

МЕХАНИЗМ РЕЛАКСАЦИИ ЛАНДАУ – РУМЕРА ТЕПЛОВЫХ И ВЫСОКОЧАСТОТНЫХ ФОНОНОВ В КУБИЧЕСКИХ КРИСТАЛЛАХ ГЕРМАНИЯ, КРЕМНИЯ И АЛМАЗА

И. Г. Кулеев, И. И. Кулеев*

*Институт физики металлов Уральского отделения Российской академии наук
620219, Екатеринбург, Россия*

Поступила в редакцию 22 декабря 2003 г.

Рассмотрена релаксация поперечных фононов в механизме Ландау–Румера для изотропной среды и кристаллов германия, кремния и алмаза, имеющих кубическую симметрию. Получено выражение для упругой энергии, обусловленной ангармонизмом колебаний решетки кристалла кубической симметрии, через модули второго и третьего порядков. Из известных значений модулей упругости второго и третьего порядков найдены параметры, определяющие величины частот релаксации поперечных фононов в механизме Ландау–Румера для кристаллов германия, кремния и алмаза. Показано, что зависимость частоты релаксации от волнового вектора тепловых и высокочастотных фононов резко отличается от классической зависимости Ландау–Румера как в изотропных средах, так и в кубических кристаллах. Установлено, что обнаруженные нами особенности частоты релаксации обусловлены угловой зависимостью вероятности ангармонического рассеяния и анизотропией упругих свойств кристаллов германия, кремния и алмаза. Предложен метод экспериментального определения зависимости частоты релаксации высокочастотных фононов от волнового вектора из измерений температурной зависимости коэффициента поглощения высокочастотного ультразвука.

PACS: 72.80.Cw, 62.80.+f, 63.20.Ry, 72.20.Dp

1. ВВЕДЕНИЕ

В последнее время внимание исследователей привлекают изотопические эффекты в теплопроводности германия, кремния и алмаза [1–8]. Экспериментальные исследования [2, 3] показали, что при переходе от кристаллов германия с природным изотопическим составом ^{Nat}Ge к высокообогащенному до 99.99% по изотопу ^{70}Ge максимальные величины теплопроводности увеличиваются на порядок. Для кремния, обогащенного до 99.8588% по изотопу ^{28}Si , максимальные значения теплопроводности увеличиваются в шесть раз [6] по сравнению с природными кристаллами. Теоретический анализ этих результатов [9–11] показал, что нормальные процессы (N -процессы) фонон-фононного рассеяния, в которых полный импульс сталкивающихся фононов сохраняется, играют важную роль в решеточной теплопроводности изотопически обогащенных, хи-

мически чистых кристаллов германия, кремния и алмаза. Именно эти процессы вместе с граничным рассеянием определяют максимальные значения теплопроводности в изотопически высокообогащенных кристаллах [10, 11].

При расчете теплопроводности в рамках релаксационного метода [1–13] обычно используются выражения для частот релаксации фононов в N -процессах рассеяния, полученные в длинноволновом приближении:

$$z_{q\lambda} = \frac{\hbar\omega_{q\lambda}}{k_B T} \ll 1$$

($\omega_{q\lambda}$ — частота фонона с волновым вектором \mathbf{q} и поляризацией λ). Однако в решеточную теплопроводность основной вклад вносят тепловые фононы с $z_{q\lambda} \approx 1$, а для изотопически обогащенных кристаллов германия и кремния — тепловые фононы с $z_{q\lambda} \approx 2$ –3. В рамках этого метода параметры, определяющие интенсивность ангармонических процессов рассеяния, являются подгоночными параметра-

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

ми теории, которые находятся из сопоставления результатов расчета с экспериментальными данными [1–13]. Использование модели изотропной среды для оценки вероятности ангармонических процессов рассеяния также не является адекватным приближением для кристаллов германия, кремния и алмаза, имеющих кубическую симметрию с существенной анизотропией модулей упругости как второго, так и третьего порядка.

В настоящей работе рассмотрена релаксация поперечных фононов в механизме Ландау–Румера для изотропной среды, а также кристаллов германия, кремния и алмаза, имеющих кубическую симметрию. В разд. 2 получено выражение для упругой энергии кристалла кубической симметрии через модули упругости второго и третьего порядков. Эта энергия определяет вероятности различных ангармонических трехфононных процессов рассеяния. В разд. 3 вычислена частота релаксации поперечных тепловых и высокочастотных фононов в механизме Ландау–Румера для изотропной среды и кристаллов кубической симметрии. В кристаллах германия, кремния и алмаза этот механизм является основным механизмом релаксации поперечных фононов. Поскольку значения модулей упругости для кристаллов германия, кремния и алмаза известны, этот расчет дает независимый способ определения величин частот релаксации поперечных фононов в ангармонических процессах рассеяния. Проведено сравнение полученных результатов с результатами предыдущих исследований в модели изотропной среды. В разд. 4 проанализированы длинноволновый предел, переход к модели изотропной среды, а также зависимость частоты релаксации фононов от температуры и волнового вектора фононов в кристаллах германия, кремния и алмаза. Показано, что зависимость частоты релаксации поперечных фононов от волнового вектора может быть определена из измерений температурной зависимости коэффициента поглощения высокочастотного ультразвука.

2. УПРУГАЯ ЭНЕРГИЯ КРИСТАЛЛОВ КУБИЧЕСКОЙ СИММЕТРИИ

Выражение для упругой энергии кристаллов кубической симметрии с точностью до членов третьего порядка по компонентам тензора деформации η_{ij} , согласно [14, 15], имеет вид

$$W_k = \frac{1}{2}c_{11}(\eta_{11} + \eta_{22} + \eta_{33}) + c_{12}(\eta_{11}\eta_{22} + \eta_{22}\eta_{33} + \eta_{33}\eta_{11}) + 2c_{44}(\eta_{12}^2 + \eta_{23}^2 + \eta_{13}^2) + c_{111}(\eta_{11}^3 + \eta_{22}^3 + \eta_{33}^3) + 3c_{112}[\eta_{11}^2(\eta_{22} + \eta_{33}) + \eta_{22}^2(\eta_{11} + \eta_{33}) + \eta_{33}^2(\eta_{11} + \eta_{22})] + 6c_{123}\eta_{11}\eta_{22}\eta_{33} + 12c_{144}(\eta_{11}\eta_{23}^2 + \eta_{22}\eta_{13}^2 + \eta_{33}\eta_{12}^2) + 12c_{155}[(\eta_{11} + \eta_{22})\eta_{12}^2 + (\eta_{22} + \eta_{33})\eta_{23}^2 + (\eta_{11} + \eta_{33})\eta_{13}^2] + 48c_{456}\eta_{12}\eta_{23}\eta_{13}. \quad (1)$$

Для модулей упругости третьего порядка, c_{ijk} , здесь используется нормировка, принятая Такером и Рэмптоном [16]. Переход к нормировке Бирча c_{ijk}^B [14] осуществляется подстановкой

$$c_{111} = c_{111}^B, \quad 3c_{112} = c_{112}^B, \quad 6c_{123} = c_{123}^B, \\ 12c_{144} = c_{144}^B, \quad 12c_{155} = c_{155}^B, \quad 24c_{456} = c_{456}^B.$$

Выражение (1) может быть преобразовано к виду, более удобному для дальнейших расчетов:

$$W_k = \frac{1}{2}c_{11} \left(\sum_i \eta_{ii} \right)^2 + \frac{1}{2}(c_{11} - c_{12} - c_{44}) \sum_i \eta_{ii}^2 + c_{44} \sum_i \eta_{ik}^2 + \tilde{c}_{111} \sum_i \eta_{ii}^3 + 3\tilde{c}_{112} \sum_{i,k} \eta_{ii}^2 \eta_{kk} + c_{123} \left(\sum_i \eta_{ii} \right)^3 + 6c_{144} \sum_{i,k} \eta_{ii}^2 \eta_{jk} + 8c_{456} \sum_{i,k} \eta_{ik} \eta_{kj} \eta_{ji} + 12\tilde{c}_{155} \sum_{i,k} \eta_{ii} \eta_{ik}^2. \quad (2)$$

Здесь

$$\tilde{c}_{111} = c_{111} - 3c_{112} + 2c_{123} + 12c_{144} - 12c_{155} + 16c_{456}, \\ \tilde{c}_{112} = c_{112} - c_{123} - 2c_{144}, \\ \tilde{c}_{155} = c_{155} - c_{144} - 2c_{456}. \quad (3)$$

Компоненты тензора деформации η_{ik} могут быть выражены через компоненты тензора дисторсии ξ_{ik} [17]:

$$\eta_{ik} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_k} + \frac{\partial u_k}{\partial x_i} + \sum_j \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \frac{\partial u_j}{\partial x_k} \right) \equiv \frac{1}{2} \left(\xi_{ik} + \xi_{ki} + \sum_j \xi_{ji} \xi_{jk} \right). \quad (4)$$

