

ФОКУСИРОВКА ФОНОНОВ И ТЕМПЕРАТУРНЫЕ ЗАВИСИМОСТИ ТЕПЛОПРОВОДНОСТИ КРЕМНИЕВЫХ НАНОПРОВОДОВ

И. Г. Кулеев, И. И. Кулеев*, С. М. Базарев*

*Институт физики металлов Уральского отделения Российской академии наук
620041, Екатеринбург, Россия*

Поступила в редакцию 6 августа 2013 г.

Исследовано влияние фокусировки фононов на анизотропию и температурные зависимости теплопроводности кремниевых нанопроводов в рамках трехмодовой модели Каллавея. Показано, что рассчитанные температурные зависимости теплопроводности кремниевых нанопроводов диаметрами более 50 нм в интервале от 20 до 300 К хорошо согласуются с экспериментальными данными. Определены температуры перехода от граничного рассеяния к объемным механизмам релаксации. Проанализировано изменение анизотропии теплопроводности нанопроводов с температурой. Показано, что длины свободного пробега фононов различных поляризаций для кремниевых нанопроводов в режиме граничного рассеяния существенно различаются и в значительной степени определяются эффектом фокусировки фононов. В направлениях фокусировки они достигают максимальных значений и превосходят длины пробега остальных колебательных мод. Однако для модели изотропной среды длины пробега фононов для различных поляризаций совпадают и полностью определяются геометрическими параметрами нанопроводов.

DOI: 10.7868/S0044451014020102

1. ВВЕДЕНИЕ

Интерес к исследованию фононного транспорта в нанопленках и нанопроводах значительно возрос в связи с развитием технологии наноструктурированных материалов [1–4]. Особенности фононного транспорта в таких материалах обусловлены тем, что хотя бы в одном из направлений длина свободного пробега фононов оказывается больше характерного размера наноструктуры или сравнимой с ним. Такую ситуацию принято называть режимом граничного рассеяния фононов. Известно, что для объемных кубических кристаллов тензор теплопроводности диагонален, а коэффициент теплопроводности изотропен — он не зависит от направления потока тепла относительно кристаллографических осей. В упруго-анизотропных кристаллах из-за неколлинеарности фазовой и групповой скоростей фононный поток, излучаемый точечным источником тепла, фокусируется вдоль определенных направлений в кристаллической решетке [5–7]. Эти направления могут различаться для фононов различных поляриза-

ций. При диффузном рассеянии фононов на границах для образцов конечных размеров эффект фокусировки, обусловленный упругой анизотропией кубического кристалла, приводит к зависимости теплопроводности от ориентации потока тепла относительно кристаллографических осей.

Как показали исследования [8], для кристаллов Si при низких температурах теплопроводность для направления [001] оказалась на 50 % больше, чем для направления [111], для CaF₂ наоборот — в направлении [001] она на 40 % меньше, чем в направлении [111]. Поэтому при определении теплопроводности кубического кристалла мы должны указывать ориентацию теплового потока относительно кристаллографических осей, $[J(\psi)]$: т. е. $\kappa(T) \rightarrow \kappa_{[J(\psi)]}(T)$ (ψ — угол, определяющий направление теплового потока для выбранного сечения кубического кристалла). Выше максимума теплопроводности, когда длина свободного пробега становится меньше поперечных размеров образца, теплопроводность кубического кристалла становится изотропной. Если для объемных кристаллов кремния анизотропия теплопроводности в режиме граничного рассеяния [8] проявляется при температурах меньших 30–40 К, то для

*E-mail: kuleev@imp.uran.ru

кремниевых нанопроводов диаметром около 50 нм, согласно оценкам [2], граничное рассеяние фононов остается эффективным вплоть до комнатных температур.

В работе [1] были измерены температурные зависимости теплопроводности в монокристаллических кремниевых нанопроводах диаметрами от 22 до 115 нм для направления [111] в интервале от 20 до 300 К. Для нанопроводов с диаметрами 56 и 115 нм в интервале температур от 20 до 60 К теплопроводность следовала зависимости $\kappa(T) \propto T^3$, как и теплоемкость объемных образцов в теории Дебая. Оценки [2] также показывают, что при расчете теплопроводности этих нанопроводов диаметрами большими 50 нм может быть использован фононный спектр для объемных кристаллов Si.

В настоящей работе проанализировано влияние фокусировки фононов на анизотропию и температурные зависимости теплопроводности кремниевых нанопроводов, экспериментально исследованных в работе [1]. Следует отметить, что в значительном числе публикаций, посвященных исследованию фононного транспорта в пленках и нанопроводах, эффекты, связанные с фокусировкой фононов, не учитывались. Так, например, в работах [9–11] для граничного рассеяния в пленках и нанопроводах на основе кремния и алмаза использовалась теория Казимира, справедливая только для модели изотропной среды [12], а при изложении экспериментальных результатов по теплопроводности пленок и нанопроводов в обзорах [3, 4] не указывалась ориентация теплового потока относительно кристаллографических осей. Мы покажем, что использование модели изотропной среды для расчета длин свободного пробега фононов в кремниевых нанопроводах является некорректным.

С другой стороны, расчеты температурных зависимостей теплопроводности методом молекулярной динамики для кубических кристаллов в симметричных направлениях [13, 14] привели для анизотропии теплопроводности к взаимно противоположным результатам. Например, в работе [13] получено, что теплопроводность алмазных нанопроводов в направлениях [011] значительно больше, чем в направлениях [001] и [111]. Этот результат противоречит оценкам [8], которые показали, что максимальная теплопроводность для алмаза должна наблюдаться в направлении [001], а минимальная — [011]. Согласно анализу [15–17], максимальные значения теплопроводности для кубических кристаллов германия, кремния и алмаза в низкотемпературной области должны наблюдаться в направлениях типа [001].

Они обусловлены медленной поперечной модой, которая фокусируется именно в этом направлении. В работе [14] для анизотропии теплопроводности получены результаты, качественно согласующиеся с нашими оценками и результатами работы [8].

Однако, согласно расчетам [14], значительная анизотропия теплопроводности имеет место при температурах, значительно превышающих температуру максимума теплопроводности. Это противоречит результатам [8], из которых следует, что при повышении температуры выше максимума теплопроводности и при переходе к объемным механизмам релаксации анизотропия теплопроводности быстро исчезает. Поэтому результаты этих работ нуждаются в проверке в рамках феноменологического метода Казимира–МакКарди [8, 12]. Необходимо также дать корректную оценку температуры перехода от доминирующей роли граничного рассеяния к объемным механизмам релаксации, для того чтобы оценить верхнюю границу анизотропии теплопроводности.

В настоящей работе расчет теплопроводности кремниевых нанопроводов для различных направлений теплового потока проведен в трехмодовой модели Каллавея [15–17] в рамках стандартного релаксационного метода [18–20]. Показано, что использование времен релаксации фононов для рассеяния на границах образцов с учетом фокусировки фононов [21–23], а также параметров ангармонического рассеяния, найденных для объемных кристаллов Si, позволило адекватно описать температурные зависимости теплопроводности кремниевых нанопроводов диаметрами 56 и 115 нм в широком температурном интервале от 20 до 300 К. Исследовано также изменение угловых зависимостей теплопроводности и вкладов фононов различных поляризации в зависимости от температуры для кремниевых нанопроводов при вращении градиента температуры (оси образца) в диагональной плоскости. Показано, что анизотропия теплопроводности в кремниевых нанопроводах в температурном интервале 20–300 К обеспечивается, главным образом, медленной поперечной модой, которая фокусируется в направлениях типа [001], приводя к максимуму теплопроводности в этом направлении.

2. АНИЗОТРОПИЯ ДЛИН СВОБОДНОГО ПРОБЕГА ФОНОНОВ В КРЕМНИЕВЫХ НАНОПРОВОДАХ КОНЕЧНОЙ ДЛИНЫ ПРИ НИЗКИХ ТЕМПЕРАТУРАХ

Рассмотрим фононный транспорт в цилиндрических нанопроводах длиной L и диаметром D при

температурах, гораздо меньших температуры Дебая ($T \ll T_D$), когда применима модель анизотропного континуума. Средняя длина свободного пробега фононов Λ , а также длины пробега Λ^λ для фононов поляризаций λ при диффузном рассеянии фононов на границах определены в работе [21]. С учетом фокусировки фононов для направления потока тепла $[J(\psi)]$ они имеют вид

$$\Lambda_{[J(\psi)]} = \frac{3}{4\pi} \frac{1}{\sum_{\lambda 1} \langle (S^{\lambda 1})^{-2} \rangle} \times \sum_{\lambda} \int d\Omega_{\mathbf{q}} \frac{I_{[J(\psi)]}^{\lambda}(\theta, \varphi)}{(S^{\lambda}(\theta, \varphi))^3}, \quad (1)$$

$$\Lambda_{[J(\psi)]}^{\lambda} = \frac{3}{4\pi} \frac{1}{\langle (S^{\lambda})^{-2} \rangle} \int d\Omega_{\mathbf{q}} \frac{I_{[J(\psi)]}^{\lambda}(\theta, \varphi)}{(S^{\lambda}(\theta, \varphi))^3},$$

где $d\Omega_{\mathbf{q}} = \sin \theta d\theta d\varphi$, $\theta \in [0, \pi]$, $\varphi \in [0, 2\pi]$, θ и φ — угловые переменные вектора \mathbf{q} . Фазовая скорость $S^{\lambda}(\theta, \varphi)$ в модели анизотропного континуума имеет вид [21]

$$S^{\lambda}(\theta, \varphi) = \sqrt{\frac{c_{44}}{\rho}} \sqrt{1 + \frac{c_{11} - c_{44}}{c_{44}} \left(\frac{1}{3} + Z_{\lambda} \right)}, \quad (2)$$

где

$$Z_{t_1, t_2} = \frac{2}{3} r \cos \left(\frac{Q}{3} \mp \frac{2\pi}{3} \right), \quad Z_l = \frac{2}{3} r \cos \frac{Q}{3},$$

$$Q = \arccos p,$$

$$p = r^{-3} [1 + 4.5(k^2 - 1)\xi + 13.5\eta(k - 1)^2(2k + 1)],$$

$$r = \sqrt{1 + 3(k^2 - 1)\xi}, \quad k = \frac{c_{12} + c_{44}}{c_{11} - c_{44}},$$

c_{ij} — упругие модули второго порядка, ρ — плотность кристалла, $\xi = n_1^2 n_2^2 + n_1^2 n_3^2 + n_2^2 n_3^2$ и $\eta = n_1^2 n_2^2 n_3^2$ — кубические гармоники, $\mathbf{n} = \mathbf{q}/q = (\sin \theta \cos \varphi, \sin \theta \sin \varphi, \cos \theta)$ — единичный волновой вектор фонона.

