

НОРМАЛЬНЫЕ ПРОЦЕССЫ ФОНОН-ФОНОННОГО РАССЕЯНИЯ В ТВЕРДЫХ РАСТВОРАХ НА ОСНОВЕ СОЕДИНЕНИЙ A^3B^5

Р.Н.РАГИМОВ, Д.Г.АРАСЛЫ, А.А.ХАЛИЛОВА, М.И.АЛИЕВ

Институт Физики НАН Азербайджана

AZ 1143 пр.Джавида, 33, Баку

Исследована теплопроводность твердых растворов InAs-GaAs, GaSb-Ga₂Te₃, InSb-In₂GeTe от состава при комнатной температуре. Полученные результаты анализируются на основе модели Клеменса и Абелеса. Показано, что в исследованных твердых растворах при высоких температурах в рассеянии фононов на точечных дефектах наряду с процессами переброса существенную роль играют и нормальные процессы. Интенсивность нормальных процессов зависит от конкретного твердого раствора.

ВВЕДЕНИЕ

Развитие современной микроэлектроники требует поиска перспективных материалов с управляемыми физическими свойствами. В связи с этим изучение кинетических параметров в твердых растворах представляет интерес. В твердых растворах, варьируя их состав, можно плавно управлять параметрами решетки, зонной структуры и зависящими от них физическими свойствами в широких пределах. В данной работе изучена теплопроводность твердых растворов на основе соединений A^3B^5 : InAs-GaAs, GaSb-Ga₂Te₃, InSb-In₂GeTe в зависимости от состава при комнатной температуре. Теплопроводность изученных растворов анализируется в приближении времени релаксации с учетом рассеяния фононов на точечных дефектах и фонон-фононного взаимодействия (U- и N-процессы). Изучение N-процессов в твердых растворах, в которых рассеяние фононов на точечных дефектах сильное, представляет особый интерес.

Известно, что учет нормальных ангармонических процессов взаимодействия фононов в теории теплопроводности решетки создает большие трудности. В N-процессах квазиимпульс фононов, участвующих в фонон-фононном взаимодействии, сохраняется. Эти процессы рассеяния сами по себе не дают непосредственного вклада в релаксацию импульса и не создают теплосопrotивление. N-процессы, перераспределяя энергию и импульс между различными модами, препятствуют сильному отклонению от равновесного распределения каждой фононной моды. Изменяя функцию распределения, нормальные процессы влияют на интенсивность резистивных процессов, которые, как правило, происходят неодинаково для фононов разных частот. Поэтому при анализе влияния дефектов на теплопроводность необходимо учитывать и нормальные процессы.

Специфическая роль N-процессов рассеяния фононов учтена в работе Каллуэя [1]. В модели Дебая Каллуэй, предположив, что релаксация фононов происходит только внутри каждой моды фононного спектра, ввел в комбинированное время релаксации и время релаксации N-процессов и получил сравнительно простое выражение для теплопроводности.

Роль N-процессов рассеяния фононов, принадлежащих различным фононным модам, анализируется в работах [2-4].

ЭКСПЕРИМЕНТ

Монокристаллы твердых растворов $In_{1-x}Ga_xAs$ получены методом Чохральско-го. Образцы имели одинаковую концентрацию электронов $n \sim 2 \div 4 \times 10^{17} \text{ см}^{-3}$ и плотность дислокаций $10^3 \div 10^4 \text{ см}^{-2}$.

Твердые растворы (2InSb)_{2(1-x)}(In₂GeTe)_x получены методом быстрого охлаждения расплава с последующей гомогенизацией отжигом [5]. Растворимость In₂GeTe в InSb составляет 10 мол%. Полученные образцы имели n-тип проводимости с концентрацией электронов $n=3\div 7 \times 10^{18} \text{ см}^{-3}$.