Подстановка выражения (4) в (2) дает

Таблица 1. Модули упругости первого и второго порядков для германия, кремния и алмаза. Значения термодинамических величин c_{ijk} приведены в первых трех строках согласно [17], а в последних трех — в нормировке [16], принятой нами (в единицах 10^{12} дин/см²)

| Кристалл | Модуль упругости | | | | | | | | |
|----------|------------------|----------|----------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|
| | c_{11} | c_{12} | c_{44} | c_{111} | c_{112} | c_{123} | c_{144} | c_{155} | c_{456} |
| Ge | 1.289 | 0.483 | 0.671 | -7.10 | -3.89 | -0.18 | -0.23 | -2.92 | -0.53 |
| Si | 1.657 | 0.638 | 0.796 | -8.25 | -4.51 | -0.64 | 0.12 | -3.10 | -0.64 |
| C | 10.76 | 1.25 | 5.758 | -62.6 | -22.6 | 1.12 | -6.74 | -28.6 | -8.23 |
| Ge | — | — | — | -1.18 | -0.65 | -0.03 | -0.04 | -0.49 | -0.18 |
| Si | — | — | — | -1.38 | -0.75 | -0.11 | 0.02 | -0.52 | -0.21 |
| C | — | — | — | -10.43 | -3.77 | 0.187 | -1.123 | -4.76 | -2.74 |

Таблица 2. Значения модулей упругости ΔC , \tilde{c}_{111} , \tilde{c}_{112} , \tilde{c}_{155} для германия, кремния и алмаза (в единицах 10^{12} дин/см²)

| Модуль упругости | Кристалл | | |
|-------------------|----------|--------|--------|
| | Ge | Si | C |
| ΔC | -0.536 | -0.574 | -1.605 |
| \tilde{c}_{155} | -0.095 | -0.111 | 1.84 |
| \tilde{c}_{112} | -0.542 | -0.685 | -1.71 |
| \tilde{c}_{111} | 3.26 | 3.72 | 22.98 |

$$\begin{aligned}
 W_k = & \frac{1}{2}c_{11} \left(\sum_i \xi_{ii} \right)^2 + \frac{1}{2}(c_{11} - c_{12} - 2c_{44}) \times \\
 & \times \sum_i \xi_{ii}^2 + \frac{1}{4}c_{44} \sum_i (\xi_{ik} + \xi_{ki})^2 + \tilde{c}_{111} \sum_i \xi_{ii}^3 + \\
 & + 3\tilde{c}_{112} \sum_{i,k} \xi_{ii}^2 \xi_{kk} + c_{123} \left(\sum_i \xi_{ii} \right)^3 + \\
 & + 3c_{144} \sum_{i,j,k} \xi_{ii} \xi_{jk} \xi_{kj} + \left(3c_{144} + \frac{1}{2}c_{12} \right) \times \\
 & \times \sum_{i,j,k} \xi_{ii} \xi_{jk}^2 + 2c_{456} \sum_{i,j,k} \xi_{ik} \xi_{kj} \xi_{ji} + (c_{44} + 6c_{456}) \times \\
 & \times \sum_{i,j,k} \xi_{ik} \xi_{ji} \xi_{jk} + 3\tilde{c}_{155} \sum_{i,k} (\xi_{ii} \xi_{ik}^2 + 2\xi_{ii} \xi_{ik} \xi_{ki}) + \\
 & + \left[3\tilde{c}_{155} + \frac{1}{2}(c_{11} - c_{12} - 2c_{44}) \right] \sum_{i,k} \xi_{ii} \xi_{ki}^2. \quad (5)
 \end{aligned}$$

Кубические по ξ_{ik} члены в выражении (4) отвечают за взаимодействие между фононами. Здесь уместно рассмотреть переход от энергии упругой деформации кристаллов кубической симметрии к упругой энергии W_{is} изотропной среды. Для этого сравним выражение (5) с (4.6) из работы [16]. Из условия $\Delta W = W_k - W_{is} = 0$ найдем

$$\begin{aligned}
 \Delta C &= c_{11} - c_{12} - 2c_{44} = 0, \\
 \tilde{c}_{155} &= c_{155} - c_{144} - 2c_{456} = 0, \\
 \tilde{c}_{112} &= c_{112} - c_{123} - 2c_{144} = 0, \\
 \tilde{c}_{111} &= c_{111} - 3c_{112} + 2c_{123} + \\
 & + 12c_{144} - 12c_{155} + 16c_{456} = 0. \quad (6)
 \end{aligned}$$

Рассмотрим, насколько выполняются условия (6) для кристаллов германия, кремния и алмаза, используя результаты измерений модулей упругости второго и третьего порядков [15, 16, 18–22], представленных в табл. 1. Проведенный анализ показал (см. табл. 2), что для кристаллов германия, кремния и алмаза соотношения (6) не выполняются не только для модулей упругости второго порядка, но и для модулей упругости третьего порядка, причем для этих кристаллов $\Delta C \sim c_{12}$, а значение \tilde{c}_{155} составляет примерно одну четвертую от c_{155} и превышает более чем в два раза величину модуля c_{144} . Наибольшее отклонение от модели изотропной среды имеет место для модуля упругости \tilde{c}_{111} : он не только значительно превосходит остальные модули упругости третьего порядка для германия, кремния и алмаза, но и имеет знак, противоположный знаку исходного модуля c_{111} . Модули упругости третьего порядка \tilde{c}_{111} , \tilde{c}_{112} и \tilde{c}_{155} отличают кубические кристаллы от

изотропной среды, поэтому наибольшее отклонение от модели изотропной среды будет иметь место для тех частот релаксации, в которые вносят вклад члены, содержащие модуль упругости \tilde{c}_{111} .

Представим смещение частицы в стандартном виде [16]:

$$u_i(x) = i \sum_{\mathbf{q}} \left(\frac{\hbar}{2\rho V \omega_{q\lambda}} \right)^{1/2} e_i^\lambda e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} (b_{q\lambda} - b_{-q\lambda}^\dagger), \quad (7)$$

где $b_{-q\lambda}^\dagger$ и $b_{q\lambda}$ — операторы рождения и уничтожения фононов, ρ — плотность, V — нормировочный объем, \mathbf{e} — вектор поляризации. Очевидно, что каждой величине ξ_{ij} будет соответствовать коэффициент $e_i q_j$. Прямая подстановка выражения (7) в (5) даст следующее выражение для плотности энергии, связанной с ангармонизмом колебаний решетки:

$$W = -i \sum_{\substack{\mathbf{q}_1, \mathbf{q}_2, \mathbf{q}_3 \\ \lambda_1, \lambda_2, \lambda_3}} \left(\frac{\hbar}{2\rho V} \right)^{3/2} (\omega_{q_1 \lambda_1} \omega_{q_2 \lambda_2} \omega_{q_3 \lambda_3})^{-1/2} \times \\ \times (b_{q_1 \lambda_1} - b_{-q_1 \lambda_1}^\dagger) (b_{q_2 \lambda_2} - b_{-q_2 \lambda_2}^\dagger) (b_{q_3 \lambda_3} - b_{-q_3 \lambda_3}^\dagger) \times \\ \times \exp [i(\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2 + \mathbf{q}_3) \cdot \mathbf{r}] V_{\mathbf{q}_1 \mathbf{q}_2 \mathbf{q}_3}^{\lambda_1 \lambda_2 \lambda_3}, \quad (8)$$