Индексы поляризации фононов λ выберем следующим образом: индекс l будет соответствовать продольным фононам, а t_1 и t_2 — соответственно «быстрой» (верхней) и «медленной» (нижней) поперечным колебательным модам. Релаксационные функции $I_{[J(\psi)]}^{\lambda}(\theta, \varphi)$ при диффузном рассеянии на границах цилиндрических образцов конечной длины рассчитаны в работе [21]. Они являются кусочно-гладкими функциями углов для двух интервалов, граница между которыми определяется уравнением

$$\Delta^{\lambda}(\psi, \theta, \varphi) = \frac{L}{2D} \frac{V_{g\perp}^{\lambda}}{|V_{g3}^{\lambda}|} = 1,$$

где $V_{g3}^{\lambda} = V_{g3}^{\lambda}(\psi, \theta, \varphi)$ и $V_{g\perp}^{\lambda} = V_{g\perp}^{\lambda}(\psi, \theta, \varphi)$ — проекции групповой скорости на направление градиента температуры и перпендикулярное ему. Величина $\Delta^{\lambda}(\psi, \theta, \varphi)$ зависит от соотношения между геометрическим параметром $k_0 = L/2D$ и отношением компонент групповой скорости. При выполнении неравенства $\Delta^{\lambda}(\psi, \theta, \varphi) < 1$ функции $I_{[J(\psi)]}^{\lambda}(\theta, \varphi)$ имеют вид

$$I_{[J(\psi)]}^{\lambda}(\theta, \varphi) = \frac{4D}{3\pi} \frac{(V_{g3}^{\lambda})^2}{V_{g\perp}^{\lambda}} \left\{ 1 - \frac{3}{2} \left[(1 + (\Delta^{\lambda})^2) \times \sqrt{1 - (\Delta^{\lambda})^2} - \frac{1}{3} \left(\sqrt{1 - (\Delta^{\lambda})^2} \right)^3 - \Delta^{\lambda} \left(\arccos \Delta^{\lambda} + \Delta^{\lambda} \sqrt{1 - (\Delta^{\lambda})^2} \right) \right] \right\}. \quad (3)$$

При выполнении противоположного неравенства $\Delta^{\lambda}(\psi, \theta, \varphi) > 1$ имеем

$$I_{[J(\psi)]}^{\lambda}(\theta, \varphi) = \frac{4D}{3\pi} \frac{(V_{g3}^{\lambda})^2}{V_{g\perp}^{\lambda}}, \quad (4)$$

$$V_{g\perp}^{\lambda} = \sqrt{(V_g^{\lambda})^2 - (V_{g3}^{\lambda})^2}.$$

Групповая скорость является важной характеристикой, определяющей фокусировку фононов и фононный транспорт. Для произвольного направления волнового вектора фонона она может быть представлена в виде [21]

$$\mathbf{V}_g^{\lambda}(\mathbf{q}) = \frac{d\omega(\mathbf{q})}{d\mathbf{q}},$$

$$\mathbf{V}_g^{\lambda}(\theta, \varphi) = S^{\lambda}(\theta, \varphi) \tilde{\mathbf{V}}_g^{\lambda}(\theta, \varphi), \quad (5)$$

$$\tilde{\mathbf{V}}_g^{\lambda}(\theta, \varphi) = \mathbf{n} + S_{\theta}^{\lambda} \mathbf{e}_{\theta} + S_{\varphi}^{\lambda} \mathbf{e}_{\varphi}.$$

Здесь $\mathbf{e}_{\theta} = (\cos \theta \cos \varphi, \cos \theta \sin \varphi, -\sin \theta)$, $\mathbf{e}_{\varphi} = (-\sin \varphi, \cos \varphi, 0)$. Векторы \mathbf{n} , \mathbf{e}_{θ} и \mathbf{e}_{φ} образуют взаимно ортогональную тройку единичных векторов. Величины $S_{\theta}^{\lambda}(\theta, \varphi)$ и $S_{\varphi}^{\lambda}(\theta, \varphi)$ определяются выражениями

$$S_{\theta}^{\lambda}(\theta, \varphi) = \frac{1}{S^{\lambda}} \frac{\partial S^{\lambda}}{\partial \theta}, \quad S_{\varphi}^{\lambda}(\theta, \varphi) = \frac{1}{\sin \theta} \frac{1}{S^{\lambda}} \frac{\partial S^{\lambda}}{\partial \varphi}. \quad (6)$$

Зависимости компоненты V_{g3}^{λ} от угла ψ при вращении теплового потока в диагональной плоскости (направление градиента температур и продольной оси нанопровода совпадают) определяются соотношениями

$$\nabla_r T = |\Delta_r T| \left(\frac{\sin \psi}{\sqrt{2}}, \frac{\sin \psi}{\sqrt{2}}, \cos \psi \right), \quad (7)$$

$$V_{g3}^{\lambda} = (V_{gx}^{\lambda} + V_{gy}^{\lambda}) \frac{\sin \psi}{\sqrt{2}} + V_{gz}^{\lambda} \cos \psi.$$

Из формул (5) следует, что компоненты групповой скорости фононов в декартовой системе координат имеют вид

$$\begin{aligned} V_{gx}^\lambda(\theta, \varphi) &= S^\lambda(\theta, \varphi) (\sin \theta \cos \varphi + \\ &\quad + S_\theta^\lambda \cos \theta \cos \varphi - S_\varphi^\lambda \sin \varphi), \\ V_{gy}^\lambda(\theta, \varphi) &= S^\lambda(\theta, \varphi) (\sin \theta \sin \varphi + \\ &\quad + S_\theta^\lambda \cos \theta \sin \varphi + S_\varphi^\lambda \cos \varphi), \\ V_{gz}^\lambda(\theta, \varphi) &= S^\lambda(\theta, \varphi) (\cos \theta - S_\theta^\lambda \sin \theta). \end{aligned} \quad (8)$$

Формулы (1)–(8) дают возможность проанализировать особенности фононного транспорта в кремниевых нанопроводах при низких температурах.

В изотропных средах фазовые скорости S^λ фононов не зависят от углов θ и φ . Поэтому, как следует из формул (1)–(4), длины пробега для фононов различных поляризацій не только равны друг другу, но и средней длине пробега

$$\begin{aligned} \Lambda^l = \Lambda^t = \Lambda &= \frac{3D}{4\pi} \int d\Omega_q \tilde{I}(\theta, \varphi), \\ \tilde{I}(\theta, \varphi) &= \frac{I^\lambda(\theta, \varphi)}{DS^\lambda}. \end{aligned} \quad (9)$$

Из выражения (3) для функции $\tilde{I}(\theta, \varphi)$ при $\Delta^\lambda(\psi, \theta, \varphi) < 1$ следует

$$\begin{aligned} \tilde{I}(\theta, \varphi) &= \frac{4 \cos^2 \theta}{3\pi |\sin \theta|} \left\{ 1 - \frac{3}{2} \left[(1 + \Delta^2) \sqrt{1 - \Delta^2} - \right. \right. \\ &\quad \left. \left. - \frac{1}{3} \left(\sqrt{1 - \Delta^2} \right)^3 - \Delta \left(\arccos \Delta + \Delta \sqrt{1 - \Delta^2} \right) \right] \right\}, \end{aligned} \quad (10)$$

где $\Delta = (L/2D) |\operatorname{tg} \theta|$.

Для цилиндрического стержня бесконечной длины из выражения (9) для изотропной среды получается результат Казимира [12]: $\Lambda_C = D$. Из формул (9), (10) следует, что длины пробега фононов в изотропных средах не зависят от упругих модулей, а полностью определяются геометрическими параметрами образцов. В противоположность этому, в упруго-анизотропных кристаллах длины свободного пробега фононов разных поляризацій различаются и в значительной степени определяются направлением теплового потока в кристалле. Обратим внимание на важный результат нашего анализа, следующий из аналитического решения задачи о диффузном рассеянии фононов на границах цилиндрических образцов [21]: коэффициенты теплопроводности $\tilde{\kappa}_{[J(\psi)]}$ в режиме граничного рассеяния и длины свободного пробега $\tilde{\Lambda}_{[J(\psi)]}$, нормированные на диаметр D , зави-

Таблица 1. Длины Казимира $\tilde{\Lambda}_{C[J(\psi)]}^\lambda$ для фононов различных поляризацій в симметричных направлениях и средняя длина пробега $\tilde{\Lambda}_{C[J(\psi)]}$ в кремниевых нанопроводах

Направление	l	t_1	t_2	$\tilde{\Lambda}_{C[J(\psi)]}$
[001]	0.75	1.14	2.46	1.71
[110]	1.09	1.74	0.79	1.19
[111]	1.27	0.70	1.16	1.00

сят не от двух геометрических параметров образца (D и L), а только от отношения $k_0 = L/2D$:

$$\begin{aligned} \kappa_{[J(\psi)]}(T, L, D) &= D \tilde{\kappa}_{[J(\psi)]}(T, k_0), \\ \Lambda_{[J(\psi)]}(L, D) &= D \tilde{\Lambda}_{[J(\psi)]}(k_0). \end{aligned} \quad (11)$$

Формулы (11) представляют интерес для экспериментальной проверки применимости метода Казимира–МакКарди [8, 12] при исследовании фононного транспорта в упруго-анизотропных кристаллах.

