

Механизмы релаксации продольных 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

E-mail: kuleev@imp.uran.ru

(Поступила в Редакцию 30 марта 2004 г.

В окончательной редакции 19 мая 2004 г.)

В модели анизотропного континуума рассчитаны частоты релаксации продольных тепловых и высокочастотных фононов для трехфононных механизмов рассеяния $L \leftrightarrow L + L$ и $L \leftrightarrow T + L$. Анизотропия ангармонического рассеяния фононов в кубических кристаллах учитывалась через упругие модули второго и третьего порядков. Найдены параметры, определяющие величины частот релаксации продольных фононов для кристаллов германия, кремния и алмаза. Проанализированы длинноволновый предел, переход к модели изотропной среды, а также зависимость частот релаксации тепловых и высокочастотных фононов от температуры и волнового вектора фононов для этих кристаллов.

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

Исследование механизмов релаксации фононов в ангармонических процессах рассеяния представляет интерес не только для изучения решеточной теплопроводности кристаллов [1], но и таких кинетических эффектов, как поглощение ультразвука [2] и термоэдс электрон-фононного увлечения [3]. Экспериментальные исследования изотопических эффектов в теплопроводности германия, кремния и алмаза [4–8], а также теоретический анализ этих результатов [9,10] показали, что нормальные процессы (N-процессы) фонон-фононного рассеяния играют важную роль в решеточной теплопроводности изотопически обогащенных и химически чистых кристаллов. Эти процессы, в которых полный импульс сталкивающихся фононов сохраняется, вместе с граничным рассеянием фононов являются главными механизмами, ограничивающими максимальные значения теплопроводности в изотопически высокообогащенных кристаллах [9,10].

При расчете теплопроводности в рамках релаксионного метода [4–12] обычно используются выражения для частот релаксации фононов в N-процессах рассеяния, полученные в длинноволновом приближении: $z_{q\lambda} = \hbar\omega_{q\lambda}/k_B T \ll 1$ ($\hbar\omega_{q\lambda}$ — энергия фонона с волновым вектором \mathbf{q} и поляризацией λ). Это приближение является вполне оправданным при расчете коэффициента поглощения длинноволнового ультразвука, а также термоэдс электрон-фононного увлечения, так как в полупроводниковых кристаллах электроны могут взаимодействовать только с длинноволновыми фононами. Однако в решеточную теплопроводность кристаллов Ge и Si с природным составом изотопов основной вклад вносят тепловые фононы с $z_{q\lambda} \approx 1$, а в изотопически обогащенных кристаллах — тепловые фононы с $z_{q\lambda} \approx 2$ –4. Поэтому длинноволновое приближение для частот релаксации фононов не является корректным для расчета теплопроводности. В рамках этого метода параметры,

определяющие интенсивность ангармонических процессов рассеяния, являлись подгоночными параметрами теории, которые определялись из сопоставления результатов расчета с экспериментальными данными [4–12]. Для оценки вероятности ангармонических процессов рассеяния обычно использовалась модель изотропной среды. Эта модель не является адекватной для кристаллов германия, кремния и алмаза, а также таких популярных объектов исследования, как InSb, GaAs, CaF₂ и т.д., имеющих кубическую симметрию с существенной анизотропией упругих модулей как второго, так и третьего порядка.

Цель наших исследований — расчет частот релаксации фононов в ангармонических процессах рассеяния на основе экспериментально определенных значений упругих модулей второго и третьего порядков. Определение зависимостей частот релаксации фононов от температуры и волнового вектора в кристаллах Ge, Si и алмаза позволит, во-первых, найти коэффициенты поглощения как длинноволнового ($z_{q\lambda} \ll 1$), так и высокочастотного ($z_{q\lambda} \gg 1$) ультразвука. Во-вторых, определить эффективные механизмы релаксации тепловых фононов и избавиться от произвола, связанного с выбором двух подгоночных параметров теории при расчете теплопроводности этих кристаллов.

В настоящей работе рассмотрена релаксация продольных фононов в кубических кристаллах в ангармонических процессах рассеяния. В разделе 1 получено выражение для упругой энергии кристалла кубической симметрии через упругие модули второго и третьего порядков. Эта энергия определяет вероятности различных ангармонических трехфононных процессов рассеяния. В разделе 2 вычислены частоты релаксации продольных тепловых и высокочастотных фононов в механизмах $L \leftrightarrow L + L$ и $L \leftrightarrow T + L$ для кристаллов кубической симметрии. Этот расчет дает возможность найти вели-

Таблица 1. Значения термодинамических модулей упругости для Ge, Si и алмаза (в единицах 10^{12} dyn/cm²)

| | 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 |
| Алмаз | 10.76 | 1.25 | 5.758 | -62.6 | -22.6 | 1.12 | -6.74 | -28.6 | -8.23 |

чины частот релаксации продольных фононов в ангармонических процессах рассеяния из экспериментально определенных значений упругих модулей. В разделе 3 проанализирована зависимость частот релаксации фононов от температуры и волнового вектора фононов в кристаллах германия, кремния и алмаза. Рассмотрены длинноволновый предел и переход к модели изотропной среды. Проведено сравнение полученных результатов с результатами предыдущих исследований в модели изотропной среды.

1. Упругая энергия кристаллов кубической симметрии

Выражение для упругой энергии кристаллов кубической симметрии с точностью до членов третьего порядка по компонентам тензора деформации η_{ij} получено в работе [13] (см. также [14]). Преобразуем его аналогично тому, как это сделано в [15] для модели изотропной среды. Поскольку в работах [16–19] экспериментально определены значения термодинамических модулей упругости третьего порядка c_{ijk} , то для упругой энергии кубических кристаллов будем пользоваться нормировкой модулей c_{ijk} , принятой Браггером [20]. В этом случае выражение для упругой энергии [13] может быть представлено в более удобном для дальнейших расчетов виде

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

Здесь

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

Переход от термодинамических модулей c_{ijk} к нормировке, принятой Бирчем c_{ijk}^B [13], осуществляется подстановкой

$$\begin{aligned}
 c_{111} &= 6c_{111}^B, \quad c_{112} = 2c_{112}^B, \quad c_{123} = c_{123}^B, \quad c_{144} = \frac{1}{2} c_{144}^B, \\
 c_{155} &= \frac{1}{2} c_{155}^B, \quad c_{456} = \frac{1}{4} c_{456}^B. \quad (3)
 \end{aligned}$$

Заметим, что в [19] для термодинамического модуля c_{456} неправильно указан коэффициент перехода $1/8$ к нормировке Бирча (см. также [20,21]). Переход к нормировке, принятой Такером и Рэмптоном [14] для модулей упругости, осуществляется подстановкой

$$c_{ijk}^{TR} = \frac{1}{6} c_{ijk}. \quad (3a)$$

Величины модулей упругости второго c_{ik} и третьего c_{ijk} порядков для кристаллов Ge, Si и алмаза приведены в табл. 1.

Выразим компоненты тензора деформации η_{ik} через компоненты тензора дисторсии ξ_{ik} [22]

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

Подстановка выражения (4) в (1) дает

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

Таблица 2. Значения упругих модулей ΔC , \tilde{c}_{111} , \tilde{c}_{112} , \tilde{c}_{155} для Ge, Si и алмаза (в единицах 10^{12} dyn/cm²)

| | Ge | Si | Алмаз |
|-------------------|-------|-------|--------|
| ΔC | -0.54 | -0.57 | -2.01 |
| \tilde{c}_{155} | -1.63 | -1.9 | -5.4 |
| \tilde{c}_{112} | -3.25 | -4.1 | -10.24 |
| \tilde{c}_{111} | 28.01 | 32.4 | 138.1 |

Кубические члены по ξ_{ik} в (5) отвечают за взаимодействие между фононами. Как видно из выражения (5), нелинейная связь тензора деформации η_{ik} с компонентами тензора дисторсии ξ_{ik} приводит к тому, что вклад в релаксацию фононов вносят не только модули упругости третьего порядка, но и модули упругости второго порядка. Рассмотрим переход от упругой энергии кристаллов кубической симметрии к упругой энергии изотропной среды W_{iso} , выражение для которой получено в [15] (формула (4.6)). Из условия $\Delta W = W_k \cdot W_{\text{iso}} = 0$ найдем

$$\Delta C = c_{11} - c_{12} - 2c_{44} = 0,$$

$$\tilde{c}_{112} = c_{112} - c_{123} - 2c_{144} = 0,$$

$$\tilde{c}_{155} = c_{155} - c_{144} - 2c_{456} = 0,$$

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

Представим смещение частицы в стандартном виде [15]