где

$$V_{\mathbf{q}_1 \mathbf{q}_2 \mathbf{q}_3}^{\lambda_1 \lambda_2 \lambda_3} = 6\tilde{c}_{111} \sum_i e_{1i} q_{1i} e_{2i} q_{2i} e_{3i} q_{3i} + \\ + 6c_{123} (\mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{q}_1) (\mathbf{e}_2 \cdot \mathbf{q}_2) (\mathbf{e}_3 \cdot \mathbf{q}_3) + \\ + 6\tilde{c}_{112} \sum_i [(\mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{q}_1) e_{2i} q_{2i} e_{3i} q_{3i} + \\ + (\mathbf{e}_2 \cdot \mathbf{q}_2) e_{1i} q_{1i} e_{3i} q_{3i} + (\mathbf{e}_3 \cdot \mathbf{q}_3) e_{1i} q_{1i} e_{2i} q_{2i}] + \\ + 6c_{144} [(\mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{q}_1) (\mathbf{e}_2 \cdot \mathbf{q}_3) (\mathbf{e}_3 \cdot \mathbf{q}_2) + \\ + (\mathbf{e}_2 \cdot \mathbf{q}_2) (\mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{q}_3) (\mathbf{e}_3 \cdot \mathbf{q}_1) + \\ + (\mathbf{e}_3 \cdot \mathbf{q}_3) (\mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{q}_2) (\mathbf{e}_2 \cdot \mathbf{q}_1)] + \\ + (c_{12} + 6c_{144}) [(\mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{q}_1) (\mathbf{e}_2 \cdot \mathbf{e}_3) (\mathbf{q}_3 \cdot \mathbf{q}_2) + \\ + (\mathbf{e}_2 \cdot \mathbf{q}_2) (\mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{e}_3) (\mathbf{q}_3 \cdot \mathbf{q}_1) + \\ + (\mathbf{e}_3 \cdot \mathbf{q}_3) (\mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{e}_2) (\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{q}_2)] + \\ + 6c_{456} [(\mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{q}_3) (\mathbf{e}_2 \cdot \mathbf{q}_1) (\mathbf{e}_3 \cdot \mathbf{q}_2) + \\ + (\mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{q}_2) (\mathbf{e}_2 \cdot \mathbf{q}_3) (\mathbf{e}_3 \cdot \mathbf{q}_1)] + \\ + (c_{44} + 6c_{456}) [(\mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{q}_2) (\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{q}_3) (\mathbf{e}_2 \cdot \mathbf{e}_3) + \\ + (\mathbf{e}_2 \cdot \mathbf{q}_3) (\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{q}_2) (\mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{e}_3) + \\ + (\mathbf{e}_3 \cdot \mathbf{q}_1) (\mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{q}_3) (\mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{e}_2) + \\ + (\mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{q}_3) (\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{q}_2) (\mathbf{e}_2 \cdot \mathbf{e}_3) + \\ + (\mathbf{e}_2 \cdot \mathbf{q}_1) (\mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{q}_3) (\mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{e}_3) + \\ + (\mathbf{e}_3 \cdot \mathbf{q}_2) (\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{q}_3) (\mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{e}_2)] +$$

$$+ 6\tilde{c}_{155} \sum_i \{e_{1i} e_{2i} e_{3i} [q_{1i} (\mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{q}_3) + \\ + q_{2i} (\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{q}_3) + q_{3i} (\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{q}_2)] + \\ + e_{1i} q_{1i} [e_{2i} q_{3i} (\mathbf{e}_3 \cdot \mathbf{q}_2) + e_{3i} q_{2i} (\mathbf{e}_2 \cdot \mathbf{q}_3)] + \\ + e_{2i} q_{2i} [e_{1i} q_{3i} (\mathbf{e}_3 \cdot \mathbf{q}_1) + e_{3i} q_{1i} (\mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{q}_3)] + \\ + e_{3i} q_{3i} [e_{1i} q_{2i} (\mathbf{e}_2 \cdot \mathbf{q}_1) + e_{2i} q_{1i} (\mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{q}_2)]\} + \\ + (6\tilde{c}_{155} + \Delta C) \sum_i q_{1i} q_{2i} q_{3i} [e_{1i} (\mathbf{e}_2 \cdot \mathbf{e}_3) + \\ + e_{2i} (\mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{e}_3) + e_{3i} (\mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{e}_2)].$$

Выражение (8) позволяет исследовать различные механизмы трехфононных процессов рассеяния в кубических кристаллах. При выполнении условий (6) мы получаем выражения для плотности энергии, обусловленной ангармонизмом колебаний решетки, для изотропной среды (см. формулу (4.22) работы [16]). Члены, содержащие коэффициенты \tilde{c}_{111} , \tilde{c}_{112} и \tilde{c}_{155} , являются новыми, отличающими кристаллы кубической симметрии от изотропной среды. После интегрирования по нормировочному объему мы получаем матричный элемент $V_{\mathbf{q}_1 \mathbf{q}_2 \mathbf{q}_3}^{\lambda_1 \lambda_2 \lambda_3}$, квадрат модуля которого определяет вероятность рассеяния фононов в ангармонических процессах рассеяния. Он будет использован для расчета частот релаксации фононов в нормальных процессах рассеяния ($\delta_{\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2 + \mathbf{q}_3, 0}$) в кристаллах германия, кремния и алмаза.

3. МЕХАНИЗМ ЛАНДАУ – РУМЕРА ДЛЯ ТЕПЛОВЫХ ФОНОНОВ В ГЕРМАНИИ, КРЕМНИИ И АЛМАЗЕ

Ландау и Румер [23] рассмотрели процесс релаксации длинноволновых поперечных фононов ($\hbar\omega_{qT} \ll k_B T$), в котором поперечный (T) фонон сливается с продольным (L) и в результате возникает продольный фонон:

$$\omega_{q_1 T} + \omega_{q_2 L} = \omega_{q_3 L}.$$

Для этого механизма релаксации при достаточно низких температурах было получено выражение [23]

$$\nu_{phN}^{LR} = B_{T0} z_1 T^5, \quad z_1 = \frac{\hbar\omega_{q_1 T}}{k_B T}, \quad (9)$$

где B_{T0} — коэффициент, величина которого зависит от упругих констант второго и третьего порядков, массы колеблющихся атомов и параметра решетки. В теории решеточной теплопроводности коэффициент B_{T0} рассматривается как подгоночный параметр, величина которого находится из сопоставления результатов расчета и экспериментальных данных [1–13]. При анализе этого механизма

релаксации в последующих работах [13, 16, 24] авторы ограничились длинноволновым приближением $q_1 \ll q_2, q_3$ ($z_1 \ll 1$) и моделью изотропной среды. Эти же приближения для частоты релаксации тепловых фононов использовались при расчетах фоновой теплопроводности, хотя неравенство $z_1 \ll 1$ для тепловых фононов не выполняется. Оценки показывают, что для кристаллов германия и кремния с природным изотопическим составом максимальный вклад в решеточную теплопроводность вносят продольные фононы с $z_L \approx 0.4-0.5$ и поперечные фононы с $z_T \approx 2$, а для изотопически высокообогащенных кристаллов германия и кремния максимальный вклад в теплопроводность вносят продольные фононы с $z_L \approx 1$ и поперечные фононы с $z_T \approx 4$. Очевидно, что результаты работ [1–13] нуждаются в уточнении, связанном с отказом от длинноволнового приближения и модели изотропной среды.

Ниже мы приведем расчет частоты релаксации ν_{phN}^{TLL} для кубических кристаллов, который позволит определить величину коэффициента B_{T0} из известных значений модулей упругости второго и третьего порядков, а также уточнить зависимость частоты релаксации ν_{phN}^{TLL} от температуры и волнового вектора тепловых фононов. Выражение для частоты релаксации фононов, согласно [13], имеет вид

$$\nu_{phN}(q_1, \lambda_1) = \frac{\pi \hbar^4}{(2\rho k_B T)^3} \frac{1}{V} \times$$

$$\times \sum_{\substack{\mathbf{q}_2, \mathbf{q}_3 \\ \lambda_2, \lambda_3}} \frac{\text{sh}(z_1/2) \delta_{\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2 + \mathbf{q}_3, 0}}{z_1 z_2 z_3 \text{sh}(z_2/2) \text{sh}(z_3/2)} |V_{\mathbf{q}_1 \mathbf{q}_2 \mathbf{q}_3}^{\lambda_1 \lambda_2 \lambda_3}|^2 \times$$

$$\times [2\delta(\omega_{q_1 \lambda_1} + \omega_{q_2 \lambda_2} - \omega_{q_3 \lambda_3}) +$$

$$+ \delta(\omega_{q_1 \lambda_1} - \omega_{q_2 \lambda_2} - \omega_{q_3 \lambda_3})]. \quad (10)$$

Для поперечных фононов могут иметь место только процессы «слияния» (первое слагаемое в квадратных скобках), тогда как вероятность распадных процессов (второе слагаемое в квадратных скобках) обращается в нуль из-за невозможности удовлетворить закону сохранения энергии. Для процессов слияния фононов выполняются соотношения

$$\mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{q}_1 = 0, \quad \mathbf{e}_2 \cdot \mathbf{q}_2 = q_2, \quad \mathbf{e}_3 \cdot \mathbf{q}_3 = q_3,$$

$$\mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{q}_3 = \mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{q}_2, \quad \mathbf{q}_3 = \mathbf{q}_2 + \mathbf{q}_1. \quad (11)$$

Из выражения (8), учитывая соотношения (11), для механизма Ландау – Румера несложно получить

$$V_{\mathbf{q}_1 \mathbf{q}_2 \mathbf{q}_3}^{TLL} = A \frac{\mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{q}_2}{q_2 q_3} [q_2^2 + (\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{q}_2)] [q_1^2 + (\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{q}_2)] +$$

$$+ \frac{1}{q_2 q_3} \sum_i \{12\tilde{c}_{155} e_{1i} q_{2i} q_{3i} [q_{1i} (\mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{q}_3) +$$

$$+ q_{2i} (\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{q}_3) + q_{3i} (\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{q}_2)] +$$

$$+ (12\tilde{c}_{155} + \Delta C) [(\mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{q}_2) q_{1i} q_{2i} q_{3i} (q_{1i} + q_{2i}) +$$

$$+ e_{1i} q_{1i} q_{2i} q_{3i} (\mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{q}_3)]\}. \quad (12)$$

