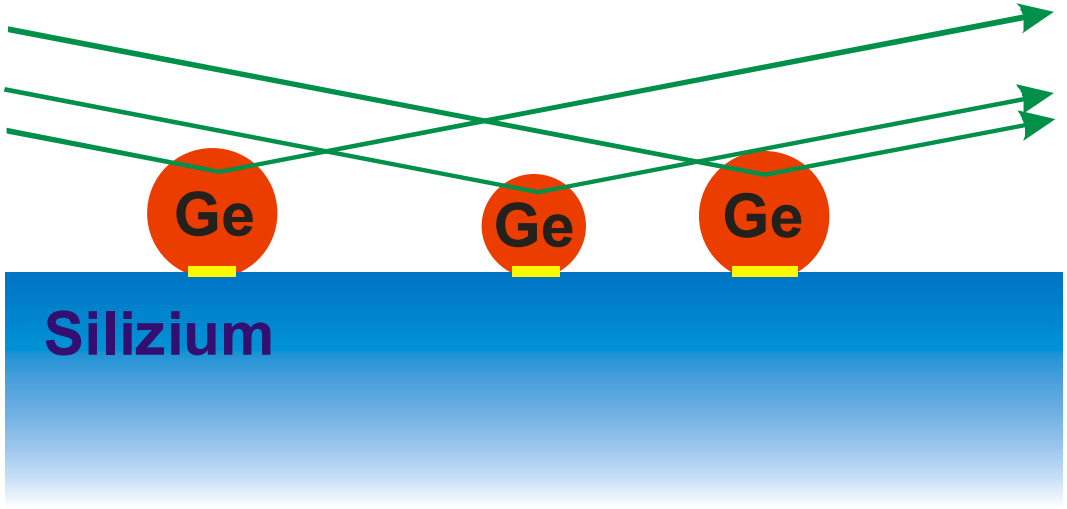
- **Idee:** Manipulation der Si(111) Oberfläche vor der Bi Epitaxie mittels Bi als Adsorbat erzeugt eine glatte ($\sqrt{3}$x$\sqrt{3}$)-Oberfläche
- Damit bleibt der Phononenimpuls erhalten: **AMM** gilt
- Langsames Abkühlen - hoher Wärmewiderstand bei dünnsten Schichten

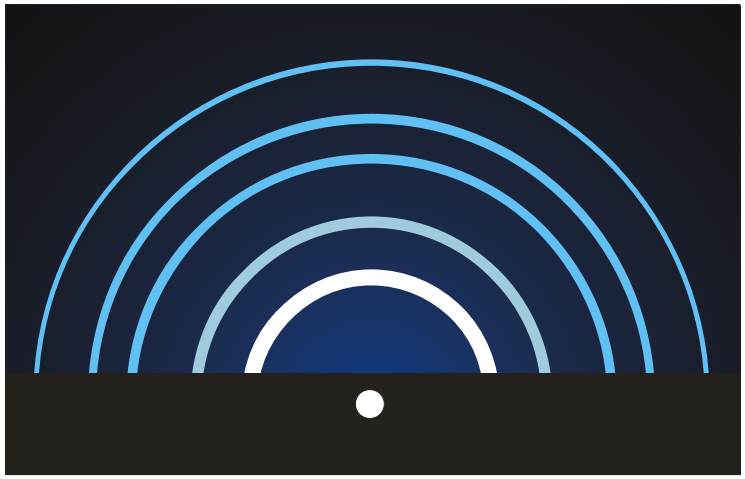
- **Ultimativ: Schalten des Wärmewiderstands**

UNIVERSITÄT DUISBURG ESSEN

TR-TED an Nanopartikeln

- Debye Scherrer Beugung an kristallinen elektronentransparenten Nanopartikeln in beliebiger Orientierung
- Anregung mittels fs-Pulse, Abfrage mittels TED
- Abkühlverhalten => Wärmeübergangswiderstand zum Substrat