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

где $b_{-\mathbf{q}\lambda}^+$, $b_{\mathbf{q}\lambda}$ — операторы рождения и уничтожения фононов, ρ — плотность, V — нормировочный объем, \mathbf{e} — вектор поляризации, $\omega_{\mathbf{q}\lambda}$ — частота фонона с волновым вектором \mathbf{q} и поляризацией волны λ . Как видно из (7), каждой величине ξ_{ij} будет соответствовать коэффициент $e_i q_j$. Подстановка (7) в (5) дает следующее выражение для плотности энергии, связанной с ангармонизмом колебаний решетки:

$$\begin{aligned} W = -\frac{i}{6} \sum_{\substack{\mathbf{q}_1, \mathbf{q}_2, \mathbf{q}_3 \\ \lambda_1 \lambda_2 \lambda_3}} \left(\frac{\hbar}{2\rho V} \right)^{3/2} (\omega_{\mathbf{q}_1 \lambda_1} \omega_{\mathbf{q}_2 \lambda_2} \omega_{\mathbf{q}_3 \lambda_3})^{-1/2} \\ \times (b_{\mathbf{q}_1 \lambda_1} - b_{-\mathbf{q}_1 \lambda_1}^+) (b_{\mathbf{q}_2 \lambda_2} - b_{-\mathbf{q}_2 \lambda_2}^+) (b_{\mathbf{q}_3 \lambda_3} - b_{-\mathbf{q}_3 \lambda_3}^+) \\ \times \exp(i(\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2 + \mathbf{q}_3)\mathbf{r}) V_{\mathbf{q}_1 \mathbf{q}_2 \mathbf{q}_3}^{\lambda_1 \lambda_2 \lambda_3}, \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} V_{\mathbf{q}_1 \mathbf{q}_2 \mathbf{q}_3}^{\lambda_1 \lambda_2 \lambda_3} = \tilde{c}_{111} \sum_i e_{1i} q_{1i} e_{2i} q_{2i} e_{3i} q_{3i} + c_{123} (\mathbf{e}_1 \mathbf{q}_1) (\mathbf{e}_2 \mathbf{q}_2) (\mathbf{e}_3 \mathbf{q}_3) \\ + \tilde{c}_{112} \sum_i [(\mathbf{e}_1 \mathbf{q}_1) e_{2i} q_{2i} e_{3i} q_{3i} + (\mathbf{e}_2 \mathbf{q}_2) e_{1i} q_{1i} e_{3i} q_{3i} \\ + (\mathbf{e}_3 \mathbf{q}_3) e_{1i} q_{1i} e_{2i} q_{2i}] + c_{144} [(\mathbf{e}_1 \mathbf{q}_1) (\mathbf{e}_2 \mathbf{q}_3) (\mathbf{e}_3 \mathbf{q}_2) \\ + (\mathbf{e}_2 \mathbf{q}_2) (\mathbf{e}_1 \mathbf{q}_3) (\mathbf{e}_3 \mathbf{q}_1) + (\mathbf{e}_3 \mathbf{q}_3) (\mathbf{e}_1 \mathbf{q}_2) (\mathbf{e}_2 \mathbf{q}_1)] \\ + (c_{12} + c_{144}) [(\mathbf{e}_1 \mathbf{q}_1) (\mathbf{e}_2 \mathbf{e}_3) (\mathbf{q}_3 \mathbf{q}_2) + (\mathbf{e}_2 \mathbf{q}_2) (\mathbf{e}_1 \mathbf{e}_3) (\mathbf{q}_3 \mathbf{q}_1) \\ + (\mathbf{e}_3 \mathbf{q}_3) (\mathbf{e}_1 \mathbf{e}_2) (\mathbf{q}_1 \mathbf{q}_2)] \\ + c_{456} [(\mathbf{e}_1 \mathbf{q}_3) (\mathbf{e}_2 \mathbf{q}_1) (\mathbf{e}_3 \mathbf{q}_2) + (\mathbf{e}_1 \mathbf{q}_2) (\mathbf{e}_2 \mathbf{q}_3) (\mathbf{e}_3 \mathbf{q}_1)] \\ + (c_{44} + c_{456}) [(\mathbf{e}_1 \mathbf{q}_2) (\mathbf{q}_1 \mathbf{q}_3) (\mathbf{e}_2 \mathbf{e}_3) + (\mathbf{e}_2 \mathbf{q}_3) (\mathbf{q}_1 \mathbf{q}_2) (\mathbf{e}_1 \mathbf{e}_3) \\ + (\mathbf{e}_3 \mathbf{q}_1) (\mathbf{q}_2 \mathbf{q}_3) (\mathbf{e}_1 \mathbf{e}_2) + (\mathbf{e}_1 \mathbf{q}_3) (\mathbf{q}_1 \mathbf{q}_2) (\mathbf{e}_2 \mathbf{e}_3) \\ + (\mathbf{e}_2 \mathbf{q}_1) (\mathbf{q}_2 \mathbf{q}_3) (\mathbf{e}_1 \mathbf{e}_3) + (\mathbf{e}_3 \mathbf{q}_2) (\mathbf{q}_1 \mathbf{q}_3) (\mathbf{e}_1 \mathbf{e}_2)] \\ + \tilde{c}_{155} \sum_i \left\{ e_{1i} e_{2i} e_{3i} (q_{1i} (\mathbf{q}_2 \mathbf{q}_3) + q_{2i} (\mathbf{q}_1 \mathbf{q}_3) + q_{3i} (\mathbf{q}_1 \mathbf{q}_2)) \right. \\ \left. + e_{1i} q_{1i} [e_{2i} q_{3i} (\mathbf{e}_3 \mathbf{q}_2) + e_{3i} q_{2i} (\mathbf{e}_2 \mathbf{q}_3)] \right. \\ \left. + e_{2i} q_{2i} [e_{1i} q_{3i} (\mathbf{e}_3 \mathbf{q}_1) + e_{3i} q_{1i} (\mathbf{e}_1 \mathbf{q}_3)] \right. \\ \left. + e_{3i} q_{3i} [e_{1i} q_{2i} (\mathbf{e}_2 \mathbf{q}_1) + e_{2i} q_{1i} (\mathbf{e}_1 \mathbf{q}_2)] \right\} + [\tilde{c}_{155} + \Delta C] \\ \times \sum_i q_{1i} q_{2i} q_{3i} [e_{1i} (\mathbf{e}_2 \mathbf{e}_3) + e_{2i} (\mathbf{e}_1 \mathbf{e}_3) + e_{3i} (\mathbf{e}_1 \mathbf{e}_2)]. \quad (8) \end{aligned}$$

Из формулы (8) при выполнении условий (6) следует выражение для плотности энергии, обусловленной ангармонизмом колебаний решетки, для изотропной среды (формула (4.22) из [15]). Слагаемые, содержащие модули упругости третьего порядка \tilde{c}_{111} , \tilde{c}_{112} и \tilde{c}_{155} , отличают кубические кристаллы от изотропной среды. Рассмотрим условия (6) для кристаллов Ge, Si и алмаза, используя результаты измерений модулей упругости второго и третьего порядков, приведенные в табл. 1. Проведенный анализ показал (табл. 2), что для рассматриваемых кристаллов соотношения (6) не выполняются не только для упругих модулей второго порядка, но и для упругих модулей третьего порядка: для Ge, Si и алмаза величина $|\Delta C| \sim c_{12}$, а значение модуля \tilde{c}_{155} превышает более, чем в 2 раза величину исходного модуля c_{155} . Наибольшее отклонение от модели изотропной среды имеет место для модуля упругости \tilde{c}_{111} , он не только значительно превосходит остальные модули третьего порядка для Ge, Si и алмаза, но и имеет знак, противоположный знаку исходного модуля c_{111} . Поэтому наибольшее отклонение от модели изотропной среды будет иметь место для тех частот релаксации, в которые вносят вклад члены, содержащие упругий модуль \tilde{c}_{111} . После интегрирования по нормировочному объему 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. Выражение (8) позволяет исследовать различные механизмы трехфононных процессов рассеяния и рас-

считать соответствующие частоты релаксации фононов в ангармонических процессах рассеяния в кубических кристаллах.

