

# CENTRO DE INVESTIGACIÓN EN MATERIALES AVANZADOS, S. C. (UNIDAD MONTERREY)

#### POSGRADO

### Desarrollo de Rectificadores Térmicos Basados en el Efecto de Desacople Acústico entre Materiales.

#### "Tesis que como Requisito para Obtener el Grado de maestría Nanotecnología presenta."

Ing. Manuel de Jesús Rodríguez Sánchez

Lic. Felipe Humberto Bocanegra Moyeda

Director de tesis.

Dr. Jaime Álvarez Quintana

Apodaca; Nuevo León

4 de agosto 2017



#### DEDICATORIA

» Este trabajo en especial lo dedicamos a nuestras familias por el apoyo que nos han brindado. Durante todo el tiempo que estuvimos estudiando.

» A nuestros padres por el apoyo que siempre nos brindaron en todo momento.

#### AGRADECIMIENTOS

» Agradezco al CENTRO DE INVESTIGACIÓN EN MATERIALES AVANZADOS S. C. unidad Monterrey por la formación académica que recibí, además de permitir desarrollar mi tesis dentro de sus instalaciones y por el apoyo otorgado para el cumplimiento de los objetivos planteados en este trabajo.

» Al doctor Jaime Álvarez Quintana por apoyarme y compartir sus conocimientos conmigo a lo largo de este trabajo de tesis, además de la acertada dirección con la que me ayudó a desarrollar este trabajo de tesis.

» Al cuerpo técnico de los laboratorios de caracterización del CIMAV unidad Monterrey, en especial a M.C Josué, al M.C Ángel por su colaboración y apoyo en las actividades en el laboratorio de materiales.

» A mi familia por su apoyo incondicional que me han brindado tanto en mi formación académica como personal.



#### INDICE GENERAL

RESUMEN
CAPITULO 1
1.1 INTRODUCCIÓN.11.2 JUSTIFICACIÓN.11.3 HIPOTESIS21.4 OBJETIVOS31.4.1 OBJETIVO3GENERAL31.4.2 OBJETIVOS3SPECIFICOS3
CAPITULO 2 RESISTENCIA TÉRMICA DE INTERFACE Y EFECTO SOBRE LA CONDUCTIVIDAD TERMICA EFECTIVA
2.1 RESISTENCIA TERMICA DE INTERFACE Y DISPERSIÓN ENTRE LAS INTERFACES DE LOS FONONES
2.2 MODELOS PARA LA RESISTENCIA TERMICA DE INTERFACE ENTRE SISTEMAS SOLIDO- SOLIDO
2.2.1 EL MODELO DE DESACOPLE CUSTICO
2.2.2 EL MODELO DE DESACOPLE DIFUSO
2.2.3 DISIMILITUDES ENTRE AMM Y DM
2.3 CONDUCTIVIDAD TERMICA ATRAVES DE SUPER ESTRUCTURAS: PELICULAS NO EPITELIALES
2.3.1 PROPIEDADES DE LOS MATERIALES DE LAS SUPER ESTRUCTURAS
2.3.2 RELACION DE ESPESOR ENTRE LOS MATERIALES DE LA SUPER ESTRUCTURA
2.3.3 PERIODICIDA DE SUPERESTRUCTURA
2.3.4 DENSIDAD DE INTERFACE EN SUPER ESTRUCTURAS

Centro de Investigación en Materiales Avanzados, S.C.
CAPITULO 3 PROCEDIMIENTO EXPERIMENTAL Y TECNICAS DE MEDICION Y CARACTERIZACIÓN
3.1 MATERIALES UTILIZADOS SUS PROÌEDADES
3.2 PROPIEDADES ACUSTICAS DE LOS MATERIALES UTILIZADOS
3.3 ELABORACIÓN DE LAS MUESTRAS UTILIZADAS
3.4 FACTOR DE RECTIFICACION
CAPITULO 4
4.1 EFECTO DE LA RESISTENCIA TÉRMICA DE INTERFACE EN EL SISTEMA
GRAFITO/SIO <sub>2</sub> /GRAFITO41
4.2 RECTIFICADORES TÉRMICOS BASADOS EN EL EFECTO DE DESACOPLE ACÚSTICO
4.2.1 DIODO TÉRMICO BASADO EN SISTEMA CU/W46
4.2.2 DIODO TÉRMICO BASADO EN SISTEMA GRAFITO/AL
4.2.3 DIODO TÉRMICO BASADO EN SISTEMA GRAFITO/CU
4.2.4 DIODO TÉRMICO BASADO EN SISTEMA ALO2/W55
4.3 CONCLUSIONES



#### INDICE DE TABLAS.

Tabla 3.1 Impedancia acústica y desacople acústico	34
Tabla 3.2 Dimensiones del material utilizado	34
Tabla 4.1 Diodos y sus factores de rectificación con las principales relaciones qu	ue
englobas la trasferencia de calor por electrones y fonones5	59

#### ÍNDICE DE FIGURAS.



Figura. 3.1 Imágenes del dado y la prensa utilizados en el prensado en caliente
Figura. 3.2 a) Muestras de grafito con película de dióxido de silicio de 10 nm. b) Muestra de grafito con película de dióxido de silicio de 20 nm
Figura. 3.3 Muestras de Grafito 8mm. De diámetro36
Figura. 3.4 Muestras de Aluminio 8mm. De diámetro
Figura. 3.5 Muestras de Cobre 3x5mm. Y de 8mm de diámetro
Figura. 3.6 Muestras de Alúmina de 3x5mm. Y de 8mm. De diámetro 37
Figura. 3.7 Muestras de Tungsteno de 3x5mm 38
Figura. 3.8 Curvas características para a) Resistencia térmica b) Diodo térmico
Figura. 3.9 Diodos térmicos a) polarización inversa b) polarización directa 40
Figura. 3.10 Graficas Q vs $\Delta T$ , Para el diodo formado por Silicio monocristalino y SiO <sub>2</sub> amorfo40
Figura. 4.1 Muestras de grafito a) con película nanometrica de SiO <sub>2</sub> b) película de SiO <sub>2</sub> entre dos barras de grafito
Figura.4.2 Curvas de transferencia de calor en muestra de grafito/ SiO <sub>2</sub> /grafito, a) grafito con diferentes espesores de nanoláminas de SiO <sub>2</sub> , y b) amplificación de las curvas donde se observa el pequeño efecto de las nanoláminas de SiO <sub>2</sub>
Figura. 4.3 sistema compuesto por dos barras de materiales con propiedades acústicas diferentes
Figura. 4.4 Diodo térmico basado en Cu/W, al aplicar el flujo de calor Q en estado estable se generan un diferencial de temperatura $\Delta T = T_2 - T_1$ y una temperatura de interface Ti
Figura. 4.5 Curva de trasferencia para el diodo térmico basado en Cu/W47
Figura. 4.6 Rectificación térmica en función del diferencial de temperatura para un diodo térmico basado en Cu/W



Figura. 4.7 Rectificación térmica en función de la temperatura de interface para un diodo térmico basado en Cu/W
Figura. 4.8 Diodo térmico basado en Grafito/Al, al aplicar el flujo de calor Q en estado estable se generan un diferencial de temperatura $\Delta T = T_2 - T_1$ y una temperatura de interface Ti
Figura. 4.9 Curva de trasferencia para el diodo térmico basado en Grafito/Al
Figura. 4.10 Rectificación térmica en función del diferencial de temperatura para un diodo térmico basado en Grafito/Al51
Figura. 4.11 Rectificación térmica en función de la temperatura de interface para un diodo térmico basado en Grafito/Al51
Figura. 4.12 Diodo térmico basado en Grafito/Cu, al aplicar el flujo de calor Q en estado estable se generan un diferencial de temperatura $\Delta T = T_2 - T_1$ y una temperatura de interface T <sub>i</sub>
Figura. 4.13 Curva de trasferencia para el diodo térmico basado en Grafito/Cu53
Figura. 4.14 Rectificación térmica en función del diferencial de temperatura para un diodo térmico basado en Grafito/Cu54
Figura. 4.15 Rectificación térmica en función de la temperatura de interface para un diodo térmico basado en Grafito/Cu54
Figura. 4.16 Diodo térmico basado en Alúmina/W, al aplicar el flujo de calor Q en estado estable se generan un diferencial de temperatura $\Delta T = T_2 - T_1$ y una temperatura de interface T <sub>i</sub>
Figura. 4.17 Curva de trasferencia para el diodo térmico basado en Alúmina/W
Figura. 4.18 Rectificación térmica en función del diferencial de temperatura para un diodo térmico basado en Alúmina/W57
Figura. 4.19 Rectificación térmica en función de la temperatura de interface para un diodo térmico basado en Alúmina/W57
Figura. 4.20 Factor de rectificación térmica en función del diferencial de temperatura para los diodos propuestos



### CAPITULO 1 INTRODUCCIÓN



#### Resumen

La invención del diodo, el transistor y otros dispositivos electrónicos los cuales controlan el flujo de carga eléctrica han permitido un impresionante desarrollo tecnológico el cual ha cambiado significantemente muchos aspectos de la vida diaria. Sin embargo, el control de carga eléctrica y calor nunca han sido tratados y desarrollados de manera paralela. El principal problema es que es mucho más difícil controlar el flujo de calor en un sólido que el flujo de electrones en el mismo. Esto es debido a que los principales portadores calor, los fonones a diferencia de los electrones no tienen carga y masa, por lo tanto no pueden ser afectados por campos electromagnéticos. En un modelo ideal, un rectificador térmico es el equivalente térmico del diodo eléctrico. Un dispositivo de dos terminales el cual conduce mayor flujo de calor térmico en una dirección que en otra, dependiendo de la dirección en que este sea aplicado. Actualmente, los mecanismos utilizados para lograr tales efectos de rectificación térmica se basan principalmente en efectos geométricos, electrónicos, interacciones fonón - electrón y vibraciones anarmónicas de la red. Sin embargo a través de estas estrategias no se ha evidenciado que el factor de rectificación pueda alcanzar un orden de magnitud, el cual es un límite arbitrario requerido para considerar este efecto útil a nivel aplicación. En el presente trabajo de tesis se reportan rectificadores térmicos los cuales basen su funcionamiento en el efecto de desacople acústico entre materiales así como partir de la resistencia térmica de interface.

Este nuevo enfoque abre el camino para alcanzar este límite arbitrario a temperatura ambiente en una forma simple y abre una nueva ruta hacia la próxima generación de diodos térmicos.



#### 1. INTRODUCCIÓN

El desperdicio de calor ocurre en muchas áreas de la vida cotidiana por que el consumo mundial de energía es insuficiente. En general generar 1W de potencia requiere aproximadamente 3W de energía de entrada e involucra perder en el medio ambiente el equivalente de 2W de potencia en forma de calor.

Recuperar eficientemente incluso una porción de esa energía desperdiciada en forma de calor podría por sí mismo satisfacer las necesidades de electricidad del planeta [1].

Por lo tanto, una solución interesante y sustentable al problema de energía, sería el desarrollo de dispositivos térmicos de estado sólido que ayudarían a recuperar este calor desperdiciado.

