

АКУСТИЧЕСКИЕ ФОНОНЫ В Si/Ge SUPRA-КРИСТАЛЛЕ

Денис НИКА, Евгений ПОКАТИЛОВ, Надежда ЗИНЧЕНКО

Лаборатория физики многослойных структур и молекулярного магнетизма

În prezenta lucrare au fost investigate, din punct de vedere teoretic, proprietățile fononilor acustici în tridimensionale ordonate Si/Ge suprarețele formate din puncte cuantice (*supra-crystals*). Calculele spectrelor și ale dispersiilor fononilor acustici au fost realizate în cadrul modelului dinamic-molecular FCC (*face-centered cubic cell*). Au fost cercetate dependențele densității de stări ale fononilor și ale vitezelor de grup de energia fononilor. A fost stabilit că viteza medie de grup a fononilor acustici este aproape de zero în intervalul larg al energiilor fononilor $\hbar\omega > 10$ meV. Rezultatele obținute ne permit să precizem valoarea mică a conductibilității termice a rețelei în *supra-crystals* și, respectiv, valoarea mare a coeficientului termoelectric ZT.

In the presented article we relate on the theoretical investigation of acoustic phonon properties in Si/Ge three-dimensionally ordered quantum dots superlattices (*supra-crystals*). Our calculations of the acoustic phonon energy spectra and phonon dispersions were performed in the framework of the face-centered cubic cell molecular-dynamic model. We have investigated the dependencies of phonon density of states and phonon group velocity on the phonon energy and have established that the average phonon velocity is close to zero in the wide range of phonon energies $\hbar\omega > 10$ meV. The obtained results allow us to predict the extremely low value of the lattice thermal conductivity in *supra-crystals* and correspondingly extremely high value of the thermoelectric figure of merit ZT.

1. Введение

Сверхрешетки из квантовых точек (*supra*-кристаллы) продолжают привлекать пристальное внимание исследователей, благодаря своим уникальным свойствам, сочетающим в себе свойства наноразмерных структур (квантовых точек) и объемных материалов. Наноразмерные свойства этих структур проявляются в квантовании спектров носителей заряда и фононов [1-3], а объемные – в образовании энергетических минизон [1-3]. Сравнительно недавно была показана перспективность использования квантовоточечных сверхрешеток (КТС) в оптоэлектронике [4-5], устройствах термоЭДС [6] и фотодетекторах [7]. В [8] было показано, что одномерные квантовоточечные сверхрешетки (сегментированные нанонити) обладают экстремально высоким коэффициентом термоэлектрической добротности – figure of merit ZT ($ZT > 6$ для PbSe/PbS сверхрешеток), что открывает широкие возможности их применения в термоэлектрических устройствах.

Несмотря на то, что свойства отдельных квантовых точек, состоящих из различных материалов, в оболочке и в среде теоретически интенсивно исследуются [9-10], достаточно малое количество работ посвящено массивам взаимодействующих квантовых точек (*supra*-кристаллам) [1-3]. Теоретическое моделирование свойств *supra*-кристаллов (S-KP) связано с огромными вычислительными трудностями и находится на пределе возможностей современных персональных компьютеров и кластеров из них.

В [1-2] исследованы электронные и дырочные состояния в трехмерной квантовоточечной сверхрешетке и продемонстрировано, что силы осцилляторов электрон-дырочной пары в сверхрешетке остаются большими в широком интервале энергий фонона. В [3] развита континуальная модель расчета нижайших состояний акустических фононов в S-KP, которая хорошо описывает длинноволновые фононные моды.

Мы развили молекулярно-динамическую FCC-модель акустических фононных мод в трехмерном S-KP Si/Ge, пригодную для корректного описания фононных мод с любой длиной волны, и исследовали зависимости плотности состояний и средней групповой скорости акустических фононных мод от частоты.