2. Механизмы релаксации продольных фононов в кубических кристаллах

Основными механизмами релаксации продольных фононов в кубических кристаллах являются следующие [15,23]:

$$\begin{aligned}
 (1) \quad L + L \rightarrow L, \quad \omega_{\mathbf{q}_3}^L &= \omega_{\mathbf{q}_1}^L + \omega_{\mathbf{q}_2}^L, \\
 L \rightarrow L + L, \quad \omega_{\mathbf{q}_1}^L &= \omega_{\mathbf{q}_2}^L + \omega_{\mathbf{q}_3}^L, \\
 (2) \quad L + T \rightarrow L, \quad \omega_{\mathbf{q}_3}^L &= \omega_{\mathbf{q}_1}^L + \omega_{\mathbf{q}_2}^T, \\
 L \rightarrow T + L, \quad \omega_{\mathbf{q}_1}^L &= \omega_{\mathbf{q}_2}^T + \omega_{\mathbf{q}_3}^L, \\
 (3) \quad L + T \rightarrow T, \quad \omega_{\mathbf{q}_3}^T &= \omega_{\mathbf{q}_1}^L + \omega_{\mathbf{q}_2}^T, \\
 L \rightarrow T + T, \quad \omega_{\mathbf{q}_1}^L &= \omega_{\mathbf{q}_2}^T + \omega_{\mathbf{q}_3}^T. \quad (9)
 \end{aligned}$$

В первом столбце приведены процессы „слияния“ (S -процессы) продольного фонона с продольным (1) или с поперечным (2), в результате которого возникают продольный (1) и (2) или поперечный фонон (3). Во втором столбце приведены процессы распада (R -процессы) продольного фонона на два продольных (1), на поперечный и продольный (2), а также на два поперечных фонона (3).

Далее приведем расчет частот релаксации фононов для процессов (1) и (2) в кубических кристаллах. Определим их величины, а также зависимости частот релаксации от температуры и волнового вектора фононов, используя приведенные в табл. 1 и 2 значения упругих модулей. Выражение для частоты релаксации фононов, согласно [12], имеет вид

$$\begin{aligned}
 \nu_{\text{phN}}(q_1, \lambda_1) &= \frac{\pi \hbar^4}{(2\rho k_{\text{BT}})^3} \frac{1}{V} \sum_{\substack{\mathbf{q}_2 \mathbf{q}_3 \\ \lambda_2 \lambda_3}} \frac{\text{sh}\left(\frac{z_1}{2}\right) \delta_{\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2 + \mathbf{q}_3, 0}}{z_1 z_2 z_3 \text{sh}\left(\frac{z_2}{2}\right) \text{sh}\left(\frac{z_3}{2}\right)} \\
 &\times \left| V_{\mathbf{q}_1 \mathbf{q}_2 \mathbf{q}_3}^{\lambda_1 \lambda_2 \lambda_3} \right|^2 \left\{ 2\delta(\omega_{\mathbf{q}_1 \lambda_1} + \omega_{\mathbf{q}_2 \lambda_2} - \omega_{\mathbf{q}_3 \lambda_3}) \right. \\
 &\left. + \delta(\omega_{\mathbf{q}_1 \lambda_1} - \omega_{\mathbf{q}_2 \lambda_2} - \omega_{\mathbf{q}_3 \lambda_3}) \right\}. \quad (10)
 \end{aligned}$$

Первое слагаемое в фигурных скобках обусловлено S -процессами, а второе — R -процессами.

Для механизма релаксации фононов LLL (процесс (1) в формуле (9)) выполняются соотношения

$$\begin{aligned}
 (\mathbf{e}_1 \mathbf{q}_1) &= q_1, \quad (\mathbf{e}_2 \mathbf{q}_2) = q_2, \quad (\mathbf{e}_3 \mathbf{q}_3) = q_3, \\
 \mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2 &= \mathbf{q}_3 \quad (S\text{-процессы}); \\
 \mathbf{q}_1 &= \mathbf{q}_2 + \mathbf{q}_3 \quad (R\text{-процессы}). \quad (11)
 \end{aligned}$$

Учитывая соотношения (11), выразим матричный элемент (8) для R - и S -процессов в механизме релаксации LLL через модули векторов \mathbf{q}_1 и \mathbf{q}_2 и углы θ

и φ между ними

$$\begin{aligned}
 V_{(S,R)}^{LLL} &= q_1 q_2 q_3 \left\{ (c_{123} + c_{12} + 2c_{144}) \right. \\
 &+ \left(\frac{q_2}{q_3} \right)^2 \left[\cos \theta \left(\frac{q_1}{q_2} \pm \cos \theta \right) \right. \\
 &\times \left. \left. \left\{ (2A_{\text{cub}} + 4\tilde{c}_{155} + \Delta C) \left(\frac{q_1}{q_2} \cos \theta \pm 1 \right) \right\} \right. \right. \\
 &+ (4\tilde{c}_{155} + \Delta C + \tilde{c}_{111} + 2\tilde{c}_{112}) \left(\cos \theta \left(\frac{q_1}{q_2} \pm \cos \theta \right) \right)^2 \\
 &+ \tilde{c}_{112} \left(\left(\frac{q_1}{q_2} \pm \cos \theta \right)^2 + (\cos \theta \sin \theta)^2 \right. \\
 &\left. \left. \left. + (\sin \theta)^4 ((\sin \varphi)^4 + (\cos \varphi)^4) \right) \right] \right\}. \quad (12)
 \end{aligned}$$

Изотропному рассеянию продольных фононов соответствует первое слагаемое в выражениях (12), а также члены, содержащие коэффициент A_{cub} . Остальные слагаемые связаны с кубической анизотропией — они исчезают при переходе к модели изотропной среды. Для кубического кристалла имеем

$$A_{\text{cub}} = c_{12} + 3c_{44} + 2c_{144} + 4c_{456}. \quad (13)$$

Переходя к изотропному случаю при помощи соотношений (6), для A_{cub} получим результат [15]

$$\begin{aligned}
 A_{\text{cub}} &= A_{\text{iso}} = A_1 + 3A_2 + A_3 + A_4 = 1.5c_{11} - 0.5c_{12} + 2c_{155} \\
 &= 1.5c_{11} - 0.5c_{12} + 12c_{155}^{TR} \quad (13a)
 \end{aligned}$$

(коэффициенты A_1, A_2, A_3, A_4 определены в [15]).

Следует отметить, что в дебаевском приближении для спектра фононов из закона сохранения энергии следует, что в механизме LLL могут взаимодействовать только коллинеарные фононы [1,22]. Учет дисперсии фононов приводит к обращению в нуль вероятности рассеяния фононов в этом механизме рассеяния. Однако ангармонические процессы рассеяния, а также рассеяния на дефектах, примесях и границах приводят к конечному времени жизни фононов. Поэтому при учете затухания фононных состояний следует заменить δ -функции, учитывающие закон сохранения энергии в процессах слияния и распада продольных фононов, на лоренцовскую функцию, которая учитывает затухание фононов [1,22]. Для корректного анализа влияния затухания фононных состояний в механизме LLL необходимо найти суммарную частоту релаксации продольных фононов, которая определяется всеми процессами релаксации (9). Когда столкновительное уширение фононных состояний $\gamma_L(q_1)$ гораздо меньше энергии фононов ($\hbar\omega_{\mathbf{q}_2}$ и $\hbar\omega_{\mathbf{q}_3}$), лоренцовская функция имеет острый максимум при $\cos \theta \approx 1$. В данном расчете ограничимся этим приближением и

положим $\cos \theta \approx 1$. Тогда для матричного элемента в механизме LLL для кубического кристалла получим

$$V_{(S,R)}^{LLL} = (3c_{11} + c_{111}) q_1 q_2 (q_1 \pm q_2). \quad (14)$$

Это выражение не изменяется при переходе к приближению изотропной среды, в чем нетрудно убедиться, если воспользоваться соотношениями (6). Подстановка (13) в (10) дает выражение для частоты релаксации фононов в механизме LLL

$$v_{\text{phN}}^{LLL} = B_{LLL} T^5 \text{sh}(z_1/2) \times \left\{ 2 \int_0^{z_{DL}} dz_2 \frac{z_2^2 (z_1 + z_2)^2}{\text{sh}\left(\frac{z_2}{2}\right) \text{sh}\left(\frac{z_1 + z_2}{2}\right)} + \int_0^{z_1} dz_2 \frac{z_2^2 (z_1 - z_2)^2}{\text{sh}\left(\frac{z_2}{2}\right) \text{sh}\left(\frac{z_1 - z_2}{2}\right)} \right\},$$

$$B_{LLL} = \frac{(3c_{11} + c_{111})^2 (k_B)^5}{32\pi \hbar^4 \rho^3 S_L^9}. \quad (15)$$

Итак, выражение (15) позволяет исследовать зависимость частоты релаксации фононов от температуры и волнового вектора фононов в механизме LLL для кубических кристаллов в предположении о слабом затухании фононных состояний.