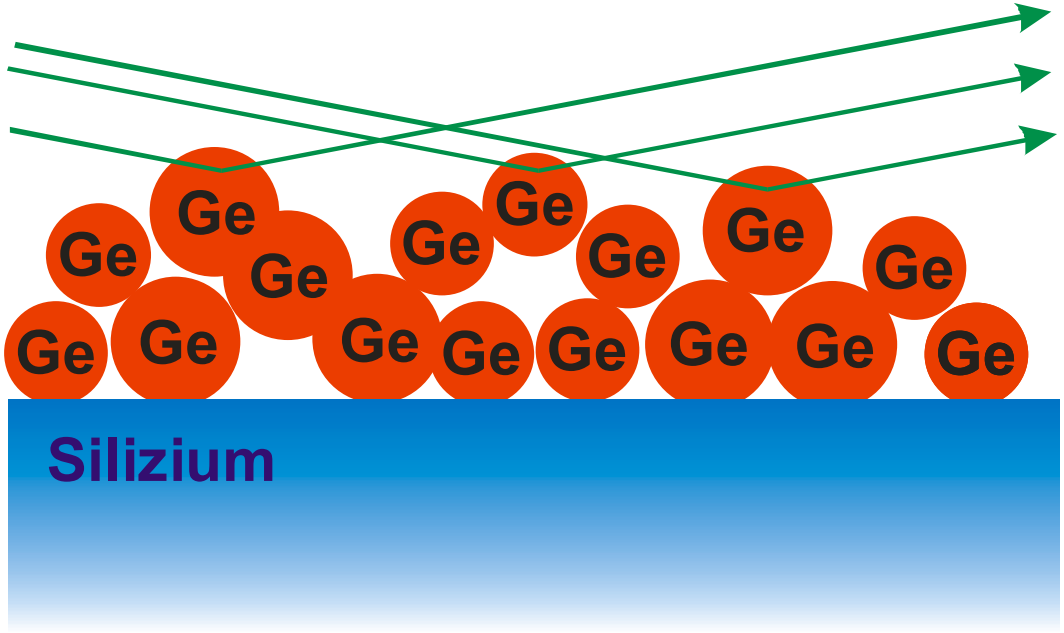


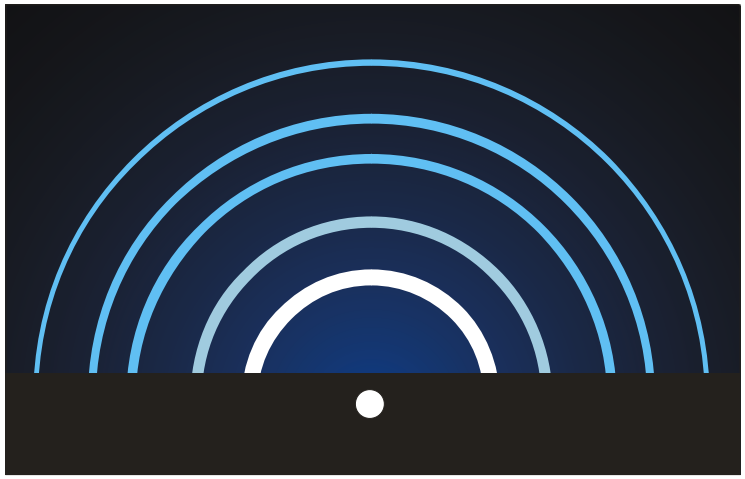


UNIVERSITÄT DUISBURG ESSEN

TR-TED an Nanopartikeln

- Debye Scherrer Beugung an kristallinen elektronentransparenten Nanopartikeln in beliebiger Orientierung
- Anregung mittels fs-Pulse, Abfrage mittels TED
- Abkühlverhalten => Wärmeübergangswiderstand zum Substrat

