

# Моделирование диффузии фононов на основе метода Монте-Карло с учетом физики фононов

В.И. Хвесьюк<sup>1</sup>, В. Цяо<sup>1</sup>, А.А. Баринов<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Московский государственный технический университет имени Н.Э. Баумана (национальный исследовательский университет), 2-я Бауманская 5, стр. 1, Москва, Россия, 105005

**Аннотация.** Современные исследования переноса тепла в полупроводниковых и диэлектрических структурах (интегральных схемах и пр.) базируются на анализе взаимодействия квазичастиц – фононов – квантов упругих волн, распространяющихся внутри кристаллической решетки. В данной работе показано, что кинетика фононов отличается от классических газов, поэтому для описания диффузии необходимо учитывать физику фононов. На основе проведенного анализа сформулирован метод прямого Монте-Карло моделирования диффузии фононов, учитывающий основные особенности взаимодействия фононов, и разработан алгоритм, на основе которого проведено компьютерное моделирование диффузии фононов в кремнии. Полученные результаты необходимы как для более глубокого понимания процессов распространения теплоты в структурах с фононным переносом, так и для решения задач по расчету контактных термических сопротивлений и учету рассеяния фононов на границах.

## 1. Введение

Диффузионные процессы играют определяющую роль в переносе теплоты и массы вещества (за исключением так называемого баллистического режима переноса тепла в наноструктурах). В ситуациях, когда рассматриваются обычные газы, процессы диффузии представляют собой результат пошаговых случайных процессов взаимодействия атомов или молекул с окружающими их атомами (молекулами). В этих случаях имеет место броуновская диффузия. Как было показано Эйнштейном [1], для броуновского движения выполняется следующее соотношение

$$\langle x(t) - x(0) \rangle^2 = 2Dt . \quad (1)$$

Здесь  $\langle x(t) - x(0) \rangle^2$  – среднеквадратичное значение смещения координаты частицы за время  $t$ . Диффузионный процесс в этих условиях характеризуется вероятностью распределения во времени и пространстве  $p(x, t)$ , которая в одномерном приближении удовлетворяет уравнению Фоккера – Планка:

$$\frac{\partial p}{\partial t} = D \frac{\partial^2 p}{\partial x^2} . \quad (2)$$

Решение уравнения (2) выглядит следующим образом

$$p(x, t) = \frac{1}{\sqrt{4\pi Dt}} \exp\left(-\frac{x^2}{4Dt}\right) \quad (3)$$

Из соотношения (1) Эйнштейна следует, что со временем диффузионный пакет расплывается пропорционально  $t^{0.5}$ , а из представленного решения (3) видно, что «хвосты» распределения экспоненциально уменьшаются в пространстве. Особенностью броуновской диффузии является то, что она представляет собой марковский процесс, то есть это система без памяти – очередной пространственный шаг зависит только от времени между взаимодействиями. В случае фононной диффузии, как это будет показано ниже, очередной шаг зависит и от энергии (частоты).

Наряду с классической броуновской диффузией наблюдаются так называемые аномальные типы диффузии. Это супердиффузия и субдиффузия [2,3]. Их отличие от классической диффузии сводится к тому, что диффузионные пакеты расплываются по другим законам и выражаются следующим образом:

$$\langle x(t) - x(0) \rangle^2 = const \cdot t^\gamma, \quad (4)$$

где  $\gamma$  не равна единице. При  $\gamma < 1$  имеет место субдиффузия, при  $\gamma > 1$  - супердиффузия. Последний тип диффузии часто называется диффузией Леви. Особенностью такой диффузии является то, что дисперсия длин свободного пробега может достигать бесконечности. Для неё характерно появление очень длинных пробегов частиц – так называемых «полётов Леви». В работах [4,5] супердиффузия применительно к фононному газу в полупроводниковых сплавах рассматривается в рамках приближения усечённой диффузии Леви [3,6,7]. Эта модель имеет конечное значение дисперсии длин свободного пробега. В результате получены хорошо согласующиеся с экспериментом данные по расчётам теплопроводности InGaAs при использовании величины  $\gamma = 1,67$  и SiGe при использовании  $\gamma = 1,69$ . Удивительно, но в этих работах ничего не говорится о зависимости диффузии от температуры.

Цель данной работы заключается в разработке метода прямого Монте-Карло моделирования диффузии фононного газа, учитывающей многофакторный характер процессов взаимодействия фононов. Формально взаимодействия фононов между последовательными рассеяниями на границах учитывались в работе [8]. Однако при этом не учитывались ни изменения направления вектора скорости, ни изменения частоты фононов.

Решение данной задачи носит не только фундаментальный характер, но и прикладной – при изучении переноса тепла в наноструктурах. Это, как и в упомянутых выше работах, изучение диффузионно–баллистических (квазibalлистических) режимов переноса тепла. Необходимость обусловлена тем, что на данный момент отсутствуют обоснованные формулы расчёта времён между последовательными взаимодействиями фононов с границами наноструктур в условиях, когда необходимо учитывать взаимодействия фононов друг с другом и другие возможные процессы.

