

ФІЗИЧНІ, ХІМІЧНІ ТА ІНШІ ЯВИЩА, НА ОСНОВІ ЯКИХ МОЖУТЬ БУТИ СТВОРЕНІ СЕНСОРИ

PHYSICAL, CHEMICAL AND OTHER PHENOMENA, AS THE BASES OF SENSORS

PACS numbers: 63.22.-m, 65.80.-g, 72.15.Jf, 72.20.Pa, 73.50.Lw, 74.25.fg, 84.60.Rb, 85.80.Fi

ТРАНСПОРТ ТЕПЛА ФОНОНАМИ В УЗАГАЛЬНЕНІЙ МОДЕЛІ ЛАНДАУЕРА – ДАГТА – ЛУНДСТРОМА

*Ю. О. Кругляк, М. В. Стріха**

Одеський державний екологічний університет,
факультет комп'ютерних наук
вул. Львівська, 15, Одеса, Україна

тел. (067) 725 2209, E-mail: quantumnet@yandex.ua

* Київський національний університет ім. Т. Шевченка,
факультет радіофізики, електроніки і комп'ютерних систем,
пр. Глушкова, 4г, Київ, Україна, тел. (044) 526 0532;

Інститут фізики напівпровідників ім. В. Є. Лашкарьова НАН України, пр. Науки, 41, Київ,
Україна, тел. (044) 525 6033,

E-mail: maksym_strikha@hotmail.com

ТРАНСПОРТ ТЕПЛА ФОНОНАМИ В УЗАГАЛЬНЕНІЙ МОДЕЛІ ЛАНДАУЕРА – ДАГТА – ЛУНДСТРОМА

Ю. О. Кругляк, М. В. Стріха

Анотація. У методичній статті, розрахованій на науковців, викладачів та студентів вищої школи, з позицій транспортної моделі Ландауера – Дагта – Лундстрома побудовано узагальнену модель переносу тепла фононами. Аналогічно до фермівського вікна електронної провідності введено поняття бозевського вікна фононної провідності, через яке виведено загальний вираз для ґраткової теплопровідності, до якого від самого початку входить квант теплопровідності. Підкреслено подібність і відмінності в побудові теорії електронної провідності і теорії фононної теплопровідності. Докладно розглянуто теплопровідність провідників, розкрито фізичний зміст пропорційності між питомою теплопровідністю і питомою теплоємністю при постійному об'ємі, виведено зв'язок між коефіцієнтом проходження і середньою довжиною вільного пробігу,

наведено алгоритм обчислення числа фононних мод і густини фононних станів, обговорено особливості дебаївської моделі теплопровідності і розсіювання фононів, температурну залежність ґраткової теплопровідності, відмінність між ґратковою теплопровідністю і електронною провідністю, квантування теплопровідності.

Ключові слова: фононний транспорт, квант теплопровідності, коефіцієнт проходження, фононні моди, дебаївська модель, розсіювання фононів

TRANSPORT OF HEAT BY PHONONS IN GENERALIZED LANDAUER – DATTA – LUNDSTROM MODEL

Yu. A. Kruglyak, M. V. Strikha

Abstract. On the basis of Landauer – Datta – Lundstrom transport model the generalized model of heat transfer by phonons is formulated in a tutorial article for the reseachers, university teachers and students. Similarly to the Fermi window for electron conductivity the concept of the Bose window for phonon conductivity is introduced and used to obtain the general expression for the lattice thermal conductivity with the quantum of thermoconductance appearing at the very beginning. The similarity and difference in the construction of the theory of electron conductivity and the theory of heat conduction is outlined. The thermal conductivity of the conductors, the physical sense of proportionality between the thermal conductivity and specific heat capacity at constant volume, the relationship between the transmission coefficient and the mean-free-path, the calculation of the number of phonon modes and density of phonon states, the Debye model of heat conductivity and scattering of phonons, the temperature dependence of the lattice thermal conductivity, the difference between the lattice thermal conductivity and electron conduction, and quantization of thermal conductivity are discussed.

Keywords: phonon transport, quantum of thermoconductance, transmission coefficients, phonon modes, Debye model, phonon scattering

ТРАНСПОРТ ТЕПЛА ФОНОНАМИ В ОБОБЩЕННОЙ МОДЕЛИ ЛАНДАУЭРА – ДАТТА – ЛУНДСТРОМА

Ю. А. Кругляк, М. В. Стриха

Аннотация. В методической статье, рассчитанной на исследователей, преподавателей и студентов высшей школы, с позиций транспортной модели Ландауэра – Датты – Лундстрома построена обобщенная модель переноса тепла фононами. Аналогично фермиевскому окну электронной проводимости вводится понятие бозевского окна фононной проводимости, и через него выводится общее выражение для решеточной теплопроводности, в котором с самого начала фигурирует квант теплопроводности. Подчеркиваются подобие и различия в построении теории электронной проводимости и теории теплопроводности. Подробно рассматривается теплопроводность проводников, вскрывается физический смысл пропорциональности между удельной теплопроводностью и удельной теплоемкостью при постоянном объеме, выводится связь между коэффициентом прохождения и средней длиной свободного пробега, обсуждаются вычисление числа фононных мод и плотности фононных состояний, особенности дебаевской модели теплопроводности и рассеяния фононов, температурная зависимость решеточной теплопроводности, различие между решеточной теплопроводностью и электронной проводимостью и квантование теплопроводности.

Ключевые слова: фононный транспорт, квант теплопроводности, коэффициент прохождения, фононные моды, дебаевская модель, рассеяние фононов

1. Вступ. У серії навчально-оглядових статей, які друкувалися в журналі «Сенсорна електроніка і мікросистемні технології», починаючи з № 4 за 2012 рік, автори у рамках концепції «знизу – вгору» сучасної наноелектроніки розглядали фізичні основи виникнення струму в наносистемах (№ 4, 2012), термоелектричні явища (№1, 2013), основи спінтроники (№ 2, 2013) та застосування методу нерівноважної функції Гріна (НРФГ) до транспортних задач (№№ 3, 4, 2013), класичний та квантовий ефекти Холла (№1, 2014), спіновий ефект Холла (№ 2, 2014), роль квантової інтерференції та дефазування (№ 3, 2014), роль електростатики і контактів (№ 4, 2014), рівноважну термодинаміку провідника зі струмом (№ 2, 2015).

Продовжуючи знайомити вітчизняних викладачів, аспірантів і студентів, які читають курси або навчаються на різних спеціалізаціях фізичного й інженерного профілю, із сучасною концепцією викладання фізики наносистем, автором якої є проф. Супрійо Датта (Supriyo Datta) [1], до певної міри альтернативною традиційній, що відштовхується від розгляду аналогічних явищ у великих об'ємних провідниках, ми розглянули в [2-4] модель Ландауера – Датта – Лундстрома (ЛДЛ), яка вже знайшла широке застосування при аналізі як електронного, так і фононного транспорту не тільки в режимі лінійного відгуку, але й у високовольтному режимі гарячих електронів, для нелокального і квантового транспорту, транспорту в невпорядкованих і наноструктурованих матеріалах, у резисторах як нанорозмірних, так і довгих чи об'ємних.

При цьому розгляд у [2] здійснювався для випадку, коли температура контактів резистора однакова. У [3] натомість ми розглянули термоелектричні (ТЕ) ефекти Зеебека і Пельт'є в моделі ЛДЛ, а також якісно обговорили закон Відемана – Франца й основні рівняння термоелектрики з відповідними транспортними коефіцієнтами. У статті [4] ми отримали доведення для результатів, постульованих у [3], причому зробили це для 1D, 2D и 3D провідників з довільним законом дисперсії і будь-яким режимом провідності: балістичним, дифузійним, або ж перехідним.

У цій статті ми перейдемо від електронного транспорту тепла до фононного, який виявляється у напівпровідниках і діелектриках. Справді, в металах майже все тепло переноситься електронами. Натомість у напівпровідниках тільки мала частина тепла переноситься електронами, переважає фононний транспорт тепла. А в діелектриках цей фононний транспорт цілком домінує.

Потік тепла, викликаний транспортом фононів уздовж осі x , описується виразом

$$J_{Qx}^{ph} = -\kappa_L \frac{dT}{dx}, \text{ [Вт/м}^2\text{]} \quad (1)$$

де коефіцієнтом пропорційності потоку тепла до градієнта температури є питома ґраткова теплопровідність κ_L . У алмаза, одного з найкращих провідників тепла, $\kappa_L \approx 2000$ Вт/м·К, а в такого поганого провідника тепла, як скло, $\kappa_L \approx 1$ Вт/м·К (для порівняння, в повітря, яке є не твердим тілом, а газом, $\kappa_L \approx 0.025$ Вт/м·К). Важливо зазначити: якщо електрична провідність твердих матеріалів змінюється на понад 20 порядків, то їхня ґраткова теплопровідність змінюється усього на 3 – 4 порядки. Тим не менше, в описі переносу тепла електронами й фононами в рамках транспортної моделі ЛДЛ [1 – 4] є багато спільного.

Далі наведемо найнеобхідніші відомості про фонони, фізику яких докладно викладено в таких відомих підручниках, як [5 – 8]. Характерний вигляд закону дисперсії $E(k)$ для електронів якісно зображено на рис. 1, а закону дисперсії $\hbar\omega(q)$ для фононів – на рис. 2. Зазначмо, що і під k , і під q ми розуміємо ту ж саму величину – квазіхвильовий вектор, але позначаємо її по-різному, щоб розрізнити випадки електронів і фононів.

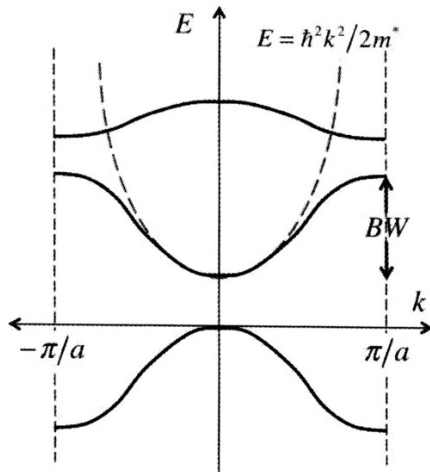


Рис. 1. Спрощена характерна зонна структура для так званого «прямозонного» напівпровідника, де мінімум зони провідності і вершина валентної зони розташовані в центрі зони Бріллюена. Ширина зони провідності позначена як BW/Band Width. Часто використовувана параболічна апроксимація закону дисперсії зображена пунктиром. a – стала кристалічної ґратки напівпровідника.