2. Теоретическая модель

Как известно, кристаллическая решётка материалов Si и Ge представляется в виде двух гранецентрированных кубических подрешёток, сдвинутых друг относительно друга вдоль пространственной диагонали куба на $1/4$ ее длины. В наших расчётах мы будем рассматривать две подрешётки как одну

гранцентрированную решётку с атомами удвоенной массы в каждом узле. Таким образом, в FCC-модели мы пренебрегаем относительным движением подрешёток (оптическими колебаниями) и ограничиваемся рассмотрением только акустических колебаний. Используемая нами модель базируется на трёх параметрах, выражаемых через независимые упругие модули материалов. Это предоставляет возможности широкого моделирования акустических свойств наноструктур, состоящих из слоёв с различными акустическими свойствами и различных геометрических размеров.

В развитой FCC-модели мы учли взаимодействия атомов сверхрешетки с атомами двух ближайших атомных сфер. Взаимодействие с первой атомной сферой – центрально-симметрическое, т.е. оно описывается одной силовой константой α_1 . Потенциал взаимодействия в этом случае имеет вид:

$\Phi_{i1}(\vec{h}_{(1)}, \vec{n}', \vec{n}) = -\alpha_1(\vec{n}', \vec{n})h_i h_i / h_{(1)}^2$, где вектор \vec{n} указывает положение рассматриваемого атома в решетке, а вектор $\vec{n}' = \vec{n} + \vec{h}_{(1)}$ указывает положения атомов первой координационной сферы для атома \vec{n} , $h_i (i=1,2,3)$ – проекции координационного вектора первой атомной сферы $\vec{h}_{(1)}$ на соответствующую координатную ось $X_1(X)$, $X_2(Y)$, $X_3(Z)$. Взаимодействие со второй атомной сферой рассматривалось как нецентрально-симметричное, описываемое двумя силовыми константами α и β . В этом случае вектор $\vec{n}' = \vec{n} + \vec{h}_{(2)}$ описывает положение атомов второй координационной сферы для атома \vec{n} , а $\vec{h}_{(2)}$ – это координационный вектор второй сферы. Потенциал взаимодействия в этом случае записывается следующим образом: $\Phi_{11}(\vec{h}_{(2)}, \vec{n}', \vec{n}) = \alpha(\vec{n}', \vec{n})$, $\Phi_{22}(\vec{h}_{(2)}, \vec{n}', \vec{n}) = \beta(\vec{n}', \vec{n})$, $\Phi_{33}(\vec{h}_{(2)}, \vec{n}', \vec{n}) = \beta(\vec{n}', \vec{n})$ для взаимодействия с атомами с координационным вектором $\vec{h}_{(2)} = (\pm a, 0, 0)$; $\Phi_{11}(\vec{h}_{(2)}, \vec{n}', \vec{n}) = \beta(\vec{n}', \vec{n})$, $\Phi_{22}(\vec{h}_{(2)}, \vec{n}', \vec{n}) = \alpha(\vec{n}', \vec{n})$, $\Phi_{33}(\vec{h}_{(2)}, \vec{n}', \vec{n}) = \beta(\vec{n}', \vec{n})$ для взаимодействия с атомами с координационным вектором $\vec{h}_{(2)} = (0, \pm a, 0)$ и $\Phi_{11}(\vec{h}_{(2)}, \vec{n}', \vec{n}) = \beta(\vec{n}', \vec{n})$, $\Phi_{22}(\vec{h}_{(2)}, \vec{n}', \vec{n}) = \beta(\vec{n}', \vec{n})$, $\Phi_{33}(\vec{h}_{(2)}, \vec{n}', \vec{n}) = \alpha(\vec{n}', \vec{n})$ для взаимодействия с атомами с координационным вектором $\vec{h}_{(2)} = (0, 0, \pm a)$, где a – это постоянная кристаллической решетки.