Для механизма релаксации фононов LTL (процесс (2) в формуле (9)) выполняются соотношения

$$(\mathbf{e}_1 \mathbf{q}_1) = q_1, \quad (\mathbf{e}_2 \mathbf{q}_2) = 0, \quad (\mathbf{e}_3 \mathbf{q}_3) = q_3, \quad (\mathbf{e}_2 \mathbf{q}_1) = (\mathbf{e}_2 \mathbf{q}_3);$$

$$\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2 = \mathbf{q}_3 \text{ (S)}, \quad \mathbf{q}_1 = \mathbf{q}_2 + \mathbf{q}_3 \text{ (R)}. \quad (16)$$

Учитывая соотношения (16), выразим матричный элемент (7) для S - и R -процессов в механизме релаксации LTL через компоненты вектора поляризации поперечного фонона \mathbf{e}_2 и угловые координаты θ и φ вектора \mathbf{q}_2

$$V_{(S,R)}^{LTL} = \pm \frac{q_1^3 q_2}{q_3} \left\{ A_{(S,R)}(\theta) e_{2z} + b_{(S,R)} \right. \\ \left. \times \left[e_{2x} \left(\frac{q_{2x}}{q_2} \right)^3 + e_{2y} \left(\frac{q_{2y}}{q_2} \right)^3 \right] \right\}, \quad (17)$$

$$A_{(S,R)}(\theta) = \cos \theta \left\{ (\tilde{c}_{111} + \tilde{c}_{112} + 8\tilde{c}_{155} + 2\Delta C) \right. \\ \left. \times \left(1 \pm \frac{q_2}{q_1} \cos \theta \right)^2 + \tilde{c}_{112} \left(\frac{q_3}{q_1} \right)^2 \right\} + \left(1 \pm \frac{q_2}{q_1} \cos \theta \right) \\ \times \left\{ (A_{\text{cub}} + 2\tilde{c}_{155}) \left(2 \cos \theta \pm \frac{q_2}{q_1} \right) + \Delta C \cos \theta \right\},$$

$$b_{(S,R)} = \tilde{c}_{112} \left(\frac{q_2}{q_1} \right)^2. \quad (18)$$

Изотропному рассеянию фононов в выражениях (18) соответствуют члены, содержащие коэффициенты A_{cub} (формулы (13) и (13a)), а остальные слагаемые связаны с кубической анизотропией — они исчезают при переходе к модели изотропной среды (соотношения (6)).

Как видно из выражения (17), квадрат матричного элемента, определяющего вероятность трехфононных процессов рассеяния LTL , зависит от произведения различных компонент вектора поляризации \mathbf{e}_2 и волнового вектора фонона \mathbf{q}_2 . В общем случае частота релаксации v_{phN}^{LTL} , как и собственные частоты фононов, зависит от направления распространения продольного фонона относительно кристаллографических осей. Далее упростим задачу и ограничимся рассмотрением одного из симметричных направлений ($[100]$, $[001]$, $[111]$ и т.д.), направив ось Z и волновой вектор фонона \mathbf{q}_1 вдоль этого направления. Тогда, воспользовавшись соотношением $\mathbf{e}_2 \mathbf{q}_2 = 0$, выразим компоненты вектора поляризации поперечного фонона \mathbf{e}_2 через угловые координаты θ и φ вектора \mathbf{q}_2

$$e_{2x} = \cos \theta \cos \varphi \cos \varphi_e - \sin \varphi_e \sin \varphi,$$

$$e_{2y} = \cos \theta \sin \varphi \cos \varphi_e + \sin \varphi_e \cos \varphi,$$

$$e_{2z} = -\sin \theta \cos \varphi_e. \quad (19)$$

Угол φ_e характеризует направление вектора поляризации поперечного фонона \mathbf{e}_2 в плоскости, перпендикулярной вектору \mathbf{q}_2 . Рассмотрим более подробно операцию усреднения вероятности рассеяния фононов в механизме релаксации LTL по векторам поляризации поперечных фононов. Дело в том, что такая процедура в литературе не описана, а в ряде расчетов частот релаксации в модели изотропной среды выбиралось конкретное направление вектора поляризации поперечного фонона \mathbf{e}_2 относительно векторов \mathbf{q}_1 и \mathbf{q}_2 . Так, например, в [24] полагалось, что вектор \mathbf{e}_2 лежит в плоскости векторов \mathbf{q}_1 и \mathbf{q}_2 . Если в модели изотропной среды такое приближение приводит к потере численного множителя $1/2$ для механизма релаксации LTL [24], то в кубических кристаллах это приближение приведет к потере важных слагаемых в вероятности трехфононных процессов рассеяния. Приведем результаты усреднения квадрата матричного элемента (17) по векторам поляризации \mathbf{e}_2 и углу φ

$$\langle (e_{2z})^2 \rangle_{\varphi_2, \varphi_e} = \int_0^{2\pi} d\varphi_2 \int_0^{2\pi} d\varphi_e (e_{2z})^2 = \pi \sin^2 \theta,$$

$$\langle (e_{2x})^2 \left(\frac{q_{2x}}{q_2} \right)^6 \rangle = \langle (e_{2y})^2 \left(\frac{q_{2y}}{q_2} \right)^6 \rangle \\ = \frac{5\pi}{16} \sin^6 \theta \left(1 - \frac{7}{8} \sin^2 \theta \right),$$

$$2 \langle e_{2z} \left[e_{2x} \left(\frac{q_{2x}}{q_2} \right)^3 + e_{2y} \left(\frac{q_{2y}}{q_2} \right)^3 \right] \rangle = -\frac{3\pi}{2} \sin^4 \theta \cos \theta,$$

$$2 \langle e_{2x} e_{2y} \left(\frac{q_{2x} q_{2y}}{q_2^2} \right)^3 \rangle = -\frac{3\pi}{64} \sin^8 \theta. \quad (20)$$

После усреднения рассеяния по углам φ_e и φ вероятность рассеяния остается функцией только модулей

векторов \mathbf{q}_1 и \mathbf{q}_2 и угла θ между ними. Интеграл по θ в выражении (10) легко вычисляется при помощи δ -функции, учитывающей закон сохранения энергии в процессах слияния и распада продольного фонона

$$\begin{aligned} \cos \theta_R &= S^* + \frac{q_2}{2q_1} (1 - S^{*2}) = S^* \left(1 + \frac{z_2}{2z_1} \left(\frac{1}{S^{*2}} - 1 \right) \right), \\ z_2 &\leq z_{2mR}, \\ \cos \theta_S &= S^* - \frac{q_2}{2q_1} (1 - S^{*2}) = S^* \left(1 - \frac{z_2}{2z_1} \left(\frac{1}{S^{*2}} - 1 \right) \right), \\ z_2 &\leq z_{2mS}, \\ z_{2mR} &= \frac{2S^*z_1}{1+S^*}, \quad z_{2mS} = \frac{2S^*z_1}{1-S^*}, \quad S^* = \frac{S_t}{S_L}, \\ z_2 &= \frac{\hbar\omega_{q2}}{k_{BT}}, \quad z_1 = \frac{\hbar\omega_{q1}}{k_{BT}}, \end{aligned} \quad (21)$$

где S_t и S_L — скорости поперечных и продольных фононов соответственно.