El dispositivo electrónico más utilizado es el diodo eléctrico, su equivalente es el diodo térmico, un dispositivo que conduce calor en una sola dirección. Tales rectificadores térmicos podrían tener gran impacto en la recuperación de la energía térmica, así como dispositivo de control de calor. Por otra parte, además de la recolección y control del calor, los diodos térmicos podrían ser la base de dispositivos más complejos, como transistores y dispositivos lógicos térmicos [2,3]. Actualmente existen actualmente dos enfoques generales que potencialmente puedan resultar en comportamiento de rectificación: el aumento en las cargas de los mecanismos moleculares, incluyen efectos como asimetría del transporte del electrón en la interface [4,5], tensión-deformación en la interface entre dos solidos [6], barrera potencial térmica en la interface [7] y la dependencia de la temperatura de la conductividad térmica en la interface [8,9]. Por otra parte, los mecanismos moleculares se basan en masas no uniformes de carga [10-11] geometría asimétrica nano estructurada [36-56], interfaces nano estructuradas [14,15], redes armónicas, no lineales [16,17] y sistemas térmicos quánticos [18,19]. En el contexto experimental, a pesar de muchas décadas de investigación, ni masas ni mecanismos moleculares han evidenciado que el factor de rectificación pueda alcanzar un orden de magnitud el cual es un límite arbitrario para considerar el efecto útil para sistemas de ingeniería, y el más eficiente factor de rectificación es 1.7 a 150K (Ref. 80) y 1.11 en 80 mK, respectivamente [75], sin embargo, las bajas temperaturas de operación lo hacen poco práctico. En el contexto teórico, la mejor sugerencia se basa en la rectificación térmica a nivel nonoescala, donde se producen factores de rectificación que van desde 100 hasta 10000 [20,21], dichos sistemas necesitan acoplamiento y disposición entre átomos individuales, los cuales son muy difíciles de lograr en la práctica. Sin



embargo, el único diodo térmico de nonoescala demostró a temperatura ambiental una rectificación térmica de1.07 [10].

Claramente queda mucho trabajo por hacer para lograr un rectificador térmico practico para aplicaciones a temperatura ambiente con un factor de rectificación que se aproxime o supere los límites teóricamente predichos.

#### 1.2 JUSTIFICACIÓN.

Si se pudiera controlar el flujo de calor con la facilidad con que se controla una corriente eléctrica, una revolución sin precedentes cambiaría el campo de la calefacción y de la refrigeración, y también infinidad de enseres que de un modo u otro se ven afectados por flujos de calor en direcciones no deseadas, desde ropa hasta CPUs. Ahora se ha ideado una nueva tecnología que, si funciona del modo esperado, podría permitir controlar el flujo de calor de una manera muy parecida al modo en que la corriente eléctrica es controlada mediante diversos tipos de dispositivos, un avance que podría hacer posible el sueño antes comentado y que tendría infinidad de aplicaciones prácticas.

#### 1.3 HIPÓTESIS

Bajo un contexto clásico, los materiales solidos pueden aproximarse como si fueran un medio continuo, esto da lugar en general a que la transferencia de energía a través del solido pueda ser cuantificada y descrita a partir de modelos de flujo de energía continua. En este sentido, la transferencia de calor en un sólido puede ser aproximada al flujo de una onda de sonido a través de dichos materiales, de modo que cada material presentara una resistencia a este flujo de sonido la cual depende de su densidad y de la velocidad del sonido a través de él. Por lo tanto, el efecto de rectificación térmica en un sólido podría ser posible partiendo de este simple concepto, ya que dos materiales en contacto presentarían diferentes velocidades efectivas del sonido dependiendo la dirección en la que la onda sonora sea aplicada, de modo que dicha hipótesis se podría sostener para el caso de ondas térmicas.





#### 1.4 OBJETIVOS

#### 1.4.1 Objetivo general

Desarrollar rectificadores térmicos los cuales basen su funcionamiento en el efecto de desacople acústico entre materiales.

#### 1.4.2 Objetivo especifico

1.- Analizar el comportamiento de rectificación térmica en sistemas Grafito/Cobre, Alúmina/Tungsteno, y Grafito/Aluminio los cuales son materiales con desacoples acústicos relativamente significativos.

2.- Medición de propiedades térmicas de los diferentes sistemas propuestos.

3.- Cuantificación de la rectificación térmica de los sistemas propuestos.

4.- Evaluación del potencial del efecto de desacople acústico entre materiales como estrategia para el desarrollo de diodos térmicos.





#### Referencias.

- [1]E. Pop, Nano Res. 3, 147 (2010).
- [2]B. Li, L. Wang, and G. Casati, Appl. Phys. Lett. 88, 143501 (2006).
- [3]L. Wang and B. Li, Phys. Rev. Lett. 99, 177208 (2007).
- [4]C. Starr, J. Appl. Phys. 7, 15-19 (1936).
- [5]A. Majumdar and P. Reddy, Appl. Phys. Lett. 84(23), 4768–4770 (2004).
- [6]R. Somers II, L. Fletcher, and D. Flack, AIAA J. 25(4), 620-621 (1987). [7]
- [7]J. Moon and R. Keeler, Int. J. Heat Mass Transfer 5, 967–971 (1962).
- [8]C. Marucha, J. Mucha, and J. Rafalowicz, Phys. Status Solidi A 31, 269–273 (1975).
- [9] C. Marucha, J. Mucha, and J. Rafalowicz, Phys. Status Solidi A 37, K5–K7 (1976).
- [10] C. Chang, D. Okawa, A. Majumdar, and A. Zettl, Science314, 1121–1124 (2006).
- [11] C. Otey, W. Lau, and S. Fan, Phys. Rev. Lett. 104, 154301 (2010).
- [12]Wu and B. Li, J. Phys.: Condens. Matter 20, 175211 (2008).
- [13]J. Hu, X. Ruan, and Y. Chen, Nano Lett. 9(7), 2730–2735 (2009).
- [14]N. Roberts and D. Walker, J. Heat Transfer 133(9), 092401 (2011).
- [15]M. Hu, P. Keblinski, and B. Li, Appl. Phys. Lett. 92, 211908 (2008).
- [16]G. Casati, Chaos 15, 015120 (2005).
- [17]M. Peyrard, Europhys. Lett. 76(1), 49–55 (2006).
- [18] T. Ojanen, Phys. Rev. B 80, 180301 (2009).
- [20] ]N. Yang, G. Zhang, and B. Li, Appl. Phys. Lett. 93, 243111 (2008).
- [21]B. Hu and L. Yang, Chaos 15, 015119 (2005).





## **CAPITULO 2.**

RESISTENCIA TÉRMICA DE INTERFACE Y EFECTO SOBRE LA CONDUCTIVIDAD TÉRMICA EFECTIVA.





# 2.1 Resistencia Térmica de interface y dispersión entre las interfaces de los fonones.

La idea de que una resistencia térmica pudiera existir entre el helio líquido y un sólido se expresó en 1936. Por primera vez, Kürti, Rollin y Simón (1936) asumieron tal resistencia térmica que era muy pequeña y por lo tanto, ignorada. Pocos meses después, Keesom y Keesom (1936) reconocieron que la resistencia térmica en la interface era "relativamente considerable". En 1941, Kapitza reporto a partir de sus mediciones de la caída de temperatura cerca de la frontera entre el helio y un sólido cuando el calor fluye a través de los limites [1]. Esta resistencia térmica de interface frecuente mente denominada frecuencia Kapitza está definida como la relación de la discontinuidad de temperatura en la interfaz con la potencia por unidad de área que fluye a través de la interfaz, y es la inversa de la conductividad de límite térmico expresada como:

$$h_{Bd} = \frac{\dot{Q}}{A\Delta T} \tag{1}$$

- $h_{\rm Bd}$  = Resistencia térmica de interface
- Q = Calor.
- A = Area.
- $\Delta T$  = Incremento de temperatura.

El cálculo de la conductividad resistencia térmica es muy similar a la conductividad térmica; La resistencia térmica de interface está determinada por el número de portadores de calor (fonones) incidentes en la interfaz, la energía transportada por cada fonón y la probabilidad de que cada uno de ellos se transmita a través de la interfaz. Para la conductividad térmica, la parte difícil es determinar el significado de la trayectoria libre, mientras que para la conductibilidad térmica de interface la parte difícil es determinar la probabilidad de transmisión.

Es necesario ser cuidadoso de utilizar el término conductividad térmica de interface, porque es una propiedad intensiva y por lo tanto geométricamente





independiente; Doblando el área de la interfaz duplica la conductancia del límite térmico, la conductividad del límite térmico.

Típicamente, la cantidad utilizada para describir el transporte térmico de una interfaz se denomina resistencia térmica de interface (no una resistividad térmica). Por razones históricas, el término resistencia térmica de interface se utiliza en lugar de resistencia térmica de frontera, de aquí que, la comunidad científica cree que el término de resistividad térmica de interface sería más apropiado porque la resistencia térmica de interface es una propiedad geometría independiente, de modo que dicha terminología es generalmente aceptada, no será necesario intentar cambiarlo.

En lugar de dar una visión cualitativa general de los parámetros implicados en el cálculo de la magnitud de la conductividad térmica de frontera (resistencia térmica de interface), será necesario considerar sólo la parte del transporte térmico y a través de la interfaz que se debe exclusivamente a los fonones. Un fonón incidente de un en la interfaz tiene sólo dos opciones: o se transmite o no. Clásicamente alguna fracción de la energía del fonón se transmite con la probabilidad  $\alpha$ ; Esta probabilidad de transmisión dependerá en general del modo de fonón *j*, la onda vector k, y de la frecuencia  $\omega$ , así como de la temperatura. Para simplificar, se supone que ambos lados de la interfaz son isotrópicos y que la probabilidad de transmisión debe ser independiente.

Esta suposición de isotropía permite escribir  $\alpha$  como una función de la frecuencia del fonón  $\omega$ , el ángulo  $\theta$  entre la dirección de propagación del fonón y la normal a la interfaz, y el modo de fonón j. Con la suposición de que las probabilidades de transmisión son independientes de la temperatura a cada lado de la interfaz (y por lo tanto independiente de la presencia de otros fonones) se evita la posibilidad de interacciones anarmónicas. La ventaja de esta última suposición es que las probabilidades de transmisión de transmisión de un solo lado de la interfaz necesitan ser calculadas. Es decir, el flujo de calor neto desde el lado 1 a la temperatura T1 al lado 2 a la temperatura T2 es la diferencia entre el flujo de calor total desde el lado



### Centro de Investigación en Materiales Avanzados, S.C.

1 al lado 2, cuando el lado 1 tiene la temperatura  $T_1$  y el flujo de calor total desde el lado 1 al lado 2.

La densidad neta de la corriente de calor desde el lado 1 al lado 2,  $\begin{pmatrix} 1 \\ \end{pmatrix}_{Q_{1\to2}(T)}^{\bullet, gross}$ es la suma de todas las frecuencias y los ángulos incidentes del número de fonones con una frecuencia dada y ángulos incidentes  $\theta$  y  $\phi$  (azimutales) que inciden en un área unitaria (A) por unidad de tiempo, por la energía del fonón,  $\hbar \omega = \hbar c_{1,i} k$ , y por el tiempo de transmisión probabilidad de  $\alpha_{1\to2}(\theta, j, \omega)$ .

Definiendo  $c_{1,j}\cos\theta$  como las componentes normales de la velocidad,  $d\Omega = d\phi \sin\theta d\theta$  y  $N_{1,j}(\omega,T)$  como el producto de los estado de los fonones con ángulos dados,  $\theta$  y  $\phi$ , y multiplicados por el factor de ocupación de Bose. Entonces el número de fonones con frecuencia dada y ángulos de incidencia que reinciden en la superficie del área A por unidad de tiempo serian:

$$\frac{N_{1,j}(\omega,T)}{4\pi} d\Omega c_{1,j} \cos\theta$$
(2)

Cuando este producto es integrado sobre todos los ángulos, el resultado es $c_{1,j}N_{1,j}(\omega,T)$ .

Por lo tanto, la corriente de calor total puede escribirse como:

$$\binom{1}{A} \dot{\mathcal{Q}}_{1 \to 2}^{gross}(T) = \frac{1}{2} \sum_{j} \int_{0}^{\pi/2} \int_{0}^{\omega_{1}^{\max}} N_{1,j}(\omega, T) \hbar \omega c_{1,j} \alpha_{1 \to 2}(\theta, j, \omega) \cos\theta \sin\theta d\theta d\omega$$
(3)

La integral sobre los ángulos azimutales contribuyó 2π.