Кристалічна ґратка періодична в реальному просторі, а дисперсія – в k -просторі квазіхвильових векторів. Дисперсія для фононів так само періодична в цьому просторі з вимірністю обернених довжин. В обох випадках розв'язки реалізуються в зоні Бріллюена й ширини обох зон (смуг дозволених значень енергій для електронів і фононів) скінченні.

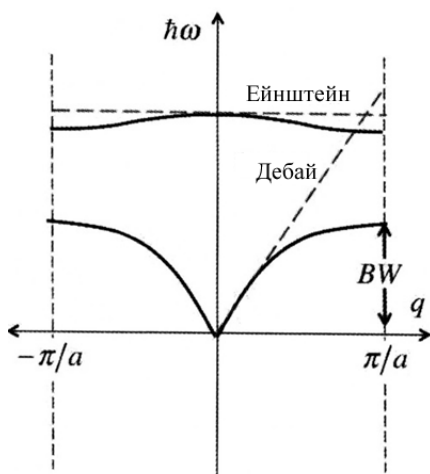


Рис. 2. Спрощений вигляд закону дисперсії для фононів. Пунктиром зображені найпростіші моделі Ейнштейна і Дебая.

Докладніше хід дисперсії для фононів зображено на рис. 3. Для кристалічних 3D провідників для коливань, що розповсюджуються в ґратці, можливі три стани поляризації: один поздовжній, у напрямку розповсюдження коливань (longitudinal/L), і два поперечні (transverse/T). В області малих енергій фононні моди називають акустичними/A, оскільки їм відповідає розповсюдження звичайної звукової хвилі в твердому тілі. В області малих квазіхвильових векторів ($q \rightarrow 0$) дисперсія акустичних мод лінійна. Для поздовжньої акустичної моди LA

$$\omega(q) = v_s q, \quad (2a)$$

де швидкість звуку

$$v_s = \sqrt{k_{elas} / m_{eff}}, \quad (2б)$$

визначається сталою пружності k_{elas} й ефективною масою атома, який здійснює коливання,

m_{eff} . Характерна швидкість звуку в твердому тілі порядку 5×10^3 м/с, що на два порядки менше від швидкості електронів. З виразів (2) випливає, що в речовинах з важкими атомами швидкість звуку і ширина фононної зони дисперсії BW (див. рис. 2) менші, порівняно з речовинами з легких атомів.

У речовинах, де на одну елементарну комірку припадає два атоми (це, наприклад, такі поширені напівпровідники, як Si, Ge, GaAs, InSb, а також графен), поруч з трьома модами акустичних коливань можуть реалізуватися також три оптичні моди (рис. 3). Фізично вони відповідають взаємним коливанням атомів у елементарній комірниці один щодо одного. Отже, різниця між акустичними й оптичними модами полягає в тому, що в області малих $q \approx 0$ сусідні атоми зміщуються в одному й тому ж напрямку для акустичних мод і в протилежних напрямках для оптичних мод. Термін «оптичні» в цьому випадку не має фізичного наповнення і відбиває лише ту обставину, що вперше такі коливання було виявлено в спектрах оптичного поглинання полярних кристалів. Дисперсія цих мод незначна: частота оптичних мод порівняно мало залежить від q .

Швидкість фононів визначається нахилом залежності частоти від зміщення $\omega(q)$: акустичні моди характеризуються відносно більшою швидкістю фононів порівняно з оптичними модами. Тому можна очікувати, що саме акустичні моди переносять більшу частину тепла.

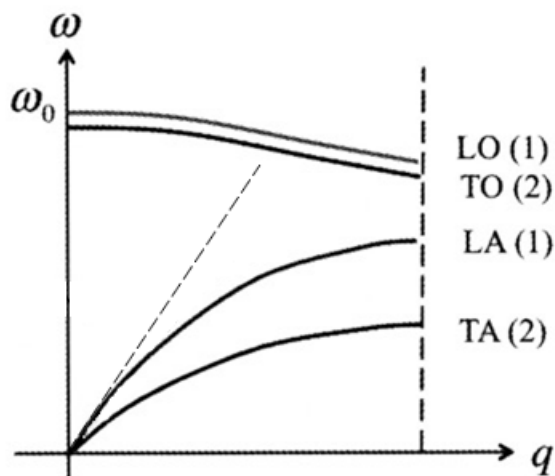


Рис. 3. Дисперсійні криві для фононів.

Як важливий приклад наводимо фононний спектр графену (рис. 4), побудований на основі експериментальних даних, які добре узгоджуються з результатами розрахунків методами теорії функціоналу густини [9 – 11].

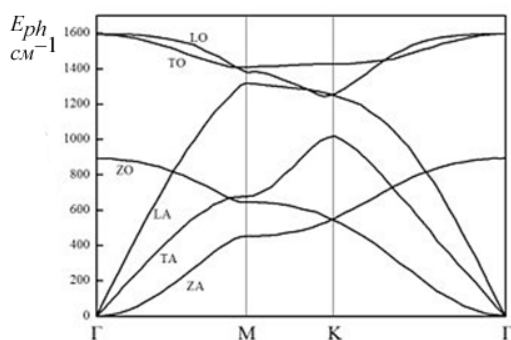


Рис. 4. Фононний спектр графену, реконструйований з експериментальних і теоретичних даних.

Елементарна комірка графену містить два атоми вуглецю, і тому в спектрі дисперсії графену є шість фононних гілок – три оптичні (LO, TO, ZO) і три акустичні (LA, TA, ZA).

Акустичні зумовлені зміщенням усієї комірки зі стану рівноваги, а оптичним модам відповідають зсуви атомів у самій елементарній комірниці, за яких центр мас комірки залишається нерухомим. Фононні моди LA і TA відповідають поздовжнім і поперечним коливанням атомів вуглецю в площині графену, а «згинна» мода ZA (flexural mode) – коливанням атомів вуглецю в напрямку, перпендикулярному до напрямків коливань мод LA і TA, з виходом атомів з площини графену. Моди LA і TA характеризуються лінійною дисперсією; швидкості звуку, які відповідають цим модам, становлять 21300 і 13600 м/с, відповідно. Ці великі значення, що в кілька разів перевищують звичайні значення швидкості звуку в твердому тілі, є наслідком великої «сили» ковалентних зв'язків між сусідніми атомами вуглецю. Як ми покажемо в нашій наступній статті, всі теплофізичені властивості графену (теплопровідність, теплоємність тощо) визначаються фононами.

2. Узагальнена модель ЛДЛ для перенесення тепла фононами.

Електричний струм в узагальненій моделі ЛДЛ, як було показано в [1, 2, 12],

$$I = \frac{2q}{h} \int T_{el}(E) M_{el}(E) (f_1 - f_2) dE \quad [A] \quad (3)$$

пропорційний добуткові коефіцієнта проходження $T_{el}(E)$, який описує ймовірність проходження електроном усієї довжини провідника у каналі провідності з енергією E , числу мод провідності $M_{el}(E)$ при цій енергії, та різниці фермівських функцій на контактах провідника.

Для опису транспорту фононів нам потрібний вираз, аналогічний до (3). Як і для випадку транспорту електронами, контакти на кінцях провідника ми вважаємо достатньо масивними для того, щоб підтримувати теплову рівновагу фононів за різних температур контактів. Якщо для електронів стани контактів заповнюються у відповідності до статистики Фермі – Дірака, то в випадку фононів – у відповідності до статистики Бозе – Ейнштейна:

$$n_0(\hbar\omega) = \frac{1}{e^{\hbar\omega/kT} - 1}. \quad (4)$$

Нехай температура на лівому й правому контактах буде відповідно T_1 і T_2 . Як і для випадку електронів, вважаємо, що контакти ідеальні, тобто відбиття фононів на контактах немає і коефіцієнт проходження справді визначається проходженням фононів через усю довжину каналу провідності.

Тепер легко переписати вираз (3) стосовно до фононів. Для потоку фононів енергію електрона E замінимо на енергію фонону $\hbar\omega$. В випадку електричного струму електрон переносить заряд q , а в випадку теплового потоку фонон переносить квант енергії $\hbar\omega$: замінимо q на $\hbar\omega$ і внесемо $\hbar\omega$ під знак інтегралу. Двійка в виразі (3) для електричного струму відповідає виродженню електронів за спіном. Виключимо її з виразу для теплового потоку, а число станів поляризації фононів включимо в число фононних мод $M_{ph}(\hbar\omega)$. Остаточо для тепла, яке переносять фонони, одержуємо:

$$Q = \frac{1}{h} \int (\hbar\omega) T_{ph}(\hbar\omega) M_{ph}(\hbar\omega) (n_1 - n_2) d(\hbar\omega). \quad [\text{Вт}] \quad (5)$$

Як і в випадку електронів, нас цікавить режим лінійного відгуку, або ж квазі-рівноважного транспорту. В цьому режимі $T_1 \approx T_2$ і $n_0 \approx n_1 \approx n_2 \approx n_0$, що дозволяє розкласти n_2 щодо n_1 у ряд Тейлора і обмежитися першим порядком:

$$n_2 \approx n_1 + \frac{\partial n_0}{\partial T} \Delta T. \quad (6)$$

Звідси шукана нами різниця, яка входить до (5), дорівнює:

$$n_1 - n_2 \approx -\frac{\partial n_0}{\partial T} \Delta T. \quad (7)$$

Похідну $\partial n_0 / \partial T$ знаходимо, диференціюючи розподіл Бозе (4):

$$\frac{\partial n_0}{\partial T} = \frac{\hbar\omega}{T} \left(-\frac{\partial n_0}{\partial(\hbar\omega)} \right), \quad (8)$$