После подстановки формул (18)–(21) в (10) вероятность рассеяния фононов в механизме релаксации LTL становится функцией отношения приведенных волновых векторов z_1 и z_2 . В целях упрощения записи окончательного выражения для частоты ν_{phN}^{LTL} преобразуем оставшиеся интегралы с помощью подстановки

$$\begin{aligned} z_2 &= \frac{2S^*z_1}{1+S^*} y \quad (\text{для } R\text{-процессов}), \\ z_2 &= \frac{2S^*z_1}{1-S^*} y \quad (\text{для } S\text{-процессов}). \end{aligned} \quad (22)$$

После несложных преобразований получим

$$\begin{aligned} \nu_{\text{phN}}^{LTL} &= B_{LTL} T^5 z_1^5 \text{sh}(z_1/2) \{ 2(1+S^*)J_S + (1-S^*)J_R \}, \\ J_{S,R} &= \int_0^1 dy \frac{y^2 B_{S,R}(y) \varphi_{1S,R}(y)}{\left(\frac{(1\mp S^*)}{2S^*} \pm y \right)^2 \text{sh}\left(\frac{S^*z_1 y}{(1\mp S^*)} \right) \text{sh}\left(\frac{z_1}{2} \left(1 \pm \frac{2S^*y}{(1\mp S^*)} \right) \right)}; \\ B_{LTL} &= \frac{(C_A)^2 (k_B)^5}{16\pi \hbar^4 \rho^3 S_t S_L^8}, \quad C_A = \tilde{c}_{111} + \tilde{c}_{112} + 8\tilde{c}_{155} + 2\Delta C. \end{aligned} \quad (23)$$

Функции $B_S(y)$ и $B_R(y)$ определяются выражениями

$$\begin{aligned} B_S(y) &= A_S(y) \left[A_S(y) - 6P_{112} \frac{1+S^*}{1-S^*} y^2 \varphi_{0S} \varphi_{1S} \right] \\ &+ 10 \left(P_{112} \frac{1+S^*}{S^*(1-S^*)} \right)^2 y^4 \varphi_{1S}^2 \left(1 - \frac{19}{20} (1-S^{*2}) \varphi_{1S} \right), \\ B_R(y) &= A_R(y) \left[A_R(y) - 6P_{112} \frac{1-S^*}{1+S^*} y^2 \varphi_{0R} \varphi_{1R} \right] \\ &+ 10 \left(P_{112} \frac{1-S^*}{S^*(1+S^*)} \right)^2 y^4 \varphi_{1R}^2 \left(1 - \frac{19}{20} (1-S^{*2}) \varphi_{1R} \right), \end{aligned} \quad (24)$$

$$\begin{aligned} A_S(y) &= \varphi_{0S}(y) \left[(\varphi_{2S}(y))^2 + P_{112} \left(1 + \frac{2S^*}{1-S^*} y \right)^2 \right] \\ &+ \varphi_{2S}(y) [P_{AC} \varphi_{3S}(y) + P_{\Delta} \varphi_{0S}(y)], \\ A_R(y) &= \varphi_{0R}(y) \left[(\varphi_{2R}(y))^2 + P_{112} \left(1 + \frac{2S^*}{1+S^*} y \right)^2 \right] \\ &+ \varphi_{2R}(y) [P_{AC} \varphi_{3R}(y) + P_{\Delta} \varphi_{0R}(y)], \\ P_{112} &= \frac{\tilde{c}_{112}}{C_A}, \quad P_{AC} = \frac{A_{\text{cub}} + 2\tilde{c}_{155}}{C_A}, \quad P_{\Delta}^+ = \frac{\Delta C}{C_A}. \end{aligned} \quad (25)$$

Функции φ_{nS} и φ_{nR} связаны с угловой зависимостью матричного элемента (формулы (17), (18)). После подстановки (21) они становятся функциями отношения приведенных волновых векторов (22), причем ряд из них обращается в нуль в пределах области интегрирования. Это приводит к существенному изменению вкладов различных модулей упругости третьего порядка в частоту релаксации и к сложной немонотонной зависимости вероятности рассеяния продольных фононов от отношения приведенных волновых векторов. Выражения для этих функций имеют вид

$$\begin{aligned} \varphi_{0S}(y) &= 1 - \frac{1+S^*}{S^*} y, \quad \varphi_{1S}(y) = (1-y) \left(1 + y \frac{1+S^*}{1-S^*} \right), \\ \varphi_{2S}(y) &= \left(1 - y \left(\frac{\sqrt{2 - (S^*)^2} - S^*}{1-S^*} \right) \right) \\ &\times \left(1 + y \left(\frac{\sqrt{2 - (S^*)^2} + S^*}{1-S^*} \right) \right), \\ \varphi_{3S}(y) &= 2 + \frac{2S^*y}{1-S^*}, \\ \varphi_{0R}(y) &= 1 + \frac{1-S^*}{S^*} y, \quad \varphi_{1R}(y) = (1-y) \left(1 + y \frac{1-S^*}{1+S^*} \right), \\ \varphi_{2R}(y) &= \left(1 - y \left(\frac{\sqrt{2 - (S^*)^2} + S^*}{1+S^*} \right) \right) \\ &\times \left(1 + y \left(\frac{\sqrt{2 - (S^*)^2} - S^*}{1+S^*} \right) \right), \\ \varphi_{3R}(y) &= 2 - \frac{2S^*y}{1+S^*}. \end{aligned} \quad (26)$$

Выражения (23)–(26) позволяют исследовать зависимость частоты релаксации в механизме LTL от температуры и волнового вектора фононов для кубических кристаллов.

3. Результаты численного анализа частот релаксации продольных фононов для кристаллов германия, кремния и алмаза

Рассмотрим зависимость частот релаксации продольных фононов от температуры и волнового вектора фононов в механизмах LLL и LTL для кристаллов

Таблица 3. Значения параметров, определяющих частоты релаксации продольных фононов в механизме *LLL* в кристаллах Ge, Si и алмаза

| | B_{LLL}^0 , $s^{-1}K^{-5}$ [100] | B_{LLL}^0 , $s^{-1}K^{-5}$ [110] | B_{LLL}^0 , $s^{-1}K^{-5}$ [111] | B_{LLL}^R , $s^{-1}K^{-5}$ [100] | B_{LLL}^R , $s^{-1}K^{-5}$ [110] | B_{LLL}^R , $s^{-1}K^{-5}$ [111] |
|-------|--|--|--|--|--|--|
| Ge | 1.72 | 0.73 | 0.57 | $1.11 \cdot 10^{-3}$ | $4.72 \cdot 10^{-4}$ | $3.69 \cdot 10^{-4}$ |
| Si | 0.166 | 0.081 | 0.065 | $1.07 \cdot 10^{-4}$ | $5.2 \cdot 10^{-5}$ | $4.2 \cdot 10^{-5}$ |
| Алмаз | $5.79 \cdot 10^{-3}$ | $3.87 \cdot 10^{-3}$ | $3.35 \cdot 10^{-3}$ | $3.72 \cdot 10^{-6}$ | $2.49 \cdot 10^{-6}$ | $2.15 \cdot 10^{-6}$ |

кубической симметрии германия, кремния и алмаза. Для механизма *LLL* в длинноволновом пределе $z_1 \ll 1$ из формулы (15) следует

$$v_{\text{phN}}^{LLL} \cong B_{LLL}^0 T^5 z_1,$$

$$B_{LLL}^0 \cong \frac{16\pi^4}{15} B_{LLL} = \frac{\pi^3 (3c_{11} + c_{111})^2 k_B^5}{30\hbar^4 \rho^3 S_L^9}. \quad (27)$$

В этом случае основной вклад в частоту релаксации продольных фононов вносят процессы слияния фононов, и величина v_{phN}^{LLL} линейно зависит от волнового вектора фононов, как и в случае изотропной среды [2,23]. Выражение для коэффициента B_{LLL}^0 отличается от результата, полученного Марисом для изотропной среды (формула (239) в [23]), в 4 раза. Это отличие связано с тем, что при усреднении квадрата матричного элемента (14) не появляется множитель 1/4, который возникает при усреднении квадрата обобщенного параметра Грюнайзена по угловым переменным (формулы (238)–(239) в [23]). Очевидно, что использование обобщенного параметра Грюнайзена [23] не является адекватной процедурой для кубических кристаллов.

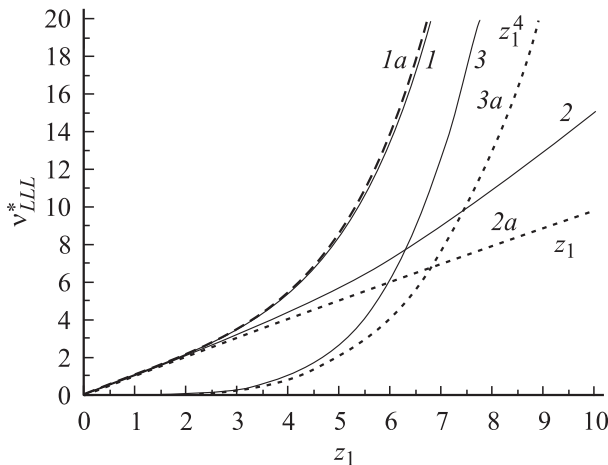


Рис. 1. Зависимости частот релаксации продольных фононов в механизме *LLL*: 1 — функция $v_{LLL}^*(z_1)$, 2 — вклад *S*-процессов, 3 — вклад *R*-процессов. Штриховыми линиями приведены аппроксимации: 1a — функция $v_{LLL}^*(z_1)$ для тепловых фононов согласно (31), 2a — вклад *S*-процессов в линейной аппроксимации (27), 3a — вклад *R*-процессов согласно (29).