Для иллюстрации этого результата на рис. 1 приведены зависимости длин пробега от параметра k_0 , рассчитанные в модели изотропной среды, $\tilde{\Lambda}_{iso}(k_0)$ (штриховая кривая 1) и для кремниевых нанопроводов в симметричных направлениях, $\tilde{\Lambda}_{[J(\psi)]}(k_0)$ (сплошные линии). Как видно из рис. 1, длины свободного пробега для фононов различных поляризацій в симметричных направлениях значительно отличаются как друг от друга, так и от значений, рассчитанных в модели изотропной среды. Интервал интенсивного роста длин пробега фононов с увеличением длин нанопроводов ограничен значениями параметра $k_0 \approx 10$. При $k_0 > 10^2$ зависимости длин пробега фононов выходят на насыщение (см. рис. 1). Они стремятся к длинам Казимира, которые, в отличие от изотропной среды, во-первых, значительно различаются для фононов различных поляризацій, а во-вторых, они существенно зависят от направления теплового потока. Как видно из табл. 1, для кремниевых нанопроводов длины Казимира достигают максимальных значений в направлениях фокусировки фононов, в которых они превышают значение для изотропной среды $\tilde{\Lambda}_{C iso} = 1$: например,

$$\tilde{\Lambda}_{C[111]}^l = 1.27, \quad \tilde{\Lambda}_{C[011]}^{t_1} = 1.74, \quad \tilde{\Lambda}_{C[001]}^{t_2} = 2.46.$$

Минимальные значения длин Казимира реализуются в направлениях дефокусировки, в которых они оказываются заметно меньше, чем для изотропных сред: например,

$$\tilde{\Lambda}_{C[001]}^l = 0.75, \quad \tilde{\Lambda}_{C[111]}^{t_1} = 0.70, \quad \tilde{\Lambda}_{C[011]}^{t_2} = 0.79.$$

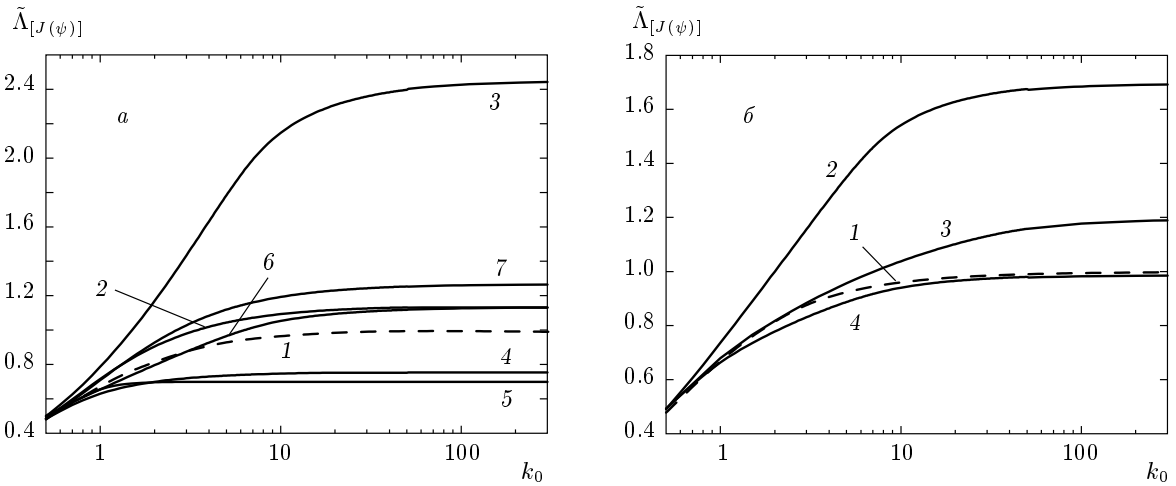


Рис. 1. Зависимости нормированных длин свободного пробега фононов $\tilde{\Lambda}_{[J(\psi)]}$ и $\tilde{\Lambda}_{[J(\psi)]}^\lambda$ от параметра k_0 : *a* — кривые 1 — $\tilde{\Lambda}_{iso}(k_0)$; 2, 5 — для моды t_1 ; 3, 6 — для моды t_2 ; 4, 7 — для моды l (2, 3, 4 — для направления [001]; 5, 6, 7 — для направления [111]); *б* — кривые 1 — $\tilde{\Lambda}_{iso}(k_0)$; 2 — $\tilde{\Lambda}_{[001]}$; 3 — $\tilde{\Lambda}_{[110]}$; 4 — $\tilde{\Lambda}_{[111]}$

Отметим, что для каждой моды в зависимости от направления они могут быть как больше, так и меньше значения $\tilde{\Lambda}_{iso}$. Однако средняя длина Казимира $\tilde{\Lambda}_{C[J(\psi)]}$ в кремниевых нанопроводах для направления [111] совпадает с величиной $\tilde{\Lambda}_{iso}$, а для направления [001] она оказывается больше нее в 1.71 раза.

Поскольку для изотропной среды длины свободного пробега фононов в режиме граничного рассеяния полностью определяются геометрическими параметрами нанопроводов, они могут быть использованы в качестве удобной системы для сравнения величин $\tilde{\Lambda}_{[J(\psi)]}(k_0)$ в упруго-анизотропных кристаллах при изменении направления теплового потока или при сравнении длин пробега в нанопроводах из различных материалов с одинаковыми геометрическими параметрами. В отличие от изотропных сред, длины свободного пробега фононов в кремниевых нанопроводах конечной длины в значительной степени определяются эффектом фокусировки фононов. Они достигают максимальных значений в направлениях фокусировки для каждой моды и в этом направлении превышают длины пробега остальных колебательных мод (см. рис. 1*a*). Так, например, медленная поперечная мода фокусируется в направлениях типа [001], и при $k_0 = 100$ длина ее пробега $\tilde{\Lambda}_{[001]}^{t_2}$ (кривая 3) превосходит значения $\tilde{\Lambda}_{[001]}^{t_1}$ и $\tilde{\Lambda}_{[001]}^l$ соответственно в 3.2 и 2.1 раза (кривые 4 и 2). Продольные фононы фокусируются в направлениях [111], поэтому при $k_0 = 100$ длины пробега

$\tilde{\Lambda}_{[111]}^l(k_0)$ (кривая 7) в нанопроводах оказываются больше, чем $\tilde{\Lambda}_{[001]}^{t_1}$ и $\tilde{\Lambda}_{[001]}^{t_2}$, соответственно в 1.8 и 1.1 раза (кривые 5 и 6). Как следует из рис. 1*б*, средние длины пробега фононов для кремниевых нанопроводов имеют максимальные значения в направлениях [001], а минимальные — в направлениях [111]. При этом длины пробега фононов в направлениях [001] и [011] для кремниевых нанопроводов превышают значения $\tilde{\Lambda}_{iso}(k_0)$, тогда как для направлений [111] они оказываются меньше, чем для изотропной модели. Проведенный в этом разделе анализ показал, что использование модели изотропной среды в [9–11] для анализа фононного транспорта в кремниевых нанопроводах является некорректным.

3. МЕХАНИЗМЫ РЕЛАКСАЦИИ ФОНОНОВ И ТЕПЛОПРОВОДНОСТЬ КРЕМНИЕВЫХ НАНОПРОВОДОВ

Решеточную теплопроводность кристаллов кремния в трехмодовой модели Каллавея [15–17] можно представить в виде аддитивной суммы диффузионного и дрейфового вкладов (см. Приложение). Выражения для этих вкладов с учетом фокусировки фононов для направления потока тепла $[J(\psi)]$ имеют вид

$$\begin{aligned} \kappa_{dif[J(\psi)]} &= \frac{k_B q_T^3}{4(2\pi)^3} \sum_{\lambda} \int_{-1}^1 d(\cos \theta) \times \\ &\times \int_0^{2\pi} d\varphi y^3 \int_0^1 \frac{(V_{g3}^\lambda)^2 (z^\lambda)^2 x^2}{\nu_{[J(\psi)]}^\lambda \operatorname{sh}^2(z^\lambda/2)} dx, \quad (12) \\ \kappa_{dr[J(\psi)]}^{(1)} &= \frac{k_B q_T^3}{12(2\pi)^3} \sum_{\lambda} B_{[J(\psi)]}^{(1)}(T) \Psi_{N[J(\psi)]}^\lambda. \end{aligned}$$

Обозначения приведены в Приложении. В полную скорость релаксации фононов $\nu_{[J(\psi)]}^\lambda(q)$ дают вклад резистивные $\nu_{R[J(\psi)]}^\lambda(q)$ и нормальные $\nu_N^\lambda(q)$ процессы релаксации фононов [18–20]. В качестве резистивных процессов рассеяния рассматривается рассеяние фононов на дефектах (ν_{iso}^λ), границах образца ($\nu_{B[J(\psi)]}^\lambda(q)$) и в процессах фонон-фононного переброса ($\nu_U^\lambda(q)$). Нормальные процессы обуславливают дрейфовый вклад в теплопроводность. При вычислении теплопроводности нанопроводов спектр тепловых фононов, определенный из данных по неупругому рассеянию нейтронов для симметричных направлений [24], аппроксимируется полиномом седьмой степени по приведенному волновому вектору фонона x , а при экстраполяции спектра на всю зону Бриллюэна используется разложение по кубическим гармоникам (подробнее см. работу [23]). Эта аппроксимация сохраняет кубическую симметрию и позволяет анализировать изменение фокусировки фононов при переходе от длинноволнового ($x \ll 1$) к коротковолновому ($x \sim 1$) пределу. В длинноволновом пределе $x \ll 1$ она переходит в модель анизотропного континуума, в которой анизотропия спектра определяется фазовой скоростью $S^\lambda(\theta, \varphi)$ (см. формулу (2)).