де

$$\frac{\partial n_0}{\partial(\hbar\omega)} = \left(-\frac{1}{kT} \right) \frac{e^{\hbar\omega/kT}}{(e^{\hbar\omega/kT} - 1)^2}. \quad (9)$$

Тепер вираз (5) для малої різниці температур на контактах можна переписати таким чином:

$$Q = -K_L \Delta T, \quad (10)$$

де ґраткова теплопровідність

$$K_L = \frac{k^2 T}{h} \int T_{ph}(\hbar\omega) M_{ph}(\hbar\omega) \times \left[\left(\frac{\hbar\omega}{kT} \right)^2 \left(-\frac{\partial n_0}{\partial(\hbar\omega)} \right) \right] d(\hbar\omega). \quad [\text{Вт/К}] \quad (11)$$

Вираз (10) є записом закону теплопровідності Фур'є, згідно з яким потік тепла протилежно направлений до градієнту температури. Корисно звернути увагу на подібність теплопровідності (11) й електронної провідності

$$G = \frac{2q^2}{h} \int T_{el}(E) M_{el}(E) \left(-\frac{\partial f_0}{\partial E} \right) dE. \quad (12)$$

Похідна

$$W_{el}(E) = \left(-\frac{\partial f_0}{\partial E} \right) \quad (13)$$

має фізичний зміст фермівського вікна провідності, яке «вирізає» ті моди провідника, які тільки й можуть зробити внесок в електронну провідність. Вікно провідності нормоване на одиницю:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \left(-\frac{\partial f_0}{\partial E} \right) dE = 1. \quad (14)$$

Аналогічну роль бозевського вікна провідності для фононів відіграє подальший вираз:

$$W_{ph}(\hbar\omega) = \frac{3}{\pi^2} \left(\frac{\hbar\omega}{kT} \right) \left(\frac{\partial n_0}{\partial(\hbar\omega)} \right), \quad (15)$$

у якому числовий коефіцієнт необхідний для нормування на одиницю інтегралу за всіма можливими енергіями від виразу в квадратних дужках формули (11):

$$\int_0^{+\infty} \left(\frac{\hbar\omega}{kT} \right)^2 \left(-\frac{\partial n_0}{\partial(\hbar\omega)} \right) d(\hbar\omega) = \frac{\pi^2}{3}, \quad (16)$$

тож остаточно граткова теплопровідність записується як:

$$K_L = \frac{\pi^2 k^2 T}{3h} \int T_{ph}(\hbar\omega) M_{ph}(\hbar\omega) W_{ph}(\hbar\omega) d(\hbar\omega). \quad (17)$$

У цьому виразі числовий коефіцієнт

$$g_0 \equiv \pi^2 k^2 T / 3h \approx (9.456 \times 10^{-13} \text{ Вт / К}^2) T, \quad (18)$$

який ми докладно обговоримо нижче, дає значення кванту теплопровідності, вперше експериментально спостереженого в 2000 році [13].

Порівнюючи вирази для граткової теплопровідності (17) й електронної провідності (12), знову переконуємося в їхній подібності: обидні провідності пропорційні відповідному кванту провідності, помноженому на інтеграл за енергіями від добутку трьох величин: коефіцієнту проходження, числа мод і вікна провідності.

Профілі вікон провідності для електронів і фононів зображено на рис. 5 і 6.

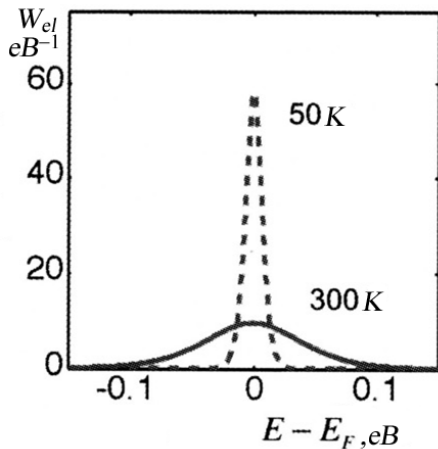


Рис. 5. Вікно провідності для електронів (13) при двох різних температурах. Енергія E може бути як вищою від енергії Фермі, так і меншою від неї.

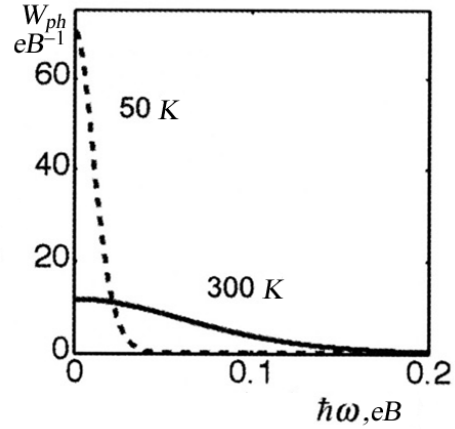


Рис. 6. Вікно провідності для фононів (15) при двох різних температурах. Енергія фононів може бути тільки додатною.

Вікна провідності для електронів і фононів не тільки подібні, але й мають приблизно однакову ширину $\approx \pm 2kT$.

2.1. Теплопровідність масивних провідників. Теплопровідність дифузійних провідників є їхньою ключовою характеристикою, яка визначає роботу різних електронних пристроїв. За аналогією з транспортом електронів (формула (56) з [2]), коефіцієнт проходження для фононів дорівнює

$$T_{ph}(\hbar\omega) = \frac{\lambda_{ph}(\hbar\omega)}{\lambda_{ph}(\hbar\omega) + L} \Big|_{L \gg \lambda_{ph}} \rightarrow \frac{\lambda_{ph}(\hbar\omega)}{L}, \quad (19)$$

де L – довжина 3D провідника, а $\lambda_{ph}(\hbar\omega)$ – довжина вільного пробігу фонону з частотою ω . Окрім того, число фононних мод, очевидно, пропорційне площі перерізу 3D провідника A :

$$M_{ph}(\hbar\omega) \propto A, \quad (20)$$

Множачи й ділячи вираз (10) на A/L , одержуємо

$$Q = - \left(K_L \frac{L}{A} \right) A \frac{\Delta T}{L}, \quad (21)$$

звідки випливає постульований на початку статті вираз (1) для потоку тепла:

$$\frac{Q}{A} \equiv J_{Qx}^{ph} = -\kappa_L \frac{dT}{dx} \quad (22)$$

з питомою ґратковою теплопровідністю

$$\kappa_L = K_L \frac{L}{A}. \quad (23)$$

Після підстановки (19) до (17) в розгорнутому вигляді остаточно одержуємо:

$$\kappa_L = \frac{\pi^2 k^2 T}{3h} \int \frac{M_{ph}(\hbar\omega)}{A} \lambda_{ph}(\hbar\omega) W_{ph}(\hbar\omega) d(\hbar\omega). \quad (24)$$

Оскільки саме вікно провідності фононів $W_{ph}(\hbar\omega)$ визначає, які саме фононні моди можуть брати участь у провідності тепла, природно ввести середнє число активних фононних мод на одиницю площі поперечного перерізу провідника

$$\langle M_{ph} / A \rangle \equiv \int \frac{M_{ph}(\hbar\omega)}{A} W_{ph}(\hbar\omega) d(\hbar\omega), \quad (25)$$

тож у компактному вигляді

$$\kappa_L = \frac{\pi^2 k^2 T}{3h} \langle M_{ph} / A \rangle \langle \langle \lambda_{ph} \rangle \rangle, \quad (26)$$

де усереднене значення середньої довжини вільного пробігу фононів

$$\langle \langle \lambda_{ph} \rangle \rangle = \frac{\int \frac{M_{ph}(\hbar\omega)}{A} \lambda_{ph}(\hbar\omega) W_{ph}(\hbar\omega) d(\hbar\omega)}{\int \frac{M_{ph}(\hbar\omega)}{A} W_{ph}(\hbar\omega) d(\hbar\omega)}. \quad (27)$$

Отже, парі фононних транспортних виразів (22) і (26) відповідає подібна за формою пара електронних транспортних виразів [1, 2, 12]:

$$J_x = \frac{\sigma}{q} \frac{d(E_F)}{dx}, \quad (28)$$

$$\sigma = \frac{2q^2}{h} \langle M_{el} / A \rangle \langle \langle \lambda_{el} \rangle \rangle. \quad (29)$$

Гradient електрохімічного потенціалу спричиняє потік електронів і тепла, а gradient температури – потік тепла. Термоелектричні коефіцієнти (26) і (29) мають однакову структуру. Це – завжди добуток відповідного кванту провідності на число мод провідності, які беруть

участь у транспорті, й на усереднене значення середньої довжини вільного пробігу відповідного носія (струму або тепла). До оцінки цих трьох величин для фононів ми повернемося згодом.

2.2. Питома теплоємність. Добре відома пропорційність між питомою теплопровідністю і питомою теплоємністю при сталому об'ємі C_V [5 – 8]. Встановимо цей зв'язок і покажемо, що коефіцієнт пропорційності між ними визначається усередненою належним чином довжиною вільного пробігу фононів

$\langle \langle \Lambda_{ph} \rangle \rangle$ і середньою швидкістю фононів $\langle v_{ph} \rangle$, а саме:

$$\kappa_L = \frac{1}{3} \langle \langle \Lambda_{ph} \rangle \rangle \langle v_{ph} \rangle C_V. \quad (30)$$

Енергія фононів на одиницю об'єму визначається очевидним виразом:

$$E_{ph} = \int_0^\infty (\hbar\omega) D_{ph}(\hbar\omega) n_0(\hbar\omega) d(\hbar\omega), \quad (31)$$

де $D_{ph}(\hbar\omega)$ – густина фононних станів. За визначенням, теплоємність дорівнює:

$$\begin{aligned} C_V &\equiv \frac{\partial E_{ph}}{\partial T} = \frac{\partial}{\partial T} \int_0^\infty (\hbar\omega) D_{ph}(\hbar\omega) n_0(\hbar\omega) d(\hbar\omega) = \\ &= \int_0^\infty (\hbar\omega) D_{ph}(\hbar\omega) \left(\frac{\partial n_0(\hbar\omega)}{\partial T} \right) d(\hbar\omega) = \\ &= \frac{\pi^2 k^2 T}{3} \int_0^\infty D_{ph}(\hbar\omega) W_{ph}(\hbar\omega) d(\hbar\omega), \end{aligned} \quad (32)$$

де використано вирази (8) і (15).