Проанализируем зависимость частоты релаксации v_{phN}^{LLL} волнового вектора фононов в кристаллах кубической симметрии для тепловых и высокочастотных фононов ($z_1 > 1$). Как видно из выражения (15), величина

$$v_{LLL}^*(z_1) = \frac{v_{\text{phN}}^{LLL}(z_1, T)}{B_{LLL}^0 T^5} = v_{LLL}^{*(S)}(z_1) + v_{LLL}^{*(R)}(z_1) \quad (28)$$

является функцией только приведенного волнового вектора фононов z_1 для всех рассматриваемых кристаллов. На рис. 1 приведены зависимости функций $v_{LLL}^*(z_1)$, $v_{LLL}^{*(S)}(z_1)$ и $v_{LLL}^{*(R)}(z_1)$ от волнового вектора фононов. Как видно из него, полная частота релаксации $v_{LLL}^*(z_1)$ является монотонно возрастающей функцией z_1 , причем при $z_1 < 2.5$ доминирующий вклад в нее вносят *S*-процессы, и она может быть аппроксимирована линейной функцией (кривая 2a на рис. 1). В этой области значений z_1 вклад *R*-процессов определяется выражением

$$v_{LLL}^{*(R)}(z_1) \cong \frac{5}{4\pi^4} z_1^4. \quad (29)$$

При $z_1 = 1$ он в 312 меньше, чем вклад *S*-процессов. Однако с увеличением волнового вектора фононов роль процессов распада быстро возрастает и при $z_1 = 6.3$ величины $v_{LLL}^{*(S)}(z_1)$ и $v_{LLL}^{*(R)}(z_1)$ сравниваются. При $z_1 \gg 1$ доминирующий вклад в частоту релаксации продольных фононов в кристаллах Ge, Si и алмаза вносят *R*-процессы (кривая 3 на рис. 1); вклад этих процессов пропорционален пятой степени волнового вектора

$$v_{\text{phN}}^{LLL(R)} \cong B_{LLL}^{(R)} T^5 z_1^5, \quad B_{LLL}^{(R)} = \frac{1}{15} B_{LLL},$$

$$v_{LLL}^{*(R)}(z_1) \cong \frac{1}{16\pi^4} z_1^5. \quad (30)$$

В этом предельном случае вклад *S*-процессов возрастает существенно медленнее — он пропорционален второй степени волнового вектора

$$v_{\text{phN}}^{LLL(S)}(z_1) \cong \frac{15J_2}{4\pi^4} z_1^2, \quad J_2 = \int_0^{z_1} dz_2 \frac{z_2^2}{\exp(z_2) - 1} \cong 2.4. \quad (30a)$$

Как и должно быть в рассмотренном приближении, полученные зависимости частот релаксации продольных

Таблица 4. Значения параметров, определяющих частоты релаксации продольных фононов в механизме *LTL* в кристаллах Ge, Si и алмаза

| | B_{LTL}^0 , $s^{-1}K^{-5}$ [100] | B_{LTL}^0 , $s^{-1}K^{-5}$ [110] | B_{LTL}^0 , $s^{-1}K^{-5}$ [111] | B_{LTL}^R , $s^{-1}K^{-5}$ [100] | B_{LTL}^R , $s^{-1}K^{-5}$ [110] | B_{LTL}^R , $s^{-1}K^{-5}$ [111] |
|-------|--|--|--|--|--|--|
| Ge | 1.02 | 0.26 | 0.092 | $4.16 \cdot 10^{-4}$ | $3.72 \cdot 10^{-4}$ | $2.43 \cdot 10^{-4}$ |
| Si | 0.09 | 0.02 | 0.018 | $3.82 \cdot 10^{-5}$ | $4.09 \cdot 10^{-5}$ | $2.77 \cdot 10^{-5}$ |
| Алмаз | 0.0032 | 0.0012 | 0.0011 | $1.99 \cdot 10^{-6}$ | $1.54 \cdot 10^{-6}$ | $1.33 \cdot 10^{-6}$ |

фононов в механизме *LLL* для кубических кристаллов (27) и (30) и изотропных сред [25] совпадают. Значения коэффициентов B_{LLL}^0 и $B_{LLL}^{(R)}$ для кристаллов германия, кремния и алмаза в различных кристаллографических направлениях приведены в табл. 3, из которой следует, что в направлении [100] при $T = 10$ К и $z_1 = 1$ величина v_{phN}^{LLL} составляет $1.72 \cdot 10^5 s^{-1}$ для Ge, $1.66 \cdot 10^4 s^{-1}$ для Si и $5.79 \cdot 10^2 s^{-1}$ для алмаза. Как видно из табл. 3, для кристаллов Ge, Si и алмаза величины частот релаксации v_{phN}^{LLL} уменьшаются при переходе от направления [100] к направлению [111] примерно в 3 раза для кристаллов Ge и в 2 раза для кристаллов Si и алмаза.

При расчете теплопроводности кубических кристаллов следует учесть, что энергии актуальных для этих эффектов фононов ограничены сверху величинами $z_1 < 4-5$, поскольку большие значения экспоненциально обрезаются функцией распределения Планка. В этом интервале формула (15) для частоты релаксации фононов в механизме *LLL* может быть аппроксимирована более простым выражением

$$v_{phN}^{LLL} \cong B_{LLL}^0 T^5 z_1 (1 + 0.03z_1 + 0.00084z_1^4), \quad (31)$$

которое, как видно из рис. 1 (кривая 1a), хорошо согласуется со значениями, полученными из формулы (15) в интервале значений $0 < z_1 < 6$.

Рассмотрим теперь релаксацию продольных фононов в механизме *LTL* для кристаллов Ge, Si и алмаза. В длинноволновом пределе $z_1 \ll 1$ для механизма *LTL* из формулы (23) следует

$$v_{phN}^{LTL} \cong B_{LTL}^0 T^5 z_1^4,$$

$$B_{LTL}^0 = B_{LTL} \left(\left(\frac{1-S^*}{S^*} \right)^2 (1+S^*) J_{0S} + \frac{(1-S^*)(1+S^*)^2}{2S^{*2}} J_{0R} \right), \quad (32)$$

$$J_{0S} \cong \int_0^1 dy \frac{y \varphi_{1S}(y) B_S(y)}{\left(\frac{1-S^*}{2S^*} + y \right)^3}, \quad J_{0R} \cong \int_0^1 dy \frac{y \varphi_{1S}(y) B_S(y)}{\left(\frac{1+S^*}{2S^*} - y \right)^3}.$$

Для кристаллов Ge величина $J_{0S} \approx 8$, а $J_{0R} \approx 4.7 \cdot 10^{-3}$. Поскольку для кристаллов Si и алмаза отношение

$J_{0R}/J_{0S} \approx 10^{-3}$, то в этом пределе основной вклад в частоту релаксации продольных фононов вносят процессы слияния фононов, а вклад процессов распада пренебрежимо мал. Таким образом, в предельном случае длинных волн для механизма *LTL* частота релаксации продольных фононов в кубических кристаллах, как и в изотропных средах [12,23], пропорциональна четвертой степени волнового вектора фононов. Поэтому вклад этого механизма релаксации в поглощение длинноволнового ультразвука существенно меньше, чем рассмотренного ранее механизма *LLL* (см. (27)).

Значения коэффициентов B_{LTL}^0 для кристаллов Ge, Si и алмаза в различных кристаллографических направлениях приведены в табл. 4, из которой следует, что в направлении [100] при $T = 10$ К и $z_1 = 1$ величина v_{phN}^{LTL} составляет $1.02 \cdot 10^5 s^{-1}$ для Ge, $0.9 \cdot 10^4 s^{-1}$ для Si и $0.32 \cdot 10^3 s^{-1}$ для алмаза. Из табл. 4 видно, что кубическая анизотропия в длинноволновом приближении более существенно сказывается на частоте релаксации v_{phN}^{LTL} , чем на частоте релаксации v_{phN}^{LLL} . При переходе от направления [100] к направлению [111] коэффициент B_{LTL}^0 уменьшается более чем в 10 раз для кристаллов Ge, в 5 раз для кристаллов Si и почти в 3 раза для алмаза.