При расчете теплопроводности использовались аналитические выражения для скоростей релаксации фононов при диффузном рассеянии на границах цилиндрических образцов [21]. Они являются кусочно-гладкими функциями углов для двух областей. Граница между ними зависит от соотношения между компонентами групповой скорости и геометрическим параметром $k_0 = L/2D$. Она определяется значением параметра $\Delta^\lambda(\psi, x, \theta, \varphi) = 1$. При $\Delta^\lambda(\psi, x, \theta, \varphi) \leq 1$ скорости релаксации фононов на границах имеют вид [21]

$$\begin{aligned} \nu_{B[J(\psi)]}^\lambda(x, \theta, \varphi) &= \frac{3\pi V_{g\perp}^\lambda}{4D} \left\{ 1 - \frac{3}{2} \left[(1 + (\Delta^\lambda)^2) \times \right. \right. \\ &\times \sqrt{1 - (\Delta^\lambda)^2} - \frac{1}{3} \left(\sqrt{1 - (\Delta^\lambda)^2} \right)^3 - \\ &\left. \left. - \Delta^\lambda \left(\arccos \Delta^\lambda + \Delta^\lambda \sqrt{1 - (\Delta^\lambda)^2} \right) \right] \right\}^{-1}, \quad (13) \end{aligned}$$

а при выполнении противоположного неравенства, $\Delta^\lambda(\psi, x, \theta, \varphi) > 1$, —

$$\nu_{B[J(\psi)]}^\lambda(x, \theta, \varphi) = \frac{3\pi V_{g\perp}^\lambda}{4D}. \quad (14)$$

Учет дисперсии фононов приводит к тому, что групповая скорость, параметр $\Delta^\lambda(\psi, x, \theta, \varphi)$, а также скорости релаксации $\nu_{B[J(\psi)]}^\lambda$ в формулах (13) и (14) зависят не только от углов ψ, θ, φ , но и от приведенного волнового вектора фонона x , т. е.

$$\mathbf{V}_g^\lambda = \mathbf{V}_g^\lambda(x, \psi, \theta, \varphi), \quad \nu_{B[J(\psi)]}^\lambda = \nu_{B[J(\psi)]}^\lambda(x, \theta, \varphi).$$

Проекция групповой скорости на направление градиента температуры $V_{g3}^\lambda = V_{g3}^\lambda(x, \psi, \theta, \varphi)$ при учете дисперсии также определяется формулой (7). Однако компоненты групповой скорости фононов, необходимые для расчета температурных зависимостей теплопроводности кремниевых нанопроводов, в декартовой системе координат имеют вид

$$\begin{aligned} V_{gx}^\lambda(x, \theta, \varphi) &= S^\lambda(\theta, \varphi) \{ V_n^\lambda(x, \theta, \varphi) \sin \theta \cos \varphi + \\ &+ S_\theta^\lambda(x, \theta, \varphi) \cos \theta \cos \varphi - S_\varphi^\lambda(x, \theta, \varphi) \sin \varphi \}, \\ V_{gy}^\lambda(x, \theta, \varphi) &= S^\lambda(\theta, \varphi) \{ V_n^\lambda(x, \theta, \varphi) \sin \theta \sin \varphi + \\ &+ S_\theta^\lambda(x, \theta, \varphi) \cos \theta \sin \varphi + S_\varphi^\lambda(x, \theta, \varphi) \cos \varphi \}, \quad (15) \\ V_{gz}^\lambda(x, \theta, \varphi) &= S^\lambda(\theta, \varphi) \{ V_n^\lambda(x, \theta, \varphi) \cos \theta - \\ &- S_\theta^\lambda(x, \theta, \varphi) \sin \theta \}. \end{aligned}$$

Функции $V_n^\lambda(x, \theta, \varphi)$, $S_\theta^\lambda(x, \theta, \varphi)$ и $S_\varphi^\lambda(x, \theta, \varphi)$ являются компонентами групповой скорости фононов в сферической системе координат при учете дисперсии и нормированы на фазовую скорость (подробнее см. работу [23]).

Следует отметить, что при измерении температурных зависимостей теплопроводности [8] объемные образцы кремния предварительно обрабатывались наждаком, для того чтобы обеспечить диффузное рассеяние фононов границами. Нами показано, что использование выражений для скоростей релаксации [21, 22] позволило адекватно описать экспериментальные данные по теплопроводности кристаллов кремния с квадратным и прямоугольным сечениями для различных направлений градиента температуры и боковых граней образцов во всем исследованном интервале температур. Если не учитывать частичную зеркальность отражения фононов, то при низких температурах результаты расчета теплопроводности нанопровода диаметром 115 нм располагаются на 26 % ниже экспериментальных данных [1] (см. ниже рис. 2). Учет зеркальности отражения фононов проводится обычным образом [19, 20, 25], и

$$\tilde{\nu}_{B[J(\psi)]}^\lambda(x, \theta, \varphi) = \frac{1-P}{1+P} \nu_{B[J(\psi)]}^\lambda(x, \theta, \varphi). \quad (16)$$

Далее мы покажем, что при учете фактора зеркальности $P = 0.15$ результаты расчета теплопроводности нанопроволок в низкотемпературной области согласуются с экспериментальными данными [1]. Зависимости теплопроводности от ориентации градиента температуры относительно осей кристалла, $[J(\psi)]$, определяются величинами компонент групповой скорости фононов $V_{g3}^\lambda(\psi)$ и $V_{g\perp}^\lambda(\psi)$, которые входят непосредственно в теплопроводность и в скорости релаксации $\nu_{B[J(\psi)]}^\lambda$.

Выражение для скорости релаксации фононов на изотопическом беспорядке в кубических кристаллах, согласно работе [26], имеет вид

$$\nu_{iso}^\lambda(\omega_q^\lambda) = \frac{\pi}{6} g V_0 (\omega_q^\lambda)^2 D_{ph}(\omega_q^\lambda). \quad (17)$$

Здесь V_0 — объем, приходящийся на один атом, g — фактор изотопического беспорядка, $g = \sum_i C_i (\Delta M_i / \bar{M})^2$, $\Delta M = M_i - \bar{M}$, M_i — масса i -го изотопа, $\bar{M} = \sum_i C_i M_i$ — средняя масса изотопной композиции, а C_i — концентрация i -го изотопа ($g = 2.01 \cdot 10^{-4}$ для Si^{nat}), $D_{ph}(\omega)$ — плотность фононных состояний. В модели анизотропного континуума выражение (17) для Si можно представить в виде [27]

$$\nu_{iso}^\lambda \approx A_{iso} (Tz^\lambda)^4, \quad A_{iso} = \frac{gV_0}{12\pi} \left(\frac{k_B}{\hbar} \right)^4 \Phi, \quad (18)$$

$$\Phi \approx 14.5 \cdot 10^{-18} \left(\frac{c}{\text{см}} \right)^3.$$

Для скорости релаксации фононов в трехфононных процессах переброса используется выражение [19, 20, 28]

$$\nu_U^\lambda = A_U^\lambda (z^\lambda)^2 T^3 \exp(-C_U^\lambda/T). \quad (19)$$

Для кристаллов Si параметры A_U^λ , C_U^λ приведены в табл. 2 (см. также [17, 20, 28]). Для продольных фононов основным механизмом N -процессов является механизм Херринга [29], а для поперечных фононов — механизм Ландау–Румера [30]:

$$\nu_N^l = A_{LTT}^N T^5 (z^l)^2, \quad \nu_N^t = A_{TLL}^N T^5 z^t. \quad (20)$$

В этих механизмах участвуют фононы различных поляризаций, поэтому дрейфовый вклад в теплопроводность рассчитывается в первом из рассмотренных в Приложении вариантов. Для значений подгоночных параметров, приведенных в табл. 2, частота релаксации поперечных фононов в N -процессах на три порядка меньше, чем продольных. Нетрудно убедиться, что во всей температурной области для поперечных фононов выполняется неравенство

$\nu_N^l(q) \ll \nu_R^t(q)$, и их вклад в теплопроводность определяется диффузионным движением. Для продольных фононов отношение ν_N^l/ν_R^t в интервале температур $20 \text{ К} < T < 100 \text{ К}$ меньше единицы, однако при более высоких температурах оно оказывается значительно больше единицы. Поэтому для них необходимо учитывать дрейфовый вклад в теплопроводность.