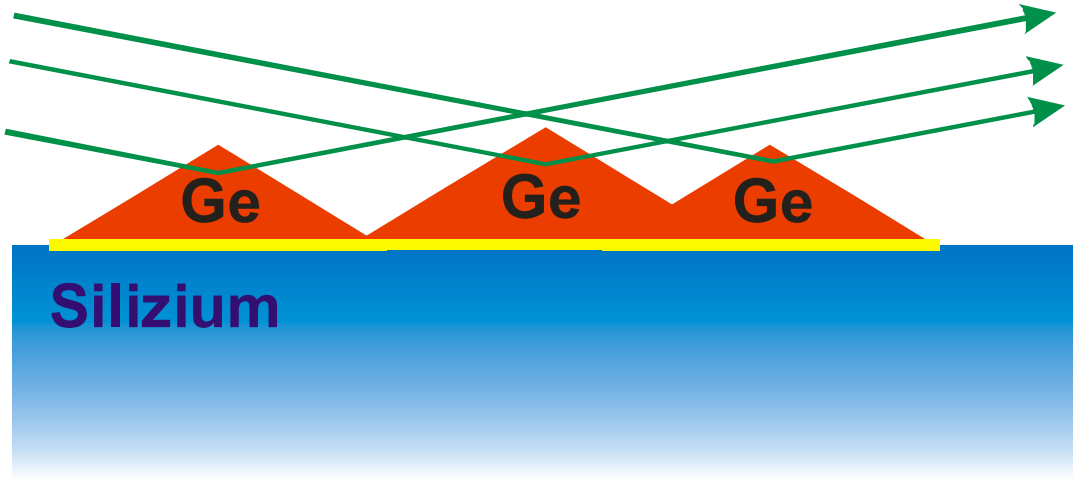


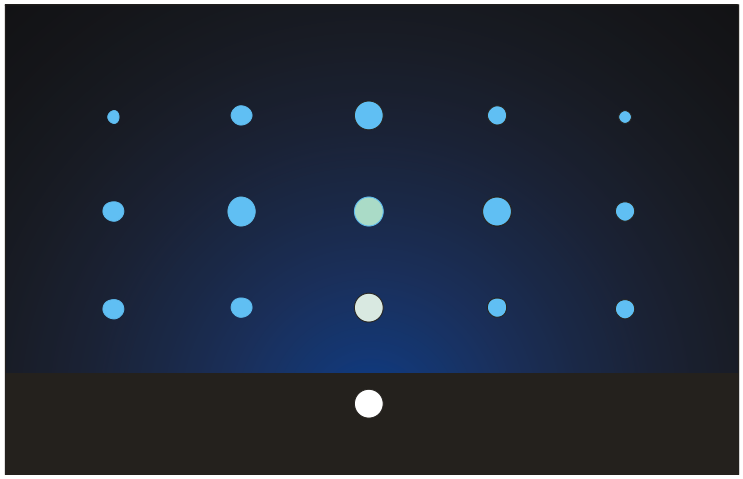


UNIVERSITÄT DUISBURG ESSEN

TR-TED an Nanopartikeln

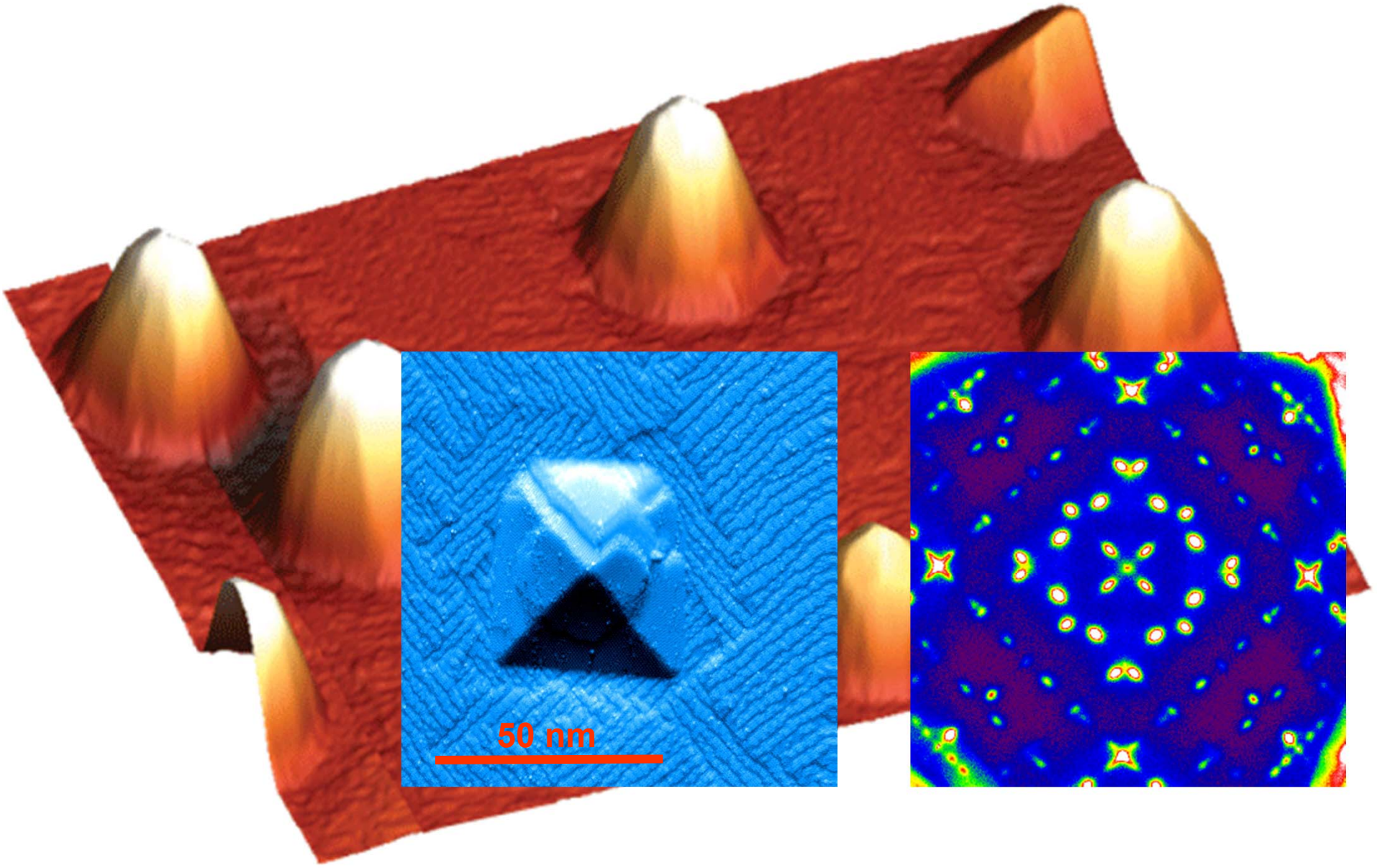
- Bragg Beugung an kristallinen Nanopartikeln epitaktischer Orientierung
- Anregung mittels fs-Pulse, Abfrage mittels TED
- Abkühlverhalten => Wärmeübergangswiderstand zum Substrat





UNIVERSITÄT DUISBURG ESSEN

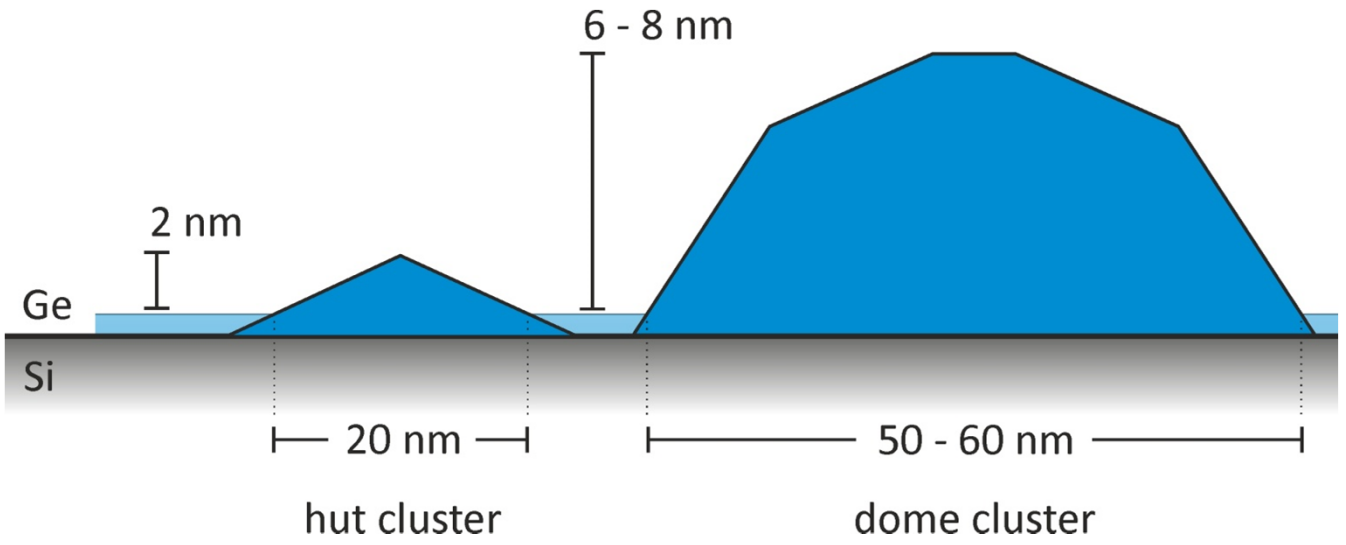
Si(100)/5 ML Ge – “hutcluster”