Гомогенные образцы твердых растворов (GaSb)_{3(1-x)}-(Ga₂Te₃)_x были получены синтезированием в кварцевых ампулах при вибрационном перемешивании с последующей гомогенизацией отжигом. Растворимость второго компонента в GaSb составляет 11 мол%.

Измерения теплопроводности проводились абсолютным стационарным методом и методом светового импульсного нагрева, описанным в [6]. Образцы были размерами 5·5·1,5 мм³.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

На Рис.1 - Рис.3 приведены зависимости теплопроводностей исследуемых твердых растворов от состава при комнатной температуре. Как видно, с увеличением второго компонента численное значение теплопроводности K уменьшается, причем при одинаковом составе это уменьшение в GaSb-Ga₂Te₃ наибольшее. В (GaSb)_{0,97}-(Ga₂Te₃)_{0,03} K исходного соединения уменьшается в ~3, в (InSb)_{0,97}(In₂GeTe)_{0,03} в 1,92, в In_{0,97}Ga_{0,03}As в 1,53 раза.

Анализ теплопроводности проведен в рамках известной модели Каллауэя по формуле:

$$K = \frac{k}{2\pi\nu} \left(\frac{2\pi k}{h} \right)^3 T^3 \int_0^{\theta/T} \frac{\tau_c x^4 e^x}{(e^x - 1)^2} dz, \quad (1)$$

где $z = \frac{\hbar \omega}{kT}$, τ_c - комбинированное время релаксации для всех возможных процессов рассеяния фононов и

$$\tau_c^{-1}(x) = \sum_i \tau_i^{-1}(x) \quad (2)$$

Для количественной оценки рассеяния фононов на точечных дефектах при комнатной температуре ($T > \theta$) мы пользовались теориями Клеменса [7] и Абелеса [8], учитывающими различные процессы фонон-фононного взаимодействия. Используя полное время релаксации, учитывающее рассеяние фононов на дефектах $\tau_D^{-1} = A \omega^4$ и фонон-фононные процессы переброса $\tau_U^{-1} = B_U \omega^2 T$, Клеменс получил следующее выражение

$$K_p = K_0 \left(\frac{\omega_0}{\omega_D} \right) \text{arctg} \left(\frac{\omega_D}{\omega_0} \right), \quad (3)$$

где
$$\left(\frac{\omega_0}{\omega_D} \right)^2 = \frac{\hbar}{2\pi^2 \nu K_0 \theta A}. \quad (4)$$

Здесь K_0 - теплопроводность решетки при отсутствии дефектов, ν - скорость звука, V - объем элементарной ячейки, θ - температура Дебая, ω_D - максимальная частота фононов в дебаевской модели, ω_0 - частота, при которой значение времени релаксации, обусловленное рассеянием фононов на точечных дефектах, и времени релаксации U - процессов равны.

При рассеянии фононов на изотопах параметр A выражается в виде

$$A = \frac{\Gamma \cdot V}{4\pi\nu^3} = \frac{V}{4\pi\nu^3} x(1-x) \left(\frac{\Delta M}{M} \right)^2, \quad (5)$$

где $\frac{\Delta M}{M}$ - изменение плотности, Γ - параметр неупорядоченности.

В случае точечных дефектов в параметре неупорядоченности Γ учитываются локальные изменения плотности и упругих свойств среды при замещении одного атома другим.

$$\Gamma = x(1-x) \left[\left(\frac{\Delta M}{M} \right)^2 + \varepsilon \left(\frac{\Delta \delta}{\delta} \right)^2 \right] \quad (6)$$

В отличие от теории Клеменса Абелесом наряду с процессами переброса учтены и нормальные процессы фонон-фононного взаимодействия. Используя длинноволновое приближение и полагая одинаковую температурную и частотную зависимости времён релаксации трехфононных N- и U-процессов: $\tau_N^{-1} = B_N \omega^2 T$, $\tau_U^{-1} = B_U \omega^2 T$ и рассеяние фононов на дефектах $\tau_D^{-1} = A \omega^4$, Абелес получил следующее выражение для теплопроводности решетки:

$$K = K_0 \left(\frac{1}{1 + \frac{5C}{9}} \right) \left[\frac{\arctgy}{y} + \frac{\left(1 - \frac{\arctgy}{y} \right)}{\left(\frac{1+C}{C} \right) \frac{y^4}{5} - \frac{y^2}{3} + 1 - \frac{\arctgy}{y}} \right], \quad (7)$$

где $y^2 = \frac{(\omega_D / \omega_0)^2}{1 + 5C/9}$, $C = B_N / B_U$.