Первый член в этом выражении соответствует изотропному рассеянию фононов, а второй член — анизотропному рассеянию (он исчезает при переходе к модели изотропной среды). Для кубического кристалла имеем

$$A = A_{cub} = c_{12} + 3c_{44} + 12c_{144} + 24c_{456}. \quad (13a)$$

Используя соотношения (6) и переходя к изотропному случаю, получим результат Такера и Рэмптона [16]:

$$A_{is} = A_1 + 3A_2 + A_3 + A_4 = \frac{3}{2}c_{11} - \frac{1}{2}c_{12} + 12c_{155}, \quad (13b)$$

где коэффициенты A_1, A_2, A_3, A_4 определены в работе [16]. В общем случае частота релаксации ν_{phN}^{TLL} , как и собственные частоты, зависит от направления распространения поперечного фонона относительно кристаллографических осей. Далее мы упростим задачу и ограничимся рассмотрением одного из симметричных направлений ([100], [001], [111] и т. д.), и направим ось z и волновой вектор \mathbf{q}_1 фонона вдоль этого направления, тогда вектор \mathbf{e}_1 будет лежать в плоскости xy , для определенности направим его вдоль оси x . В этом случае кроме равенства $\mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{q}_1 = 0$ будут выполняться условия $e_{1i} q_{1i} = 0$, и матричный элемент (12) может быть представлен через угловые переменные θ_2 и φ_2 вектора \mathbf{q}_2 :

$$V_{\mathbf{q}_1 \mathbf{q}_2 \mathbf{q}_3}^{TLL} = 2 \frac{q_1 q_2^3}{q_3} \sin \theta_2 \cos \varphi_2 \left(\frac{q_1}{2q_2} + \cos \theta_2 \right) \times$$

$$\times \left\{ A_{cub} \left(1 + \frac{q_1}{q_2} \cos \theta_2 \right) + \right.$$

$$+ 12\tilde{c}_{155} \sin^2 \theta_2 \cos^2 \varphi_2 + (12\tilde{c}_{155} + \Delta C) \times$$

$$\left. \times \cos \theta_2 \left(\frac{q_1}{q_2} + \cos \theta_2 \right) \right\}, \quad (14)$$

где

$$\cos \theta_2 = s^* - \frac{q_1}{2q_2} (1 - s^{*2}), \quad s^* = \frac{s_T}{s_L}, \quad (14')$$

s_T и s_L — скорости звука соответственно для поперечных и продольных фононов. Интегралы в выражении (10) по угловым переменным θ_2 и φ_2 легко вычисляются (интеграл по θ_2 берется при помощи δ -функции, учитывающей закон сохранения

энергии при трехфононном рассеянии (14'), а в интеграл по φ_2 дадут вклады только члены, содержащие четные степени $\cos \varphi_2$). Тогда для механизма Ландау–Румера получим

$$\begin{aligned} \nu_{phN}^{TLL} &= T^5 z_1 B^T, \\ B^T &= \frac{k_B^5 s^{*2} (1 - s^{*2})}{16\pi \hbar^4 \rho^3 s_T s_L^8} \frac{\text{sh}(z_1/2)}{z_1/2} J_z. \end{aligned} \quad (15)$$

Здесь

$$J_z(z_1, T) = \int_{z_{min}}^{z_{DL}} dz F(z, z_1) \varphi_1(z, z_1) \times \left(b_2^2 + \frac{3}{2} b_2 b_3 + \frac{5}{8} b_3^2 \right), \quad (15')$$

$$F(z, z_1) = \frac{z^4 \left(1 + \frac{z_1}{2z}\right)^2}{\left(1 + \frac{z_1}{z}\right)^2 \text{sh}\left(\frac{z}{2}\right) \text{sh}\left(\frac{z_1 + z}{2}\right)},$$

$$\varphi_1(z, z_1) = \left[1 + \frac{z_1}{2z} \left(1 + \frac{1}{s^*}\right)\right] \left[1 + \frac{z_1}{2z} \left(1 - \frac{1}{s^*}\right)\right],$$

$$b_2 = A\varphi_2(z, z_1) + (\tilde{c}_{155} + \Delta C) s^{*2} \varphi_3(z, z_1),$$

$$b_3 = \tilde{c}_{155} (1 - s^{*2}) \varphi_1(z, z_1),$$

$$\varphi_2(z, z_1) = 1 + \frac{z_1}{z} - \frac{1}{2} \left(\frac{z_1}{z}\right)^2 \left(\frac{1}{s^{*2}} - 1\right),$$

$$\varphi_3(z, z_1) = \left[1 - \frac{1}{2} \frac{z_1}{z} \left(\frac{1}{s^{*2}} - 1\right)\right] \left[1 + \frac{z_1}{2z} \left(1 + \frac{1}{s^{*2}}\right)\right],$$

$$\tilde{c}_{155} = 12\tilde{c}_{155}, \quad z_1 = \frac{\hbar\omega_{qT}}{k_B T},$$

$$z_{min} = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{s^*} - 1\right) z_1, \quad z_{DL} = \frac{\hbar\omega_{DL}}{k_B T},$$

ω_{DL} — дебаевская частота продольных фононов.

В изотропном случае $\tilde{c}_{155} = \Delta C = 0$, поэтому $b_3 = 0$, а выражение для коэффициента b_2 примет вид

$$b_2 = A_{is} \varphi_2(z, z_1). \quad (16)$$

В длинноволновом пределе $z_1/z \ll 1$ для кристаллов кубической симметрии из выражений (15) и (15') следует формула (9) с коэффициентом B_{T0} в виде

$$B_{T0} = \frac{B k_B^5 (1 - s^{*2})}{16\pi \hbar^4 \rho^3 s_T s_L^8} \int_0^{z_{qL}} \frac{z^4 dz}{\text{sh}^2(z/2)}, \quad (17)$$

из которой при температурах гораздо меньших температуры Дебая получаем

$$B_{T0} = \frac{B \pi^3 k_B^5 s^{*2} (1 - s^{*2})}{15 \hbar^4 \rho^3 s_T s_L^8}, \quad (17')$$

где

$$\begin{aligned} B &= A^2 + A \left[2s^{*2} (\tilde{c}_{155} + \Delta C) + \frac{3}{2} \tilde{c}_{155} (1 - s^{*2}) \right] + \\ &+ \frac{3}{2} (\tilde{c}_{155} + \Delta C) \tilde{c}_{155} s^{*2} (1 - s^{*2}) + (\tilde{c}_{155} + \Delta C)^2 s^{*4} + \\ &+ \frac{5}{8} \tilde{c}_{155}^2 (1 - s^{*2})^2. \end{aligned}$$

Итак, в длинноволновом пределе результат Ландау–Румера для частоты релаксации поперечных фононов сохраняется: $\nu_{phN}^{TLL} \approx z_1 T^5$. Однако кроме изотропного рассеяния (первое слагаемое в выражении (17')) в этот механизм вносит вклад интерференция изотропного и анизотропного рассеяний — второе слагаемое в выражении (17'), а также анизотропное рассеяние — последние три члена в выражении (17'). Оценки показывают, что в направлении [100] вклад изотропного рассеяния составляет примерно 40% для германия и 32% для кремния, интерференционный член дает 46% для германия и 49% для кремния, а вклад анизотропного рассеяния составляет примерно 14% для германия и 19% для кремния.

Значения параметров B_{is} , B и B_{T0} для кристаллов германия, кремния и алмаза приведены в табл. 3, из которой следует, что в направлении [100] при $T = 10$ К и $z = 1$ величина ν_{phN}^{TLL} составляет $1.4 \cdot 10^5$ с⁻¹ для германия, $1.2 \cdot 10^4$ с⁻¹ для кремния и $7.7 \cdot 10^3$ с⁻¹ для алмаза. Величины параметров B_{is} для кристаллов германия, кремния и алмаза оказываются примерно на 10% больше константы B . Значения подгоночных параметров B_{T0} , которые использовались при анализе теплопроводности этих кристаллов с различным изотопическим составом в работах [3, 9–11] (см. табл. 2 в работе [11]) оказались в 50 раз меньше для кристалла германия и в 46 раз меньше для кремния, чем дает теория упругости для коэффициента B_{T0} (см. табл. 2). Поскольку для тепловых фононов ($z_1 > 1$) частота релаксации ν_{phN}^{TLL} оказывается значительно меньшей, чем дает теория Ландау–Румера во всей температурной области $1 \text{ К} < T < 100 \text{ К}$, эффективное значение параметра B_{T0} для тепловых фононов должно быть меньше, чем дает длинноволновое приближение (см. следующий раздел). Однако даже с учетом этого эффективные величины частот релаксации ν_{phN}^{TLL} для кристаллов германия и кремния с различным изотопическим составом [3, 9–11], полученные с помощью подгоночных параметров B_{T0} , оказываются на порядок меньшими, чем рассчитанные нами в рамках

Таблица 3. Значения параметров, определяющих частоты релаксации поперечных фононов в кристаллах германия, кремния и алмаза

| | $B_{is},$ $10^{24} \text{ (дин/см}^2\text{)}^2$ | $B,$ $10^{24} \text{ (дин/см}^2\text{)}^2$ [100] | $B,$ $10^{24} \text{ (дин/см}^2\text{)}^2$ [111] | $B_{T0},$ $\text{с}^{-1} \cdot \text{К}^{-5}$ [100] | $B_{T0},$ $\text{с}^{-1} \cdot \text{К}^{-5}$ [111] |
|----|--|--|--|---|---|
| Ge | 13.46 | 12.20 | 10.99 | 1.4 | 0.46 |
| Si | 11.55 | 10.79 | 9.74 | 0.12 | 0.045 |
| C | 1628 | 1787 | 1826 | $7.66 \cdot 10^{-3}$ | $5.01 \cdot 10^{-3}$ |

теории упругости. Можно отметить, что анизотропия частоты релаксации ν_{phN}^{TLL} в кристаллах германия и кремния обусловлена главным образом анизотропией модулей упругости второго порядка.