Множення й ділення коефіцієнта теплопровідності (24) на теплоємність (32) дає потрібну нам пропорційність:

$$\kappa_L = \left[\frac{\frac{1}{h} \int_0^\infty \frac{M_{ph}(\hbar\omega)}{A} \lambda_{ph}(\hbar\omega) W_{ph}(\hbar\omega) d(\hbar\omega)}{\int_0^\infty D_{ph}(\hbar\omega) W_{ph}(\hbar\omega) d(\hbar\omega)} \right] C_V. \quad (33)$$

Для отримання остаточної виразу (30) і для коректної інтерпретації коефіцієнту пропорційності між κ_L і C_V потрібно повернутися до зв'язку між середньою довжиною вільного пробігу й коефіцієнтом проходження (19), який

має однаковий вигляд і для електронів, і для фононів.

2.3. Середня довжина вільного пробігу й коефіцієнт проходження. Зв'язок цих двох найважливіших характеристик дифузійного транспорту найпростіше проілюструвати на прикладі електронного транспорту в 1D провіднику в дифузійному режимі (рис. 7).

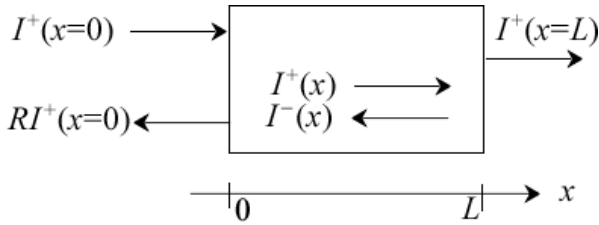


Рис. 7. До виведення зв'язку між коефіцієнтом проходження й середньою довжиною вільного пробігу на прикладі однорідного 2D провідника.

Розгляньмо однорідний 1D провідник у дифузійному режимі. Лівий контакт інжектує електрони, з якими пов'язаний струм $I^+(x=0)$. Частина електронів T увійде в правий контакт, переносючи струм $I^+(x=L) = T I^+(x=0)$. Решта електронів повернеться в лівий контакт (розсіяння назад), переносючи струм $I^-(x=0) = R I^+(x=0)$. За відсутності процесів рекомбінації $T + R = 1$. Ми припускаємо також, що правий контакт ідеальний, тобто він поглинає всі електрони, які його досягають. Результуючий струм, вочевидь, дорівнюватиме $I = (1 - R)I^+(0) = T I^+(0)$. Але оскільки в провіднику є прямий і зворотній потоки електронів, потрібно описати їхній просторовий розподіл.

Визначимо обернене значення середньої довжини вільного пробігу $1/\lambda$ як імовірність (на одиницю довжини) зміни напрямку прямого потоку електронів на зворотній і навпаки. Саме виходячи з цього визначення, величину λ і називають іноді середньою довжиною вільного розсіяння назад (mean-free-pass for backscattering), або, простіше, середньою довжиною вільного пробігу. В дифузійному режимі провідності певна частина прямого потоку внаслідок розсіяння назад перетворю-

ється на зворотній. Але певна частина цього зворотного потоку внаслідок розсіяння назад знову перетворюється на прямий. В кінцевому підсумку градієнт прямого струму дорівнюватиме:

$$\frac{dI^+(x)}{dx} = -\frac{I^+(x)}{\lambda} + \frac{I^-(x)}{\lambda}. \quad (34)$$

Нехтуючи процесами рекомбінації, запишемо результуючий струм як:

$$I = I^+(x) - I^-(x). \quad (35)$$

Цей струм є сталою величиною на всій довжині провідника (в іншому випадку могло б відбуватися локальне накопичення заряду, що неможливо). Тому градієнт «прямого» струму

$$\frac{dI^+(x)}{dx} = -\frac{I}{\lambda} \quad (36)$$

теж є сталою величиною. Іншими словами, «прямий» струм спадає уздовж провідника лінійно:

$$I^+(x) = I^+(0) - \frac{I}{\lambda} x. \quad (37)$$

Використаємо отриманий вираз для обчислення струму, який входить до правого контакту:

$$\begin{aligned} I^+(L) &= I^+(0) - \frac{I}{\lambda} L = I^+(0) - \left[I^+(L) - I^-(L) \right] \frac{L}{\lambda} = \\ &= I^+(0) - I^+(L) \frac{L}{\lambda}, \end{aligned} \quad (38)$$

де ми використали рівняння балансу (35) і те, що правий контакт ідеальний ($I^-(L) = 0$). З (38) одержуємо:

$$I^+(L) = \frac{\lambda}{\lambda + L} I^+(0) = T I^+(0), \quad (39)$$

Якщо провести аналогічні міркування для електронів, інжектованих правим контактом, то одержимо аналогічний вираз для електронів, які входять у лівий контакт, а саме:

$I^-(0) = T' I^-(L)$. Для однорідного провідника $T' = T$. Провідник під напругою вже не є однорідним, але нас цікавить режим лінійного відгуку, тож цілком логічно припустити, що

$T' \approx T$. Остаточно в припущенні незалежності мод провідності одна від одної одержуємо шуканий вираз (19), який пов'язує коефіцієнт проходження з середньою довжиною вільного пробігу:

$$T(E) = \frac{\lambda(E)}{\lambda(E) + L}. \quad (40)$$

Виведення формули (40) проведено в рамках простої моделі, але це ніяк не заважає її широкому й успішному застосуванню на практиці. Важливим моментом у здійсненому аналізі є інтерпретація $1/\lambda$ як імовірності (на одиницю довжини) зміни напрямку потоку частинок на зворотній внаслідок розсіяння назад.

Встановимо зв'язок між λ і часом розсіяння τ . Нехай електрон здійснює акт розсіяння в ізотропному 1D провіднику. В нього є дві можливості: розсіятися вперед і розсіятися назад. Але тільки розсіяння назад суттєве для визначення середньої довжини вільного пробігу. Звідси випливає, що середня довжина розсіяння назад дорівнює подвоєному значенню середньої довжини розсіяння «взагалі»:

$$\lambda_{1D}(E) = 2\Lambda(E) = 2v(E)\tau(E). \quad (41)$$

Для провідника довільної вимірності середня довжина розсіяння назад визначається виразом [14]

$$\lambda(E) = 2 \frac{\langle v_x^2 \tau \rangle}{\langle |v_x| \rangle}, \quad (42)$$

де усереднення для 2D і 3D провідників здійснюється за кутами. Для ізотропних провідників

$$\lambda_{2D}(E) = \frac{\pi}{2} v(E) \tau(E), \quad (43)$$

$$\lambda_{3D}(E) = \frac{4}{3} v(E) \tau(E). \quad (44)$$

Для аналітичної апроксимації залежності часу розсіяння τ від енергії часто використовують степеневий закон

$$\tau(E) = \tau_0 \left(\frac{E - E_C}{kT} \right)^s, \quad (45)$$

де значення показника степені залежить від конкретного механізму розсіяння (на фононах,

домішках тощо). Для розсіяння на акустичних фононах у 3D провідниках з параболічним законом дисперсії електронів $s = -1/2$, для розсіяння на іонізованих домішках $s = +3/2$ [15].

Аналогічний степеневий закон часто використовують для середньої довжини розсіяння:

$$\lambda(E) = \lambda_0 \left(\frac{E - E_C}{kT} \right)^r. \quad (46)$$

Для параболічного закону дисперсії електронів $v(E) \propto E^{1/2}$, тому $r = s + 1/2$. Для розсіяння на акустичних фононах, відповідно, $r = 0$, а для розсіяння на іонізованих домішках $r = 2$.

Повертаючись до нашої мети – виведення виразу (30) з (33), для 3D провідника, згідно з (44), маємо:

$$\lambda_{ph}(\hbar\omega) = \frac{4}{3} v_{ph}(\hbar\omega) \tau_{ph}(\hbar\omega), \quad (47)$$

де, згідно з (41),

$$v_{ph}(\hbar\omega) \tau_{ph}(\hbar\omega) = \Lambda_{ph}(\hbar\omega), \quad (48)$$

тож остаточно

$$\lambda_{ph}(\hbar\omega) = \frac{4}{3} \Lambda_{ph}(\hbar\omega). \quad (49)$$

Відтак вираз (30) легко інтерпретувати як теплопровідність ідеального газу фононів, яка дорівнює третині добутку середньої довжини вільного пробігу, середньої швидкості частинок цього газу і його теплоємності. Такий вираз давно відомий у кінетичній теорії ідеальних газів.

2.4. Густина фононних станів і фононни моди. Раніше ми показали, що для 3D провідника число мод і густина електронних станів пов'язані співвідношенням (формула (33) у [2]):

$$M_{el}(E) = AM_{3D}(E) = A \frac{\hbar}{4} \langle v_x^+(E) \rangle D_{3D}(E). \quad (50)$$

Перепишемо цю формулу для фононів. Спершу згадаємо, що спінове виродження

$g_s = 2$ входить у густину електронних станів, тож у розрахунку на одне значення спіну

$$D_{3D}(E) = 2D'_{3D}(E). \quad (51)$$

Далі, для ізотропних зон у 3D матеріалі

$$\langle v_x^+(E) \rangle = \frac{v_{el}(E)}{2}. \quad (52)$$

Поєднуючи (51) й (52) з (50) і переходячи до фононів, одержуємо

$$M_{ph}(\hbar\omega) = A \frac{\hbar}{2} \left(\frac{v_{ph}(\hbar\omega)}{2} \right) 2D_{ph}(\hbar\omega) = A \frac{\hbar}{4} v_{ph}(\hbar\omega) D_{ph}(\hbar\omega). \quad (53)$$

Підставляючи (49) і (53) в (33), одержуємо черговий проміжний результат:

$$\kappa_L = \left[\frac{\frac{1}{3} \int_0^\infty \Lambda_{ph}(\hbar\omega) v_{ph}(\hbar\omega) D_{ph}(\hbar\omega) W_{ph}(\hbar\omega) d(\hbar\omega)}{\int_0^\infty D_{ph}(\hbar\omega) W_{ph}(\hbar\omega) d(\hbar\omega)} \right] C_V. \quad (54)$$