4. РЕЗУЛЬТАТЫ ЧИСЛЕННОГО АНАЛИЗА

Проанализируем температурные зависимости теплопроводности кремниевых нанопроводов [1] диаметрами $D = 115 \text{ нм}$ и $D = 56 \text{ нм}$, длиной $L = 3 \text{ мкм}$ для направления теплового потока и оси нанопроводов вдоль [111]. Для иллюстрации влияния различных механизмов релаксации на температурные зависимости теплопроводности нанопроводов в различных температурных интервалах на рис. 2 приведены результаты расчета для значений подгоночных параметров, приведенных в табл. 2. Как отмечалось в работе [1], при температурах 20–60 К в режиме граничного рассеяния ($\nu^\lambda = \nu_B^\lambda$) теплопроводность следует зависимости

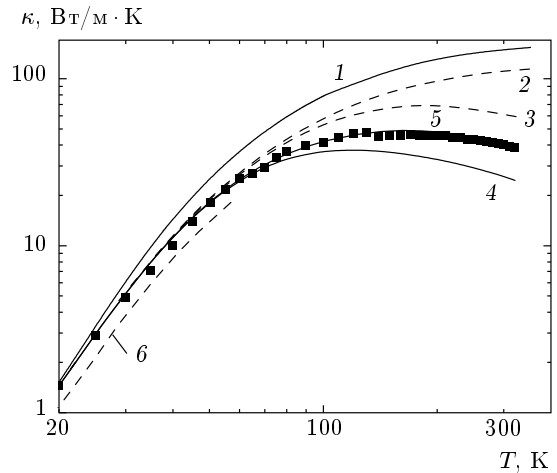


Рис. 2. Температурные зависимости теплопроводности нанопровода ($D = 115 \text{ нм}$, $L = 3 \text{ мкм}$, $P = 0.15$) для направления градиента температуры [111] при включении различных механизмов рассеяния фононов: 1 — режим граничного рассеяния $\nu = \tilde{\nu}_{B[111]}^\lambda$; 2 — $\nu = \tilde{\nu}_{B[111]}^\lambda + \nu_{iso}$; 3 — $\nu = \tilde{\nu}_{B[111]}^\lambda + \nu_{iso} + \nu_U$; 4 — вклад диффузионного движения, $\kappa_{dif}[111](T)$; 5 — полная теплопроводность; 6 — режим граничного рассеяния при $P = 0$ ($\nu = \nu_{B[111]}^\lambda$). Символы — экспериментальные данные работы [1]

Таблица 2. Параметры, определяющие релаксацию фононов в кремниевых нанопроводах

$A_N^l, \text{K}^{-5} \cdot \text{c}^{-1}$	$A_N^t, \text{K}^{-5} \cdot \text{c}^{-1}$	$A_u^l, \text{K}^{-3} \cdot \text{c}^{-1}$	$A_u^{t_1}, \text{K}^{-3} \cdot \text{c}^{-1}$	$A_u^{t_2}, \text{K}^{-3} \cdot \text{c}^{-1}$	C_u^l, K	C_u^t, K
0.8	$2.0 \cdot 10^{-3}$	$2.0 \cdot 10^3$	$0.70 \cdot 10^3$	$1.80 \cdot 10^3$	310	98

$\kappa(T) \propto T^3$. В этом интервале температур основными механизмами релаксации фононов являются граничное и изотопическое рассеяния. Однако для диффузного рассеяния фононов на границах нанопровода теоретическая кривая (кривая 6 на рис. 2) идет на 26% ниже экспериментальных данных. Учет зеркальности отражения ($P = 0.15$) позволяет согласовать результаты расчета теплопроводности с экспериментальными данными для нанопроводов диаметрами 115 и 56 нм в интервале температур 20–60 К с точностью до 4% при учете только граничного и изотопического механизмов релаксации без использования подгоночных параметров (см. рис. 2, кривая 2). Параметр $P = 0.15$ используется нами во всех расчетах, приведенных на рис. 2–5. Как видно из рис. 2, при температурах выше 100 К значительную роль в теплосопротивлении играют ангармонические процессы рассеяния. В этих расчетах мы используем параметры ангармонических процессов рассеяния, найденные ранее для объемных кристаллов Si (см. табл. 2). Для этих параметров нам удалось согласовать результаты расчета температурных зависимостей теплопроводности объемных кристаллов Si с прямоугольным и квадратным сечениями с экспериментальными данными [8] для различных направлений градиента температуры и боковых граней образцов.

Для поперечных фононов диффузионный вклад в теплопроводность во всем температурном интервале значительно превосходит вклад дрейфового движения (рис. 3). Для продольных фононов при $T < 60$ К дрейфовый вклад в теплопроводность $\kappa_{dr}^{(1)l}(T)$ значительно меньше диффузионного. Однако в интервале температур от 100 до 300 К для продольных фононов доминируют нормальные процессы фонон-фононного рассеяния и дрейфовый вклад в теплопроводность $\kappa_{[111]dr}^{(1)l}(T)$ значительно превосходит диффузионный вклад $\kappa_{[111]dif}^l(T)$ (см. рис. 3). Вклад дрейфового движения фононов в полную теплопроводность при $T = 100$ К составляет 13 и 9% для нанопроводов диаметрами $D = 115$ нм и $D = 56$ нм, а при $T = 300$ К он достигает 35%. Как видно из рис. 3, учет вклада $\kappa_{[111]dr}^{(1)l}(T)$ позволяет согласовать результаты расчета с эксперименталь-

ными данными работы [3] во всем исследованном интервале температур. Вклад дрейфового движения поперечных фононов на порядок меньше, чем величина $\kappa_{[111]dr}^{(1)l}(T)$, и им можно пренебречь. Из сравнения кривых 1 и 7 на рис. 3а видно, что анизотропия теплопроводности в кремниевых нанопроводах при низких температурах значительно больше, чем для объемных стержней: для нанопроводов диаметрами 115 и 56 нм она составляет соответственно 69 и 74%. Для объемных стержней кремния при $T = 3$ К, согласно работе [8], она достигает 50%. С повышением температуры она уменьшается как для нанопроводов, так и для объемных стержней, причем для нанопроводов при $T = 300$ К — до 19%, а для объемных стержней при $T = 40$ К она сравнивается с погрешностью эксперимента [8] — 4%.

Роль различных ветвей фононного спектра в теплопроводности нанопроводов с ростом температуры значительно изменяется. Это обусловлено как дисперсией тепловых фононов, так и дрейфовым движением продольных фононов. Как видно из рис. 3, при низких температурах $T < 30$ К доминирующий вклад в теплопроводность вносит медленная поперечная мода, $\kappa^{t_2}(T)$. При $T = 20$ К ее вклад составляет 49% и в два раза превосходит вклад быстрой поперечной моды, $\kappa^{t_1}(T)$, возрастает значительно быстрее, чем вклад медленной моды, $\kappa^{t_2}(T)$, и при $T > 30$ К значения $\kappa^{t_1}(T)$ становятся больше, чем $\kappa^{t_2}(T)$ (см. рис. 3). Поэтому во всем интервале температур от 30 до 300 К доминирующий вклад в теплопроводность вносит быстрая поперечная мода. Замедление роста вклада $\kappa^{t_2}(T)$ с повышением температуры связано с сильной дисперсией моды t_2 . Наличие протяженных плоских участков в коротковолновом спектре медленной поперечной моды при $q_{max}/2 < q < q_{max}$ (см. рис. 1 в работе [23]) приводит к аномально низким значениям групповой скорости и, соответственно, к значительному уменьшению вклада $\kappa^{t_2}(T)$ с повышением температуры. Вклад продольных фононов κ^l в теплопроводность при $T = 20$ К значительно меньше вкладов поперечных фононов. Он составляет 19%. Однако с повышением температуры этот вклад быстро растет за счет дрейфового движения и при $T > 65$ К стано-

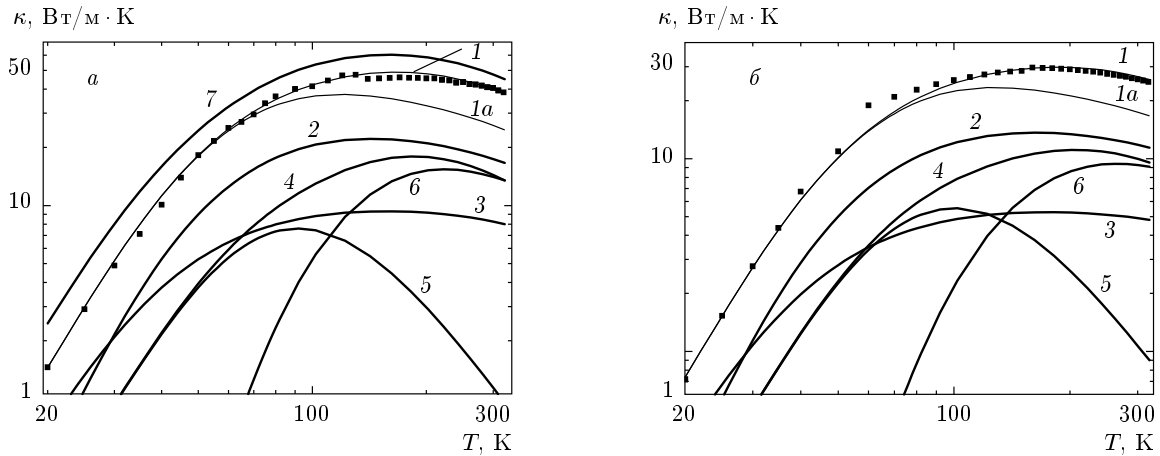


Рис. 3. Температурные зависимости теплопроводности для направления градиента температуры [111] и нанопроводов диаметром $D = 115$ нм (*a*) и $D = 56$ нм (*б*): 1 — полные теплопроводности; 1а — полные диффузионные вклады; 2 — вклады быстрых поперечных мод; 3 — вклады медленных поперечных мод; 4 — вклады продольных мод; 5 — диффузионные вклады продольных мод; 6 — вклады дрейфового движения фононов. Кривая 7 — полная теплопроводность для направления [100]. Символы — экспериментальные данные работы [1]