В изотропном случае из формулы (17) следует результат Такера и Рэмптона [16]:

$$B_{is} = A_{is}^2 = \left(\frac{3}{2}c_{11} - \frac{1}{2}c_{12} + 12c_{155} \right)^2. \quad (18)$$

Это выражение не согласуется с результатом, полученным Марисом для изотропной среды (см. формулу (210) в [22]):

$$B_{T0} = \frac{\pi^3 k_B^5}{120 \hbar^4 s_L^5} \frac{c_{11} - c_{44}}{c_{11}} \times \left(\frac{c_{111} - c_{112} + 3c_{11} - c_{12}}{c_{11}} \right)^2. \quad (19)$$

Различие численных коэффициентов в выражениях (19) и (17') в два раза связано с учетом двух процессов релаксации поперечных фононов в формуле (10). Однако основное отличие выражений (15)–(17) от формулы (19) заключается в том, что в (19) входит модуль упругости c_{111} . Дело в том, что модуль упругости c_{111} связан с релаксацией продольных фононов и не имеет отношения к релаксации поперечных фононов в механизме Ландау – Румера. Очевидно, что введение обобщенного параметра Грюнайзена [24] и его усреднение не являются адекватной процедурой не только для кубических кристаллов, но и для изотропного случая. Мы достаточно подробно воспроизвели основные выкладки при расчете частоты релаксации поперечных фононов, поскольку даже в опубликованных в последнее время работах (см., например, [25]) имеется ряд неточностей. Так, например, в работе [25] при расчете теплопроводности кристаллов Ge, Si, GaN и C для частоты релак-

сации ν_{phN}^{TLL} используется выражение (9), в котором для коэффициента B_{T0} предложено выражение

$$B_{T0} \approx \frac{k_B^5 \gamma_T^2 V}{M \hbar^3 \rho s_T^5}, \quad (20)$$

где γ_T — коэффициент Грюнайзена для продольных фононов. Из сравнения выражений (15)–(18) и (19) видно, что в формуле (20) некорректно учтена поляризация в скоростях звука в знаменателе коэффициента B_{T0} . Использование этого приближения для частот релаксации тепловых фононов при оценке изотопического эффекта в теплопроводности кристаллов Ge, Si, GaN и C [25] вряд ли может дать разумные результаты.

4. РЕЗУЛЬТАТЫ ЧИСЛЕННОГО АНАЛИЗА

Проанализируем зависимость частоты релаксации $\nu_{phN}^{TLL}(z_1, T)$ от приведенного волнового вектора z_1 фононов и температуры согласно формулам (15) и (15') и рассмотрим сначала, насколько велико отклонение от формулы Ландау – Румера (9) для случая изотропной среды. Для этого построим график зависимости отношения частот $\nu_{phN}^{TLL}(z_1, T)$ и $\nu_{phN}^{LR}(z_1, T)$, рассчитанных согласно формулам (15)–(18):

$$N(z_1, T) = \frac{\nu_{phN}^{TLL}(z_1, T)}{\nu_{phN}^{LR}(z_1, T)} = \frac{15}{4\pi^4} \frac{\text{sh}(z_1/2)}{z_1/2} J_{is}(z_1, T), \quad (21)$$

где $J_{is}(z_1, T) = J_z(z_1, T)$ при $b_3 = 0$, $b_2 = A_{is} \varphi_2(z, z_1)$. Как видно из рис. 1, при малых z_1 это отношение стремится к единице и, соответственно, $\nu_{phN}^{TLL}(z_1, T) \rightarrow \nu_{phN}^{LR}(z_1, T)$. Однако с увеличением z_1 отклонение функции $N(z_1, T)$ от единицы при фиксированной температуре возрастает, и при $z_1 > 1$

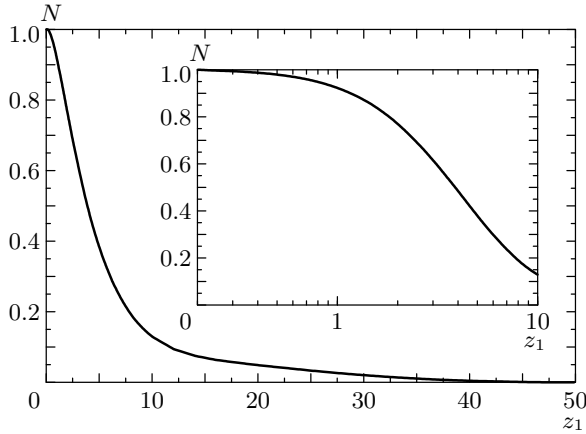


Рис. 1. Зависимости функции $N(z_1, T)$ от приведенного волнового вектора z_1 при фиксированной температуре $T = 1$ К для скоростей звука $s_L = 4.92 \cdot 10^5$ см/с и $s_T = 3.55 \cdot 10^5$ см/с

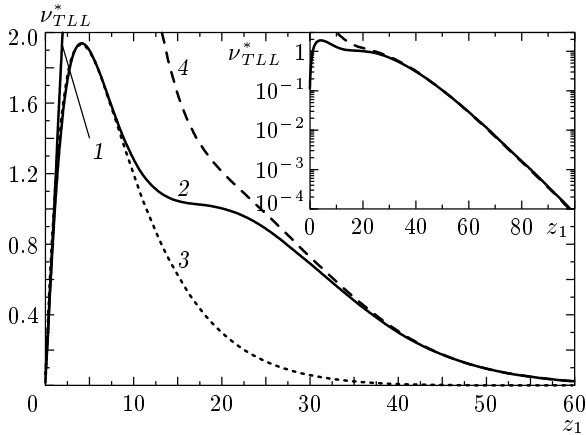


Рис. 2. Зависимость ν_{TLL}^* от приведенного волнового вектора z_1 при температуре 1 К для изотропного случая: 1 — линейное приближение Ландау–Румера; 2 — наш расчет; 3 — аппроксимация (26); 4 — аппроксимация (25) для скоростей звука $s_L = 4.92 \cdot 10^5$ см/с и $s_T = 3.55 \cdot 10^5$ см/с

величина $\nu_{phN}^{TLL}(z_1, T) \ll \nu_{phN}^{LR}(z_1, T)$ во всей температурной области $1 \text{ К} < T < 100 \text{ К}$. Что касается температурной зависимости $\nu_{phN}^{TLL}(z_1, T)$, то при $z_1 \ll 1$ величина $\nu_{phN}^{TLL}(z_1, T) \sim \nu_{phN}^{LR}(z_1, T) \sim z_1 T^5$, однако при $T > 50 \text{ К}$ и $z_1 > 1$ эта зависимость ослабляется и показатель степени оказывается меньше пяти.