Множачи й ділячи (54) на

$$\int_0^\infty v_{ph}(\hbar\omega) D_{ph}(\hbar\omega) W_{ph}(\hbar\omega) d(\hbar\omega), \quad (55)$$

остаточно одержуємо шуканий вираз (30) із коефіцієнтом пропорційності між κ_L и C_V , який записується через добуток відповідно усередненої середньої довжини вільного пробігу фононів

$$\langle \langle \Lambda_{ph} \rangle \rangle \equiv \frac{\int_0^\infty \Lambda_{ph}(\hbar\omega) v_{ph}(\hbar\omega) D_{ph}(\hbar\omega) W_{ph}(\hbar\omega) d(\hbar\omega)}{\int_0^\infty v_{ph}(\hbar\omega) D_{ph}(\hbar\omega) W_{ph}(\hbar\omega) d(\hbar\omega)} \quad (56)$$

і середньої швидкості фононів

$$\langle v_{ph} \rangle \equiv \frac{\int_0^\infty v_{ph}(\hbar\omega) D_{ph}(\hbar\omega) W_{ph}(\hbar\omega) d(\hbar\omega)}{\int_0^\infty D_{ph}(\hbar\omega) W_{ph}(\hbar\omega) d(\hbar\omega)}. \quad (57)$$

Співвідношення (30) часто використовують для обчислення середньої довжини вільного

пробігу фононів з результатів вимірювання теплопровідності і теплоємності. Для цього потрібно знати середню швидкість фононів, яку зазвичай вважають рівною поздовжній складовій швидкості звуку. Наведені вище викладки точно визначають зміст усереднень при обчисленні середньої довжини вільного пробігу фононів і їхньої середньої швидкості. Наприклад, знаючи закон дисперсії фононів, завжди можна обчислити їхню середню швидкість згідно з (57). Як правило, обчислена таким чином швидкість сильно відрізняється від поздовжньої складової швидкості звуку, що далі призводить до помилкового значення середньої довжини вільного пробігу фононів [16].

Отримаємо густину фононних станів і число фононних мод, базуючись на загальніших міркуваннях. Густина станів фононів визначається аналогічно до густини станів електронів, як число дозволених фононних станів у відповідному проміжку енергії на одиницю довжини L для 1D провідників, одиницю площі перерізу A для 2D провідників, и на одиницю об'єму $\Omega = L \cdot A$ для 3D провідників. Для електронів число дозволених станів зі значенням імпульсу меншим, аніж визначене значення p , для провідників вимірності $d = \{1, 2, 3\}$ становить [17]:

$$N(p) = \left\{ 2 \frac{L}{h/p}, \quad \pi \frac{L \cdot W}{(h/p)^2}, \quad \frac{4\pi}{3} \frac{L \cdot A}{(h/p)^3} \right\}. \quad (58)$$

Аналогічно, число дозволених фононних станів зі значенням хвильового вектора $k = p/\hbar$ меншим, аніж визначене значення k , становитиме

$$N_{1D}(k) = \frac{2k}{2\pi/L}, \quad (59a)$$

$$N_{2D}(k) = \frac{\pi k^2}{4\pi^2/L^2}, \quad (59б)$$

$$N_{3D}(k) = \frac{4\pi k^3/3}{8\pi^3/L^3}, \quad (59в)$$

де без втрати загальності надалі площу 2D провідника вважаємо рівною $L^2 \equiv L \cdot W$, а об'єм 3D – $L^3 \equiv \Omega = L \cdot A$. Величину L^d умовно назвемо «об'ємом» провідника вимірності d .

Густина фононних станів, згідно з наведеним вище визначенням, для провідників різної вимірності така:

$$D_{1D}(k) = \frac{1}{L} \frac{dN_{1D}(k)}{dk} = \frac{1}{\pi}, \quad (60a)$$

$$D_{2D}(k) = \frac{1}{L^2} \frac{dN_{2D}(k)}{dk} = \frac{k}{2\pi}, \quad (60б)$$

$$D_{3D}(k) = \frac{1}{L^3} \frac{dN_{3D}(k)}{dk} = \frac{k^2}{2\pi^2}. \quad (60в)$$

Густина фононних станів часто виражають через групову швидкість фононів

$$v_g(\omega) = d\omega / dk, \quad (61)$$

а саме [18]:

$$D_{1D}(\omega) = \frac{1}{L} \frac{dN_{1D}(k)}{d\omega} = \frac{1}{L} \frac{dN_{1D}(k)}{dk} \frac{dk}{d\omega} = \frac{1}{\pi v_g(\omega)}, \quad (62a)$$

$$D_{2D}(\omega) = \frac{1}{L^2} \frac{dN_{2D}(k)}{d\omega} = \frac{1}{L^2} \frac{dN_{2D}(k)}{dk} \frac{dk}{d\omega} = \frac{k(\omega)}{2\pi v_g(\omega)}, \quad (62б)$$

$$D_{3D}(\omega) = \frac{1}{L^3} \frac{dN_{3D}(k)}{d\omega} = \frac{1}{L^3} \frac{dN_{3D}(k)}{dk} \frac{dk}{d\omega} = \frac{k^2(\omega)}{2\pi^2 v_g(\omega)}. \quad (62в)$$

Кількість тепла, яке переносять фонони, визначається виразом (5), у якому число станів поляризації фононів враховано в числі фононних мод $M_{ph}(\hbar\omega)$. Перепишемо цей вираз через інтеграл по частоті:

$$Q = \frac{1}{2\pi} \int_0^\infty (\hbar\omega) T_{ph}(\omega) M_{ph}(\omega) (n_1 - n_2) d\omega. \quad (63)$$

При перенесенні тепла у 1D провіднику $M_{ph}(\omega)$ – це просто одиниця, у 2D провіднику $M_{ph}(\omega)$ пропорційне ширині провідника, а в 3D провіднику – площі його перерізу:

$$M_{ph}(\omega) = \{M_{1D}(\omega), WM_{2D}(\omega), AM_{3D}(\omega)\}. \quad (64)$$

Для обчислення й інтерпретації $M_{2D}(\omega)$ і $M_{3D}(\omega)$ нам знадобляться відповідні вирази для потоків тепла

$$J_{Qx}^{ph} = \{J_Q^{ph}(1D), J_Q^{ph}(2D), J_Q^{ph}(3D)\} = \{Q, Q/W, Q/A\}, \quad (65)$$

пов'язані безпосередньо з кількістю тепла, яка переноситься (33), а саме [18]:

$$J_Q^{ph}(1D) = \int_0^\infty (\hbar\omega) T_{ph}(\omega) \left[\frac{1}{2} v_g(\omega) D_{1D}(\omega) \right] (n_1 - n_2) d\omega, \quad (66a)$$

$$J_Q^{ph}(2D) = \int_0^\infty (\hbar\omega) T_{ph}(\omega) \left[\frac{1}{2} \frac{2v_g(\omega)}{\pi} D_{2D}(\omega) \right] (n_1 - n_2) d\omega, \quad (66б)$$

$$J_Q^{ph}(3D) = \int_0^\infty (\hbar\omega) T_{ph}(\omega) \left[\frac{1}{2} \frac{v_g(\omega)}{2} D_{3D}(\omega) \right] (n_1 - n_2) d\omega, \quad (66в)$$

де густини фононних станів визначаються виразами (62). Прирівнюючи потоки тепла (66) до кількості перенесеного тепла (63) згідно з (65), і врахувавши вирази для густини фононних станів (62), остаточно отримаємо:

$$M_{1D}(\omega) = \pi [v_g(\omega)] D_{1D}(\omega) = 1, \quad (67a)$$

$$M_{2D}(\omega) = \pi \left[\frac{2v_g(\omega)}{\pi} \right] D_{2D}(\omega) = \frac{k(\omega)}{\pi}, \quad (67б)$$

$$M_{3D}(\omega) = \pi \left[\frac{v_g(\omega)}{2} \right] D_{3D}(\omega) = \frac{k^2(\omega)}{4\pi}, \quad (67в)$$

або ж інакше число фононних мод (64), яке визначає кількість перенесеного тепла (63),

$$M_{ph}(\omega) = \left\{ \begin{array}{l} M_{1D}(\omega) = \pi [v_g(\omega)] \frac{1}{\pi v_g(\omega)} = 1, \\ WM_{2D}(\omega) = W \pi \left[\frac{2v_g(\omega)}{\pi} \right] \frac{k(\omega)}{2\pi v_g(\omega)}, \\ AM_{3D}(\omega) = A \pi \left[\frac{v_g(\omega)}{2} \right] \frac{k^2(\omega)}{2\pi^2 v_g(\omega)} \end{array} \right\} \quad (68)$$

що дозволяє інтерпретувати число мод $M_{ph}(\omega)$ як максимальне число де-Бройлівських напівхвиль, які вкладаються в «перерізі» провідника, поперечному щодо напрямку руху фононів. Справді, вважаючи залежність $\omega(k)$ лінійною, що цілком добре описує випадок довгохвильових LA і TA акустичних мод, маємо $k = 2\pi / \lambda$, тож вирази (68) зводяться до

$$M_{ph}(\omega) = \left\{ \begin{array}{l} M_{1D}(\omega) = 1, \\ W M_{2D}(\omega) = W / (\lambda / 2), \\ A M_{3D}(\omega) = A / [(4 / \pi)(\lambda / 2)^2], \end{array} \right\} \quad (69)$$

де множник $4 / \pi$ з'являється через те, що переріз 3D провідника вважаємо кругом з площею A , яка дорівнює квадрату діаметру кола, поділеному на $4 / \pi$. Звернімо також увагу на те, що вирази в квадратних дужках у (68) є ні що інше, як усереднені за всіма кутовими змінними значення швидкості фононів у напрямку їхнього руху (в нашому розгляді – вздовж осі $+x$) [19].