Aquí,  $\omega_1^{\text{max}}$  es la frecuencia máxima del fonón en el lado 1. Para pequeños valores de  $(T_2-T_1)/(T_2)$ , la resistencia térmica de interface se puede escribir como:





#### imar) Centro de Investigación en Materiales Avanzados, S.C.

$$h_{Bd} = \frac{\dot{Q}_{1 \to 2}^{gross}(T_2) - \dot{Q}_{1 \to 2}(T_1)}{A(T_2 - T_1)}$$
(4)

El problema es resuelto en principio si las probabilidades de transmisión son conocidas.

#### 2.2 Modelos para la resistencia térmica de interface entre sistemas Sólidos-Sólido.

Para la conducción de calor perpendicular a una interfaz, la reflexión del fonón implica que la transferencia de energía por los conductores de calor puede ser reducida y comparada cuando no hay interfaz, o, equivalentemente, a una resistencia de flujo de calor existente en las interfaz.

No se puede entender la resistencia térmica en los límites completamente, sin estudiar el mecanismo de dispersión en las fronteras de las interfaces de los fonones asociados.

En el pasado se han llevado a cabo extensos estudios experimentales y teóricos para tratar de explicar las interfaces sólido- helio líquido y sólido-sólido, pero esencialmente dos modelos basados en el desacople entre las propiedades acústicas, y el modelo de Incompatibilidad de desacople acústico (AMM) y el desajuste entre espectros de fonones, El desajuste del modelo difuso de incompatibilidad (DMM) han sido ampliamente utilizados [2, 3].

El efecto de las interfaces sólido-sólido en la conductividad térmica puede ser entendido cualitativamente dibujando el perfil de temperatura a través de una película delgada la cual tiene una interfaz con otra película como se muestra en la Fig. 2.1. La caída de temperatura a través de la estructura consiste en la diferencia de temperatura en la región interior de la película, To, y la discontinuidad de temperatura en una interface, T<sub>a</sub>, T<sub>i</sub> Las resistencias térmicas reducen el flujo de calor debido a las diferencias en propiedades elásticas y densidades de estados





vibratorios que dificultan la transferencia de energía térmica a través de interfaces entre materiales distintos.



Figura. 2.1 El perfil de la temperatura aplicada en una dimensión a través de una película delgada en respuesta a un flujo de calor aplicado. La caída de temperatura a través de una región interior de la película se denomina  $T_o$ , Ti indica la discontinuidad de la temperatura resultante de la resistencia interface.

De la figura 2.1 se desprende claramente que la conductividad térmica efectiva debida a los materiales de los componentes será afectada por la resistencia térmica de la interface presentado en la interface. Suponiendo que las conductividades térmicas para ambas capas delgadas son  $k_1$  y  $k_2$  respectivamente considerando el mismo espesor  $t_1=t_2=t$ , la conductividad térmica efectiva  $k_{capas}$  debido a sólo ambas películas es dada por:

$$k_{capas} = \frac{2k_1k_2}{k_1 + k_2}$$
(5)

Además, si la resistencia térmica de la interface, se toma en consideración la conductividad térmica efectiva representada por el sistema de la figura 2.1 no está bien descrita por la ecuación (5) y la conductividad térmica efectiva incluyendo los efectos de la interface estaría dada por:

$$k_{eff} = \frac{k_{capas}}{1 + k_{capas} \frac{R_{th}}{t}}$$
(6)





Donde  $R_{th}$  es la resistencia del límite térmico y tiene el efecto de disminuir el valor efectivo de  $k_{capas}$ ,  $t_{eff} = t_1 + t_2$ , es el espesor total del sistema.

Por otra parte, Algunas extensiones de la AMM y DMM han sido propuestas recientemente para tratar de dar una comprensión adicional para el comportamiento de la resistencia térmica de interface [4 - 10]. Sin embargo, las teorías básicas típicas para el análisis de la resistencia térmica de la interface (TBR- $R_{th}$ ) son el modelo de desacople acústico (AMM) y el modelo de desacople difuso (DMM).

#### 2.2.1 El modelo de desacople acústico.

En 1952, Khalatnikov presentó un modelo, una aproximación a lo que se conoce como el modelo de desacople acústico (AMM), para explicar que una resistencia térmica de interface, ocurre en las fronteras entre los límites de la interfaz de helio sólido-líquido. La expresión del AMM en las interfaces sólido-sólido [11] sentó las bases para la teoría de la resistencia térmica de interface sólido-sólido y contribuyo a desarrollar estudios experimentales.

En el AMM hay esencialmente dos principios fundamentales; El primero es que los fonones se rigen por la acústica continua y el segundo es que en la interfaz se trate como incidencia de ondas planas, en resumen; Los materiales en los que se propagan los fonones se trataran como medios continuos.

Teniendo en cuenta estas suposiciones, sólo hay cuatro resultados posibles cuando un fonón es incidente en la interfaz; El fónon puede: (I) reflejar especularmente, (II) reflejar y convertir en modo (es decir, convertir de un modo longitudinal a uno de los dos modos transversales o viceversa), (III) refractar, o (IV) refractar y convertir modo. Como resultado, el estado final es una superposición de estas posibilidades. La probabilidad de transmisión es la fracción total de la energía transmitida a través de la interfaz. En la figura 2.2 se pueden observar estas posibilidades.





#### mac) Centro de Investigación en Materiales Avanzados, S.C.



Figura. 2.2 Diagrama esquemático de las posibilidades de un incidente de fonón en una interfaz entre dos materiales diferentes. Fonon puede: (I) reflejar especularmente, (II) reflejar y convertir modo, (III) refractar, o (IV) refractar y convertir modo. El fonón incidente puede ser un modo longitudinal o uno de dos modos transversales.

Debido a la acústica que gobierna el sistema continuo de un fonon, las probabilidades de la transmisión se determinan por el análogo acústico de las ecuaciones de Fresnel.



Figura. 2.3 Los ángulos y velocidades del fonón transmitidos y incidentes para los fonones incidentes y transmitidos están representados por  $v_I$ ,  $\theta_I$ , y  $v_T$ ,  $\theta_T$  respectivamente.



### Centro de Investigación en Materiales Avanzados, S.C.

Si un fonón con ángulo incidente  $\theta_I$  transmite un fonón con un ángulo transmitido  $\theta_T$  con probabilidad  $\alpha$ , entonces el ángulo de un fonón transmitido se puede calcular a partir de la ley de Snell, aplicando esta ley al fonón transmitido en la figura 2.3, resulta que:

$$\sin \theta_T = \frac{v_T}{v_I} \sin \theta_I \tag{7}$$

Esta relación se mantiene independientemente de si se produce o no el modo de conversión. Una consecuencia importante de la ley de Snell es que cuando el sin  $\theta_{I}$  es igual a  $v_{I} / v_{T}$ , se alcanza un ángulo crítico, más allá de que la probabilidad de transmisión sea cero. Por lo tanto, en el espacio tridimensional, este ángulo crea un cono crítico. Todos los fonones incidentes desde el exterior de este cono reflejarán, dando lugar a una resistencia térmica en de interface o frontera.

La imagen más simple derivable del AMM es que cada material puede atribuirse una impedancia acústica igual al producto de la densidad de la masa y la velocidad del fonón  $Z_i = \rho_i v_i$ .

Sin embargo, incluso los fonones dentro del cono crítico pueden reflejarse debido a diferencias en la impedancia acústica de los dos materiales. Para un fonón con incidencia normal que se transmite desde el material 1 al material 2, la probabilidad de transmisión de energía tiene el siguiente aspecto:

$$\alpha_{1 \to 2} = \frac{4Z_1 Z_2}{(Z_1 + Z_2)^2}$$
(8)

Por lo general, también se hacen varias suposiciones esenciales para simplificar los cálculos; Por ejemplo, se supone que los sólidos son sólidos de Debye isotrópicos y las velocidades longitudinal y transversal del sonido son diferentes.

Para frecuencias por debajo de las frecuencias de corte de Debye,  $\omega^{Debye}$ , el número de fonones con una frecuencia dada es:





$$N_{1,j}^{Debye}(\omega,T)d\omega = \frac{\omega^2 d\omega}{2\pi^2 v_{1,j}^3 \left[ e^{\frac{\hbar\omega}{K_s T}} - 1 \right]}$$
(9)

Introduciendo la variable  $\Gamma_{1,j} = \int_{0}^{\frac{\pi}{2}} \alpha_{1\to 2}(\theta, j) \cos\theta \sin\theta d\theta$  para simplificar; Y combinando las ecuaciones (3) y (4) la conductividad térmica de interface se da como:

$$h_{bd} = \frac{1}{2} \sum_{j} V_{1,j} \Gamma_{1,j} \int_{0}^{\omega_{i}^{Debys}} \hbar \omega \frac{dN_{1,j}(\omega,T)}{dT} d\omega$$
(10)

La inversa  $1/h_{bd}$  es la resistencia térmica de la interface R<sub>th</sub> en unidades m<sup>2</sup>K / W.

En bajas temperaturas, se realiza la aproximación típica al establecer el límite superior en la frecuencia integral al infinito, y la integral puede resolverse. Como resultado, la integral resulta ser la misma que en el cálculo de la capacidad térmica de Debye. Utilizando la aproximación de Debye para simplificar aún más el cálculo, la resistencia térmica de interface,  $R_{th}$  después de alguna manipulación algebraica, queda definida como:

$$R_{th} = \left[\frac{\pi^2}{15} \frac{k_B^4}{\hbar^3} \sum_j \frac{\Gamma_{i,j}}{v_{i,j}^2}\right]^{-1} T^{-3}$$
(11)

La resistencia térmica del límite  $R_{th}$  como un medio para estimar rápidamente el desajuste de impedancia acústica para las súper estructuras puede aproximarse como:

$$R_{ih} = \frac{4}{C \nu \alpha} \tag{12}$$

Donde *C* es el calor específico de Debye, v es la velocidad del fonón, y  $\alpha$  es la probabilidad de transmisión dada por la ecuación (8).





Finalmente, otro resultado interesante del análisis anterior es que las probabilidades de transmisión son independientes de la frecuencia del fonón, esto para los fonones con una frecuencia menor que la frecuencia de corte de Debye. Por arriba de la frecuencia de corte inferior de Debye, las probabilidades de transmisión de fonones son cero.

#### 2.2.2 El modelo de desacople difuso.

Una de las suposiciones cruciales hechas el AMM es que no se produce dispersión en la interfaz. Sin embargo este tipo de dispersión se produce en las interfaces sólido-sólido y conduce a una reducción significativa donde la resistencia térmica de la interface abre nuevas formas para la trasmisión de calor a través de las interfaces.

Un método alternativo para modelar la transmisión de calor en una interfaz sólidasólida la cual tiene en cuenta la dispersión difusa es el modelo de desacople difuso (DMM) descrito por Swartz y Pohl [2, 3]. Para aplicar el modelo de desacople difuso, se supone que los fonones incidentes en la interfaz son dispersados elásticamente, el fonón disperso no tiene otra correlación con el fonón incidente, y los sólidos en ambos lados de la interface son elásticamente isotrópicos [12]. En el DMM, se asume que las correlaciones acústicas en la interface son completamente destruidas por el desacople difuso, de modo que los únicos determinantes de la probabilidad de transmisión  $\alpha$  son las densidades de fonones. Un desajuste en el espectro de fonones de los dos materiales también puede desempeñar un papel en la conducción de fonones a través de una interfaz [13, 14].

Por ejemplo, el número de estados de las densidades del material 1 para fonones de frecuencia  $\omega$  puede ser mucho mayor que el número de estados a esa frecuencia que están disponibles en el material 2. Si esa es la situación, entonces el porcentaje de transmisión de esos fonones de 1 a 2 será pequeña. Para complicar aún más las cosas, en lugar de limitarse al medio incidente un fonón de





alta frecuencia puede dividirse en dos fonones de menor frecuencia y aún transmitirse a través de la interfaz.

El único aspecto del modelado de la resistencia térmica de interface que usa el AMM que debe modificarse para el DMM es la probabilidad de transmisión  $\alpha$ . Las condiciones requeridas para calcular la probabilidad de transmisión para el DMM son: el principio de balance de energía y la definición de la difusión difusa en una interfaz.