Ge/Si(001): Hut and Dome Cluster

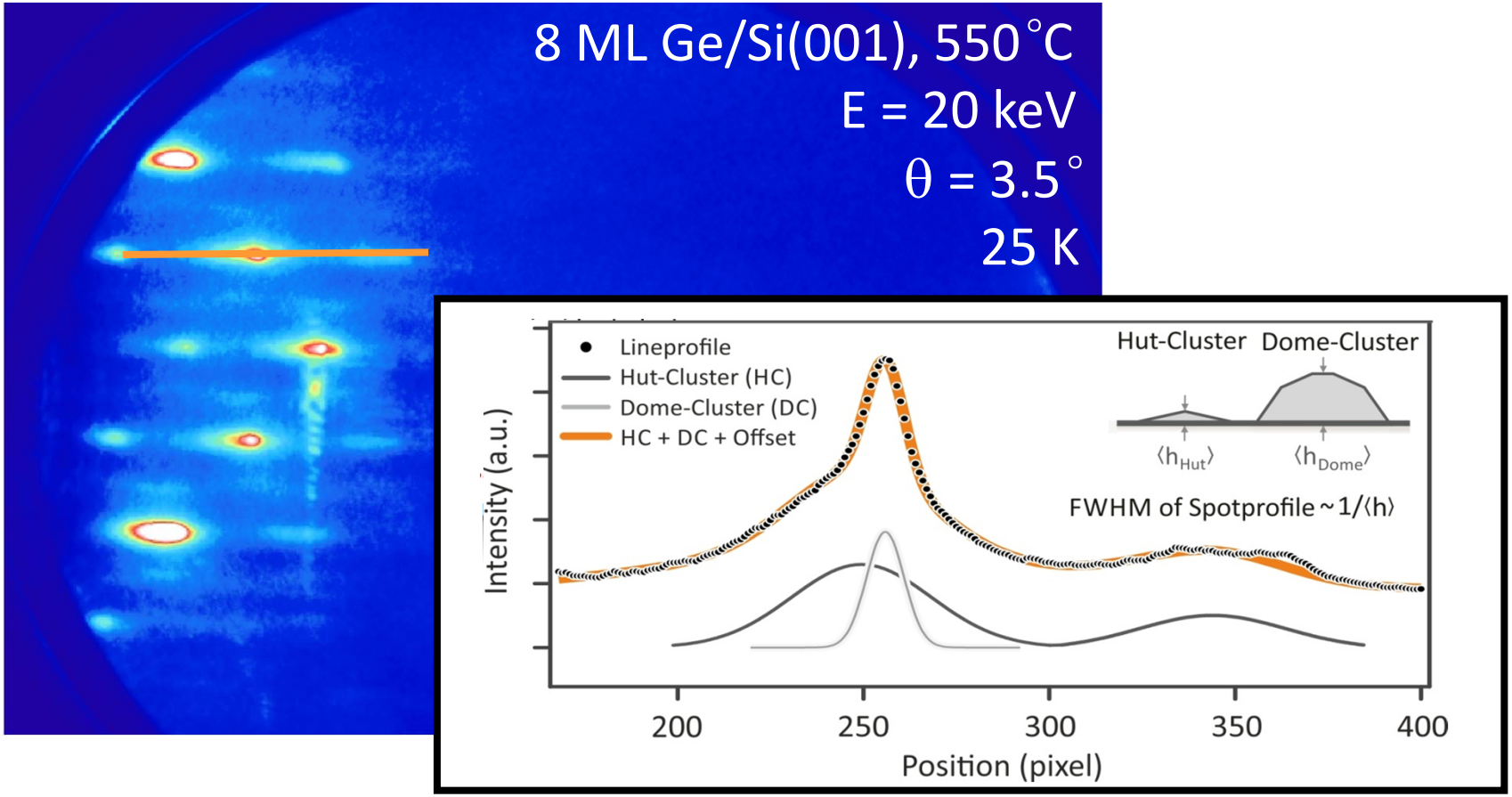
Self-organized epitaxial Stranski-Krastanov growth

- robust system: 400° C < T < 600° C
- free of defects /dislocations
- very narrow size distribution
- well defined facets