Система уравнений движения атомов имеет вид:

$$m(\vec{n})\omega^2 w_i(\vec{n}, \vec{q}) = \sum_{\vec{n}'} \sum_{l=1}^3 D_{il}(\vec{n}', \vec{n}, \vec{q}) w_l(\vec{n}', \vec{q}) \quad i = 1, 2, 3. \quad (1)$$

В (1) \vec{q} – это фоновый волновой вектор, ω – фоновая частота, $w_i(\vec{n}, \vec{q})$ и $m(\vec{n})$ – амплитуды компонент вектора смещения и масса (равная массе элементарной ячейки) атома \vec{n} . Коэффициенты динамической матрицы, описывающей взаимодействие между атомами \vec{n} и \vec{n}' , имеют вид: $D_{il}(\vec{n}' = \vec{n} + \vec{h}, \vec{n}, \vec{q}) = \Phi_{il}(\vec{h}, \vec{n}', \vec{n}) \text{Exp}(i\vec{q}\vec{h})$, где \mathbf{i} – мнимая единица, \vec{h} – вектор первой или второй координационной сферы.

Используемые в модели силовые константы α_1 , α и β выражаются через независимые модули упругости кубического кристалла C_{11} , C_{12} и C_{44} следующим образом: $\alpha_1 = \frac{a(C_{12} + C_{44})}{2}$,

$$\alpha = \frac{a(C_{11} - C_{12} - C_{44})}{4}, \quad \beta = \frac{a(C_{44} - C_{12})}{8}.$$

Для нахождения энергетического спектра и векторов смещения акустических фононов в S-KP было численно решено уравнение (1) с учетом периодических граничных условий вдоль осей X , Y и Z :

$$w_i(n_1 \pm N_1, n_2 \pm N_2, n_3 \pm N_3, \vec{q}) = w_i(n_1, n_2, n_3, \vec{q}) \text{Exp}[\pm iq_1 D_1 \pm iq_2 D_2 \pm iq_3 D_3], \quad (2)$$

где N_i – число монослоев в периоде сверхрешетки D_i вдоль оси X ($i=1$), Y ($i=2$) и Z ($i=3$) соответственно, а значения компонент волнового вектора q_1, q_2, q_3 брались из интервала $(0, \pi/L_1), (0, \pi/L_2)$ и $(0, \pi/L_3)$.

3. Результаты и обсуждения

На рис. 1 приведено схематичное изображение рассматриваемого трёхмерного Si/Ge S-КТ и указаны основные геометрические обозначения. Расчет энергетического спектра акустических фононов проводился для Si/Ge S-КТ, состоящего из прямоугольных Si квантовых точек (КТ) с геометрическими размерами $L_x=L_y=L_z=1,086$ нм (4 монослоя (МЛ): 1 МЛ = 0,2716 нм), помещенных в Ge матрицу. Расстояния между КТ были равны $H_x=H_y=H_z=0,543$ нм (2 монослоя).

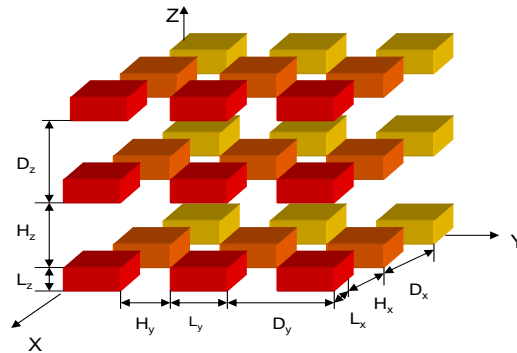


Рис. 1. Схематичное изображение Si/Ge *supra*-кристалла.

На рис. 2 (a,b) показаны энергетические спектры квантованных фононных ветвей $s = 0, 1, 2, 3, 5, 10, 15, \dots, 90, 95, 96$ в S-КТ вдоль кристаллографического направления $(1,0,0)$ (панель (a)) и $(1,1,1)$ (панель (b)).