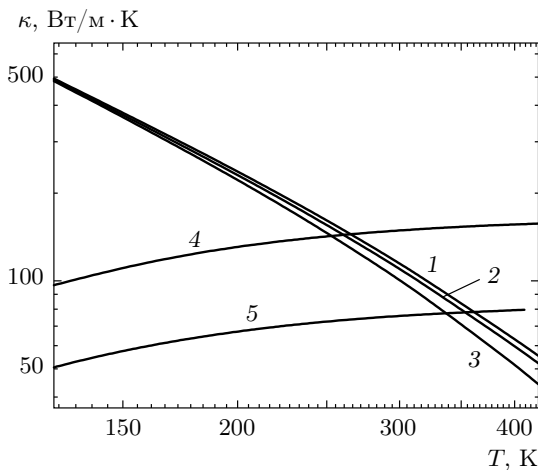


Рис. 4. Температурные зависимости теплопроводности нанопроводов в направлении [111] для объемных механизмов релаксации фононов с учетом дрейфа фононов для нанопроводов диаметрами $D = 115$ нм (кривая 1) и $D = 56$ нм (кривая 2); кривая 3 — вклад диффузионного движения в теплопроводность; 4 и 5 — теплопроводность в режиме граничного рассеяния фононов для нанопроводов диаметрами соответственно $D = 115$ нм и $D = 56$ нм

вится больше вклада медленной поперечной моды. При $T = 190$ К вклад $\kappa^l(T)$ достигает максимума и составляет 36 % от полной теплопроводности.

На рис. 4 приведен расчет температурных зави-

симостей полной теплопроводности (кривые 1, 2) и ее диффузионной части (кривая 3) в режиме объемных механизмов релаксации фононов ($\nu = \nu_{iso} + \nu_U + \nu_N$). Пересечение этих кривых с зависимостями теплопроводности в режиме граничного рассеяния фононов (рис. 4, кривые 3, 4) дает величины T_{BV} — температуры перехода от граничного рассеяния к объемным механизмам релаксации. При этих температурах длины свободного пробега для граничного рассеяния ($\Lambda_{B[J(\psi)]}$) и для объемных механизмов (Λ_V) сравниваются, и граничное рассеяние обеспечивает 50 % полного теплосопrotivления. Численный анализ показал, что для кремниевых нанопроводов диаметрами 115 и 56 нм при учете только диффузионной части теплопроводности температуры перехода T_{BV} составляют соответственно 252 и 337 К. При учете вклада дрейфового движения фононов в объемную часть теплопроводности эти температуры возрастают соответственно до 265 и 353 К.

5. УГЛОВЫЕ ЗАВИСИМОСТИ ТЕПЛОПРОВОДНОСТИ КРЕМНИЕВЫХ НАНОПРОВОДОВ

Рассмотрим изменение анизотропии полной теплопроводности и вкладов в нее от ветвей фононного спектра при повышении температуры. Для этого проанализируем изменение угловых зависимостей теплопроводности с повышением температуры для

нанопровода диаметром 115 нм при вращении градиента температуры (оси образца) в диагональной плоскости. При $T = 20$ К доминирующий вклад в теплопроводность (49 %) вносят медленные поперечные фононы. При этой температуре граничное рассеяние фононов обеспечивает 94 % полного теплосопротивления, поэтому его анизотропия максимальна. Максимальные значения теплопроводности реализуются в направлениях [001] за счет фокусировки медленных поперечных фононов, а минимальные — при $\psi_{min} \approx 68^\circ$ (рис. 5а). Максимальная анизотропия при этой температуре определяется отношением $\kappa_{[001]}/\kappa_{min} = 1.79$. В направлениях [011] и [111] достигаются локальные максимумы за счет фокусировки соответственно быстрых поперечных и продольных фононов. Отношения величин теплопроводности для нанопровода диаметром 115 нм в симметричных направлениях составляют $\kappa_{[001]} : \kappa_{[011]} : \kappa_{[111]} = 1.69 : 1.12 : 1$, однако для нанопровода диаметром 56 нм анизотропия оказывается несколько выше: $\kappa_{[001]} : \kappa_{[011]} : \kappa_{[111]} = 1.74 : 1.13 : 1$.

Как видно из рис. 5, анизотропия теплопроводности в кремниевых нанопроводах обеспечивается, главным образом, медленной поперечной модой, для которой отношение $\kappa_{[100]}^{t_2}/\kappa_{[110]}^{t_2}$ равно 2.7, 2.27 и 1.85 соответственно при температурах 20, 100 и 300 К. Это позволяет считать, что уменьшение анизотропии теплопроводности с ростом температуры обусловлено главным образом уменьшением вклада медленной моды. При $T = 20$ К вклад $\kappa_{[100]}^{t_1}$ быстрой поперечной моды для направлений [001] оказывается меньше вклада $\kappa_{[100]}^{t_2}$ в 2.7 раза, однако в направлениях [011] он превышает вклад медленной моды в 1.3 раза и обеспечивает локальный максимум теплопроводности при $T = 20$ К. При повышении температуры вклад $\kappa_{[111]}^{t_2}(T)$ медленных поперечных фононов уменьшается с 49 % при $T = 20$ К до 21 % при $T = 100$ К. С другой стороны, вклады быстрых поперечных и продольных фононов в теплопроводность в этом направлении возрастают, достигая при $T = 100$ К соответственно 49 и 30 %. При $T = 100$ К эти вклады становятся почти изотропными, поэтому анизотропия полной теплопроводности уменьшается до 26 % (см. рис. 5б). Отношения величин теплопроводности для симметричных направлений при $T = 100$ К составляют $\kappa_{[001]} : \kappa_{[111]} : \kappa_{[011]} = 1.28 : 1.02 : 1$. Минимальные значения теплопроводности достигаются при $\psi_{min} \approx 74^\circ$, они на 3 % ниже, чем значения $\kappa_{[011]}$.

При дальнейшем повышении температуры до $T = 300$ К вклад продольных фононов в теплопро-

водность для направлений [111] возрастает до 36 % за счет дрейфового движения фононов, тогда как вклады быстрых и медленных поперечных фононов в теплопроводность уменьшаются соответственно до 43 и 21 %. Анизотропия полной теплопроводности при этом уменьшается. Отношение величин теплопроводности для нанопровода диаметром 115 нм в симметричных направлениях при $T = 300$ К составляет $\kappa_{[001]} : \kappa_{[111]} : \kappa_{[011]} = 1.18 : 1 : 1$. Хотя при $T = 300$ К для нанопровода диаметром 115 нм доминируют объемные механизмы релаксации ($T_{BV} = 265$ К), а для нанопровода диаметром 56 нм — граничное рассеяние ($T_{BV} = 353$ К), на анизотропию теплопроводности это оказывает слабое влияние. Для нанопровода диаметром 56 нм отношение значений теплопроводности в симметричных направлениях меняется незначительно, $\kappa_{[001]} : \kappa_{[111]} : \kappa_{[011]} = 1.20 : 0.99 : 1$.

Итак, проведенный анализ показал, что анизотропия теплопроводности в кремниевых нанопроводах обеспечивается, главным образом, медленной поперечной модой, которая фокусируется и обеспечивает максимум теплопроводности в направлении [001].

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Итак, исследовано влияние фокусировки тепловых фононов на анизотропию и температурные зависимости теплопроводности кремниевых нанопроводов в трехмодовой модели Каллавея. Показано, что температурные зависимости теплопроводности кремниевых нанопроводов диаметрами более 50 нм могут быть описаны в рамках стандартного релаксационного метода с использованием трехмерного спектра тепловых фононов. Использование вычисленных нами времен релаксации фононов на границах позволило адекватно описать экспериментальные данные теплопроводности кремниевых нанопроводов диаметрами 115 и 56 нм для направлений [111] в интервале температур от 20 до 300 К. Проанализирована роль различных механизмов релаксации фононов в теплопроводности кремниевых нанопроводов. Учет граничного и изотопического механизмов релаксации позволяет согласовать результаты расчета теплопроводности с экспериментальными данными для нанопроводов диаметрами 115 и 56 нм в интервале температур от 20 до 60 К с точностью до 4 %. Рассмотрен переход от граничного рассеяния к объемным механизмам релаксации. Показано, что для нанопроводов диаметрами 115 и 56 нм он происходит соответственно при температурах 265 и 353 К.