Un fonón con energía,  $\hbar \omega_i$  vector de onda  $\mathbf{k}_i$  y modo  $j_i$  se dispersa difusamente si el vector de onda del fonón resultante  $\mathbf{k}_f$  y el modo  $j_f$  es completamente independiente de  $\mathbf{k}_i$  y  $j_i$ .

En resumen, un protón pierde la ubicación de donde partió y de qué modo fue, así como por simplicidad se supone que los eventos de dispersión son elásticos

 $\hbar \omega_i = \hbar \omega_f$ .

Esto como la mayoría de las definiciones de un evento de dispersión difusa es bastante restrictivo. Por ejemplo, se ignoran todas las correlaciones entre los fonones entrantes y salientes (excepto la energía). Sin embargo, la definición es útil por dos razones: permite un cálculo simple, y conduce a resultados interesantes.

Debido a la definición de dispersión difusa, la probabilidad de transmisión  $\alpha_{i, j}$  ( $\omega$ , **k**) para los fonones del lado i, con el modo longitudinal o transversal j, y con una energía dada  $\hbar \omega$ , es independiente de su vector de onda y su modo que:

$$\alpha_{i,j}(\omega, \mathbf{k}) = \alpha_i(\omega) \tag{13}$$

A partir de la definición de la dispersión difusa:

$$\alpha_{i,j}(\omega) = 1 - \alpha_{3-i}(\omega) \tag{14}$$

Esta ecuación afirma que (puesto que un fonón pierde la ubicación de donde partió) la probabilidad de reflexión de un lado debe ser igual a la probabilidad de transmisión del otro.



### Centro de Investigación en Materiales Avanzados, S.C.

El número de fonones de energía  $\hbar \omega$  por unidad de área por unidad de tiempo que sale del lado i es:

$$\sum_{j} \int_{0}^{2\pi} \int_{0}^{\pi/2} \cos\theta d\theta d\phi V_{i,j} N_{i,j}(\omega, T) \alpha_{i}(\omega)$$
(15)

 $N_{i,j}(\omega,T)$ , es la densidad de energía  $\hbar \omega$  de los fonones en el lado i con el Aquí, modo j a la temperatura T. Debido a que las probabilidades de transmisión son independientes del ángulo incidente, las integrales angulares pueden hacerse inmediatamente, resultando.

$$\frac{1}{4}\alpha_i(\omega)\sum_j v_{i,j}N_{i,j}(\omega,T)$$
(16)

Teniendo un equilibro detallado, esto debe ser igual al número de fotones de energía  $\hbar \omega$  dejando el lado 3-i por unidad de área por unidad de tiempo.

$$\frac{1}{4}\alpha_{i}(\omega)\sum_{j}v_{i,j}N_{i,j}(\omega,T) = \frac{1}{4}\alpha_{3-i}\sum_{j}v_{3-i,j}N_{3-i,j}(\omega,T)$$
(17)

A partir de la relación anterior es posible resolver las probabilidades de transmisión:

$$\alpha_{i} = \frac{\sum_{j} V_{3-i,j} N_{3-i,j}(\omega, T)}{\sum_{i,j} V_{i,j} N_{i,j}(\omega, T)}$$
(18)

Es posible simplificar esta solución si se utiliza el modelo de Debye para la densidad de estados, y entonces es posible escribir las probabilidades de transmisión como [2, 3]:

$$\alpha_{i} = \frac{\sum_{j} \nu_{3-i,j}^{-2}}{\sum_{i,j} \nu_{i,j}^{-2}}$$
(19)

### Centro de Investigación en Materiales Avanzados, S.C.

Donde  $v_{i, j}$  es la magnitud de la velocidad del grupo de fonones de la rama j (j es transversal o longitudinal) en la i-ésima capa.

Resolviendo la resistencia de límite térmico de una manera similar el AMM, pero utilizando las suposiciones discutidas anteriormente y asumiendo además que  $T_1$ ,  $T_2 \ll \theta_D$  por lo tanto, es posible utilizar las ecuaciones (2.9) y (2.10) tal como se hizo para el AMM, ya que estas ecuaciones no son específicas el AMM:

$$R_{th} = \left[\frac{\pi^2}{30} \frac{k_B^4}{\hbar^3} \alpha_{1\to 2} \sum_j \frac{1}{v_{i,j}^2}\right]^{-1} T_2^{-3}$$
(20)

Cuando se eleva la temperatura, la ecuación (19) ya no es válida, se puede obtener una ecuación similar utilizando el BTE (Ecuación de transporte de Boltzman) bajo la aproximación del tiempo de relajación en términos de intensidad de fonón y su relación con el calor específico [15, 16]. Suponiendo que los fonones de todas las frecuencias pueden transmitir a través de la interfaz. Esto implica que la dispersión en la interfaz sea inelástica, por ejemplo; fonones en una capa con frecuencia Superior a la frecuencia máxima de fonones en las capas adyacentes puede transmitir en capas adyacentes por división en dos o más fonones a través de interacciones anarmónicas. En el DMM, estos procesos de dispersión inelástica redistribuyen los fonones isotrópicamente en todas las direcciones. Por lo tanto, la expresión para la probabilidad de transmisión de fonones en las condiciones descritas anteriormente se obtiene de:

$$\alpha_{i,j} = \frac{\langle j \, V_j}{C_i V_i + C_j V_j} \tag{21}$$

En el límite difuso para simplificar, una solución aproximada para la resistencia térmica de interface puede expresarse como:

$$R_{th} = \frac{4}{C \nu \alpha}$$
(22)

Donde *C* es el calor específico de Debye, v es la velocidad del fonón, y  $\alpha$  es la probabilidad de transmisión dada por la ecuación (21).





Puede ser difícil cuantificar el desajuste de los espectros de fonones entre dos materiales, un método cualitativo simple para estimar el desajuste en los espectros de fonones es comparar la temperatura de Debye entre los materiales. La temperatura de Debye puede considerarse como medida de la rigidez elástica de un cristal [17]. En general, si hay una gran diferencia en la temperatura de Debye, habrá un gran desajuste en los espectros de fonones.

#### 2.2.3 Disimilitudes entre AMM y DMM

Consideremos un par de materiales A y B con relativamente grandes diferencias en su densidad de estados y propiedades acústicas, donde la densidad de estados en el material A es menor que la densidad de estados en el material B, si aplicamos el DMM, entonces cuando un fonón parte del material A e incide en la interfaz debe decidir si desea transmitir la dispersión o retro dispersión, de aquí que la decisión se basa sólo en la densidad relativa de los estados del fonón tales que el fonón puede dispersarse. Puesto que hay mucha más densidad de estados de la frecuencia inicial del fonón en el material B, ese fonón se transmitirá ciertamente al material B. Por otra parte, si asumimos que el AMM, ese mismo fonón casi con toda seguridad se reflejaría debido al desajuste acústico entre ambos materiales. Además, si ambos materiales tienen propiedades acústicas idénticas, la probabilidad de transmisión según el AMM es 1, por el contrario, la probabilidad de transmisión predicha por el DMM es exactamente 0.5. En este caso la resistencia térmica de la interface se incrementa por dispersión difusa; Específicamente, la resistencia límite se duplica.







Figura. 2.4 Disimilaría entre las resistencias de límite térmico DMM / AMM. La línea punteada izquierda muestra una interfaz con relativamente poca diferencia entre los límites sólido-sólido, la línea punteada central representa una interfaz sólida-sólida con gran disimilitud, y la línea punteada derecha define una región con disimilitud extremadamente grande.

En la figura 2.4 se representa la relación de la resistencia térmica de interface predicha por el DMM a la resistencia térmica de interface predicha por el AMM frente a un parámetro sin unidad que podría representar cualitativamente la cantidad de disimilitud entre los dos materiales que forman la interfaz. Este parámetro podría ser algo como ( $\rho v$ ) max/ ( $\rho v$ ) min-1, donde ( $\rho v$ ) max es el producto de la densidad de masa y la velocidad del fonón de Debye en el lado (material) donde este producto es mayor [2, 3]. La Figura 2.4 muestra que la dispersión difusa aumenta la resistencia térmica de interface entre sólidos muy similares, disminuye la resistencia térmica en las interfaces entre sólidos bastante diferentes.

La resistencia térmica de interface en una interfaz sólida-sólida juega un papel importante en el diseño y el funcionamiento de dispositivos electrónicos tales como superconductor de alta temperatura, circuito integrado de gran escala, ya que la eliminación de calor de los dispositivos es un factor crucial para su intención operación.



# 2.3 Conductividad térmica a través de súper estructuras: películas no epitaxiales.

Las súper estructuras se pueden definir como una nueva clase de material con una disposición periódica de los materiales constitutivos de tal manera, que no existe en la naturaleza [18]. La adaptación de los materiales puede obtenerse alternando capas de dos materiales diferentes de una manera secuencial hasta obtener el espesor deseado final de la súper estructura. Las súper estructuras también han llamado la atención recientemente sobre aplicaciones potenciales como materiales termoeléctricos como resultado de posibles efectos de confinamiento de electrones, así como una conductividad térmica suprimida debida a la resistencia térmica límite presente en el sistema. Independientemente de la aplicación, las propiedades y la utilidad de los dispositivos a base de superestructuras dependen de manera crítica de la calidad del crecimiento.

En este capítulo sólo se analizará la conductividad térmica de los súper estructuras basados en películas no epitaxiales (multicapas de materiales de película delgada amorfos o micro cristalinos), significa que las capas componentes de los súper estructuras son mono cristales y por lo tanto varias de las propiedades presentes en las superposiciones basadas en películas epitaxiales tales como: formación de mini-band gap, interferencia de ondas, túneles de fonón y efectos de tamaño no se discutirán aquí.

Los recientes avances en la comprensión del transporte de calor en películas ultra delgadas abren la posibilidad de utilizar interfaces sólido-sólido en escalas de longitud manométrica para controlar el transporte de calor en materiales de película delgada. La resistencia térmica en la interface entre dos sólidos disimilares es un factor importante para disminuir la conductividad térmica efectiva en las nano estructuras y se hace importante cuando se considera el transporte de calor en capas de una capa de alrededor de 100 nm de grosor [12]. Además, a través del uso de películas multicapa de óxidos amorfos y microcristalinos de capas gruesas manométricas es posible la ingeniería de materiales en capas a nonoescala con una densidad extremadamente alta de interfaces internas que





pudieran impedir el flujo de calor y por lo tanto una disminución significativa en la conductividad térmica efectiva de la Materiales nano estructurados que abren la posibilidad de una nueva generación de recubrimientos de barrera térmica.

Durante mucho tiempo, se consideró que la conductividad térmica de los óxidos amorfos o de los óxidos cristalinos fuertemente desordenados representaba un límite inferior a la conductividad térmica, con valores situados en el intervalo  $1.3 < \kappa < 4.0 W / m * K$  a temperatura ambiente [19, 20]. Por lo tanto, se espera que los materiales manipulados con densidades de interfaz grandes alternando materiales diferentes puedan reducir efectivamente la conductividad térmica perpendicular por debajo del limite amorfo.

Varios informes en el pasado muestra que la conducción de calor a través de súper estructuras a base de dieléctrico amorfo o muy desordenada óxidos permanecen sin cambios por una alta densidad de interfaz y por lo tanto la adición de interfaces no afectan a la conductividad térmica efectiva del sistema en lo que respecta a sus materiales componentes [21] . Sin embargo, estos informes manejan una densidad muy alta de interfaces donde el efecto del número de interfaces prácticamente cancela el efecto de la resistencia de límite térmico debido a la saturación. Además, no sólo se ha observado anteriormente que la resistencia térmicas globales en las interfaces es linealmente independiente con el número de interfaces, sino que también muestra un comportamiento asintótico [22], por otra parte, los cambios en el espesor período no afecta a la conductividad térmica de las súper estructuras dieléctricas no epitaxiales [23].