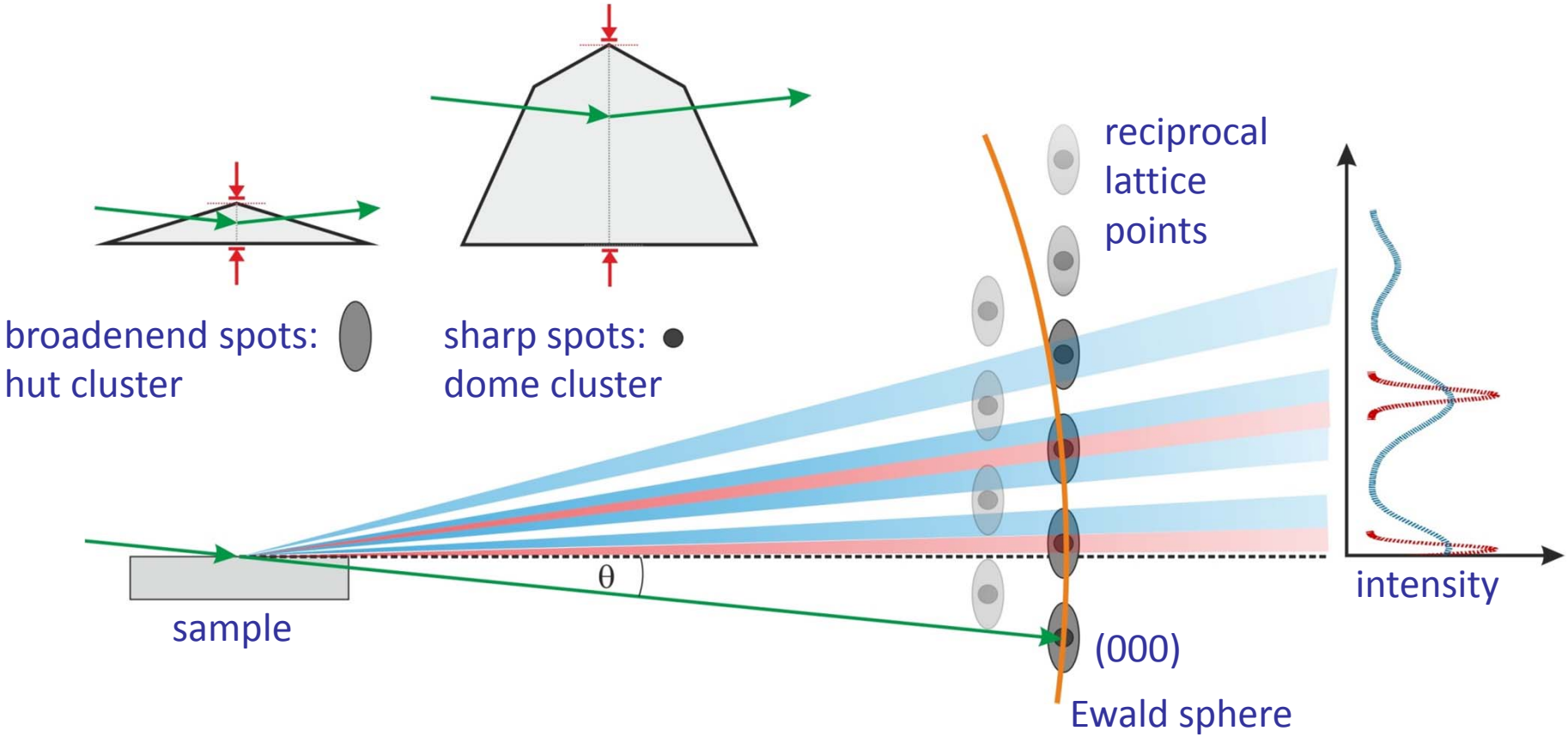


UNIVERSITÄT DUISBURG ESSEN

Ge / Si: Spot Profile Analysis



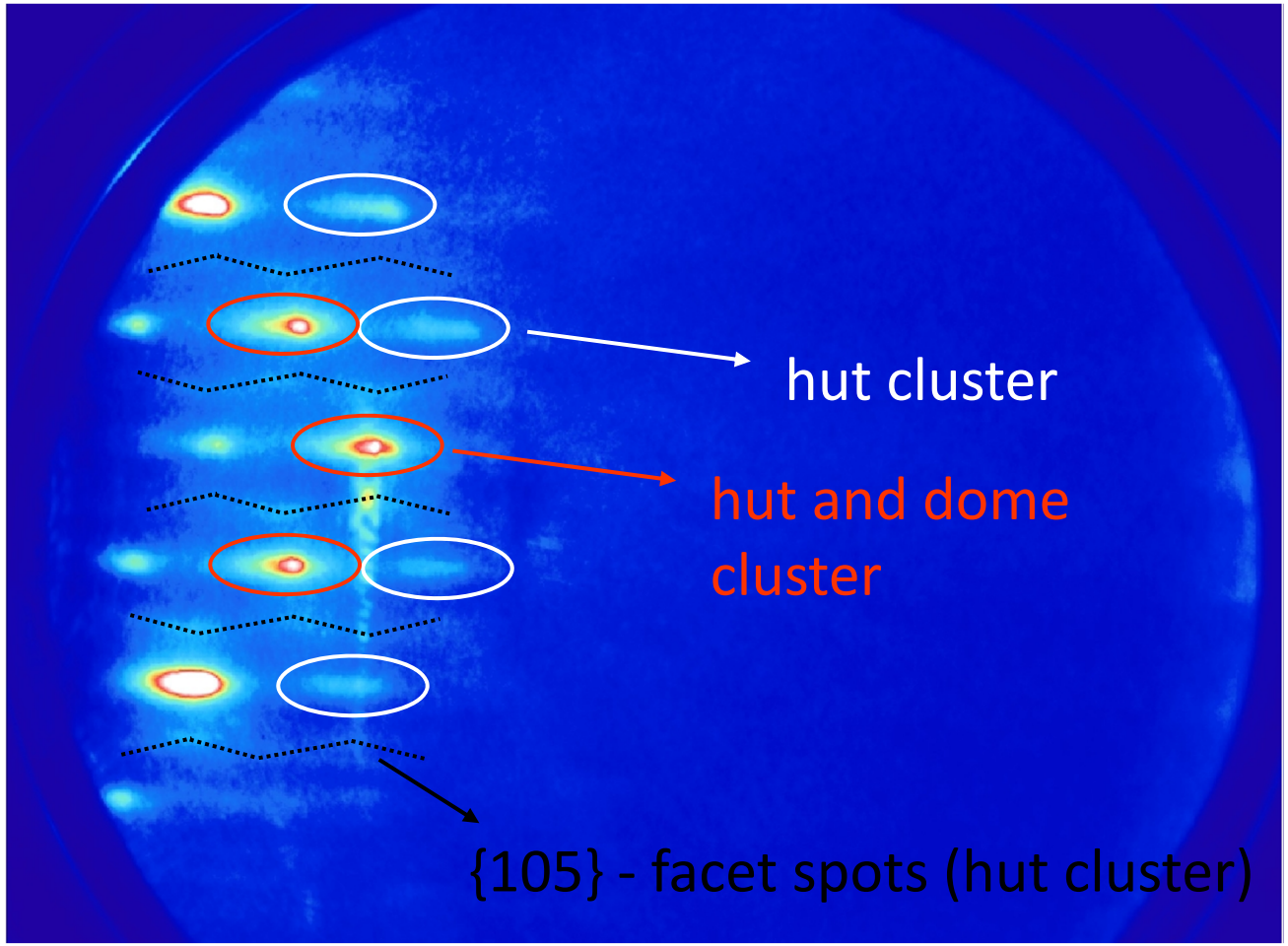
“ Diffraction at a Slit “



Finite size effects: spot broadening

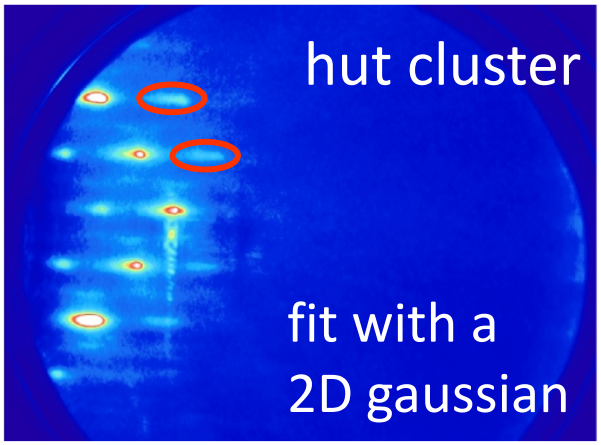