2.5. Дебаївська модель. Ширина зони провідності для електронів набагато більша від їх теплової енергії, $BW \gg kT$, через те заселені тільки стани поблизу дна зони провідності, й добре працює наближення ефективної маси з параболічним законом дисперсії (рис. 1). Інша ситуація для фононів: $BW \approx kT$ (рис. 2). Фононами заселені майже всі стани в зоні Бріллюена.

Акустичні моди апроксимуються дебаївським лінійним наближенням (2) тим краще, чим ближчі хвильові числа до центру зони Бріллюена (рис. 3 і 4). Перепишемо (2) у вигляді:

$$\hbar\omega = \hbar v_D q, \quad (70)$$

де під дебаївською швидкістю v_D розуміють середню швидкість поздовжніх і поперечних акустичних мод. Тоді, за аналогією з електронами, густина фононних станів становитиме:

$$D_{ph}(\hbar\omega) = \frac{3(\hbar\omega)^2}{2\pi^2(\hbar v_D)^3}, \quad [\text{Дж}^{-1} \cdot \text{м}^{-3}] \quad (71)$$

де множник 3 враховує три поляризації акустичних мод. Звернімо увагу на те, що в літературі густину фононних мод частіше записують в одиницях $\text{Гц}^{-1} \cdot \text{м}^{-3}$:

$$D_{ph}(\hbar\omega) = \frac{D_{ph}(\omega)}{\hbar}. \quad (71a)$$

Число мод на одиницю площі перерізу провідника врахуємо згідно з (53):

$$M_{ph}(\hbar\omega) = \frac{3(\hbar\omega)^2}{4\pi(\hbar v_D)^2}. \quad (72)$$

Оскільки майже всі стани в зоні Бріллюена за кімнатної температури заселені фононами (це ми покажемо далі), потрібно проконтролювати, чи справді ми врахували всі фононні стани. У кристалі з N / Ω атомами на одиницю об'єму маємо $3N / \Omega$ станів на одиницю об'єму. Повне число станів визначається інтегралом

$$\int_0^{\hbar\omega_D} D_{ph}(\hbar\omega) d(\hbar\omega), \quad (73)$$

в якому верхня межа, що визначається дебаївською частотою ω_D , вводиться таким чином, щоб отримати правильне число станів $3N / \Omega$. Звідси ця верхня межа становитиме:

$$\hbar\omega_D = \hbar v_D \left(\frac{6\pi^2 N}{\Omega} \right)^{1/3} \equiv kT_D. \quad (74)$$

Таким чином, дебаївська частота є тією гранично високою можливою частотою коливань; коливання з частотами, вищими від неї, у кристалічних ґратках уже не реалізуються. З вигляду (74) видно, що ця частота відповідає гранично короткій довжині хвилі λ порядку двох між-атомних відстаней, бо неможливо уявити в матеріальному кристалі коливання з іще меншою довжиною хвилі. Це ж обмеження можна запровадити й через дебаївський хвильовий вектор q_D або через дебаївську температуру T_D , введену співвідношенням (74). Для $T \ll T_D$ заселені тільки стани з $q \rightarrow 0$, для яких добре виконується дебаївське наближення.

Тепер інтегрування в (24) можна вести тільки до дебаївської енергії:

$$\kappa_L = \frac{\pi^2 k^2 T}{3\hbar} \int_0^{\hbar\omega_D} \frac{M_{ph}(\hbar\omega)}{A} \lambda_{ph}(\hbar\omega) W_{ph}(\hbar\omega) d(\hbar\omega), \quad (75)$$

підставляючи вираз для фононних мод (72).

Інтеграл можна вирахувати чисельно, або ж аналітично, використавши прийнятну апроксимацію для середньої довжини вільного пробігу фононів. Саме так було вперше обчислено граткову теплопровідність [20, 21]. Дальший розвиток теорія й методи розрахунку термоелектричних транспортних коефіцієнтів дістали в роботах [14, 16, 22].

3. Розсіяння фононів. У кристалі завжди наявні неоднорідності: домішкові атоми, вакансії, дислокації, межі кристаліта, межі зрідка тощо. Фононна хвиля ефективно розсіюється на неоднорідностях, які мають розміри порядку довжини цієї хвилі. Проте якщо неоднорідності суттєво менші, хвиля проминає, «не помічаючи» їх.

Надалі нам буде важливо оцінити імпульс фононів p через температуру кристала й температуру Дебая. Енергія фонона виражається через його імпульс як:

$$\begin{aligned} E &= v_s p \approx kT; \\ p &\approx kT / v_s, \end{aligned} \quad (76)$$

де v_s в першому наближенні – довжина звукової хвилі в кристалі. Надалі апроксимуємо

(74) значенням $q_D \sim \pi/a$, де $a = (\Omega/N)^{1/3}$ – міжатомна відстань. З урахуванням цього з (76) отримаємо:

$$\begin{aligned} kT_D &= \hbar v_s q_D = \hbar v_s \frac{\pi}{a}, \\ v_s &= \frac{kT_D a}{\pi \hbar}. \end{aligned} \quad (77)$$

Підставляючи другий з виразів (77) до другого з виразів (76), отримуємо оцінку:

$$p \sim \hbar \frac{\pi}{a} \frac{T}{T_D}. \quad (78)$$

Звідси також видно, що у випадку низьких температур $T \ll T_D$ теплові фонони займають лише малу частину зони Бріллюена, але за температур $T \sim T_D$ заселяють майже всі стани цієї зони. Використовуючи оцінку (78), для довжини фононної хвилі легко отримати

$$\lambda \sim a \frac{T_D}{T}. \quad (79)$$

Звідси видно, що при відносно малих температурах $a \ll \lambda$. Тому довгохвильові фонони не розсіюються на домішкових атомах, вакансіях та інших неоднорідностях масштабу сталої ґратки. Проте ці фонони можуть розсіюватися на інших фононах.

Зазначмо, що процес розсіяння фононів на фононах суттєво відрізняється від процесу зіткнення молекул газу, зображеного на рис. 8:

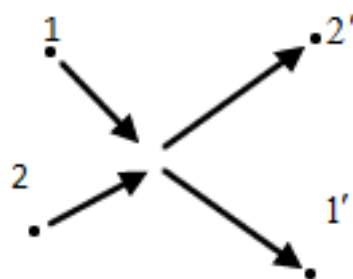


Рис. 8. Розсіяння молекул газу одна на одну.

При такому розсіянні виконуються закони збереження енергії та імпульсу в звичному вигляді:

$$\begin{cases} E_1 + E_2 = E'_1 + E'_2, \\ \vec{p}_1 + \vec{p}_2 = \vec{p}'_1 + \vec{p}'_2. \end{cases} \quad (80)$$

На відміну від цього, «зустріч» фонона з фононом закінчується «загибеллю» однієї з двох квазічастинок (рис. 9).

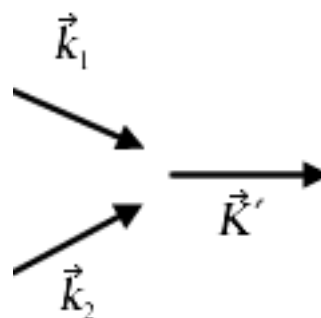


Рис. 9. Акт фонон-фононного розсіяння.

При цьому закони збереження записуються як:

$$\begin{aligned} \hbar\vec{k}_1 + \hbar\vec{k}_2 &= \hbar\vec{k}' + \hbar\vec{B}, \\ \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 &= \hbar\omega'. \end{aligned} \quad (81)$$

Звернімо увагу, що імпульс при цьому в силу (81) зберігається з точністю до імпульсу, що відповідає векторові оберненої ґратки \vec{B} [5 – 8]. Фізично це означає, що коли сумарний імпульс двох фононів виходить за межі першої зони Бріллюена, взаємодія з ґраткою «повертає» його в першу зону. Такий процес прийнято називати «процесом з перекиданням», або ж U-процесом (від німецького слова Umlapp – перекидання).

Аналіз з урахуванням ангармонізму коливань іонів кристалічної ґратки [5 – 8] (що виходить за рамки нашої статті) показує, що саме U-процеси визначають довжину вільного пробігу при фонон-фононному розсіянні, оскільки при цьому частина імпульсу передається кристалічній ґратці. Натомість процеси, де два початкові й кінцевий імпульси відповідають першій зоні Бріллюена, не гальмують фононного газу в цілому, а лишень призводять до перерозподілу імпульсів та енергій.

Відчутний внесок у «гальмування» фононного газу даватимуть також процеси розсіяння на великомасштабних дефектах/D (з розмірами порядку довжини фононної хвилі λ) й на межах/V окремих кристалітів, або кристалу в цілому. Швидкості усіх трьох процесів складатимуться, так що

$$\frac{1}{\tau_{ph}(\hbar\omega)} = \frac{1}{\tau_U(\hbar\omega)} + \frac{1}{\tau_D(\hbar\omega)} + \frac{1}{\tau_B(\hbar\omega)}, \quad (82)$$

або, через довжину вільного пробігу,

$$\frac{1}{\lambda_{ph}(\hbar\omega)} = \frac{1}{\lambda_U(\hbar\omega)} + \frac{1}{\lambda_D(\hbar\omega)} + \frac{1}{\lambda_B(\hbar\omega)}, \quad (83)$$

бо для 3D кристалу зі сферичним законом дисперсії λ і τ пов'язані співвідношенням (47).

Вирази для швидкостей розглянутих механізмів розсіяння одержані теоретично (див. наприклад [23]). При розсіянні на дефектах

$$\frac{1}{\tau_D(\hbar\omega)} \propto \omega^4, \quad (84)$$

що нагадує Релеїв вираз для розсіяння світла на частинках пилу в повітрі: більш високочастотні

фонони з коротшими довжинами хвиль більш ефективно розсіюються на дефектах малого розміру. При розсіянні на межах кристалітів, або на поверхні

$$\frac{1}{\tau_B(\hbar\omega)} \propto \frac{v_{ph}(\hbar\omega)}{L}, \quad (85)$$

де L – характерний розмір кристаліту або кристалу. Натомість швидкість розсіяння для U-процесу найчастіше апроксимують виразом:

$$\frac{1}{\tau_U(\hbar\omega)} \propto T^3 \omega^2 e^{-T_D/bT}. \quad (86)$$

де b – числовий множник, який залежить, зокрема, від ступеню ангармонізму коливань.