Отклонение частоты релаксации от линейной зависимости (9) наиболее ярко проявляется на самой функции $\nu_{phN}^{TLL}(z_1, T)$. На рис. 2 приведены графики

величин

$$\nu_{TLL}^*(z_1, T) = \frac{\nu_{phN}^{TLL}(z_1, T)}{B_{T0} T^5}, \quad \nu_{TLL}^{*LR}(z_1) = z_1 \quad (22)$$

от приведенного волнового вектора фононов. Как видно из рис. 2, только при $z_1 \leq 1$ эту зависимость можно аппроксимировать линейной функцией ($\nu_{TLL}^{*LR}(z_1)$ — приближение Ландау–Румера (9)). При $z_1 > 4$ величина $\nu_{TLL}^*(z_1, T)$ сначала резко убывает, затем в интервале $10 \leq z_1 \leq 20$ выходит на плато, а при $z_1 > 20$ является монотонно убывающей функцией z_1 . Такое сильное отклонение от классической зависимости Ландау–Румера (9) оказалось неожиданным и для нас. Анализ, проведенный в работах [26, 27], показал, что при $z_1 \gg 1$ ($\hbar\omega_{qT} \gg k_B T$) частота релаксации $\nu_{phN}^{TLL}(z_1, T)$ экспоненциально уменьшается с увеличением z_1 по закону

$$\nu_{phN}^{TLL}(z_1, T) \propto z_1^n \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{1}{s^*} - 1\right)z_1\right], \quad (23)$$

где $n = 3$, согласно [16, 24], и $n = 5$, согласно [27]. Поэтому можно было ожидать появления только одного максимума на кривой $\nu_{phN}^{TLL}(z_1, T)$ и монотонного убывания при $z_1 \gg 1$. Возникновение новой особенности — области плато при $10 < z_1 < 20$ на зависимости частоты релаксации от волнового вектора фононов — требует более тщательного анализа. Прежде чем переходить к нему, отметим два важных момента. Во-первых, обнаруженные нами особенности обусловлены зависимостью матричного элемента (вероятности перехода) (14) от угла рассеяния фонона, которая, в отличие от работ [26, 27], нами учтена строго. Во-вторых, характерный вид зависимости $\nu_{TLL}^*(z_1, T)$ может реализоваться только при достаточно низких температурах. Дело в том, что предельная частота поперечных фононов ограничена дебаевской частотой, которая составляет примерно 118 К для германия и 210 К для кремния. Поэтому, хотя характерный вид зависимости $\nu_{TLL}^*(z_1, T)$ сохраняется при высоких температурах, при $T \sim 50\text{--}100 \text{ К}$ область плато на кривой $\nu_{TLL}^*(z_1, T)$ попадает в нефизическую область волновых векторов фононов, больших дебаевского волнового вектора: $z > z_{DT} = \hbar\omega_{DT}/k_B T$ (ω_{DT} — дебаевская частота поперечных фононов). Однако при низких температурах, примерно 1–4 К для германия и 1–10 К для кремния, отмеченные особенности лежат в физической области волновых векторов фононов ($z \leq z_{DT}$).

Рассмотрим ниже, чем обусловлено появление области плато на зависимости частоты

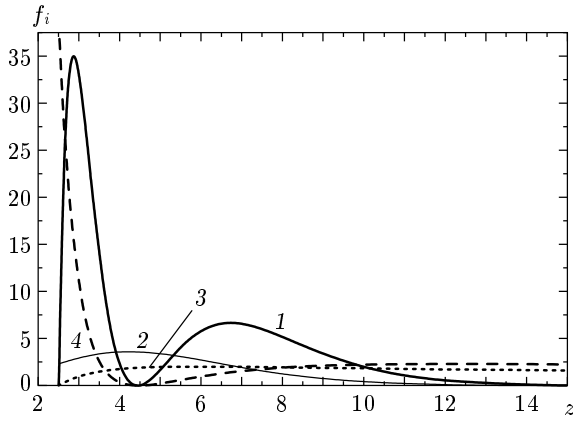


Рис. 3. Зависимости подынтегральных функций от приведенного волнового вектора фононов: 1 – $F^*(z, z_1)\varphi_1(z, z_1)\varphi_2^2(z, z_1)$; 2 – $F^*(z, z_1)$; 3 – $\varphi_1(z, z_1)$; 4 – $\varphi_2^2(z, z_1)$ для $z_1 = 13$ и скоростей звука $s_L = 4.92 \cdot 10^5$ см/с, $s_T = 3.55 \cdot 10^5$ см/с

релаксации от волнового вектора фононов. Подынтегральная функция в (15') для изотропного случая состоит из произведения трех функций: $F^*(z, z_1)\varphi_1(z, z_1)\varphi_2^2(z, z_1)$, где $F^*(z, z_1) = F(z, z_1)\text{sh}(z_1/2)$, причем функции $\varphi_1(z, z_1)$ и $\varphi_2(z, z_1)$ связаны с угловой зависимостью вероятности рассеяния (см. (14)). Их зависимости от z при фиксированном значении z_1 приведены на рис. 3. Функция $F^*(z, z_1)$ достигает максимума при $z \approx 4$, а затем экспоненциально затухает. Функции $\varphi_1(z, z_1)$ и $\varphi_2(z, z_1)$ при $z_1 \ll z$ стремятся к единице и обращаются в нуль при значениях

$$z = z_{10} = z_{min} = \alpha_{10}z_1, \quad \alpha_{10} = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{s^*} - 1 \right),$$

$$z = z_{20} = \alpha_{20}z_1, \quad \alpha_{20} = \frac{1}{2} \left(\sqrt{\frac{2}{s^{*2}} - 1} - 1 \right). \quad (24)$$

Очевидно, что вероятности рассеяния фонона на углы θ_1 и θ_2 ($\cos \theta_1 = -1, \sin \theta_1 = 0, \cos \theta_2 = s^* - (1 - s^*)(2s^*\alpha_{20})^{-1}$) обращаются в нуль, что приводит к немонотонной зависимости вероятности рассеяния от волнового вектора фононов (рис. 3, кривая 1). Функция $\varphi_2^2(z, z_1)$ достаточно быстро возрастает по обе стороны от точки $z = z_{20}$. С увеличением параметра z_1 величина z_{20} возрастает, и при $z = z_{20} = 4-5$ функция $\varphi_2(z, z_1)$ обращается в нуль как раз в области максимума функции $F^*(z, z_1)$. Это приводит к появлению излома на кривой $\nu_{TLL}^*(z_1, T)$ и началу области плато при $z_1 \approx 8 \left(\sqrt{2/s^{*2} - 1} - 1 \right)^{-1}$. Дальнейшее

увеличение z_1 приводит к смещению нуля функции $\varphi_2(z, z_1)$ в область экспоненциального спада функции $F^*(z, z_1)$, при этом значения $\nu_{TLL}^*(z_1, T)$ слабо убывают (область плато) до тех пор, пока нуль функции $\varphi_1(z, z_1)$ не перейдет через максимум функции $F^*(z, z_1)$, что приводит ко второму излому на кривой $\nu_{TLL}^*(z_1, T)$ (см. рис. 2). При $z_{min} > 4$ или $z_1 > 8(1/s^* - 1)^{-1}$ частота релаксации поперечных фононов переходит в область экспоненциального спада. Итак, очевидно, что при расчете частот релаксации фононов необходимо учитывать угловую зависимость вероятности рассеяния фононов.

В области $z_1 \gg 1$ и $z_{min}, z_{02} \gg 1$ величину предэкспоненциального фактора можно оценить следующим образом. Основной вклад в интеграл вносит область первого пика $z_{min} < z < z_{20}$ (см. рис. 3). При интегрировании в этом интервале по теореме о среднем можно вынести за знак интегрирования плавно меняющиеся функции в средней точке $\bar{z} = (z_{min} + z_{20})/2$, а резко меняющуюся часть $\varphi_1\varphi_2^2 \exp(-z)$ проинтегрировать точно. Тогда получим

$$\nu_{phN}^{TLL}(z_1, T) = 7 \left(\frac{\bar{z} + 1/2}{\bar{z} + 1} \right)^2 \times$$

$$\times \left(\bar{z} + \frac{1}{2} \sqrt{\frac{2}{s^*} - 1} + 1 \right)^2 \left[\bar{z} + \frac{1}{2} \left(\frac{1}{s^*} + 1 \right) \right] \times$$

$$\times [(\alpha_{20} - \alpha_{10})^2 z_1^3 - 4(\alpha_{20} - \alpha_{10})z_1^2 + 6z_1] \times \exp(-\alpha_{10}z_1). \quad (25)$$

Как видно из рис. 2 (кривая 4), такой способ дает надежную оценку величины $\nu_{phN}^{TLL}(z_1, T)$ для высокочастотных фононов. Таким образом, учет угловой зависимости (14) вероятности рассеяния фонона, в отличие от работ [26, 27], приводит к иному виду предэкспоненциального фактора, который является полиномом третьей степени и не может быть сведен к простой степенной зависимости (23).

В отличие от изотропного случая, для кубических кристаллов угловая зависимость квадрата матричного элемента определяется уже комбинацией трех функций: $\varphi_1(z, z_1)$, $\varphi_2(z, z_1)$ и $\varphi_3(z, z_1)$. В этом случае изменение положения нулей функции ($z_{10} = z_{min}, z_{20}$ и $z_{30} = (1/2)z_1(1/s^{*2} - 1)$) относительно максимума функции $F^*(z, z_1)$ с ростом волнового вектора фонона и определяет особенности зависимости частоты релаксации $\nu_{TLL}^*(z_1, T)$. Для кристаллов германия, кремния и алмаза вероятность рассеяния фононов обращается в нуль только на нижнем пределе интегрирования $z_{10} = z_{min}(\theta_2 = \pi)$. Однако отдельные вклады в вероятность рассеяния

могут обращаться в нуль: так, изотропная часть рассеяния обращается в нуль при $z = z_{20}$, интерференционные вклады и часть членов, связанных с анизотропным рассеянием фононов и пропорциональных функциям $\varphi_2(z, z_1)$ и $\varphi_3(z, z_1)$, — в точках $z = z_{20}$ и $z = z_{30}$. Анизотропная часть рассеяния, пропорциональная величине b_3^2 , отлична от нуля во всей области интегрирования, она дает монотонно убывающий вклад в частоту релаксации фононов. Этот вклад для кристаллов германия составляет менее 4 %, а для кремния — менее 6 %.