Intensity profile: contributions from hut and dome clusters

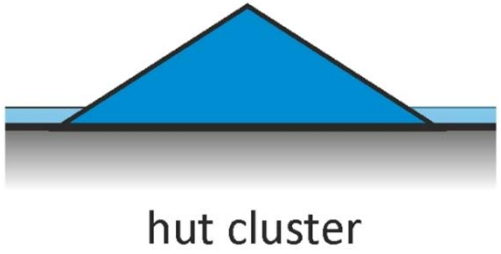
Spot Profile Analysis

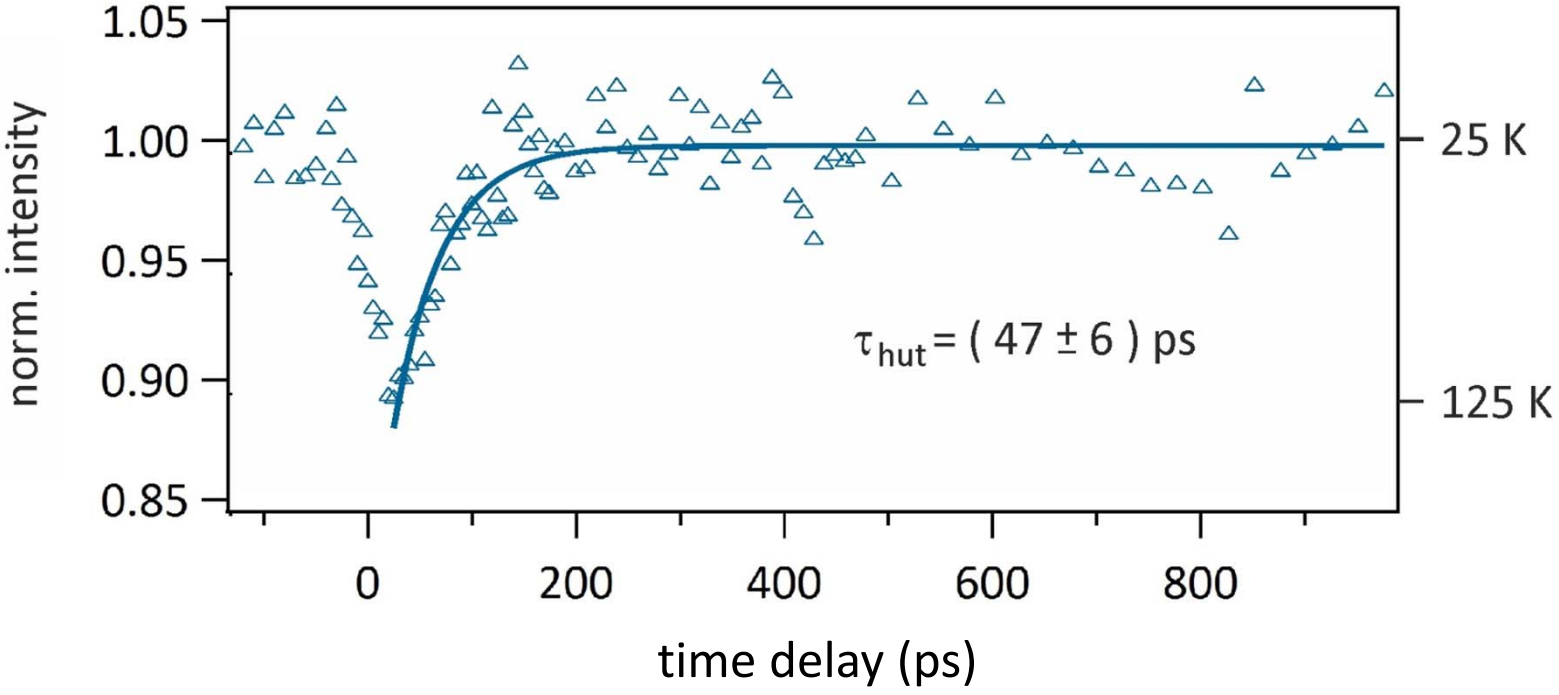


Clearly distinguishable hut and dome clusters!