Извесно, что в исследуемых твердых растворах $In_{1-x}Ga_xAs$, $(GaSb)_{3(1-x)}(Ga_2Te_3)_x$, $(InSb)_{2(1-x)}(In_2GeTe)_x$ присутствуют разные виды дефектов: атомы замещения, вакансии и различные комплексы, которые мы попытались учесть при расчетах параметра неупорядоченности Γ .

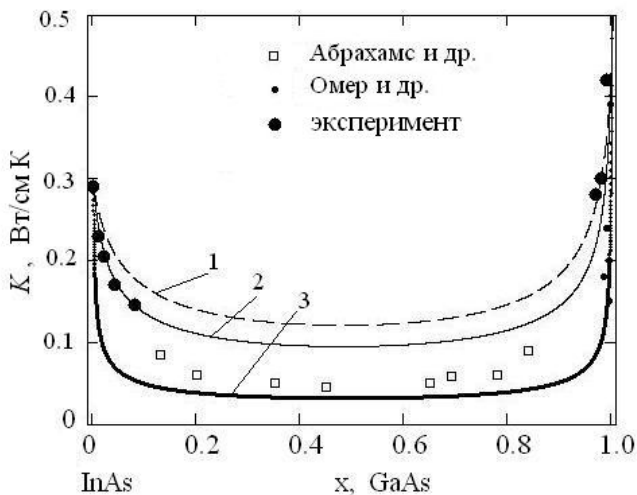
ТВЕРДЫЙ РАСТВОР $In_{1-x}Ga_xAs$

Известно, что в тройной системе In-Ga-As в бинарном разрезе InAs-GaAs образуется непрерывный ряд твердых растворов замещения. Эти твердые растворы удобны для изучения рассеяния фононов из-за малой доли электронной теплопроводности. В литературе предположения теории рассеяния фононов на дефектах обсуждаются, в основном, основываясь на экспериментальных данных по этим сплавам. Теплопроводность этой системы изучена в ряде работ. Абрахамс и др. [9] исследовали теплопроводность $In_{1-x}Ga_xAs$ для больших составов. Омер и др. [10] измерили теплопроводность $In_{1-x}Ga_xAs$ со стороны GaAs до 1мол% InAs.

Экспериментальные результаты, полученные в [9-10], обсуждались в работе [11]. Результаты наших исследований твердых растворов $In_{1-x}Ga_xAs$ со стороны InAs до 10мол% GaAs даны в работе [12].

Рис.1.

Теплопроводность твердых растворов $In_{1-x}Ga_xAs$ в зависимости от состава. Кривая 1 - рассчитана по формуле (3), кривая 2 – по формуле (7), кривая 3 взята из [11].



Зависимости теплопроводности

K от состава в $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$ ($0 \leq x \leq 0,1$ и $0,95 \leq x \leq 1$) при комнатной температуре, полученная в данной работе и в работах [9-10], приведена на Рис.1. На этом же рисунке приведены расчетные кривые по моделям Клеменса (кривая 1) и Абелеса (кривая 2). При оценке K параметр неупорядоченности рассчитан по формуле (6) с учетом локального изменения плотности $\frac{\Delta M}{M}$ и упругих свойств $\frac{\Delta \delta}{\delta}$. Известно, что в этом растворе выполняется закон Вегарда [8]. В этом случае локальное изменение упругих свойств можно заменить относительным изменением параметра решетки

$$\Gamma = x(1-x) \left[\left(\frac{\Delta M}{M} \right)^2 + \varepsilon \left(\frac{a(x) - a_0}{x a_0} \right)^2 \right], \quad (8)$$

где $\bar{M} = (1-x)M_{\text{InAs}} + xM_{\text{GaAs}}$; $\Delta M = M_{\text{In}} - M_{\text{Ga}}$ изменение массы при замене атома индия галлием.