Es evidente que las interfaces desempeñan un papel importante para impedir el flujo de calor, pero existen varios parámetros importantes en cuanto a la conducción de calor en las súper - estructuras, tales como la relación de materiales dentro de un período, el espesor del período, las propiedades específicas del material y crecimiento. Estos son parámetros que pueden ser controlados o elegidos en el diseño de nuevas estructuras. Los efectos de estos parámetros se explican en las subsecciones siguientes.



#### 2.3.1 Propiedades de los materiales de las Súper estructuras.

Hay varias propiedades de los materiales que desempeñan un papel importante para la conducción del calor en súper estructuras. Estas propiedades incluyen la conductividad térmica, el parámetro de red y la impedancia acústica principalmente.

Las conductividades térmicas de los dos materiales que forman las súper estructuras parecen estar entre las propiedades menos importantes para reducir la conductividad térmica. Es evidente que se pueden usar materiales con conductividades térmicas relativamente altas para producir súper estructuras con una conductividad extremadamente baja. No es necesario que ambos materiales tengan baja conductividad térmica. De hecho, puede ser preferible que al menos uno de los materiales tenga una alta conductividad de tal manera que tenga una gran diferencia con las propiedades acústicas con la otra capa.

Quizás esta sea de las propiedades de los materiales más importantes es la incompatibilidad de impedancia acústica entre los materiales. Por ejemplo para el caso de las súper - estructuras de Si-Ge el desacople relativamente grande de las propiedades vibracionales crea una mayor reducción de la conductividad térmica que para las súper estructuras Ga As – Al As [23]. De aquí que la incompatibilidad de impedancia acústica entre los dos materiales es una posible explicación para este efecto.

El parámetro de red o más específicamente, el desacople en los parámetros de la red de los dos materiales juega un papel importante para reducir la conductividad térmica efectiva, pero los materiales que tienen grandes desajustes en impedancia acústica también tienden a tener grandes desajustes en el parámetro de la rejilla y por lo tanto, es Difícil de aislar completamente la importancia relativa de la incompatibilidad de impedancia acústica. Sin embargo, el desacople en los parámetros de red de los dos materiales juega un papel importante en términos de defectos y qué espesores de período son viables para el crecimiento, ya que es difícil hacer crecer capas epitaxiales con materiales que contienen un gran grado





de desacople. Alternativamente es posible calcular un espesor de capa crítico, por encima del cual se espera que se formen defectos y dislocaciones para aliviar la deformación en las capas.

# 2.3.2 Relación de espesor entre los materiales de la súper estructura.

La relación de los espesores de los materiales dentro de una superficie de red puede afectar a la conductividad térmica efectiva del sistema. La forma más obvia es la contribución directa que cada capa hace a la resistencia térmica de la súper estructura. Por lo tanto, si se desea un súper estructura de baja conductividad térmica, parece lógico que la relación de materiales dentro de la súper estructura se elija de tal manera que el material con la menor conductividad térmica  $k_1$  sea mucho más grueso que el material con la mayor conductividad  $k_2$ , la ecuación (23) predice la conductividad térmica efectiva para el sistema mostrado en la figura 2.5, es claro que se pueden obtener valores bajos de conductividad térmica cuando  $k_2 > k_1 y t_2 < t_1$ .





$$\kappa_{eff} = \frac{Tk_1k_2}{t_2k_1 + t_1k_2}$$
(23)

Sin embargo, por ejemplo en una súper - estructura bien diseñada para aplicaciones termoeléctricas, la resistencia térmica de interfaces debe ser mayor que la resistencia térmica interna dentro de las capas.





#### 2.3.3 Periodicidad de superestructura.

La periodicidad artificial introducida en una súper estructuras puede afectar la conductividad térmica efectiva de la nano estructura y depende de cómo los materiales de los componentes del súper estructuras puedan adaptarse [18].

Fig. 2.6 La periodicidad artificial introducida en las súper estructuras puede ser adaptada de varias maneras: a) monolítica, b) bi-periódica, c) Súper estructuras de súper estructuras y d) Fibonacci



La figura 2.6 muestra varias maneras de adaptar la periodicidad de las súper estructuras, sin embargo hay cierta libertad en el diseño de diferentes tipos de súper estructuras.

En las súper - estructuras no epitaxiales la forma en que la conductividad térmica de las súper estructura, se ve afectada por la periodicidad de adaptación depende principalmente de la densidad y calidad de interfaz sin embargo, epitaxial además el desacople en la red y los efectos de onda como formación de miniband gaps interferencia de ondas de fonones juegan un papel importante en la conductividad térmica efectiva de los súper estructuras.





#### 2.3.4 Densidad de interface en súper estructuras.

Como regla general; Si la resistencia térmica en las interfaces es el mecanismo dominante para disminuir la resistencia térmica entonces, un aumento en el número de interfaces crea más interfaces por unidad de longitud, y por lo tanto una mayor resistencia térmica que conduce a una menor conductividad térmica de una súper estructura.

Esta tendencia es exactamente lo que se esperar si la resistencia térmica de la súper estructura está completamente dominada por la dispersión en las interfaces. Sin embargo, la tendencia observada confirma que a medida que aumenta el número de interfaces, aumenta la resistencia térmica de interface, pero la curva no sigue un comportamiento lineal con el número de interfaces como es de esperar si todas las interfaces contribuyen de forma similar a la dispersión de fonones y por lo tanto a la barrera térmica. En cambio, la curva se aproxima a un valor asintótico cuando el número de interfaces es grande [22]. En la Figura 2.7 muestra las curvas de cómo se comportaría una muestra con una interface, y como se satura la conductibilidad termina de la interface cuando se tiene n número de interfaces.

La resistencia total de la interface de un sistema multicapa está dado por:

 $R_{Ti} = nRi (y=mx+b)$ , sin embargo experimentalmente dicho comportamiento se ha demostrado en estudios previos que no es lineal, esto se ve en la figura 2.7b.







Figura. 2.7 a) Aumento en el número de interfaces b) muestra las curvas de cómo se comportaría una muestra con una interface, y como se satura la conductibilidad termina de la interface cuando se tiene n número de interfaces.

Además, en la súper estructura epitaxiales; los efectos en las interferencia de onda y formación de mini-band gap podría aparecer debido a la alta densidad en el número de interfaces. Como resultado de estos efectos podría tener lugar una importante reducción de la velocidad media del grupo que disminuiría la conductividad térmica de la súper estructura.



### Centro de Investigación en Materiales Avanzados, S.C.

#### Referencias

- [1] P. L. Kapitza. Journal of Physics, (USSR), 4, (1941), p. 181.
- [2] E. T. Swartz and R.O. Pohl. Appl. Phys. Lett., 51, pp. 2200-2202.
- [3] E. T. Swartz and R. O. Pohl. Rev. Mod. Phys. 61 (3), (1989), pp. 605-668.
- [4] J. A. Katerberg, C. L. Reynolds and A. C. Anderson. Phys. Rev. B. 16 (2), (1977), pp. 958-973.
- [5] M. Deans and J.C. Inkson. Semic. Sci. Tech. 4, (1989), pp. 138-145.
- [6] D. Kechrakos. J. Phys.: Condensed Matter. 3, (1991), pp. 1443-1452.
- [7] J. Chung-Ping and C. Ching-Chang. Proc. Heat Trans. 5, (1998), pp. 123-128.
- [8] Prasher, R.S. and P.E. Phelan. J. Heat Transf., 123, (2001), pp. 105-112.
- [9] R. J. Stevens, P. M. Norris and L. V. Zhigilei. Proceedings of IMECE04-ASME. (2004), pp. 1-10.
- [10] X. Zhang, P. Z. Cong and M. Fujii. Inter. Journal Thermophysics. 27 (3), (2006), pp. 880-895.
- [11] Little, W.A., 1959, Canadian Journal of Physics, 37, pp. 334-349.

[12] D.G. Cahill. Microscale Thermophysical Engineering, 1, (1997), pp. 85-109.

[13] G. Chen, Zeng, T., Borca-Tasciuc, and D. Song. Materials Science and Engineering A, 292, (2000), pp. 155 – 161.

- [14] R. J. Stoner and H. J. Maris. Phys. Rev. B, 48, (1993), pp. 16373-16387.
- [15] G. Chen. Phys. Rev. B. 57 (23), (1998), pp. 14958-14973.

[16] G. Chen. MEMS-ASME, 59, (1996), pp. 13-24.

[17] N. W. Ashcroft and D. N. Mermin. Solid State Physics, Saunders College Publishing, Fort Worth, 1976.

[18] H. T. Grahn. Semiconductor Superlattices, World Scientific, (1995), pp. 1-9.

[19] D. P. H. Hasselman, L. F. Johnson, L. D. Bentsen, R. Syed and H. L. Lee, Am. Ceram. Soc. 66 (5), (1987), pp. 799–806.

[20] D. R. Clarke, Materials Selection Guidelines for Low Thermal Conductivity Thermal Barrier Coatings Surface and Coatings Technology. 163, (2003), pp. 67-74.

[21] S. M. Lee and D. G. Cahill. J. Appl. Phys. 81(6), (1997), pp. 2590-2595.





[22] W. Zhang, T. S. Fisher and N. Mingo. J. Heat Transf. 129(4), (2007), pp. 483-491.

[23] D. G.Cahill, A. Bullen and S. M. Lee. High Temp.-High Press. 32, (2000), pp. 135-142.

[24] R. K. Sharma, S. K. Bansal, R. Nath, G. P. Srivastava, Thin Solid Films. 97 (1), (1982) and references therein.





## **CAPITULO 3.**

### PROCEDIMIENTO ESPERIMENTAL Y TECNICAS DE MEDICIÓN Y CARACTERIZACIÓN.





#### 3.1 MATERIALES UTILIZADOS Y SUS PROPIEDADES.

La conductividad térmica es una propiedad de los materiales que valora la capacidad de transmitir el calor a través de ellos. Es elevada en metales y en general en cuerpos continuos, es baja en polímeros, y muy baja en algunos materiales especiales como la fibra de vidrio, que se denominan por ello aislantes térmicos. Para que exista conducción térmica hace falta una sustancia, de ahí que es nula en el vacío ideal, y muy baja en ambientes donde se ha practicado un vacío bajo.

#### COBRE

El cobre (del latín cuprum, y éste del griego kypros), cuyo símbolo es Cu, es el elemento químico de número atómico 29. Se trata de un metal de transición de color cobrizo (rojizo) y brillo metálico que, junto con la plata y el oro, forma parte de la llamada familia del cobre, se caracteriza por ser uno de los mejores conductores de electricidad (el segundo después de la plata). Gracias a su alta conductividad eléctrica, ductilidad y maleabilidad, se ha convertido en el material más utilizado para fabricar cables eléctricos y otros componentes eléctricos y electrónicos.

#### ALUMINIO

El aluminio es un elemento químico, de símbolo Al y número atómico 13. Se trata de un metal no ferromagnético. Es el tercer elemento más común encontrado en la corteza terrestre. Los compuestos de aluminio forman el 8 % de la corteza de la tierra y se encuentran presentes en la mayoría de las rocas, de la vegetación y de los animales. En estado natural se encuentra en muchos silicatos (feldespatos, plagioclasas y micas). Como metal se extrae únicamente del mineral conocido con el nombre de bauxita, por transformación primero en alúmina mediante el proceso Bayer y a continuación en aluminio metálico mediante electrólisis. Este metal posee una combinación de propiedades que lo hacen muy útil en ingeniería de materiales, tales como su baja densidad (2700 kg/m<sup>3</sup>) y su alta resistencia a la corrosión. Mediante aleaciones adecuadas se puede aumentar sensiblemente su resistencia mecánica (hasta los 690 MPa). Es buen conductor de la electricidad y del calor, se mecaniza con facilidad y es muy barato. Por todo ello es desde mediados del siglo XX el metal que más se utiliza después del acero.