Рассмотрим теперь зависимость частоты релаксации v_{phN}^{LTL} от температуры и волнового вектора для тепловых и высокочастотных фононов ($z_1 > 1$). Как видно из выражения (23), величина

$$v_{LTL}^*(z_1) = \frac{v_{phN}^{LTL}(z_1, T)}{B_{LTL}^0 T^5} = v_{LTL}^{*(S)}(z_1) + v_{LTL}^{*(R)}(z_1) \quad (33)$$

является функцией только приведенного волнового вектора фононов z_1 . На рис. 2 приведены зависимости величин $v_{LTL}^*(z_1)$, $v_{LTL}^{*(S)}(z_1)$ и $v_{LTL}^{*(R)}(z_1)$ от z_1 для кристаллов Ge, Si и алмаза. Как видно из рисунков, вклад *S*-процессов $v_{LTL}^{*(S)}(z_1)$ для этих кристаллов является немонотонной функцией z_1 . Величина $v_{LTL}^{*(S)}(z_1)$ сначала резко возрастает, как z_1^4 , достигает максимума при $z_1 \approx 4$, затем уменьшается, достигая минимума при $z_1 \approx 20$ для Ge, $z_1 \approx 14$ для Si и $z_1 \approx 9$ для алмаза, а при больших значениях z_1 монотонно возрастает. Что касается процессов распада, то величина $v_{LTL}^{*(R)}(z_1)$ является монотонно возрастающей функцией z_1 , при $z_1 \ll 1$ она возрастает, как z_1^4 (формула (23)), а при $z_1 > 10$ возрастает пропорционально z_1^5 , как и в изотропных

средах [26,27]. В последнем случае величина $v_{\text{phN}}^{LTL(R)}$ не зависит от температуры и пропорциональна q_1^5

$$v_{\text{phN}}^{LTL(R)} \cong B_{LTL}^R T^5 z_1^5, \quad B_{LTL}^{(R)} = B_{LTL}(1 - S^*)J_R,$$

$$J_R \cong \int_0^1 dy \frac{y^2 B_R(y) \varphi_{1R}(y)}{\left(\frac{1 \mp S^*}{2S^*} \pm y\right)^2}, \quad (34)$$

где функция $B_R(y)$ определена выражениями (23)–(25). Значения коэффициента $B_{LTL}^{(R)}$ для кристаллов Ge, Si и алмаза приведены в табл. 4, из которой следует, что для высокочастотных фононов кубическая анизотропия частоты релаксации v_{phN}^{LTL} существенно меньше, чем для длинноволновых. При переходе от направления [100] к направлению [111] величина коэффициента B_{LTL}^R уменьшается в 1.7 раза для кристаллов Ge и примерно в 1.4 раза для кристаллов Si и алмаза. Следует отметить, что в длинноволновом пределе, а также для тепловых фононов с $z_1 \approx 1-2$ роль распадных процессов мала. Однако при $z_1 \approx 5.4$ для кристаллов Ge и при $z_1 \approx 5.8$ для Si и алмаза вклады R -процессов и S -процессов сравниваются, а при больших значениях волнового вектора z_1 доминирующий вклад в частоту релаксации v_{phN}^{LTL} вносят R -процессы.

При анализе теплопроводности кубических кристаллов использование формул (23)–(26) для частоты v_{phN}^{LTL} является неудобным из-за громоздкости. Поскольку энергии актуальных для теплопроводности фононов ограничены сверху значениями $z_1 < 4-5$, частота релаксации фононов v_{phN}^{LTL} в этом интервале может быть аппроксимирована более простым выражением

$$v_{\text{phN}}^{LTL} \cong D_i B_{LTL}^0 T^5 z_1^4 (\exp(-\alpha_i z_1) + c_i \beta + 0.9 \gamma_i z_1), \quad (35)$$

$$\beta = \frac{B_{LTL}}{B_{LTL}^0} \cdot \frac{(1 - S^*)(1 + S^*)^2}{2S^{*2}} J_{0R}, \quad \gamma = \frac{B_{LTL}^{(R)}}{B_{LTL}^0};$$

параметры D_i , α_i и c_i для Ge, Si и алмаза равны соответственно $D_i = 1.61, 1.4, 2.09$, $\alpha_i = 1.09, 1.06, 0.9$ и $c_i = 1.12, 0.98, 0$. Как видно из рис. 2 (кривые $1a$), в интервале значений $0 < z_1 < 6$ аппроксимация (35) хорошо согласуется со значениями, полученными из формул (23)–(26). Заметим, что для тепловых фононов частоты релаксации фононов в механизмах LTL и LLL имеют одинаковый порядок величины и должны учитываться при расчете теплопроводности кристаллов Ge, Si и алмаза.

Рассмотрим, насколько сильно отличаются результаты, полученные для частот релаксации в механизме LTL кубических кристаллов Ge, Si и алмаза от случая изотропной среды. Для этого воспользуемся соотношениями (6) в выражениях (23) и (24). Тогда в функциях $B_S(y)$ и $B_R(y)$ в изотропном приближении останутся только члены, содержащие величину A_{cub} , которая опре-

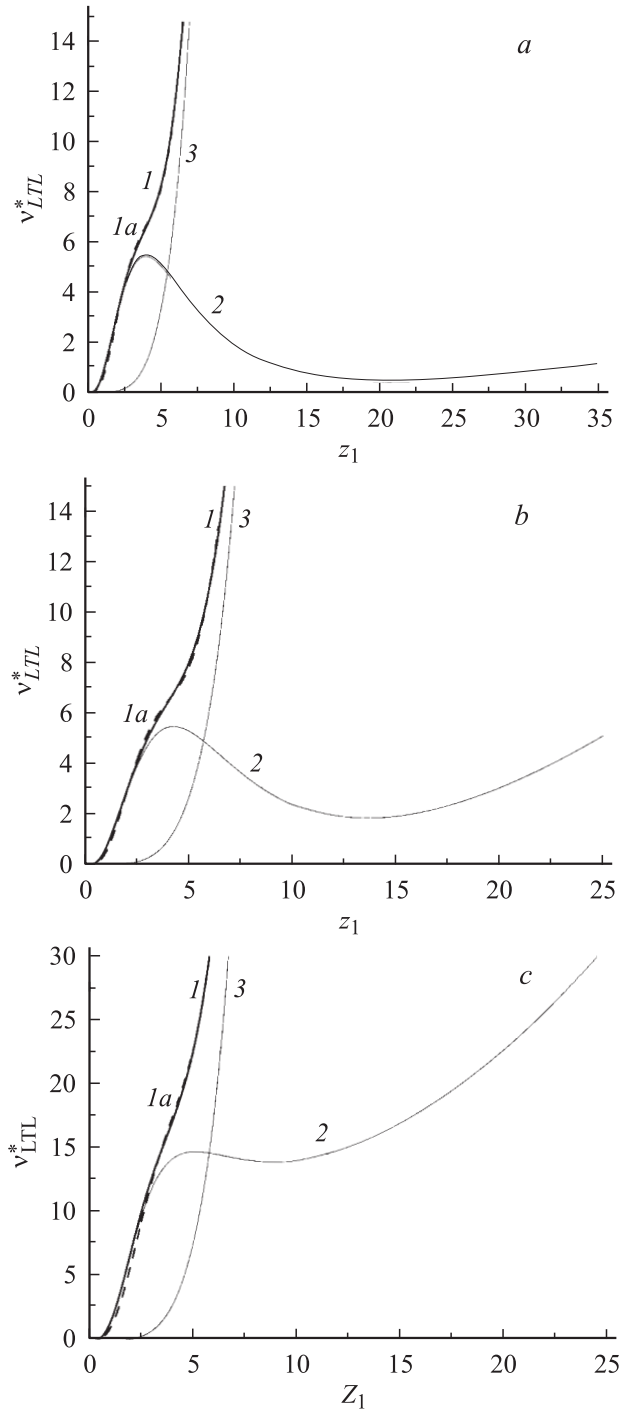


Рис. 2. Зависимости частот релаксации фононов в механизме LTL от приведенного волнового вектора z_1 для Ge (a), Si (b) и алмаза (c) в кристаллографическом направлении [100]: 1 — функция v_{LTL}^* , 2 — вклад в частоту релаксации от S -процессов, 3 — вклад R -процессов. Штриховые линии $1a$ соответствуют аппроксимации (35) для тепловых фононов.