Рассмотрим зависимость частоты релаксации фононов от приведенного волнового вектора в кристаллах германия, кремния и алмаза в кристаллографическом направлении [100]. Как видно из рис. 4, эти зависимости качественно отличаются от случая изотропной среды: они имеют уже немонотонный характер — вместо области плато на зависимостях $\nu_{TLL}^*(z_1, T)$ возникают минимум и второй максимум. Возникновение новых особенностей на зависимости частоты релаксации от волнового вектора фононов — минимума и второго максимума при $z \gg 1$ — представляет несомненный интерес для ультразвуковых исследований и требует более тщательного анализа. Анализ всех вкладов в частоту релаксации $\nu_{TLL}^*(z_1, T)$ показал, что появление второго максимума связано с кубической анизотропией кристаллов. Интерференция изотропного и анизотропного рассеяний (второе слагаемое в выражении (17')), а также анизотропное рассеяние (последние три члена в выражении (17')) обуславливают двугорбый характер зависимости частоты релаксации фононов от приведенного волнового вектора в кристаллах германия и кремния (см. кривые 3 и 4 на рис. 4). Из сравнения графиков, приведенных на рис. 4, видно, что для кристаллов германия и кремния преобладающий вклад в частоту релаксации вносит интерференционное рассеяние, вклад изотропного рассеяния несколько меньше. Для кристаллов алмаза преобладающий вклад в области первого максимума вносит изотропное рассеяние, а вклад интерференционного рассеяния отрицателен и в полтора раза меньше по абсолютной величине, поэтому вместо второго максимума имеет место область плато, как и в изотропном случае. Анизотропное рассеяние (кривые 4) вносит заметный вклад для кристаллов германия и кремния и примерно в два раза меньший для алмаза во всей области волновых векторов. Следует отметить, что зависимость частоты релаксации $\nu_{TLL}^*(z_1, T)$ для этих кристаллов от волнового вектора фононов в направлении [111] подобна изотропному случаю (см. рис. 2): второй максимум не на-

блюдается, а вместо области плато имеет место интервал более медленного убывания частоты релаксации. Итак, появление второго максимума на зависимости $\nu_{TLL}^*(z_1, T)$ в кристаллах германия и кремния в направлении [100] обусловлено кубической анизотропией этих кристаллов.

Что касается расчетов теплопроводности кристаллов германия, кремния и алмаза, то использование формул (15) для $\nu_{phN}^{TLL}(z_1, T)$ является неудобным — оно сильно усложняет такие расчеты. Поскольку энергии актуальных для теплопроводности фононов ограничены сверху величинами $z_1 < 4-5$ (большие значения экспоненциально обрезаются функцией распределения Планка), частота релаксации фононов в окрестности первого максимума может быть аппроксимирована выражением

$$\nu_{phN}^{TLL}(z_1, T) \approx 0.65 B_{T_0} T^5 z_1 \times [\exp(-\alpha_{10} z_1) + \exp(-\alpha_{20} z_1)], \quad (26)$$

которое, как видно из рис. 4, в интервале значений $0 < z_1 < 8$ хорошо согласуется со значениями, полученными из формул (15) как для изотропного случая, так и для кристаллов германия, кремния и алмаза. По крайней мере, эта аппроксимация значительно лучше, чем введение в формулу Ландау–Румера (9) подгоночного множителя.

Рассмотрим возможность экспериментального наблюдения отмеченных выше особенностей зависимости частоты релаксации поперечных фононов от волнового вектора. Как видно из рис. 5, при достаточно низких температурах величина $\nu_{TLL}^*(z_1, T)$ практически является функцией только z_1 для кристаллов германия, кремния и алмаза. Она мало меняется при изменении температуры: положения максимумов и минимумов и их высоты изменяются менее чем на 1 % в температурном интервале $1 \text{ К} < T < 20 \text{ К}$ для кристаллов германия, в интервале $1 \text{ К} < T < 40 \text{ К}$ для кремния и в интервале $1 \text{ К} < T < 100 \text{ К}$ для алмаза. Коэффициент поглощения ультразвука α_{TLL} пропорционален частоте релаксации ν_{phN}^{TLL} (см., например, [18, 24]):

$$\alpha_{TLL}(z, T) = \nu_{phN}^{TLL}(z, T) / 2s_T. \quad (27)$$

Поэтому из измерений коэффициента поглощения ультразвука с энергией $\hbar\omega_{DT} \approx 10 \text{ К}$ в интервале температур от 0.1 до 50 К можно определить зависимость величины $\nu_{TLL}^*(z_1, T)$ в интервале $0.2 < z_1 < 100$:

$$\nu_{TLL}^*(z_1, T) = 2s_T \alpha_{TLL} / B_{T_0} T^5. \quad (28)$$

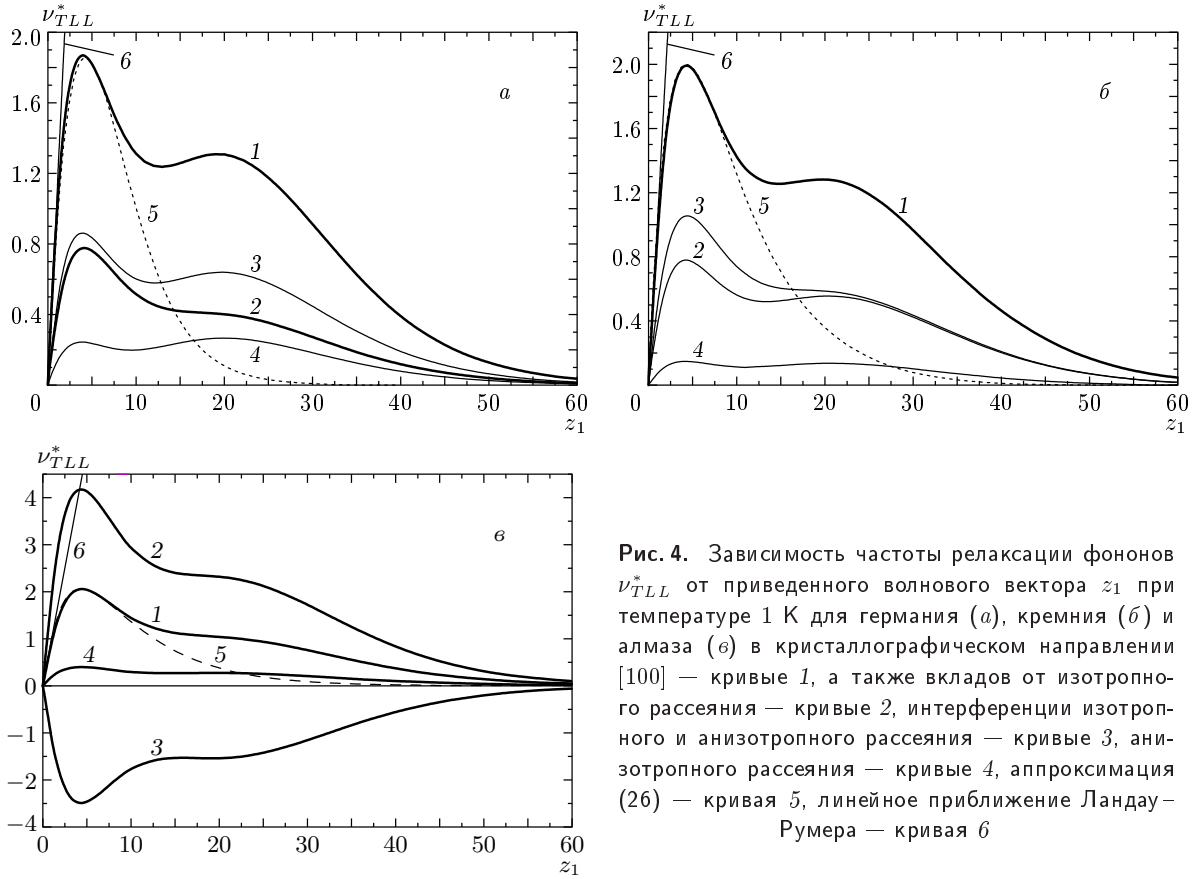


Рис. 4. Зависимость частоты релаксации фононов ν_{TLL}^* от приведенного волнового вектора z_1 при температуре 1 К для германия (а), кремния (б) и алмаза (в) в кристаллографическом направлении [100] — кривые 1, а также вкладов от изотропного рассеяния — кривые 2, интерференции изотропного и анизотропного рассеяния — кривые 3, анизотропного рассеяния — кривые 4, аппроксимация (26) — кривая 5, линейное приближение Ландау – Румера — кривая 6