#### GRAFITO

El grafito es una de las formas alotrópicas en las que se puede presentar el carbono junto al diamante, los fulerenos, los nanotubos de carbón y el grafeno. A presión atmosférica y temperatura ambiente es más estable el grafito que el diamante, sin embargo, la descomposición del diamante es tan extremadamente lenta que sólo es apreciable a escala geológica. Al igual que el diamante, el grafito está constituido exclusivamente por átomos de carbono, pero con una estructura cristalina particular. Tanto el grafito como el diamante son formas alotrópicas del carbono, de entre las múltiples que son posibles. El grafito, como el diamante, es un mineral semimetálico. Se conocen procesos mediante los cuales el grafito puede convertirse en diamante mediante el uso de muy elevadas presiones y temperaturas, pero esos métodos son de un costo superior al valor de mercado de los diamantes que se obtendrían, por lo que el hecho apenas se ha aprovechado comercialmente excepto para fabricar microdiamantes empleados en herramientas especiales.

#### ALUMINA

La alúmina es el óxido de aluminio (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>). Junto con la sílice, es el componente más importante en la constitución de las arcillas y los esmaltes, confiriéndoles resistencia y aumentando su temperatura de maduración. La forma más común de óxido de aluminio cristalino se conoce como corindón, que constituye la forma termodinámicamente estable. Los aniones oxígeno prácticamente forman una estructura hexagonal compacta con cationes aluminio llenando dos tercios de los intersticios octaédricos. Cada centro de cationes Al<sub>3+</sub> es octaédrico. En términos de su cristalografía, el corindón adopta una red trigonal de Bravais con un grupo espacial de R<sub>-3c</sub> (número 167 en las Tablas Internacionales). La celda primitiva contiene dos unidades de la fórmula de óxido de aluminio.

#### TUNGSTENO

El wolframio o volframio, también conocido como wólfram o tungsteno, es un elemento químico de número atómico 74 que se encuentra en el grupo 6 de la tabla periódica de los elementos. Su símbolo es W. Es un metal escaso en la corteza terrestre, se encuentra en forma de óxido y de sales en ciertos minerales. Es de color gris acerado, muy duro y denso, tiene el punto de fusión más elevado de todos los metales y el punto de ebullición más alto de todos los elementos conocidos. Se usa en los filamentos de las lámparas incandescentes, en electrodos no consumibles de soldaduras, en resistencias eléctricas, y aleado con el acero, en la fabricación de aceros especiales. Su variedad de carburo de wolframio sinterizado se emplea para fabricar herramientas de corte. Esta





variedad absorbe más del 60 % de la demanda mundial de wolframio. El wolframio es un material estratégico y ha estado en la lista de productos más codiciados desde la Segunda Guerra Mundial. Por ejemplo, el gobierno de Estados Unidos mantiene unas reservas nacionales de seis meses junto a otros productos considerados de primera necesidad para su supervivencia. Este metal es fundamental para entender las sociedades modernas. Sin él no se podrían producir de una forma económica todas las máquinas que nos rodean y las cosas que se pueden producir con ellas.

# 3.2 PROPIEDADES ACUSTICAS DE LOS MATERIALES UTILIZADOS.

La **impedancia acústica (Z)** es una propiedad de estado intensiva. Es la resistencia que opone un medio a las ondas que se propagan sobre este y por lo tanto es equivalente a la impedancia eléctrica, es decir una forma de disipación de energía de las ondas que se desplazan en un medio. Se define como la razón entre la presión sonora (p) y la velocidad de las partículas (v) de un medio material.

$$\mathcal{Z} = \frac{\rho}{v}$$

La impedancia característica de un material puede calcularse como el producto entre la densidad ( $\rho$ ) y la velocidad del sonido (c) en el material.

$$Z = \rho \cdot c$$

La **velocidad del sonido** es la dinámica de propagación de las ondas sonoras. En la atmósfera terrestre es de 343,2 m/s (a 20 °C de temperatura, con 50 % de humedad y a nivel del mar). La velocidad del sonido varía en función del medio en el que se trasmite. Dado que la velocidad del sonido varía según el medio, se utiliza el número Mach 1 para indicarla. Así un cuerpo que se mueve en el aire a Mach 2 avanza a dos veces la velocidad del sonido en esas condiciones, independientemente de la presión del aire o su temperatura.

La velocidad o dinámica de propagación de la onda sonora depende de las características del medio en el que se realiza dicha propagación y no de las características de la onda o de la fuerza que la genera. Su propagación en un medio puede servir para estudiar algunas propiedades de dicho medio de transmisión.

Las características acústicas de los materiales seleccionados para estudio se reflejan en las tablas siguientes:





MATERIAL	VELOCIDAD DEL SONIDO	(P) DENSIDAD	(Z) IMPEDANCIA ACUSTICA
COBRE	3570m/s	8960Kg/m <sup>3</sup>	3.1987X10 <sup>7</sup>
ALUMINIO	6400m/s	2698.4 Kg/m <sup>3</sup>	1.7269x10 <sup>7</sup>
GRAFITO	2500 m/2	2230 Kg/m <sup>3</sup>	5.575x10 <sup>6</sup>
ALUMINA	9900m/s	3961 Kg/m <sup>3</sup>	3.9213x10 <sup>7</sup>
TUNGSTENO	5174m/s	19250 Kg/m <sup>3</sup>	9.96x10 <sup>7</sup>

Tabla 3.1 Impedancia acústica y desacople acústico.

Las dimensiones y combinaciones de los materiales seleccionados para estudio se pueden apreciar en la tabla siguiente:

COMBINACION ENTRE	DIAMETRO	ESPESOR	DESACOPLE
MATERIALES	/DIMENSIONES		ACUSTICO
GRAFITO	8mm.	4mm	
TUNGSTENO	5x4mm.	1mm	
ALUMINA	5x4mm.	2mm	
GRAFITO/ALUMINIO	8mm.	2mm/2mm	3.09
GRAFITO/COBRE	8mm.	2mm/2mm	5.73
ALUMINA/TUNGSTENO	5x4mm.	2mm/1mm	2.54
COBRE/TUNGSTENO	7x4mm	1mm	3.11

Tabla 3.2. Dimensiones del material utilizado.

#### 3.3 ELABORACIÓN Y OBTENCIÓN DE LAS MUESTRAS UTILIZADAS EN EL ANÁLISIS.

Dentro de la elaboración de las muestras sujetas a análisis se utilizaron diferentes procedimientos:

Para las cuales se utilizaron partículas de grafito del orden de las micras las cuales fueron comprimidas en un reactor, aplicando presión por medio de una prensa hidráulica, dicha presión vario desde 5 a 20 Ton. Además ubicando la matriz dentro de una resistencia de aro aportando calor hasta 380<sup>°</sup>c lo que permitió obtener pastillas de 2, 3,4mm de espesor y 8mm de diámetro, el acabado se dio en una pulidora de disco utilizando lijas del número 600 hasta el 1500, logrando una superficie plana y uniforme, dichas muestras se observan en la figuras 3.1. y 3.2.







Figura 3.1. Imágenes del dado y la prensa utilizados en el prensado en caliente.



Figura 3.2 Muestras de grafito

En la muestra de aluminio se maquinó una varilla de este material en torno mecánico hasta obtener una muestra de 8mm de diámetro y en seguida se recortó hasta obtener 1, 2 y 4 mm de espesor. El acabado metalográfico se realizó en una pulidora de disco utilizando lijas desde el número 600 hasta el 1500 hasta lograr una superficie plana y uniforme tipo acabado espejo, dichas muestras se observan en la figura 3.3.







Figura 3.3 Muestras de aluminio

Con la muestra de cobre se maquinó una varilla de este material en torno para obtener 8mm de espesor y recortamos para tener 1, 2 y 4 mm de espesor. El acabado metalográfico se realizó en una pulidora de disco utilizando lijas del número 600 hasta el 1500, hasta lograr una superficie plana y uniforme tipo acabado de espejo. dichas muestras se observan en la figura 3.4.



Figura 3.4 Muestras de cobre

Para las pruebas con tungsteno se utilizó placa recortada en rectángulo de 5mm de lado para las pruebas de rectificación térmica, el acabado se dio en una pulidora de disco utilizando lijas del número 600 hasta el 1500, logrando una superficie plana y uniforme, dichas muestras se observan en la figura 3.5.







Figura 3.5 Muestras de Tungsteno

También en la medición con alúmina utilizamos lámina recortada en rectángulo de 5mm de lado para las pruebas de rectificación térmica, el acabado se dio en una pulidora de disco utilizando lijas del número 600 hasta el 1500, logrando una superficie plana y uniforme, dichas muestras se observan en la figura 3.6.



Figura 3.6 Muestras de alúmina

Paralelamente se han realizado 3 muestras de grafito en las cuales se han depositado películas de 10, 20, 30 nm de óxido de silicio sobre su superficie. Esto con la finalidad de estudiar y analizar el efecto de la resistencia térmica de la interface generado por dicha nanolámina, y con ello descartar o proceder con el desarrollo de rectificadores térmicos basados en la resistencia termica interface o en la diferencia de impedancias acústicas entre los materiales que constituyen el





diodo. En la figura 3.2 se presentan las muestras de grafito con diferentes espesores y depósitos de óxido de silicio, dichas muestras se observan en la figura 3.7.



Figura 3.7 a) Muestra de grafito con película de óxido de silicio de 10 nm. b) Muestra de grafito con película de óxido de silicio de 20 nm.





#### **3.4 MEDICIÓN Y CARACTERIZACIÓN FACTOR DE RECTIFICACIÓN.**

Como se mencionó previamente la rectificación térmica es un fenómeno físico, donde la resistencia al flujo de calor depende de la dirección del flujo de energía térmica a través del sólido. De esta manera, a través de este efecto se podrían desarrollar diodos térmicos los cuales permitan el flujo de calor en forma asimétrica, tal como lo hacen los diodos eléctricos, con el flujo eléctrico. Por ejemplo, en el caso de una resistencia térmica (barrera térmica) la relación entre el flujo térmico aplicado y la diferencia de temperatura generada debido a dicho flujo en los extremos del material es una función lineal tal como se muestra en la figura 3.8a, también se observa que la pendiente de dicha función es constante lo que indica que independientemente de la dirección del flujo aplicado la resistencia térmica de dicho material es la misma. Por otra parte, en un dispositivo hipotético denominado diodo térmico la relación entre el flujo térmico apiadado y la diferencia de temperatura generada atreves del dispositivo no es una función lineal; lo cual significa que la pendiente de la función cambia dependiendo de la dirección del flujo de calor es aplicado, esto indica que el material presenta diferentes resistencia térmica dependiendo de la dirección en la que se aplica el calor. Dicho comportamiento se muestra en la figura 3.8b y a este fenómeno se le conoce como rectificación termica.



Figura 3.8 Curvas características para a) Resistencia termica y b) Diodo térmico

Por otra parte, como se mencionó en la primera sección de esta tesis, la idea es obtener curvas de corriente térmica en función de incrementos de temperatura (similarmente a las curvas I vs V utilizadas en caracterizaciones eléctricas de materiales). Para la obtención de dichas curvas se inyectaron diversos niveles de corriente eléctrica sobre el elemento calefactor resistivo y a partir del efecto Joule ( $Q = I^2 R$ ), se obtuvieron los diferentes niveles de corriente térmica aplicados a la muestra bajo prueba, cada uno de estos niveles de corriente térmica genera su correspondiente incremento de temperatura, a partir de aquí se grafican los datos





Q vs  $\Delta T$  y se observa si su comportamiento es lineal o no lineal. Un comportamiento lineal indicaría que el sistema se comporta como una barrera térmica convencional, por el contrario, un comportamiento no lineal indicaría que la muestra es un rectificador térmico.

A continuación la figura 3.9 muestra la configuración experimental para la medición de las curvas características de los diodos térmicos desarrollados en el presente trabajo de tesis.



Figura 3.9 Diodos térmicos a) polarización inversa b) polarización directa.