Необходимые для расчета теплопроводности параметры были взяты из работы [11] и линейно экстраполированы для твердого раствора. Расчеты показывают, что в $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$ заметный вклад в параметр неупорядоченности Γ вносит член, связанный с локальным изменением упругих свойств среды.

Как видно из Рис.1, кривая 1, рассчитанная по модели Клеменса, расположена выше экспериментальных точек. Экспериментальные данные для твердых растворов $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$ и со стороны GaAs ($0,95 \leq x \leq 1$) и со стороны InAs ($0 \leq x \leq 0,1$) хорошо описываются в рамках модели Абелеса при значении подгоночного параметра $C=2$ (кривая 2). Это указывает на существенную роль N-процессов в рассеянии фононов в твердом растворе $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$.

ТВЕРДЫЙ РАСТВОР $(\text{GaSb})_{3(1-x)}-(\text{Ga}_2\text{Te}_3)_x$

Оба компонента этого твердого раствора кристаллизуются в структуре цинковой обманки, которая в Ga_2Te_3 дефектна по отношению к подрешетке атомов металла – каждый третий узел в катионной подрешетке вакантен. В $(\text{GaSb})_{3(1-x)}-(\text{Ga}_2\text{Te}_3)_x$ происходит последовательный переход процесса замещения сурьмы теллуrom к замещению сурьмы теллуrom с образованием катионных вакансий и комплексов: вакансия с одним или двумя атомами Te. Все эти дефекты

влияют на физические свойства, в том числе и на теплопроводность этих твердых растворов. Теплопроводности $(\text{GaSb})_{3(1-x)}-(\text{Ga}_2\text{Te}_3)_x$ была изучена нами ранее [13].

Сравнение экспериментальных результатов зависимости теплопроводности от состава при комнатной температуре с расчетными значениями K приведено на Рис.2.

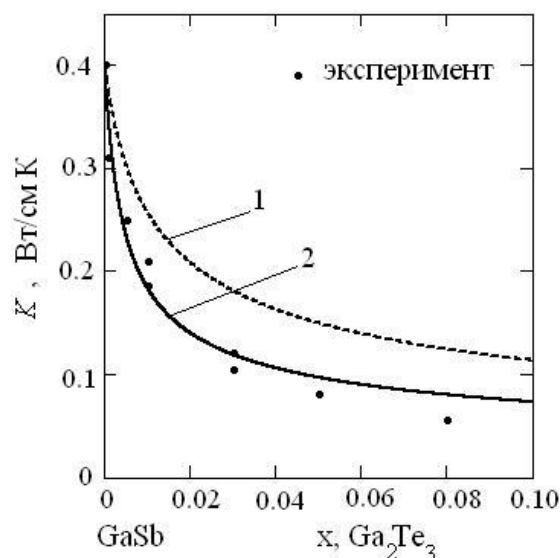


Рис.2.

Теплопроводность твердых растворов $(\text{GaSb})_{3(1-x)}-(\text{Ga}_2\text{Te}_3)_x$ в зависимости от состава. Кривая 1 - рассчитана по формуле (3), кривая 2 – по формуле (7).

Необходимые для расчета теплопроводности параметры были взяты для GaSb. Расчитанные по формуле (3) значения фоновой теплопроводности с учетом N-процессов и рассеяния фононов на точечных дефектах (кривая 1) больше экспериментальных величин теплопроводности (электронная доля теплопроводности мала). Отметим, что параметр беспорядка рассчитан по формуле (8), где локальное изменение упругих свойств среды заменено относительным изменением параметра решетки, значения которого взяты из работы [13]. При расчетах Γ учтены и вакансии, вносимые Ga_2Te_3 в GaSb.