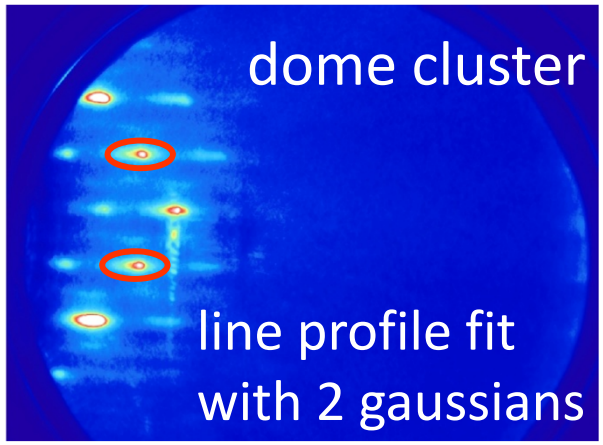
Transient Spot Intensity

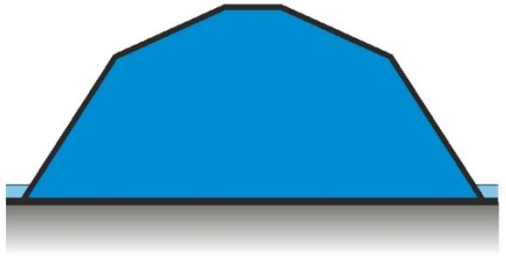


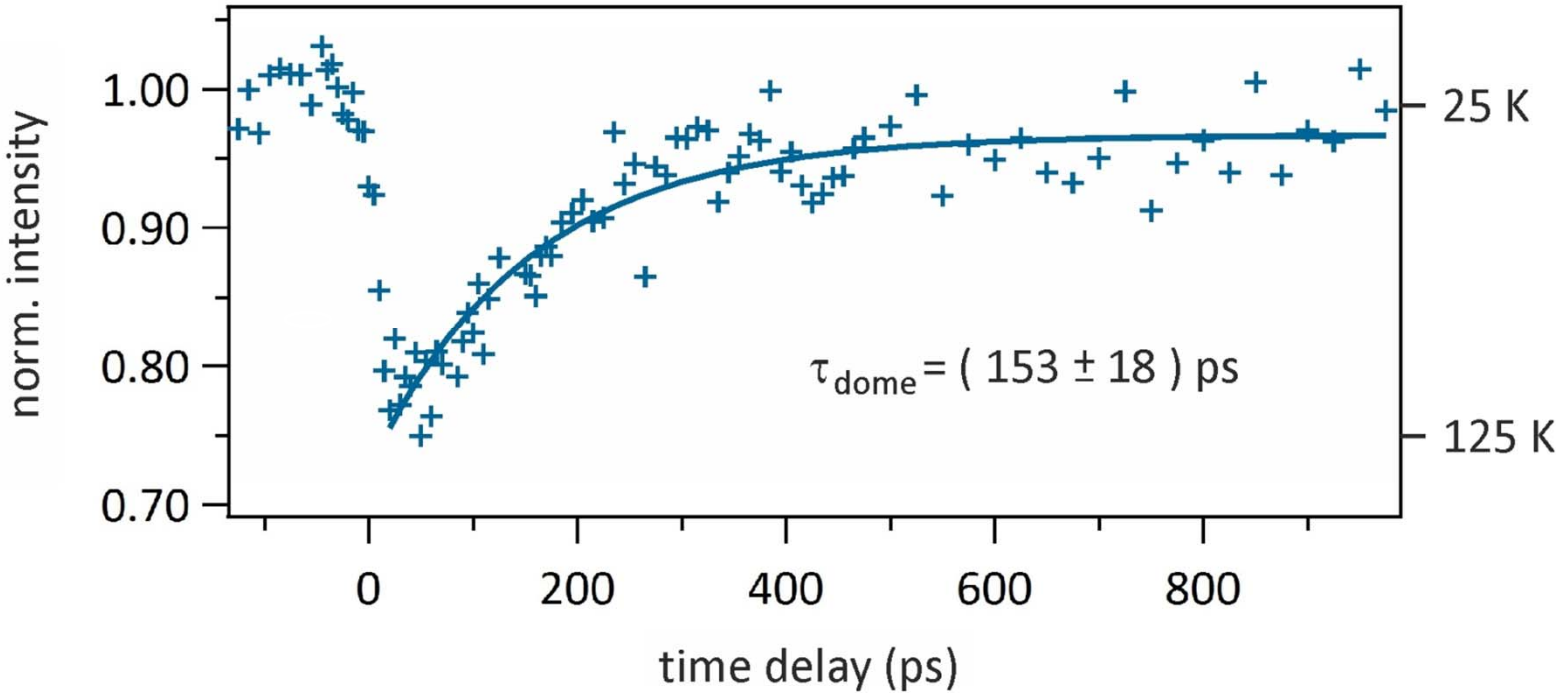




Transient Spot Intensity

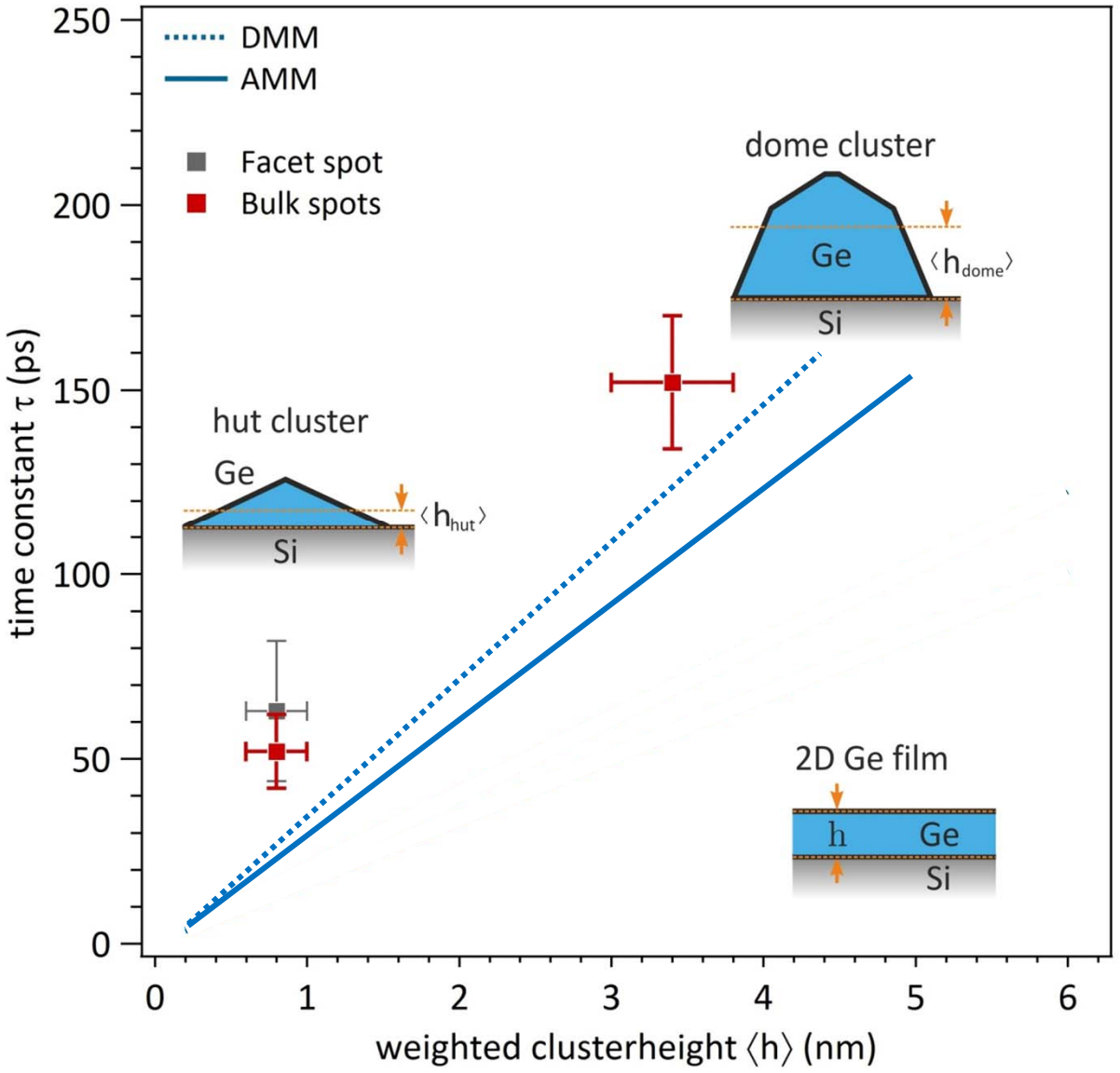






UNIVERSITÄT DUISBURG ESSEN

Comparison with Theory



UNIVERSITÄT DUISBURG ESSEN

Dank an ...

TR-RHEED Team:

Anja Hanisch, Simone Möllenbeck, Boris Krenzer, Martin Kammler, Andreas Janzen, Paul Schneider, Tobias Pehlka, Rabbi Khanafer, Matthias Wielens, Annika Kalus, Tim Frigge, Verena Tinnemann,

PEEM Team:

Frank Meyer zu Heringdorf, Niemma Buckanie, Liviu Chelaru Jan Göhre, Nico Raß

Laser Team:

Ping Zhou, Oliver Heinz, Manuel Ligges, Carla Streubühr Dietrich von der Linde

Bi Growth on Si(001):

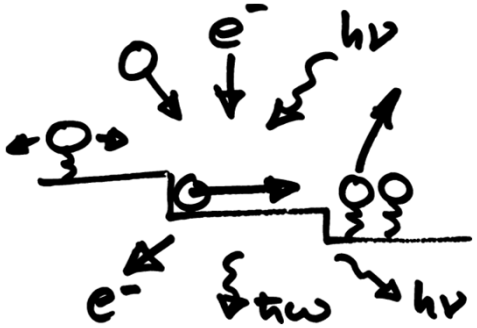
Giriraj Jnawali, Hichem Hattab

X-Ray Diffraction (Osnabrück):

Carsten Deiter, Thomas Weisemöller, Joachim Wollschläger

eory Support:

Peter Kratzer, Andreas Duvenbeck, Orkan Osmani



SFB616

CeNIDE
CENTER FOR NANOINTEGRATION DUISBURG-ESSEN

Deutsche Forschungsgemeinschaft
DFG

UNIVERSITÄT DUISBURG ESSEN

Literatur

- TR-RHEED:
  - Andreas Janzen, Dissertation 2010, Universität Duisburg-Essen
  - Anja Hanisch, Dissertation 2009, Universität Duisburg-Essen
- AMM:
  - G. Chen, R. Yang, X. Chen, “Nanoscale Heat Transfer and Thermal-Electric Energy Conversion” J. Phys. IV **125**, 499 (2005)
- DMM:
  - E.T. Swartz, R.O. Pohl, „Thermal Resistance at Interfaces“, Appl. Phys. Lett. **51**, 2200 (1987)
  - E.T. Swartz, R.O. Pohl, „Thermal boundary resistance“, Rev. Mod. Phys. **61**, 605 (1989)