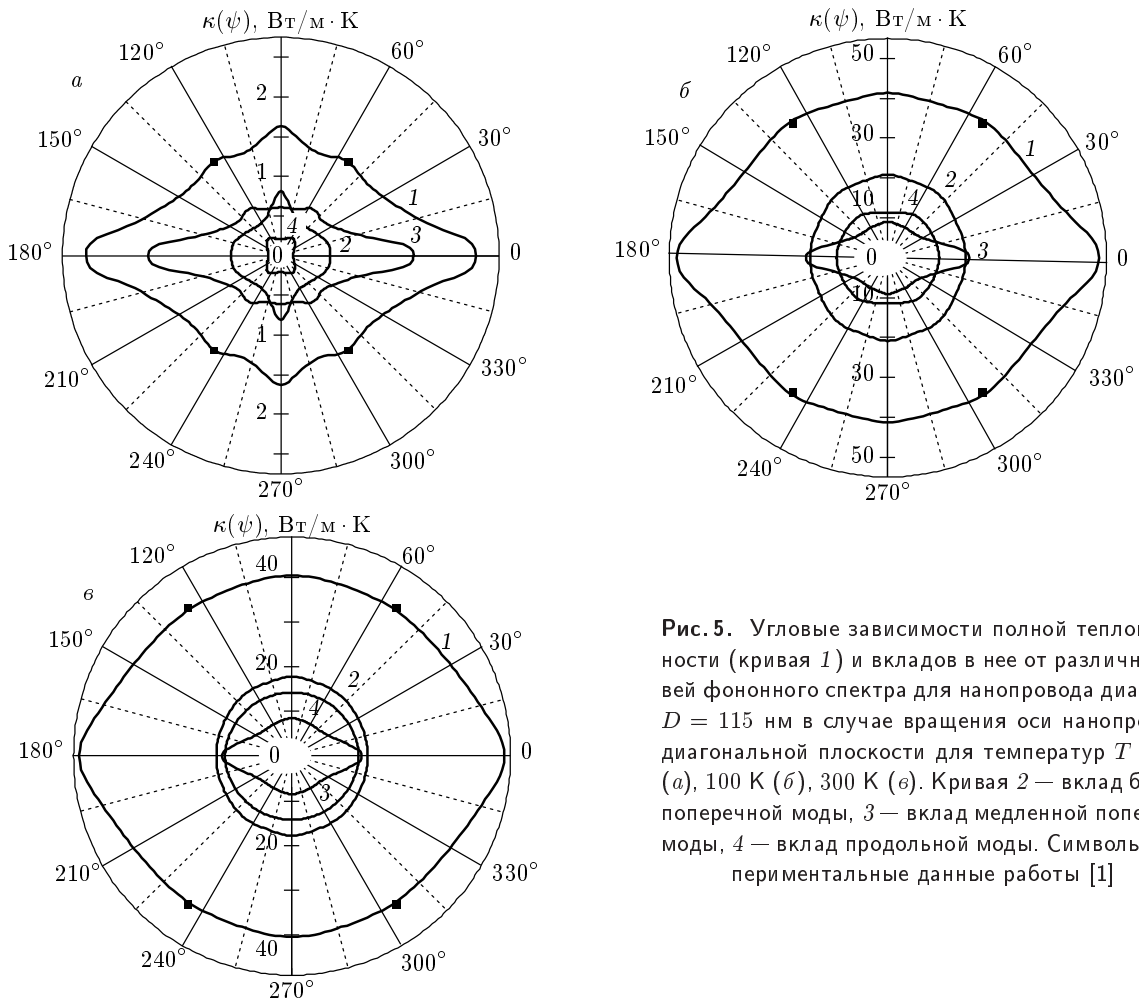


Рис. 5. Угловые зависимости полной теплопроводности (кривая 1) и вкладов в нее от различных ветвей фононного спектра для нанопровода диаметром $D = 115$ нм в случае вращения оси нанопровода в диагональной плоскости для температур $T = 20$ К (а), 100 К (б), 300 К (в). Кривая 2 — вклад быстрой поперечной моды, 3 — вклад медленной поперечной моды, 4 — вклад продольной моды. Символы — экспериментальные данные работы [1]

Проведенный анализ показал, что дисперсия тепловых фононов оказывает значительное влияние на теплопроводность кремниевых нанопроводов. Наличие протяженных плоских участков в спектре медленных поперечных коротковолновых фононов приводит к аномально низким значениям групповой скорости и, соответственно, к значительному уменьшению их вклада в теплопроводность с ростом температуры.

Исследовано изменение угловых зависимостей теплопроводности и вкладов фононов различных поляризаций в зависимости от температуры для кремниевых нанопроводов при вращении градиента температуры (оси образца) в диагональной плоскости. Показано, что анизотропия теплопроводности в кремниевых нанопроводах во всем исследованном интервале температур 20–300 К обеспечивается главным образом медленной поперечной модой,

которая фокусируется в направлениях типа [001] и обеспечивает максимум теплопроводности в этих направлениях. Анализ анизотропии длин свободного пробега фононов для кремниевых нанопроводов в режиме граничного рассеяния показал, что их значения для фононов различных поляризаций различны и в значительной степени определяются эффектом фокусировки фононов. Они достигают максимальных значений в направлениях фокусировки, и в этом направлении превосходят длины пробега остальных колебательных мод. В противоположность этому, для модели изотропной среды длины свободного пробега фононов в нанопроволоках в режиме граничного рассеяния для фононов различных поляризаций совпадают. Они не зависят от упругих модулей, а определяются полностью геометрическими параметрами нанопроводов. Поэтому они могут служить удобной системой сравнения для упруго-анизотропных кристаллов.

Авторы выражают благодарность А. П. Танкеву и А. В. Инюшкину за обсуждение результатов работы и критические замечания. Авторы благодарят Д. Ли, предоставившего экспериментальные данные по теплопроводности кремниевых нанопроводов. Работа выполнена по плану РАН в рамках темы № 01.2.006.13395 при поддержке программы ОФН РАН (грант № 12-Т-2-1018), а также гранта ведущей научной школы НШ-6172.2012.2 и фонда «Династия».

ПРИЛОЖЕНИЕ

Нормальные процессы фонон-фононного рассеяния и решеточная теплопроводность кубических кристаллов

Система кинетических уравнений для неравновесных функций распределения N_q^λ с учетом нормальных процессов рассеяния имеет вид [15–20]

$$\mathbf{V}_g^\lambda(\mathbf{q}) \cdot \nabla_r N_q^\lambda = - \left(N_q^\lambda - N_{q\lambda}^{(0)} \right) \nu_R^\lambda - \left(N_q^\lambda - N(\mathbf{q}, \mathbf{u}_\lambda) \right) \nu_N^\lambda. \quad (\text{A.1})$$

Здесь $\nu_N^\lambda(q)$ и $\nu_R^\lambda(q)$ — скорости релаксации фононов соответственно в нормальных (N -процессах) и резистивных процессах рассеяния. N -процессы стремятся установить дрейфовое локально-равновесное распределение [15–20], которое описывается смещенной функцией Планка

$$N(\mathbf{q}, \mathbf{u}_\lambda) = \left[\exp \left(\frac{\hbar \omega_{q\lambda} - \hbar \mathbf{q} \cdot \mathbf{u}_\lambda}{k_B T} \right) - 1 \right]^{-1} \approx N_{q\lambda}^0 + \frac{\hbar \mathbf{q} \cdot \mathbf{u}_\lambda}{k_B T} N_{q\lambda}^0 (N_{q\lambda}^0 + 1), \quad (\text{A.2})$$

где $N_{q\lambda}^0$ — функция Планка. В этом случае система фононов описывается девятью параметрами: частотами релаксации $\nu_N^\lambda(q)$ и $\nu_R^\lambda(q)$ и средними скоростями дрейфа фононов \mathbf{u}_λ для каждой ветви фононного спектра. Учет особой роли N -процессов необходим, когда частота релаксации $\nu_N^\lambda(q)$ будет больше, чем $\nu_R^\lambda(q)$ [15].

Представим функцию распределения фононов в виде функции Планка и неравновесной добавки $g_\lambda(\mathbf{q})$, для которой получим

$$g_\lambda(\mathbf{q}) = - \frac{N_{q\lambda}^0 (N_{q\lambda}^0 + 1)}{\nu_{ph}^\lambda(q)} \frac{\hbar \omega_q^\lambda}{k_B T^2} (\mathbf{V}_g^\lambda \cdot \nabla_r T) + \frac{\hbar \mathbf{q} \cdot \mathbf{u}_\lambda}{k_B T} N_{q\lambda}^0 (N_{q\lambda}^0 + 1) \frac{\nu_N^\lambda(q)}{\nu^\lambda(q)} = g_\lambda^{dif}(\mathbf{q}) + g_\lambda^{dr}(\mathbf{q}). \quad (\text{A.3})$$

Первое и второе слагаемые в (A.3) определяются диффузией и дрейфом фононов. Скорости дрейфа \mathbf{u}_λ находятся из уравнения баланса импульса фононов [15, 17]

$$\frac{1}{V} \sum_{q,\lambda} \hbar \mathbf{q} \nu_N^\lambda(q) \frac{N_{q\lambda}^0 (N_{q\lambda}^0 + 1)}{k_B T \nu^\lambda(q)} \times \left[\frac{\hbar \omega_q^\lambda}{T} (\mathbf{V}_g^\lambda \cdot \nabla_r T) + \hbar (\mathbf{q} \cdot \mathbf{u}_\lambda) \nu_R^\lambda(q) \right] = 0. \quad (\text{A.4})$$

Если в N -процессах доминируют механизмы релаксации с участием фононов различных поляризаций, то они стремятся установить одинаковую скорость дрейфа для всех фононов. Тогда скорость дрейфа $\mathbf{u}^{(1)}$ не зависит от поляризации. К первому типу относятся механизмы релаксации Херринга [29] и Ландау–Румера [30], а также ряд других процессов. В механизме Херринга [29] слияние продольного фонона с медленным поперечным фононом порождает быстрый фонон

$$\nu_N^l \approx B_{LTT} T^3 \omega_l^2. \quad (\text{A.5})$$

Согласно [18–20], основным механизмом релаксации поперечных фононов в N -процессах рассеяния является механизм Ландау–Румера [30], в котором слияние поперечного и продольного фононов порождает продольный фонон ($T_1 + L_2 \rightarrow L_3$)

$$\nu_N^t \approx B_{TLL} T^4 \omega_t. \quad (\text{A.6})$$

Для второго типа N -процессов ($L_1 + L_2 \rightarrow L_3$, $T_1 + T_2 \rightarrow T_3$) импульс фононов перераспределяется внутри каждой колебательной ветви, поэтому скорости дрейфа будут различными для фононов различных поляризаций, $\mathbf{u}_i^{(2)} \neq \mathbf{u}_i^{(2)}$. В работе [31] показано, что процессы второго типа в изотропных средах могут происходить только при учете затухания фононных состояний, причем в них могут принимать участие только коллинеарные фононы. Однако в работах [32] показано, что учет кубической анизотропии приводит к выполнению закона сохранения энергии в механизмах релаксации TTT и эти механизмы в длинноволновом приближении вносят значительно больший вклад в релаксацию поперечных фононов, чем механизм Ландау–Румера. Для механизма TTT скорость релаксации ν_N^t определяется также выражением типа (A.6), но с коэффициентом B_{TTT}^N вместо B_{TLL}^N . В первом варианте N -процессов скорость дрейфа не зависит от поляризации фононов, а во втором случае закон сохранения импульса

выполняется для каждой из ветвей фононного спектра.