Экспериментальные данные удовлетворительно согласуются с рассчитанными по формуле (7) при учете рассеяния фононов на точечных дефектах и трехфононных U- и N- процессов при $C=2$ (рис.2, кривая 2). Различие экспериментальных данных и расчетных при больших составах, по-видимому, связано с наличием комплекса-вакансия/атом теллура. И так, в твердых растворах $(GaSb)_{3(1-x)}-(Ga_2Te_3)_x$, как и в $In_{1-x}Ga_xAs$ в рассеянии фононов нормальные трехфононные процессы играют существенную роль.

ТВЕРДЫЙ РАСТВОР $(InSb)_{2(1-x)}(In_2GeTe)_x$

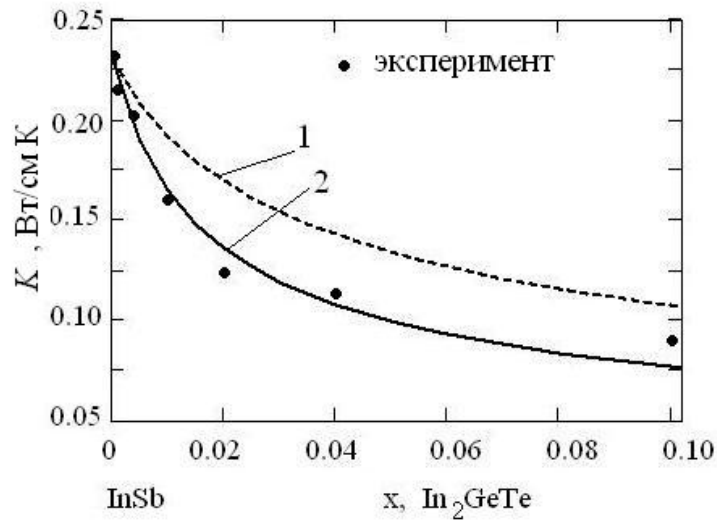
В четверной системе In-Sb-Ge-Te атомы германия из-за переменной валентности занимают места и в анионной и в катионной подрешетках, вследствие чего оказываются в кристаллографически неравновесных позициях. Изменение степени дефектности с составом, а также перемена валентности аниона должны сказываться на тепловых свойствах.

На Рис.3 приведены экспериментальные значения K от состава при 300К и рассчитанные по формулам (3) и (8) (кривая 1) и по формулам (7) и (8) (кривая 2).

Необходимые для расчета теплопроводности параметры были взяты для InSb. При расчетах параметра беспорядка Γ учтена и переменная валентность германия. Предполагалось, что количество германия в анионной и катионной подрешетках составляет 90 и 10%, соответственно.

Рис.3.

Теплопроводность твердых растворов $(InSb)_{2(1-x)}(In_2GeTe)_x$ в зависимости от состава. Кривая 1 рассчитана по формуле (3), кривая 2 – по формуле (7).



Различие экспериментальных зависимостей $K(x)$ и расчетных (кривая 1), как и в других твердых растворах, вероятно, связано с не учетом N-процессов в модели Клеменса. Как видно из Рис.3, включая в общее время релаксации и τ_N нормальных фонон-фононных процессов взаимодействия можно описать экспериментальные данные при значении параметра $C=1,6$. Это указывает на то, что и в твердых растворах $(InSb)_{2(1-x)}(In_2GeTe)_x$ нормальные процессы преобладают над процессами переброса.

Резюмируя вышеприведенные результаты, можно сделать следующее заключение. В исследованных твердых растворах при высоких температурах в

рассеянии фононов на точечных дефектах наряду с процессами переброса существенную роль играют и нормальные процессы. Это связано с тем, что наличие большого количества дефектов в твердых растворах приводит к сильному рассеянию фононов высокой частоты, а взаимодействие длинноволновых фононов между собой с сохранением квазиимпульса (N – процессы) изменяет число фононов, которые принимают участие в процессах переброса. Интенсивность нормальных процессов зависит от конкретного твердого раствора.