4. Температурна залежність теплопровідності. Температурна залежність ґраткової теплопровідності κ_L кремнію зображена на рис. 10. Аналогічний вигляд кривої з максимумом має й теплопровідність для інших 3D кристалів.

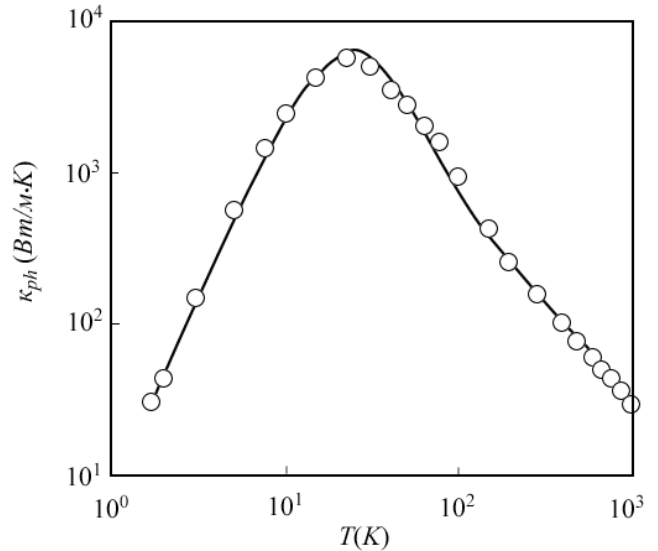


Рис. 10. Температурна залежність ґраткової теплопровідності кремнію: експериментальні точки за [24], розрахункова крива за [16].

Зміну теплопровідності з температурою якісно можна пояснити так. Згідно з виразом (26), κ_L пропорційна числу фононних мод $\langle M_{ph} / A \rangle$ й усередненому значенню середньої довжини вільного пробігу фононів $\langle \langle \lambda_{ph} \rangle \rangle$. У

свою чергу, ця величина визначається інтенсивністю розсіяння фононів. Щоб відбувся процес з перекиданням, принаймні один з початкових фононів мусить мати імпульс порядку $\pi\hbar/a$. В силу оцінки (78), таких фононів багато для достатньо високих температур порядку температури Дебая T_D . Тоді U-процеси домінують, фонон-фононне розсіяння відбувається інтенсивно і довжина вільного пробігу

$\lambda_{ph} \sim 10^{-6}$ см мала, що призводить і до малого значення коефіцієнта теплопровідності (26).

При низьких температурах фононів з великими імпульсами, які можуть «народити» U-процес, стає експоненційно мало, довжина вільного пробігу й теплопровідність збільшуються зі зниженням температури як:

$$\kappa_L \sim e^{T_D/T}. \quad (87)$$

Проте при дальшому зниженні температури довжина вільного пробігу стає одного порядку величин з розмірами кристаліту чи кристалу. Для більшості діелектриків це відбувається в діапазоні 20 – 30 К. Далі довжина вільного пробігу зростати вже не може й залишається сталою. Натомість теплопровідність прямує до нуля як T^3 в силу прямування

до нуля числа фононних мод $\langle M_{ph} \rangle \propto T^3$ і зумовленої ними теплоємності кристалу. Таким чином, залежність теплопровідності від температури в області низьких температур має вигляд кривої з максимумом, зображеної на рис.10.

Максимум кривої на рис. 10 можна змістити в бік вищих температур, використовуючи кристаліти нанорозмірів. При цьому значення коефіцієнта теплопровідності в максимумі виявляться на порядки нижчими. Саме так створюють сучасні теплоізолюючі покриття.

Зокрема, для цього використовують діоксин цирконію ZrO_2 , який має високу температуру плавлення і низьку теплопровідність. Шляхом термічної обробки при дуже високих температурах у кристалах ZrO_2 створюють частковий фазовий перехід з моноклінної структури в тетрагональну. Утворюється двофазна система з розмірами кристалітів, меншими від довжини

вільного пробігу фонона. Цю систему стабілізують гартуванням. Отримані теплоізоляційні покриття використовують, наприклад, у лопатях турбін.

5. Відмінність між ґратковою теплопровідністю й електричною провідністю. Ми вже звертали увагу на подібність пари фононних транспортних виразів (22) і (26) й пари електронних виразів (28) і (29). Довжини вільних пробігів електронів і фононів – величини одного порядку. Тоді чому ж електрична провідність різних речовин варіюється на десятки порядків, а теплопровідність – лише на кілька порядків? Відповідь прихована у відмінності між вікнами провідності для електронів (13) і для фононів (15). В обох випадках зростання температури розширює вікна провідності. Для електронів, однак, усе залежить від розташування рівня Фермі, зміщуючи який, можна змінювати провідність на десятки порядків. А для фононів ширина вікна провідності визначається тільки температурою.

Підкреслимо ще одну практично важливу відмінність між описом електронів і фононів, пов'язану з особливостями заселення квантових станів. Параметри термоелектричних пристроїв обирають так, щоб рівень Фермі був розташований поблизу дна зони провідності,

$E_F \approx E_C$. З цього погляду вікна провідності електронів (13) і фононів (15) для таких пристроїв подібні. Проте, для електронів ширина зони провідності велика, і заселена тільки незначна частина станів поблизу її дна. Тому добре працює параболічна апроксимація для закону дисперсії, яка дозволяє легко отримувати аналітичні розв'язки для електропровідності. Водночас для фононів ширина дозволеної зони невелика, за кімнатних температур більшість станів у зоні Бріллюена вже заповнені, і прості аналітичні моделі для обчислення теплопровідності працюють значно гірше.

6. Квантування теплопровідності. За аналогією з квантуванням електронної провідності [1, 2]

$$G^{ball} = \frac{2q^2}{h} M(E_F) \quad (88)$$

ще 30 років тому Пендрі [25] показав, що повинні існувати квантові обмеження на перенесення тепла. Справді, у формулі (17) при $T \rightarrow 0$ вікно фононної провідності $W_{ph}(\hbar\omega)$ прямує до δ -функції, тому для такого граничного переходу

$$K_L = \frac{\pi^2 k^2 T}{3h} T_{ph}(0) M_{ph}(0). \quad (89)$$

Для масивних провідників $M_{ph}(\hbar\omega) \rightarrow 0$ при $\hbar\omega \rightarrow 0$, проте, для нанорозмірних провідників завжди є скінченне число фононних мод.

У випадку балістичного транспорту $T_{ph} = 1$, і в цьому випадку можна очікувати, що

$$K_L = \frac{\pi^2 k^2 T}{3h} M_{ph}. \quad (90)$$

Саме цей результат було підтверджено експериментально на чотирьохмодовому нанорезисторі при $T < 0.8$ К [13]; результати вимірювань теплопровідності повністю збіглися з передбаченнями для одновимірних балістичних резисторів [26 – 28].

Квант теплопровідності

$$g_0 \equiv \pi^2 k^2 T / 3h \quad (86)$$

– це максимальна енергія, яка переноситься з розрахунку на одну фононну моду. Важливо, що квант теплопровідності не залежить від статистики частинок, які переносять тепло, він універсальний для ферміонів, бозонів і будь-яких еніонів/аніонів – гіпотетичних частинок у двовимірних системах, які мають незвичайні перестановочні властивості [29 – 31].

7. Висновки. У статті продемонстровано, що концепції, які використовуються для опису електронного транспорту, можуть бути успішно розповсюджені й на фононний транспорт. І в тому, і в другому випадку підхід Ландауера, узагальнений пізніше Датта і Лундстромом, дозволяє кількісно описати транспортні процеси

в провідниках будь-якої вимірності і при будь-яких режимах транспорту – від дифузійного до балістичного. Граткова теплопровідність і електронна провідність описуються дуже схожими за формою виразами. Існують, проте, дві суттєві відмінності, пов'язані з фізикою електронних і фононних процесів.

Перша відмінність стосується ширини зон дозволеної енергії. Для електронів дозволена зона набагато перевищує kT і при кімнатній температурі заселені тільки стани поблизу дна зони провідності. Ширина зони дозволених енергій для фононів – порядку kT і при кімнатній температурі майже всі акустичні моди в межах зони Бріллюена збуджені. Внаслідок цього дебаївська лінійна модель для акустичних мод є гіршим наближенням порівняно з широко застосовуваним параболічним законом дисперсії для електронів.

Друга суттєва відмінність пов'язана з тим, що у випадку електронів заселеність мод провідності, контрольована вікном провідності, залежить не тільки від температури, як це має місце для фононів, але й від розташування рівня Фермі. Саме з цієї причини електронна провідність різних матеріалів може змінюватися в дуже широких межах, на той час, коли теплопровідність змінюється в діапазоні всього кількох порядків.

На завершення наголосимо: стаття є наслідком прослуховування одним з нас (ЮОК) курсів лекцій «Near-Equilibrium Transport: Fundamentals and Applications» [1], прочитаних он-лайн в 2011 році проф. Марком Лундстромом (Mark Lundstrom), «Fundamentals of Nanoelectronics, Part I: Basic Concepts» [1], прочитаних он-лайн в 2012 і 2015 роках проф. Супрійо Датта (Supriyo Datta), а також «Thermal Energy at the Nanoscale», прочитаних у 2013 році Тімоті Фішером (Timothy Fisher) [18] в рамках ініціативи Purdue University / nanoHUB-U [www.nanohub.org/u]. В ній також використано напрацювання авторського курсу «Фізика конденсованого середовища», який інший автор (МВС) упродовж останніх років читає для магістрів радіофізичного факультету Київського національного університету імені Т. Г. Шевченка.

Авторі щиро вдячні Н. Ю. Кругляк за допомогу в роботі над статтею і в підготовці її до друку.