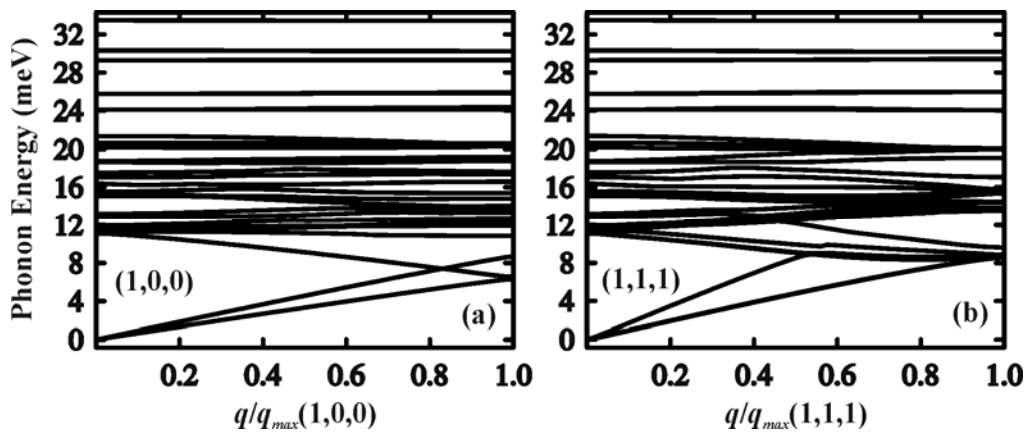


Рис. 2. Дисперсии энергии акустических фононов в Si/Ge *supra*-кристалле вдоль $(1,0,0)$ (панель (a)) и $(1,1,1)$ (панель (b)) кристаллографических направлений.

Интересной особенностью спектра акустических фононов в S-КТ является уплощение дисперсионных кривых при низких энергиях фонона (до 10 мэВ) и появление большого числа практически плоских кривых для энергий фонона > 10 мэВ. Таким образом, акустические фононные моды с энергиями больше 10 мэВ имеют близкую к нулю групповую скорость и, следовательно, не будут участвовать в переносе тепла. Последнее подтверждается также зависимостями плотности фононных состояний и средней групповой скорости фононных мод от частоты, приведенными на рис. 3 и 4 соответственно для кристаллографических направлений $(1,0,0)$ и $(1,1,1)$. Максимальная плотность фононных состояний достигается в промежутке энергий 10 мэВ – 20 мэВ, то есть в том энергетическом интервале, где скорость акустических фононов близка к нулю (см. рис. 4(a,b)). Отметим также, что скорость “быстрых”

низкоэнергетических акустических фононов в S-KT меньше, чем объемная поперечная скорость звука в германии, и значительно (в 1,5 раза) меньше, чем объемная поперечная скорость звука в кремнии. Соответствующие скорости показаны на рис. 4 горизонтальными штриховыми линиями.

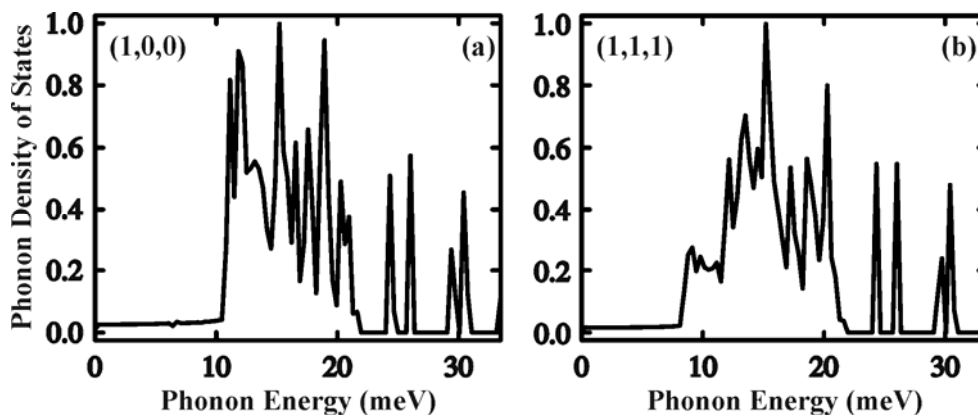


Рис. 3. Плотность фоновых состояний (в относительных единицах) в Si/Ge *supra*-кристалле вдоль (1,0,0) и (1,1,1) кристаллографических направлений.