La figura 3.10 muestra una curva típica de  $Q vs \Delta T$  para un diodo térmico de prueba compuesto por silicio y dióxido de silicio, se observa claramente que para flujos de calor aplicados en diferente sentido el sistema se comporta en un caso de manera lineal mientras que muestra un ligero comportamiento no lineal cuando el flujo de calor se aplica de manera opuesta; la línea punteada recta sería el comportamiento esperado en caso de que el sistema no fuera un sistema rectificador del calor.



Figura 3.10 Graficas Q vs  $\Delta T$ , Para el diodo formado por Silicio monocristalino y SiO<sub>2</sub> amorfo.





#### Referencias

- [1] M. Terraneo, M. Peyrard and G. Casati. Physical Review Letters, 88(9), 094302 (2002).
- [2] Baowen Li, Lei Wang and G.Casati. Physical Review Letters, 93(18), 184301 (2004).
- [3] N. Yang, N. Li, L. Wang and Baowen Li. Physical Review B, 76(2). 020301(2007).
- [4] T. Ruokola, T. Ojalen and A. P. Jauho. Physical Review B, 79. 144306 (2009).
- [5] M. Peyrard. Europhysics Letters, 5, pp 1-15 (2006).
- [6] N. Yang, G. Zhang and Baowen Li. Applied Physics Letters, 93. 243111 (2008).
- [7] D. Segal and A. Nitzan. Physical Review Letters, 94(3), 094301 (2005).
- [8] B. Hu, L. Yang and Y. Zhang. Physical Review Letters, 97(12), 124302 (2006).
- [9] G. Wu and Baowen Li. Physical Review B, 76(8). 085424 (2007).
- [10] Baowen Li, J. Lan and L. Wang. Physical Review Letters, 95(10), 104302 (2005).
- [11] J. Hu, X. Ruan and Y. P. Chen. Nano-Letters, 9(7), 2730 (2009).
- [12] C. Dames. Journal of Heat Transfer, Vol. 131 (2009).
- [13] W. Kobayashi, Y. Teraoka, and I. Tersaki. Journal of ELECTRONIC MATERIALS, Vol. 39, No. 9 (2010).
- [14] D. Sawaki, W. Kobayashi, Y. Moritomo, and I. Terasaki. APPLIED PHYSICS LETTERS 98, (2011).
- [15] H. Hayashi, Y. Ito and K. Takahashi. Journal of Mechanical Science and Technology 25 (1) (2011).
- [16] M. Schmotz, J. Maier, E. Scheer and P. Leidererrer. New Journal of Physics 13(8pp), 113027 (2011).
- [17] A. Balandin. Journal of Nanoscience and Nanotechnology, 5. 1015 (2005).
- [18] L. Wang and Baowen Li. Physics World, 27 (2008).
- [19] C. Starr. Physics, 7. pp. 15 (1936).
- [20] T. Tong and A. Majumdar. Review of Scientific Instruments, 77(10), 104902 (2006).
- [21] T. Y. Choi, D. Poulikakos, and Urs Sennhauser. Nano-Letters, 6(8), 1589 (2006).
- [22] C. W. Chang, D. Okawa, A. Majumdar and A. Zettl. Science, 314(17), 1121(2006).
- [23] R. Scheibner. [ArXiv: cond-mat/0703514v1] (2008)





# **CAPITULO 4**

### **RESULTADOS Y DISCUSIÓN**





En esta sección, se mencionan y discuten los resultados obtenidos durante el desarrollo de este trabajo de investigación. Tales resultados se presentan de acuerdo a las muestras descritas en la sección previa.

## 4.1 Efecto de la resistencia térmica de interface en el sistema grafito/ SiO<sub>2</sub>/grafito

Como se mencionó previamente, uno de los primeros experimento consistió en identificar el efecto de la resistencia térmica interface con la finalidad de observar su efecto sobre la conductividad térmica efectiva y su posible ´potencial para el desarrollo de rectificadores térmica basada en esta estrategia. En la figura 4.1 se muestra un esquema de los sistemas desarrollados para identificar el efecto de la resistencia térmica interface. La figura 4.1a muestra un trozo de grafito con una película nanometrica de SiO<sub>2</sub>, la finalidad es obtener un sistema como se muestra en la figura 4.1b, en dicho sistema una película de 10 a 30 nm es colocada entre dos barras de grafito.



Figura 4.1 Muestras de grafito a) con película nanometrica de  $SiO_2$  b) película de  $SiO_2$  entre dos barras de grafito.







Figura.4.2 Curvas de transferencia de calor en muestra de grafito/  $SiO_2$ /grafito, a) grafito con diferentes espesores de nanoláminas de  $SiO_2$ , y b) amplificación de las curvas donde se observa el pequeño efecto de las nanoláminas de  $SiO_2$ 

En la figura 4.2a se muestra las curvas de trasferencia de calor para el sistema grafito/ SiO<sub>2</sub>/grafito con películas de 10, 20 y 30 nm depositadas por la técnica de erosión catódica, donde aparentemente no existe algún efecto sobre la resistencia termica de dicho sistema. Sin embargo al observar en la figura 4.2b la cual muestra una magnificación de una zona específica de dichas curvas, evidentemente el efecto causado por dichas nanoláminas es insignificante de aquí que el uso de una nanopelícula depositada entre dos barras de materiales de dimensiones macroscópicas generaría un factor de rectificación también insignificante. Esto se puede observar en la siguiente ecuación, donde a partir de la cual se calcula la conductibilidad termica efectiva del sistema aquí analizado. Si se observa dicha ecuación se puede deducir que para un calor de espesor t del orden de los nanómetros ese término se hace cero y por lo tanto la  $k_{eff} = k_{capas}$  de aquí que el efecto de una película nanometrica depositado entre dos barras de material entre dos barras de material de dimensiones nanométricas sea casi nulo, tal como se muestra en la figura 4.2b.

$$k_{eff} = \frac{k_{capas}}{1 + k_{capas}} \frac{R}{t}$$
(1)

Donde

$$k_{capas} = \frac{2k_1k_2}{k_1 + k_2}$$
(2)



Y  $k_1$ ,  $k_2$  representen la conductividad termica de cada una de las barras de material, en este caso ambas son iguales ya que son barras de grafito.

Por lo tanto en base a estos resultados se ha optado por desarrollar rectificadores térmicos basados en el efecto de desacople acústico entre las barras de materiales en lugar de utilizar el efecto de resistencia termica de interface. A continuación se muestran los resultados obtenidos para los diodos térmicos basados en desacople acústico.

### 4.2 Rectificadores térmicos basados en el efecto de desacople acústico

En base a descrito en el capítulo 2 sección 2.2.1 es posible desarrollar rectificadores térmicos en base a las diferencias en propiedades acuáticas entre dos materiales. Específicamente, la impedancia acústica de un material se define como ya capacidad de dicho material para transferir vibraciones de sonido, de aquí que cada material tendrá en mayor o menor medida dicha capacidad. Tal propiedad se caracteriza por depender de la densidad del material y la velocidad del sonido, por lo tanto implícitamente el material se trata como un medio continuo.

De manera que si se toman dos barras de materiales diferentes y se ponen en contacto atreves de una de sus caras entre si se formara un sistema con dos impedancias acústicas diferentes, esto dependiendo de la barra respectivamente.

Material A $Z_1 = \rho_1 V_1$	Material B $Z_2 = \rho_2 V_2$

Figura 4.3 sistema compuesto por dos barras de materiales con propiedades acústicas diferentes.

Si se aplica un flujo de calor al sistema esquematizado en la figura 4.3 en dirección del material A material B, y suponiendo que la impedancia acústica del material A es mayor que la del material B ( $Z_1 > Z_2$ ) entonces las vibraciones térmicas se transferirán más libremente en el material A que en el material B de aquí que la probabilidad efectiva  $P_{A\to B}$  dependerá de la probabilidad de que se transfieran en el material A  $P_A$ por la probabilidad de que no se transfieran en el material B  $\overline{P}_B$ , matemáticamente esto sería

$$P_{A\to} = P_A \bar{P}_B \tag{3}$$





Por el contrario, ahora si el flujo de calor se aplica del material B al material A la probabilidad efectiva de trasferencia de las vibraciones térmicas seria el producto de la probabilidad de trasferencia del material B por la probabilidad de que no se trasfiera por el materia A, esto seria

$$P_{B\to A} = \bar{}_{B} \bar{P}_{A} \tag{4}$$

Por lo tanto si se compara la ecuación 2 con la ecuación 3 se puede comprobar fácilmente que las probabilidades de que transfieran las vibraciones térmicas en ambos sentidos son diferentes esto es  $P_{A\to B} \neq P_{B\to A}$ , de modo que esto da la posibilidad de desarrollar diodos térmicos basados en el desacople acústico entre dos materiales.

En seguida se presentan los resultados experimentales para cuatro diodos térmicos basados en desacople acústico

#### 4.2.1 Diodo térmico basado en sistema Cu/W

En la figura 4.4 se muestra la estructura del diodo térmico basado en Cu/W asi mismo se especifican las impedancias acústicas correspondientes las cuales muestran un desacople acústico de alrededor de 3.11.



Figura 4.4 Diodo térmico basado en Cu/W, al aplicar el flujo de calor Q en estado estable se generan un diferencial de temperatura  $\Delta T = T_2 - T_1$  y una temperatura de interface Ti.

En la figura 4.5 se muestra las curvas de transferencia  $Q vs \Delta T$  para el diodo térmico basado en Cu/W, se puede observar claramente un comportamiento no lineal en dichos datos experimentales; lo cual es indicativo de un sistema rectificador de calor. Además se puede observar que tal comportamiento no lineal es debido a la ligera desviación de los datos respecto a una línea recta la cual representa el comportamiento lineal debido puramente a una resistencia termica,





de modo que el presente sistema presente un factor de rectificación ligeramente por arriba de la unidad.



Figura 4.5 Curva de trasferencia para el diodo térmico basado en Cu/W.

En la figura 4.6 se muestra el factor de rectificación en función del diferencial de temperatura atreves del diodo térmico basado en Cu/W. se puede observar que a pesar de su bajo factor de rectificación aun así el sistema se comporta como un rectificador térmico. Además, se puede ver que la rectificación empieza a partir de un diferencial de temperatura  $\Delta T \approx 25$ K, y a medida que se incrementa este diferencial de temperatura también lo hace el factor de rectificación. En este sistema en específico se obtuvo un máximo de rectificación termica de 1.05 para un diferencial de temperatura  $\Delta T \approx 75$ K.

Para mayor claridad la figura 4.7 muestra el factor de rectificación termica en función de la temperatura de interface para un diodo térmico basado en Cu/W. evidentemente en esta figura 4.7 queda más claro que el sistema empieza a rectificar cuando la temperatura de interface es superior a los 320 K. La temperatura de interface es la temperatura a la que están las superficies en contacto en ambos materiales, en este caso  $T_i \approx 320$  K para que comience la rectificación.







Figura 4.6 Rectificación térmica en función del diferencial de temperatura para un diodo térmico basado en Cu/W.



Figura 4.7 Rectificación térmica en función de la temperatura de interface para un diodo térmico basado en Cu/W.





#### 4.2.2 Diodo térmico basado en sistema Grafito/Al

En la figura 4.8 se muestra la estructura del diodo térmico basado en Grafito/Al así mismo se especifican las impedancias acústicas correspondientes las cuales muestran un desacople acústico de alrededor de 3.09.



Figura 4.8 Diodo térmico basado en Grafito/AI , al aplicar el flujo de calor Q en estado estable se generan un diferencial de temperatura  $\Delta T = T_2 - T_1$  y una temperatura de interface Ti.

En la figura 4.9 se muestra las curvas de transferencia  $Q vs \Delta T$  para el diodo térmico basado en Grafito/Al, se puede observar claramente un comportamiento no lineal en dichos datos experimentales; lo cual es indicativo de un sistema rectificador de calor. Además se puede observar que tal comportamiento no lineal es debido a la ligera desviación de los datos respecto a una línea recta la cual representa el comportamiento lineal debido puramente a una resistencia termica, de modo que el presente sistema presente un factor de rectificación ligeramente por arriba de la unidad.