Список використаної літератури

- [1]. S. Datta, Lessons from Nanoelectronics: A New Perspective on Transport (Hackensack, New Jersey: World Scientific Publishing Company: 2012); www.nanohub.org/courses/FoN1; M. Lundstrom, C. Jeong, Near-Equilibrium Transport: Fundamentals and Applications (Hackensack, New Jersey: World Scientific Publishing Company: 2013); www.nanohub.org/resources/11763.
- [2]. Yu. O. Kruglyak, M. V. Strikha. Sens. elektron. mikrosist. tehnol., 12, №3, 4-27 (2015) (in Ukrainian).
- [3]. Yu. O. Kruglyak, M. V. Strikha. Sens. elektron. mikrosist. tehnol., 12, № 4, 5-18 (2015) (in Ukrainian).
- [4]. Yu. O. Kruglyak, M. V. Strikha. Sens. elektron. mikrosist. tehnol., 13, №1, 5-25 (2016) (in Ukrainian).
- [5]. Dzh. Zayman, Elektry i fonony. Teoriya yavleniy perenosa v tverdykh telakh (M: YYL: 1962) (in Russian).
- [6]. Dzh. Zayman, Printsipy teorii tverdogo tela (M: Vysshaya shkola: 1974) (in Russian).
- [7]. Ch. Kittel, Vvedenie v fiziku tverdogo tela (M: Nauka: 1978) (in Russian).
- [8]. N. Ashcroft, N. Mermin, Fizika tverdogo tela (M: Mir: 1979) (in Russian).
- [9]. M. Mohr, J. Maultzsch, E. Dobardžić, S. Reich, I. Milošević, M. Damnjanović, A. Bosak, M. Krisch, C. Thomsen, Phys. Rev. B, 76, N 3: 035439 (2007).
- [10]. A. V. Yeletskiy, I. M. Iskandarova, A. A. Knizhnik, D. N. Krasikov, UFN, 181, 227 (2011) (in Russian).
- [11]. M. I. Katsnelson, Graphene: Carbon in Two Dimensions (New York: Cambridge University Press: 2012).
- [12]. Yu. A. Kruglyak, Nanoelektronika «snizu – vverkh» (Odessa: TES: 2015) (in Russian).
- [13]. K. Schwab, E. A. Henriksen, J. M. Worlock, M. L. Roukes, Nature, 404, 974 (2000).
- [14]. C. Jeong, R. Kim, M. Luisier, S. Datta, M. Lundstrom, J. Appl. Phys., 107, 023707 (2010).
- [15]. Mark Lundstrom, Fundamentals of Carrier Transport (Cambridge UK: Cambridge University Press: 2012).
- [16]. C. Jeong, S. Datta, M. Lundstrom, J. Appl. Phys., 109, 073718 (2011).
- [17]. Yu. A. Kruglyak, N. Ye. Kruglyak, Fizich. obrazov. v vuzakh, 19, № 3: 99 (2013) (in Russian).
- [18]. Timothy S. Fisher, Thermal Energy at the Nanoscale (Hackensack, New Jersey: World Scientific Publishing Company: 2013); www.nanohub.org/courses/2.
- [19]. Yu. A. Kruglyak, N. Ye. Kruglyak, Fizich. obrazov. v vuzakh, 19, №. 2: 161 (2013) (in Russian).
- [20]. J. Callaway, Phys. Rev., 113, N 4: 1046 (1959).
- [21]. M. G. Holland, Phys. Rev., 132, N 6: 2461 (1963).
- [22]. C. Jeong, S. Datta, M. Lundstrom, J. Appl. Phys., 111, 093708 (2012).
- [23]. Gang Chen. Nanoscale Energy Transport and Conversion: A Parallel Treatment of Electrons, Molecules, Phonons, and Photons (New York: Oxford University Press: 2005).
- [24]. C. J. Glassbrenner, G. A. Slack, Phys. Rev., 134, N 4A, A1058 (1964).
- [25]. J. B. Pendry, J. Phys. A., 16, 2161 (1983).
- [26]. D. E. Angelescu, M. C. Cross, M. L. Roukes, Superlatt. Microstruct., 23, 673 (1998).
- [27]. L. G. C. Rego, G. Kirczenow, Phys. Rev. Lett., 81, 232 (1998).
- [28]. M. P. Blencowe, Phys. Rev. B., 59, 4992 (1999).
- [29]. L. G. C. Rego, G. Kirczenow, Phys. Rev. B., 59, 13080 (1999).
- [30]. I. V. Krive, E. R. Mucciolo, Phys. Rev. B., 60, 1429 (1999).
- [31]. C. M. Caves, P. D. Drummond, Rev. Mod. Phys., 66, 481 (1994).

Стаття надійшла до редакції 14.03.2016 р.

TRANSPORT OF HEAT BY PHONONS IN GENERALIZED LANDAUER – DATTA – LUNDSTROM MODEL

*Yu. A. Kruglyak, M. V. Strikha**

Odessa State Environmental University

E-mail: quantumnet@yandex.ua

** Taras Shevchenko National University of Kyiv*

V. E. Lashkaryov Institute of Semiconductor Physics NAS of Ukraine

E-mail: maksym_strikha@hotmail.com

Summary

On the basis of Landauer – Datta – Lundstrom transport model the generalized model of heat transfer by phonons is formulated in a tutorial article for the reseachers, university teachers and students. Similarly to the Fermi window for electron conductivity the concept of the Bose window for phonon conductivity is introduced and used to obtain the general expression for the lattice thermal conductivity with the quantum of thermoconductance appearing at the very beginning. The similarity and difference in the construction of the theory of electron conductivity and the theory of heat conduction is outlined. The thermal conductivity of the conductors, the physical sense of proportionality between the thermal conductivity and specific heat capacity at constant volume, the relationship between the transmission coefficient and the mean-free-path, the calculation of the number of phonon modes and density of phonon states, the Debye model of heat conductivity and scattering of phonons, the temperature dependence of the lattice thermal conductivity, the difference between the lattice thermal conductivity and electron conduction, and quantization of thermal conductivity are discussed.

It is demonstrated, that a concept used for the description of electronic transport can be successfully expanded for the case of phonons transport as well. In both cases the Landauer approach, generalized later by Datta and Lundstrom, enables quantitative description of conductors with all possible dimensions under all possible transport regimes – from ballistic to diffusive one. Lattice thermal conductivity and electronic conductivity are described by rather similar in their form expressions. However, there are two essential differences, connected with the physics of electronic and phonon processes.

The first one is connected with the widths of the band of allowed energies. This width for electrons is much greater than kT , therefore the states in the vicinity of conduction band bottom only are occupied at room temperature. On the contrary, the width of the allowed energies band for phonons is of kT order, and therefore almost all acoustic modes within Brillouin zone are excited. Therefore the linear Debye model for acoustic modes is not so good approximation as the widely used parabolic energy spectrum for electrons.

The second essential difference is that the occupation of conduction modes for electrons, controlled by conduction window, depends not on temperature only, as it takes place for phonons, but on Fermi level position as well. That is the reason why the electric conductivity of different materials varies in extremely wide range, while the thermal conductivity varies within a few orders of value only.

Keywords: phonon transport, quantum of thermoconductance, transmission coefficients, phonon modes, Debye model, phonon scattering

PACS numbers: 63.22.-m, 65.80.-g, 72.15.Jf, 72.20.Pa, 73.50.Lw, 74.25.fg, 84.60.Rb, 85.80.Fi

ТРАНСПОРТ ТЕПЛА ФОНОНАМИ В УЗАГАЛЬНЕНІЙ МОДЕЛІ ЛАНДАУЕРА – ДАТТА – ЛУНДСТРОМА

*Ю. О. Кругляк, М. В. Стріха**

Одеський державний екологічний університет,
E-mail: quantumnet@yandex.ua

* Київський національний університет ім.Т. Шевченка
Інститут фізики напівпровідників ім. В. Є. Лашкарьова НАН України
E-mail: maksym_strikha@hotmail.com

Реферат

У методичній статті, розрахованій на науковців, викладачів та студентів вищої школи, з позицій транспортної моделі Ландауера – Датта – Лундстрома побудовано узагальнену модель переносу тепла фононами. Аналогічно до фермівського вікна електронної провідності введено поняття бозевського вікна фононної провідності, через яке виведено загальний вираз для ґраткової теплопровідності, до якого від самого початку входить квант теплопровідності. Підкреслено подібність і відмінності в побудові теорії електронної провідності і теорії фононної теплопровідності. Докладно розглянуто теплопровідність провідників, розкрито фізичний зміст пропорційності між питомою теплопровідністю і питомою теплоємністю при постійному об'ємі, виведено зв'язок між коефіцієнтом проходження і середньою довжиною вільного пробігу, наведено алгоритм обчислення числа фононних мод і густини фононних станів, обговорено особливості дебаївської моделі теплопровідності і розсіювання фононів, температурну залежність ґраткової теплопровідності, відмінність між ґратковою теплопровідністю і електронною провідністю, квантування теплопровідності.

У статті продемонстровано, що концепції, які використовуються для опису електронного транспорту, можуть бути успішно розповсюджені й на фононний транспорт. І в тому, і в другому випадку підхід Ландауера, узагальнений пізніше Датта і Лундстромом, дозволяє кількісно описати транспортні процеси в провідниках будь-якої вимірності і при будь-яких режимах транспорту – від дифузійного до балістичного. Ґраткова теплопровідність і електронна провідність описуються дуже схожими за формою виразами. Існують, проте, дві суттєві відмінності, пов'язані з фізикою електронних і фононних процесів.

Перша відмінність стосується ширини зон дозволеної енергії. Для електронів дозволена зона набагато перевищує kT і при кімнатній температурі заселені тільки стани поблизу дна зони провідності. Ширина зони дозволених енергій для фононів – порядку kT і при кімнатній температурі майже всі акустичні моди в межах зони Бріллюена збуджені. Внаслідок цього дебаївська лінійна модель для акустичних мод є гіршим наближенням порівняно з широко застосовуваним параболічним законом дисперсії для електронів.

Друга суттєва відмінність пов'язана з тим, що у випадку електронів заселеність мод провідності, контрольована вікном провідності, залежить не тільки від температури, як це має місце для фононів, але й від розташування рівня Фермі. Саме з цієї причини електронна провідність різних матеріалів може змінюватися в дуже широких межах, на той час, коли теплопровідність змінюється в діапазоні всього кількох порядків.

Ключові слова: фононний транспорт, квант теплопровідності, коефіцієнт проходження, фононні моди, дебаївська модель, розсіювання фононів