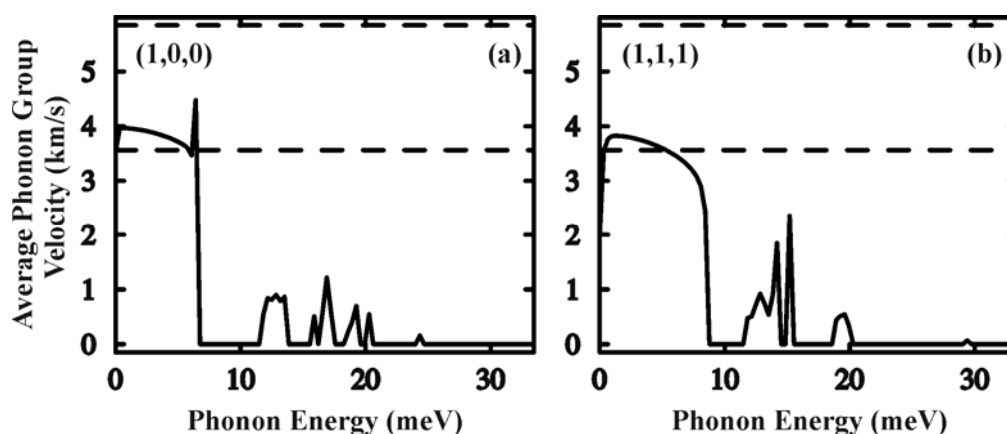


Рис. 4. Средние скорости акустических фононов в Si/Ge *supra*-кристалле вдоль (1,0,0) и (1,1,1) кристаллографических направлений.

Таким образом, можно ожидать, что S-KT будут иметь низкую теплопроводность по сравнению с плоскими слоями и квантовыми нитями [11], теплопроводность которых уже значительно меньше, чем в объемных материалах, из-за эффекта размерного квантования [11-12]. Низкое значение решеточной теплопроводности в *supra*-кристалле позволит еще больше увеличить огромный термоэлектрический коэффициент ZT, предсказанный для этих структур без учета изменения спектра акустических фононов [8,13].

Литература:

1. D.L. Nika, E.P. Pokatilov and A.A. Balandin // Phys. Rev. B - 2007. - Vol.76. - P.125417.
2. O.L. Lazarenkova and A.A. Balandin // J. Appl. Phys. - 2001. - Vol.89. - P.5509.
3. O.L. Lazarenkova and A.A. Balandin // Phys. Rev. B - 2002. - Vol.66. - P.245319.
4. F. Qian, S. Gradecak, Y. Li, C. Wen, Ch. Lieber // Nano Lett. - 2005. - Vol.5. - P.2287.
5. H. Chen, C. Wang, S. Lee, L. Chen // Adv. Mater. - 2006. - Vol.18. - P.367.
6. V.Y. Aleshkin et. al. // JETP Letter - 1998. - Vol.67. - P.48.
7. T.C. Harman, P.J. Taylor, D.L. Spears, and M.P. Walsh // J. Electron. Mater. - 2000. - Vol.29. - P.L1.
8. Y.M. Lin, M.S. Dresselhaus // Phys. Rev. B - 2003. - Vol.68. - P.075304.

9. V.M. Fomin, V.N. Gladilin, J.T. Devreese, E.P. Pokatilov, S.N. Balaban and S.N. Klimin // Phys. Rev. B - 1998. - Vol.57. - P.2415.
10. V.A. Fonoberov and A.A. Balandin // J. Nanoelectron. Optoelectron. - 2006. - Vol.1. - P.19.
11. N.D. Zincenco, D.L. Nika, E.P. Pokatilov and A.A. Balandin // J. of Physics: Conference Series. - 2007. - Vol.92. - P.012086.
12. Balandin // Phys. Low-Dim. Structures. - 2000. - Vol.1-2. - P.1.
13. M.S. Dresselhaus et. al. // Adv. Mater. - 2007. - Vol.19. - P.1043.

Проведенные исследования частично спонсированы государственными проектами Республики Молдова (08.819.05.05F, 08.819.05.08F, 08.822.05.04F), фондами INTAS (грант N.05-104-7656) и MRDA-CRDF (молодежный грант MYSSP-1407).

Prezentat la 15.02.2008