1. J.Callaway, *Phys.Rev.* **113** (1959) 1046.
2. И.Г.Кулеев, И.И.Кулеев, *ЖЭТФ*, **120** (2001) 649.
3. А.П. Жернов, *ЖЭТФ*, **120** (2001) №5, 1237.
4. И.Г.Кулеев, И.И.Кулеев, *ФТТ*, **47** (2005) 300.
5. R.N.Rəhimov, *Azerbaijan National Academy of Sciences, Transactions, series of physical-mathematical and technical sciences, physics and astronomy*, **XXIV** №5 (2004) 10.
6. М.И.Алиев, Д.Г.Араслы, Р.Э.Гусейнов *ИФЖ*, **22** (1972) 1056.
7. P.G.Klemens, *Phys.Rev.* **119** (1960) 507; J.Wu, N.P.Padture, P.G.Klemens, M.Gell, E.Garcia, P.Miranzo, M.I.Osendi, *J.Mater.Res.*, **17** (2002) 3193.
8. V.Abeles, *Phys.Rev.* **131** (1963) 1906.
9. M.S. Abrahams, R.Braunstein, F.D.Rossi, *J.Phys.Chem.Solids* **10** (1959) 204.
10. C.Ohmer, W.C.Mitchel, G.A.Graves, D.T.Holmes, H.Kuwamoto and P.W.Yu, *J.Appl.Phys.*, **64** (1988) 2775.
11. F.Szmulowicz, F.L.Madarasz, P.G.Klemens, J.Diller, *J.Appl.Phys.* **66** (1989) 252.
12. Д.Г.Араслы, Р.Н.Рагимов, М.И.Алиев, *ФТП* **24** (1990) 365.
13. М.İ.Əliyev, А.Ə.Əbdürəhmanova, D.H.Araslı, *Azərb. EA Xəbərlər (Fizika-texnika və riyaziyyat elmləri seriyası)*, No4 (1971) 64.

A^3B^5 BİRLƏŞMƏLƏRİ ƏSASINDA ALINAN BƏRK MƏHLULLARDA NORMAL FONON-FONON SƏPİLMƏ PROSESLƏRİ

R.N.RƏHİMOV, D.H.ARASLI, A.Ə.XƏLİLOVA, M.İ.ƏLİYEV

InAs-GaAs, GaSb-Ga₂Te₃, InSb-In₂GeTe bərk məhlulların otaq temperaturunda istilikkeçiriciliyi tədqiq olunmuşdur. Alınmış təcrübi nəticələr Klemens və Abeles modelləri əsasında araşdırılmışdır. Göstərilmişdir ki, tədqiq olunan bərk məhlullarda fononların nöqtəvi defektlərdən səpilməsində üçfononlu atılma prosesləri ilə yanaşı üçfononlu normal proseslərin rolu kifayət qədərdir. Normal proseslərin intensivliyi bərk məhlulun xüsusiyyətindən asılıdır.

NORMAL PHONON-PHONON SCATTERING PROCESSES IN THE SOLID SOLUTIONS A^3B^5 COMPOUNDS

R.N.RAHIMOV, D.H.ARASLY, A.A.KHALILOVA, M.I.ALIYEV

The thermal conductivity of InAs-GaAs, GaSb-Ga₂Te₃, InSb-In₂GeTe solid solutions as a function of the alloy composition has been investigated at room temperature. Obtained experimental results have been analyzed on the base of Klemens and Abeles models. It has been established that for the investigated solid solutions in the phonon scattering on point defects together with Umklapp processes the three phonon normal processes also play essential role at high temperatures. The intensity of normal processes depends on the specific solid solution.

Редактор: Г.Аждаров