Заметим, что в изотропном случае направления групповой и фазовой скоростей совпадают, поэтому диффузионное и дрейфовое слагаемые в функции $g_\lambda(\mathbf{q})$ можно объединить и ввести эффективную частоту релаксации фононов [17]. При учете анизотропии спектра фононов эти направления не совпадают. Прямой расчет $g_\lambda(\mathbf{q})$ и скоростей дрейфа $\mathbf{u}^{(1,2)}$ для обоих вариантов дает

$$\begin{aligned} g_\lambda^{(1,2)}(\mathbf{q}) &= -k_B \frac{N_{q\lambda}^0 (N_{q\lambda}^0 + 1)}{k_B T \nu^\lambda(q)} \frac{\hbar \omega_q^\lambda}{k_B T} \times \\ &\times \left[(\mathbf{V}_g^\lambda \cdot \nabla_r T) + \left(\frac{\mathbf{q}}{q} \cdot \nabla_r T \right) \times \right. \\ &\times \left. \frac{\nu_N^\lambda(q)}{S^\lambda(\theta, \varphi)} B^{(1,2)}(T) \right] = g_\lambda^{dif}(\mathbf{q}) + g_\lambda^{dr}(\mathbf{q}), \\ \mathbf{u}^{(1,2)} &= -k_B \nabla_r T B^{(1,2)}(T) / k_B T. \end{aligned} \quad (\text{A.7})$$

Коэффициенты $B^{(1,2)}(T)$ при учете дисперсии тепловых фононов имеют вид

$$\begin{aligned} B^{(1)}(T) &= \sum_\lambda \Psi_N^\lambda / \sum_\lambda \Psi_{NR}^\lambda, \\ B^{(2)}(T) &= \Psi_N^\lambda / \Psi_{NR}^\lambda, \end{aligned} \quad (\text{A.8})$$

где

$$\begin{aligned} \Psi_N^\lambda &= 3 \int_{-1}^1 \cos \theta d(\cos \theta) \int_0^{2\pi} d\varphi y^4 \int_0^1 \frac{V_{gz}^\lambda z^\lambda x^3}{\text{sh}^2(z^\lambda/2)} \frac{\nu_N^\lambda}{\nu^\lambda} dx, \\ \Psi_{NR}^\lambda &= \int_{-1}^1 d(\cos \theta) \int_0^{2\pi} d\varphi y^5 \int_0^1 \frac{x^4}{\text{sh}^2(z^\lambda/2)} \frac{\nu_N^\lambda \nu_R^\lambda}{\nu^\lambda} dx, \\ x &= \frac{q}{q_{max}(\theta, \varphi)}, \quad y(T, \theta, \varphi) = \frac{q_{max}(\theta, \varphi)}{q_T}, \\ q_T &= \frac{k_B T}{\hbar}, \quad z^\lambda(x, \theta, \varphi) = \frac{\hbar \omega_q^\lambda(x, \theta, \varphi)}{k_B T}. \end{aligned}$$

Максимальный волновой вектор $q_{max}(\theta, \varphi)$ определен в работе [23]. При вычислении теплопроводности нанопроводов дисперсия тепловых фононов учитывается аналогично работе [23].

Итак, в трехмодовой модели Каллавея теплопроводность состоит из диффузионного и дрейфового вкладов:

$$\kappa^{(1,2)} = \kappa_{dif} + \kappa_{dr}^{(1,2)}. \quad (\text{A.9})$$

Направим градиент температуры по оси стержня, тогда выражение для решеточной теплопроводности можно представить в виде

$$\begin{aligned} \kappa_{dif} &= \frac{k_B q_T^3}{4(2\pi)^3} \sum_\lambda \int_{-1}^1 d(\cos \theta) \int_0^{2\pi} d\varphi y^3 \times \\ &\times \int_0^1 \frac{(V_{g3}^\lambda)^2 z_\lambda^2 x^2}{\nu^\lambda \text{sh}^2(z_\lambda/2)} dx, \\ \kappa_{dr}^{(1,2)} &= \frac{k_B q_T^3}{12(2\pi)^3} \sum_\lambda B^{(1,2)}(T) \Psi_N^\lambda. \end{aligned} \quad (\text{A.10})$$

Новым результатом настоящей работы, по сравнению с работой [17], являются обобщение теории Каллавея [15] на трехмодовый случай и анализ предельных случаев внутриветвевое и межветвевое перераспределений импульса фононов в N -процессах рассеяния при учете дисперсии и анизотропии спектра.

ЛИТЕРАТУРА

1. D. Li, Y. Wu, P. Kim, L. Shi et al., Appl. Phys. Lett. **83**, 2934 (2003).
2. H. J. Maris and S. Tamura, Phys. Rev. B **85**, 054304 (2012).
3. D. G. Cahill, W. K. Ford, K. E. Goodson et al., J. Appl. Phys. **93**, 793 (2003).
4. A. D. McConnell and K. E. Goodson, Ann. Rev. Heat Transfer **14**, 128 (2005).
5. B. Taylor, H. J. Maris, and C. Elbaum, Phys. Rev. Lett. **23**, 416 (1969).
6. H. J. Maris, J. Acoust. Soc. Amer. **50**, 812 (1971).
7. J. P. Wolfe, *Imaging Phonons Acoustic Wave Propagation in Solids*, Cambridge Univ. Press, New York (1998).
8. A. K. McCurdy, H. J. Maris, and C. Erlbaum, Phys. Rev. B **2**, 4077 (1970).
9. Y. F. Zhu, J. S. Lian, and Q. Jiang, Appl. Phys. Lett. **92**, 113101 (2008).
10. A. K. Suleiman and A.-G. K. Faiq, J. Edu. and Sci. (Iraq) **23**(43), 64 (2010).
11. N. Mingo, Phys. Rev. B **68**, 113308 (2003).
12. H. B. G. Casimir, Physica **5**, 495 (1938).
13. J. Guo, B. Wen, R. Melnik et al., Physica E **43**, 155 (2010); J.-W. Jiang, B.-S. Wang, and J.-S. Wang, Phys. Rev. B **83**, 235432 (2011).

14. W. Li, N. Mingo, L. Lindsay, D. A. Broido et al., Phys. Rev. B **85**, 195436 (2012).
15. J. Callaway, Phys. Rev. **113**, 1046 (1959).
16. J. A. Krumhansl, Proc. Phys. Soc. **85**, 921 (1965).
17. И. Г. Кулеев, И. И. Кулеев, ЖЭТФ **120**, 649 (2001); **121**, 558 (2002).
18. В. Л. Гуревич, *Кинетика фононных систем*, Наука, Москва (1980).
19. Р. Берман, *Теплопроводность твердых тел*, Мир, Москва (1979).
20. Б. М. Могилевский, А. Ф. Чудновский, *Теплопроводность полупроводников*, Наука, Москва (1972).
21. И. И. Кулеев, И. Г. Кулеев, С. М. Бахарев, А. В. Инюшкин, ФТТ **55**, 24 (2013).
22. I. I. Kuleyev, I. G. Kuleyev, S. M. Bakharev, and A. V. Inyushkin, Physica B **416**, 81 (2013).
23. И. И. Кулеев, И. Г. Кулеев, С. М. Бахарев, А. В. Инюшкин, ФТТ **55**, 1441 (2013).
24. G. Nilson and G. Nelin, Phys. Rev. B **6**, 3777 (1972).
25. R. Berman, F. E. Simon, and J. M. Ziman, Proc. Roy. Soc. London A **220**, 171 (1953); R. Berman, E. L. Foster, and J. M. Ziman, Proc. Roy. Soc. London A **231**, 130 (1955).
26. S. Tamura, Phys. Rev. B **27**, 858 (1983).
27. И. Г. Кулеев, И. И. Кулеев, ФТТ **49**, 1568 (2007).
28. А. П. Жернов, А. В. Инюшкин, УФН **171**, 827 (2001); **172**, 573 (2002).
29. C. Herring, Phys. Rev. **95**, 954 (1954).
30. L. Landau and J. Rumer, Sov. Phys. **11**, 18 (1937).
31. S. Simons, Proc. Phys. Soc. **82**, 401 (1963); **83**, 799 (1963).
32. I. G. Kuleyev, I. I. Kuleyev, and I. Yu. Arapova, J. Phys.: Condens. Matter **20**, 465201 (2008); **22**, 0945403 (2010).