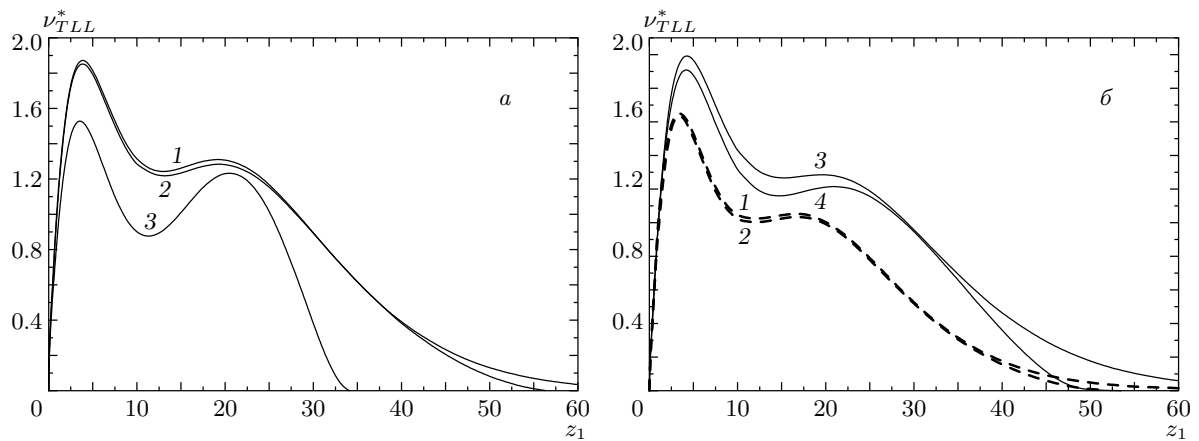


Рис. 5. Зависимость частоты релаксации фононов ν_{TLL}^* от приведенного волнового вектора z_1 для германия (а), кремния и алмаза (б) в кристаллографическом направлении [100]: для германия кривая 1 — при $T = 1-20$ К, кривая 2 — при $T = 30$ К, кривая 3 — при $T = 50$ К; для кремния кривая 1 — при $T = 1-40$ К, кривая 2 — при $T = 50$ К; для алмаза кривая 3 — при $T = 1-100$ К, кривая 4 — при $T = 200$ К

Для этого необходимо температурную зависимость $\nu_{TLL}^*(z_1, T)$ при фиксированной частоте фонона ω_{qT} перестроить как функцию $z_{qT} = \hbar\omega_{qT}/k_B T$ уже при фиксированной температуре, учитывая, что в указанных выше низкотемпературных интервалах функция $\nu_{TLL}^*(z_1, T)$ зависит практически только от параметра z_1 . Для поперечных фононов терагерцевого диапазона ($1 \text{ ТГц} \approx 50 \text{ К}$) в кристаллах кремния и алмаза условия наблюдения более благоприятны. Таким образом, если механизм Ландау–Румера является основным механизмом релаксации поперечных фононов, то зависимость частоты релаксации поперечных фононов от волнового вектора для кристаллов германия, кремния и алмаза может быть найдена из измерений коэффициента поглощения ультразвука. Можно отметить, что для этих экспериментов желательно иметь изотопически высокообогащенные, химически чистые кристаллы германия, кремния и алмаза, чтобы уменьшить эффект рассеяния фононов на дефектах, которое может при достаточно низких температурах завуалировать ангармонические процессы рассеяния.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Итак, в данной работе рассмотрена релаксация поперечных тепловых и высокочастотных фононов в механизме Ландау–Румера в изотропной среде и в кристаллах германия, кремния и алмаза, имеющих кубическую симметрию. Получено выражение для упругой энергии, обусловленной ангармонизмом колебаний решетки кристалла кубической симметрии, через модули упругости второго и третьего порядков. Из известных значений модулей упругости второго и третьего порядков найдены параметры, определяющие величины частот релаксации поперечных фононов в механизме Ландау–Румера для кристаллов германия, кремния и алмаза. Показано, что зависимость частоты релаксации от волнового вектора для тепловых и высокочастотных фононов резко отличается от классической зависимости Ландау–Румера как в изотропных средах, так и в кубических кристаллах. Для кристаллов германия, кремния и алмаза в кристаллографическом направлении $[100]$, в отличие от изотропных сред, она имеет существенно немонотонный характер с двумя максимумами, второй из которых находится в области высокочастотных фононов $\hbar\omega_{qT} \gg k_B T$. Установлено, что обнаруженные нами особенности частоты релаксации обусловлены угловой зависимостью вероятности ангармонического рассеяния и

анизотропией упругих свойств кристаллов германия, кремния и алмаза. Найдены значения углов рассеяния фононов, при которых вероятность рассеяния обращается в нуль. Рассмотрена возможность экспериментального определения зависимости частоты релаксации высокочастотных фононов от волнового вектора из измерений температурной зависимости коэффициента поглощения высокочастотного ультразвука.

Авторы выражают благодарность А. П. Танкеву, И. Ф. Мирсаеву, В. И. Ожогину, А. В. Инюшкину и А. Н. Талденкову за обсуждение результатов работы и критические замечания.

Работа выполнена при поддержке гранта Президента РФ № НШ 1380.2003.2, молодежного гранта УрО РАН № 15-02-04, а также Фонда «Династия» и МЦФФМ.

ЛИТЕРАТУРА

1. А. П. Жернов, А. В. Инюшкин, *Изотопические эффекты в твердых телах*, Российский научный центр «Курчатовский институт», Москва (2001).
2. M. Asen-Palmer, K. Bartkowski, E. Gmelin et al., *Phys. Rev. B* **56**, 9431 (1997).
3. В. И. Ожогин, А. В. Инюшкин, А. Н. Талденков и др., Письма в ЖЭТФ **63**, 463 (1996).
4. T. Ruf, R. W. Henn, M. Asen-Palmer et al., *Sol. St. Comm.* **115**, 243 (2000).
5. W. S. Capinski, H. J. Maris, E. Bauser et al., *Appl. Phys. Lett.* **71**, 2109 (1997).
6. J. E. Graebner, M. E. Reiss, L. Seibles et al., *Phys. Rev. B* **50**, 3702 (1994).
7. J. R. Olson, R. O. Phol, J. W. Vandersande et al., *Phys. Rev. B* **47**, 14850 (1993).
8. Lanhua Wei, P. K. Kuo, R. L. Thomas et al., *Phys. Rev. Lett.* **70**, 3764 (1993).
9. А. П. Жернов, Д. А. Жернов, ЖЭТФ **114**, 1757 (1998); А. П. Жернов, ФТТ **41**, 1185 (1999).
10. И. Г. Кулеев, И. И. Кулеев, ЖЭТФ **120**, 649 (2001).
11. И. Г. Кулеев, И. И. Кулеев, ЖЭТФ **121**, 558 (2002).
12. Р. Берман, *Теплопроводность твердых тел*, Мир, Москва (1962).
13. Б. М. Могилевский, А. Ф. Чудновский, *Теплопроводность полупроводников*, Наука, Москва (1972).

14. F. Birch, Phys. Rev. **71**, 809 (1947).
15. Л. К. Зарембо, В. А. Красильников, *Введение в нелинейную акустику*, Наука, Москва (1966).
16. Дж. Такер, В. Рэмpton, *Гиперзвук в физике твердого тела*, Мир, Москва (1975).
17. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Теория упругости*, Наука, Москва (1987).
18. Р. Труэлл, Ч. Эльбаум, Б. Чик, *Ультразвуковые методы в физике твердого тела*, Мир, Москва (1972).
19. T. Bateman, W. P. Mason, and H. J. McSkimin, J. Appl. Phys. **32**, 928 (1961).
20. H. J. McSkimin and P. Andreadh, J. Appl. Phys. **35**, 3312 (1964).
21. M. H. Grimsditch, E. Anastassakis, and M. Cardona, Phys. Rev. B **18**, 901 (1978).
22. И. Н. Францевич, Ф. Ф. Воронов, С. А. Бакута, *Упругие постоянные и модули упругости металлов и неметаллов*, Наукова Думка, Киев (1982).
23. L. Landau and J. Rumer, Sov. Phys. **11**, 18 (1937) [перевод: Л. Д. Ландау, *Собрание трудов* т. 1, Наука, Москва (1969), с. 227].
24. H. J. Maris, Phys. Acoust. **VII**, 280 (1971).
25. D. T. Morelli, J. P. Hereman, and G. A. Slack, Phys. Rev. B **66**, 195394 (2002).
26. R. Orbach and L. A. Vredevoe, Physics **1**, 91 (1964).
27. П. С. Зырянов, Г. Г. Талуц, ЖЭТФ **49**, 1942 (1965).
28. Б. Л. Тиман, ФТТ **6**, 950 (1964).