деляется выражением (13a). Для сравнения на рис. 3 приведены зависимости $v_{LTL}^{*(S)}(z_1)$, $v_{LTL}^{*(S)}(z_1)$ и $v_{LTL}^{*(R)}(z_1)$ от приведенного волнового вектора фононов в кубическом кристалле Si и Si в изотропном приближении. Как

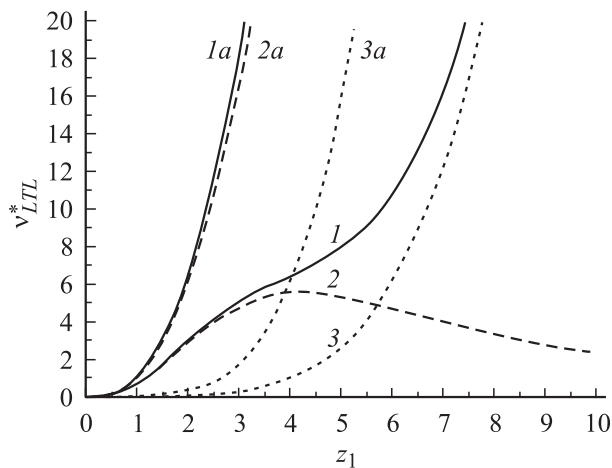


Рис. 3. Зависимости частот релаксации фононов в механизме LTL для кубического кристалла Si в направлении $[100]$ (1, 2, 3) и Si в изотропном приближении (1a, 2a, 3a); 1 и 1a — функция $v_{LTL}^*(z_1)$, 2 и 2a — вклад S -процессов, 3 и 3a — вклад R -процессов.

видно, изотропное приближение дает результаты для $v_{LTL}^*(z_1)$, значительно отличающиеся от полученных для кубических кристаллов (кривые 1 и 1a). Хотя для процессов распада зависимости $v_{LTL}^*(z_1)$ от приведенного волнового вектора фононов z_1 близки (кривые 3 и 3a), при $z_1 \gg 1$ изотропное приближение дает в 8.8 раз большие значения для частоты релаксации $v_{LTL}^{*(R)}(z_1)$, чем для кубического кристалла. Более существенно отличаются результаты для процессов слияния (кривые 2 и 2a на рис. 3). Во первых, в длинноволновом приближении величина коэффициента B_{LTL}^0 для Si в изотропном приближении в 1.9 раза больше, чем для кубического кристалла. Во-вторых, в изотропном приближении частота релаксации $v_{LTL}^{*(S)}(z_1)$ является монотонно возрастающей функцией z_1 (кривая 2a на рис. 3), тогда как для всех рассмотренных кубических кристаллов (кривые 2 на рис. 2) она имеет немонотонный характер. Проведенный анализ показал, что эти особенности частоты релаксации продольных фононов $v_{LTL}^{*(S)}(z_1)$ обусловлены угловой зависимостью вероятности ангармонического рассеяния (формулы (17), (18) и (23), (25)) и анизотропией упругих свойств кристаллов Ge, Si и алмаза. Очевидно, что для механизма релаксации продольных фононов LTL приближение изотропной среды является некорректным.

Итак, рассмотрена релаксация продольных фононов в механизмах $L \leftrightarrow L + L$ и $L \leftrightarrow T + L$ для кристаллов кубической симметрии. Получено выражение для упругой энергии, обусловленной ангармонизмом колебаний решетки кристалла кубической симметрии, через модули упругости второго и третьего порядков. Из известных значений модуля упругости второго и третьего порядков найдены параметры, определяющие величины частот релаксации продольных фононов для кристаллов Ge, Si и

алмаза. Определены зависимости частот релаксации фононов от температуры и волнового вектора фононов для кристаллов германия, кремния и алмаза. Показано, что частоты релаксации фононов в механизме $L \leftrightarrow L + L$, рассчитанные в предположении о слабом затухании фононных состояний и пренебрежении дисперсией, для кубических кристаллов и соответствующих им изотропных приближений совпадают. В противоположность этому, зависимости частот релаксации от волнового вектора фононов в механизме $L \leftrightarrow T + L$, полученные для кристаллов кубической симметрии, существенно отличаются от случая изотропных сред. Для процессов слияния фононов в изотропном приближении частота релаксации является монотонно возрастающей функцией волнового вектора фононов, тогда как для всех рассмотренных кубических кристаллов в направлении $[100]$ она имеет немонотонный характер. Установлено, что обнаруженные особенности частоты релаксации продольных фононов в механизме $L \leftrightarrow T + L$ обусловлены угловой зависимостью вероятности ангармонического рассеяния и анизотропией упругих свойств рассмотренных кристаллов.

Авторы выражают благодарность А.П. Танкееву за обсуждение результатов работы и критические замечания.

Список литературы

- [1] В.Л. Гуревич. Кинетика фононных систем. Наука, М. (1980).
- [2] B. Truel, C. Elbaum, B.B. Chick. Ultrasonic methods in solid state physics. Academic press, N.Y.–London (1969).
- [3] В.М. Аскеров. Электронные явления переноса в полупроводниках. Наука, М. (1985).
- [4] А.П. Жернов, А.В. Инюшкин. Изотопические эффекты в твердых телах. Российский научный центр „Курчатовский институт“, М. (2001).
- [5] M. Asen-Palmer, K. Bartkowski, E. Gmelin, M. Cardona, A.P. Zhernov, A.V. Inyushkin, A.N. Taldenkov, V.I. Ozhogin, K.M. Itoh, E.E. Haller. Phys. Rev. B **56**, 15, 9431 (1997).
- [6] T. Ruf, R.W. Henn, M. Asen-Palmer, E. Gmelin, M. Cardona, H.-J. Pohl, G.G. Devyatych, P.G. Sennikov. Sol. Stat. Commun. **115**, 5, 243 (2000).
- [7] J.E. Graebner, M.E. Reiss, L. Seibles, T.M. Hartnett, R.P. Miller, C.J. Robinson. Phys. Rev. B **50**, 6, 3702 (1994).
- [8] J.R. Olson, R.O. Phol, J.W. Vandersande, A. Zolten, T.R. Anthony, W.F. Banholzer. Phys. Rev. B **47**, 22, 14850 (1993).
- [9] И.Г. Кулеев, И.И. Кулеев. ЖЭТФ **120**, 6, 649 (2001).
- [10] И.Г. Кулеев, И.И. Кулеев. ЖЭТФ **121**, 6, 558 (2002).
- [11] Р. Берман. Теплопроводность твердых тел. Мир, М. (1979).
- [12] Б.М. Могилевский, А.Ф. Чудновский. Теплопроводность полупроводников. Наука, М. (1972).
- [13] F. Birch. Phys. Rev. **71**, 11, 809 (1947).
- [14] Л.К. Зарембо, В.А. Красильников. Введение в нелинейную акустику. Наука, М. (1966).

- [15] Дж. Такер, В. Рэмington. Гиперзвук в физике твердого тела. Мир, М. (1975).
- [16] T. Bateman, W.P. Mason, H.J. McSkimin. *J. Appl. Phys.* **32**, 5, 928 (1961); H.J. McSkimin, P. Andreath. *J. Appl. Phys.* **35**, 11, 3312 (1964).
- [17] M.H. Grimsditch, E. Anastassakis, M. Cardona. *Phys. Rev. B* **18**, 2, 901 (1978).
- [18] W.P. Mason. *Phys. Acoustics III-Part B*, 235 (1965).
- [19] И.Н. Францевич, Ф.Ф. Воронов, С.А. Бакута. Упругие постоянные и модули упругости металлов и неметаллов. Наук. думка, Киев (1982).
- [20] K. Brugger. *Phys. Rev.* **133A**, 6, 1611 (1964).
- [21] R.N. Thurston. *Phys. Acoustics I-Part A*, 235 (1964).
- [22] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Теория упругости. Наука, М. (1987).
- [23] H.J. Maris. *Phys. Acoustics VII*, 280 (1971).
- [24] S. Tamura. *Phys. Rev. B* **34**, 4, 2574 (1985).
- [25] П.С. Зырянов, Г.Г. Талуц. *ЖЭТФ* **49**, 6, 1942 (1965).
- [26] Г.Л. Слонимский. *ЖЭТФ* **7**, 12, 1457 (1937).
- [27] R. Orbach, L.A. Vredevoe. *Physics* **1**, 2, 91 (1964).