Figura 4.9 Curva de trasferencia para el diodo térmico basado en Grafito/Al.

En la figura 4.10 se muestra el factor de rectificación en función del diferencial de temperatura atreves del diodo térmico basado en Grafito/Al. Se puede observar que a pesar de su bajo factor de rectificación aun así el sistema se comporta como un rectificador térmico. Además, se puede ver que la rectificación empieza a partir de un diferencial de temperatura  $\Delta T \approx 18$ K, y a medida que se incrementa este diferencial de temperatura también lo hace el factor de rectificación. En este sistema en específico se obtuvo un máximo de rectificación termica de 1.25 para un diferencial de temperatura  $\Delta T \approx 90$ K.

Para mayor claridad la figura 4.11 muestra el factor de rectificación termica en función de la temperatura de interface para un diodo térmico basado en Grafito/Al. Evidentemente en esta figura 4.11 queda más claro que el sistema empieza a rectificar cuando la temperatura de interface es superior a los 420 K. La temperatura de interface es la temperatura a la que están las superficies en contacto en ambos materiales, en este caso  $T_i \approx 420$  K para que comience la rectificación.







Figura 4.10 Rectificación térmica en función del diferencial de temperatura para un diodo térmico basado en Grafito/Al.



Figura 4.11 Rectificación térmica en función de la temperatura de interface para un diodo térmico basado en Grafito/Al.





#### 4.2.3 Diodo térmico basado en sistema Grafito/Cu

En la figura 4.12 se muestra la estructura del diodo térmico basado en Grafito/Cu así mismo se especifican las impedancias acústicas correspondientes las cuales muestran un desacople acústico de alrededor de 3.14.



Figura 4.12 Diodo térmico basado en Grafito/Cu, al aplicar el flujo de calor Q en estado estable se generan un diferencial de temperatura  $\Delta T = T_2 - T_1$  y una temperatura de interface Ti.

En la figura 4.13 se muestra las curvas de transferencia  $Q vs \Delta T$  para el diodo térmico basado en Grafito/Cu, se puede observar claramente un comportamiento no lineal en dichos datos experimentales; lo cual es indicativo de un sistema rectificador de calor. Además se puede observar que tal comportamiento no lineal es debido a la ligera desviación de los datos respecto a una línea recta la cual representa el comportamiento lineal debido puramente a una resistencia termica, de modo que el presente sistema presente un factor de rectificación ligeramente por arriba de la unidad.







Figura 4.13 Curva de trasferencia para el diodo térmico basado en Grafito/Cu.

En la figura 4.14 se muestra el factor de rectificación en función del diferencial de temperatura atreves del diodo térmico basado en Grafito/Cu. Se puede observar que a pesar de su bajo factor de rectificación aun así el sistema se comporta como un rectificador térmico. Además, se puede ver que la rectificación empieza a partir de un diferencial de temperatura  $\Delta T \approx 20$ K, y a medida que se incrementa este diferencial de temperatura también lo hace el factor de rectificación. En este sistema en específico se obtuvo un máximo de rectificación termica de 1.5 para un diferencial de temperatura  $\Delta T \approx 125$  K.

Para mayor claridad la figura 4.15 muestra el factor de rectificación termica en función de la temperatura de interface para un diodo térmico basado en Grafito/Cu. Evidentemente en esta figura 4.15 queda más claro que el sistema empieza a rectificar cuando la temperatura de interface es superior a los 310 K. La temperatura de interface es la temperatura a la que están las superficies en contacto en ambos materiales, en este caso  $T_i \approx 310 \text{ K}$  para que comience la rectificación.







Figura 4.14 Rectificación térmica en función del diferencial de temperatura para un diodo térmico basado en Grafito/Cu.



Figura 4.15 Rectificación térmica en función de la temperatura de interface para un diodo térmico basado en Grafito/Cu.





#### 4.2.4 Diodo térmico basado en sistema AlO<sub>2</sub>/W.

En la figura 4.16 se muestra la estructura del diodo térmico basado en Grafito/Cu así mismo se especifican las impedancias acústicas correspondientes las cuales muestran un desacople acústico de alrededor de 3.18.



Figura 4.16 Diodo térmico basado en Alúmina/W, al aplicar el flujo de calor Q en estado estable se generan un diferencial de temperatura  $\Delta T = T_2 - T_1$  y una temperatura de interface Ti.

En la figura 4.17 se muestra las curvas de transferencia  $Q vs \Delta T$  para el diodo térmico basado en Alúmina/W, se puede observar claramente un comportamiento no lineal en dichos datos experimentales; lo cual es indicativo de un sistema rectificador de calor. Además se puede observar que tal comportamiento no lineal es debido a la ligera desviación de los datos respecto a una línea recta la cual representa el comportamiento lineal debido puramente a una resistencia termica, de modo que el presente sistema presente un factor de rectificación ligeramente por arriba de la unidad.







Figura 4.17 Curva de trasferencia para el diodo térmico basado en Alúmina/W.

En la figura 4.18 se muestra el factor de rectificación en función del diferencial de temperatura atreves del diodo térmico basado en Alúmina/W. Se puede observar que a pesar de su bajo factor de rectificación aun así el sistema se comporta como un rectificador térmico. Además, se puede ver que la rectificación empieza a partir de un diferencial de temperatura  $\Delta T \approx 32$ K, y a medida que se incrementa este diferencial de temperatura también lo hace el factor de rectificación. En este sistema en específico se obtuvo un máximo de rectificación termica de 1.3 para un diferencial de temperatura  $\Delta T \approx 110$  K.

Para mayor claridad la figura 4.19 muestra el factor de rectificación termica en función de la temperatura de interface para un diodo térmico basado en Alúmina/W. Evidentemente en esta figura 4.19 queda más claro que el sistema empieza a rectificar cuando la temperatura de interface es superior a los 310 K. La temperatura de interface es la temperatura a la que están las superficies en contacto en ambos materiales, en este caso  $T_i \approx 310 \text{ K}$  para que comience la rectificación.







Figura 4.18 Rectificación térmica en función del diferencial de temperatura para un diodo térmico basado en Alúmina/W.



Figura 4.19 Rectificación térmica en función de la temperatura de interface para un diodo térmico basado en Alúmina/W.





Con el objetivo de comparar el desempeño de los 4 diodos térmicos aquí propuestos, la figura 4.20 muestra los factores de rectificación en función del diferencial de temperatura para dichos sistemas. Debido a la diferencia entre resistencias térmicas de los 4 diodos térmicos obviamente para un mismo diferencial de temperatura  $\Delta T$  se generaran diferentes factores de rectificación. Por ejemplo si comparamos el máximo factor de rectificación obtenido para el diodo Cu/W el cual es 1.05, para un  $\Delta T \approx 80$  K ; entonces para este mismo  $\Delta T \approx 80$  K el máximo factor de rectificación alcanzado para el diodo Alúmina/W seria 1.25. Evidentemente, si todos los diodos pudieran someterse al  $\Delta T$  máximo de 140 K seguramente el resultado sería ligeramente diferente.





Para mejor claridad y comprensión de los resultados en la tabla 4.1 se muestra un resumen de los diferentes efectos los cuales pudieron haber jugado un papel importante en el desempeño de los diodos térmicos. En dicha tabla se han ordenado los diodos térmicos de menor a mayor de acuerdo a su factor de rectificación alcanzado a un  $\Delta T \approx 80$  K. Claramente si comparamos propiedades entre ambos materiales como son la relación de impedancia acústica Z  $_1/Z_2$ , la relación de conductividad térmica  $K_1/K_2$ , y la relación de conductividad eléctrica  $k_1/k_2$  se observa que no hay una lógica directa a seguir para poder explicar por qué el factor de rectificación si aumenta de manera progresiva; la razón más posible es que en los diferentes diodos propuestos son constituidos por materiales conductores tanto eléctrica como térmicamente. De aquí que en dichos diodos la trasferencia de calor este determinada en algunos casos





mayoritariamente por electrones como en el caso del diodo basado en Cu/W, y en otros casos la trasferencia de calor este definida mayoritariamente por fonones, como en el caso de diodo basado en Alúmina/W. Por lo tanto, para el diodo Cu/W su valor es de 1.05 y para el diodo alúmina/W su valor es de 1.18 de modo que tal parece que la arquitectura de un diodo metal/metal genera factores de rectificación menores que la arquitectura dieléctrico/metal. Sin embargo, esta arquitectura parece ir un poco más allá ya que para sistemas semiconductor/ Metal los factores de rectificación son intermedios a los de las arquitecturas metal/metal y metal/dieléctrico tal como se puede observar en la misma tabla.

Una posible explicación para dicho comportamiento se puede explorar atreves de numero de Wiedemann-Franz, esta intuición se debe a que el número de Wiedemann-Franz es un parámetro que relaciona la conductividad eléctrica y termica de un material, de manera que como nuestros sistemas están conformado por materiales los cuales en algunos casos predominan los fonones y en otro los electrones resulta un tanto común en comparar un parámetro que englobe dichas propiedades. El número de Wiedemann-Franz está definido como.

$$\frac{k}{\sigma}T = 2.44 \ x \ 10^{-8} \ W\Omega K^{-2}T$$

De modo que al calcular la relación entre las constantes de Wiedemann-Franz para los materiales que constituyen cada diodo en específico se puede observar claramente en la columna correspondiente a la tabla 4.1 que a medida que incrementa esta relación se incrementa el factor de rectificación. Por lo tanto, la inferencia previamente establecida se cumple perfectamente, es decir a medida que disminuye el carácter eléctrico de uno de los materiales formado el diodo se incrementan el factor de rectificación.

Diodo	Relación de	Relación de	Relación de	Relación de	Factor de
Térmico	Impedancia	Conductividad	Conductividad	Wiedemann-Franz	Rectificación
	Acústica	Térmica	Eléctrica	$(k_1 / \sigma_1) / (k_2 / \sigma_2)$	( <b>ДТ= 80</b> К)
	Z <sub>1</sub> /Z <sub>2</sub>	K <sub>1</sub> /K <sub>2</sub>	$\sigma_1/\sigma_2$		
Cu/W	3.11	3.27	3.27	1.257	1.05
Grafito/Al	3.09	125.99	126	298.77	1.13
Grafito/Cu	5.73	198.66	198.66	325.83	1.14
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /W	2.54	33.3	1.33x10 <sup>-13</sup>	7.7x10 <sup>5</sup>	1.18

Tabla 4.1 Diodos y sus factores de rectificación con las principales relaciones que englobas la trasferencia de calor por electrones y fonones





#### 4.3 CONCLUSIONES.

A continuación se presentan las conclusiones más importantes obtenidas a partir del presente trabajo de tesis.

Evidentemente a partir de los resultados obtenidos se puede concluir a primera instancia que en diodos rectificadores térmicos a dimensiones macroescala la integración de una nanoláminas de material dieléctrico entre dos barras de material no genera una resistencia termica lo suficientemente grande como para inducir efectos de rectificación termica significativos o apreciables.

Por otra parte, en relación a los diodos térmicos basados en el efecto de desacople acústico se puede concluir que aunque el desacople acústico juega un papel primordial, el papel crucial para su desempeño queda definido por el desacople entre las constante de Wiedemann-Franz. De aquí se puede particularizar en el sentido que a medida que uno de los materiales disminuye su conductibilidad eléctrica se verá incrementado su factor de rectificación. Por lo tanto sistemas metal/metal tendrán menor factor de rectificación que los sistemas semiconductor/metal y aun menor factor de rectificación que los sistemas dieléctrico/metal.

Así que de manera general se puede concluir que en el presente trabajo se han identificado las variables y parámetros a nivel ingenieril con la finalidad de desarrollar y diseñar rectificadores térmicos con desempeño mejorado.