## 2. Физические основы диффузии фононов

Фононы – квазичастицы нулевой массы, которые являются квантами упругих волн, распространяющихся в кристаллической решетке. Существенным является то, что данная диффузия зависит от большого числа факторов, которые отсутствуют для классических газов и молекул, а именно:

1. Упругие волны в твердом теле имеют разные моды колебаний (поперечные и продольные), которые соответствуют одноименным поляризациям фононов. При этом в классических газах рассматривается только один тип частиц.

2. Атомы и молекулы в классических газах испытывают парные взаимодействия, а в фононном газе имеют место взаимодействия с участием трех фононов. Тройные взаимодействия представляют собой либо распад, либо слияние квазичастиц. Более того, при высокой температуре (выше комнатной) имеют место четырехфононные взаимодействия.

3. Каждый акт взаимодействия фононов представляет собой распад или слияние квазичастиц, при этом выделяют два принципиально разных процесса: нормальные ( $N$ -процессы) и процессы переброса ( $U$ -процессы). Относительный вклад каждого из этих процессов в перенос тепла сильно зависит от температуры фононного газа, поэтому

диффузионные процессы должны зависеть от температуры. В случае броуновского движения эта зависимость определяется величиной коэффициента диффузии  $D$ .

4. Времена между последовательными взаимодействиями фононов существенно зависят от их энергии, что обычно не учитывается при анализе броуновской диффузии. Ещё одной важной особенностью фонон-фононных взаимодействий является то, что в результате каждого акта взаимодействия появляются квазичастицы, энергия которых сильно отличается от энергии исходных частиц. Кроме того, время между фонон-фононными взаимодействиями и скорость распространения фононов существенно зависят от их энергии (частоты) и типа поляризации. Следствием этого является сильная зависимость длины свободного пробега от частоты.

5. Поскольку размер реальной кристаллической структуры и величина постоянной решетки конечны, то необходимо подчеркнуть, что дисперсия фононов ограничена значением максимально возможной частоты  $\omega_{\max}$ .

Моделирование диффузии фононов невозможно без учета представленных особенностей кинетики фононного газа.

### 3. Процедура расчета

Работа посвящена изучению фононной диффузии на основе уникального авторского алгоритма, основанного на прямом Монте-Карло моделировании и учете физики фононов. Мы исследуем распространение одиночной частицы в однородной изотропной среде, при этом после каждого взаимодействия с другой частицей (трехфононные процессы) мы выбираем одну из полученных частиц для дальнейших расчетов. Вся процедура моделирования диффузии может быть удобно представлена в виде блочной структуры, состоящей из следующих элементов: блока инициализации, блока решения уравнений сохранения и блока расчета перемещений фононов. Далее приводится описание каждого из указанных блоков.

#### 3.1. Блок инициализации

Для проведения расчетов необходимо предварительно подготовить данные.

Во-первых, разбить спектры  $LA$  (продольных) и  $TA$  (поперечных) фононов на отрезки. Предлагается разбивать диапазон частот на  $N$  отрезков:

$$\Delta\omega(LA) = \frac{\omega_{\max}(LA)}{N}, \quad \Delta\omega(TA) = \frac{\omega_{\max}(TA)}{N}.$$

Таким образом, вводится набор фиксированных значений частот  $\omega_i(LA)$   $\omega_i(TA)$ , где  $i=1,2,3\dots N$ . Величины  $\omega_i$  определяются так:  $\omega_i = (i - 0.5)\Delta\omega$ . Соответственно, скорость фононов, соответствующая величине  $\omega_i$ , определяется из выражения  $v_{g,i} = \partial\omega_i / \partial k$ .

Во-вторых, задаётся температура твёрдого тела. Для данной температуры происходит инициализация генератора случайных чисел.

Мы разработали специальный генератор случайных чисел, который позволяет учесть температуру твердого тела. Ядро генератора основано на функции плотности состояний (DOS) и равновесной функции распределения Бозе-Эйнштейна. На выходе мы получаем случайную частоту фонона для определенного типа поляризации, которая удовлетворяет распределению фононов в реальной твердой структуре для рассматриваемой температуры.

В-третьих, необходимо записать аналитические зависимости  $\omega(k)$  для продольных и поперечных упругих волн – дисперсионные соотношения. Здесь мы используем аппроксимацию экспериментальных данных полиномами пятой степени.

#### 3.2. Блок решения уравнений сохранения

Методы расчёта законов сохранения квазиимпульсов и энергий фононов для  $N$ -процессов и  $U$ -процессов отличаются друг от друга. Поэтому далее представлена последовательность расчета для каждого процесса в отдельности.

### 3.2.1. N-процессы

Для нормальных трехфононных процессов взаимодействия возможны следующие комбинации:

$$TA+TA \rightleftharpoons LA \text{ и } TA+LA \rightleftharpoons LA. \quad (5)$$

В этом случае имеем два варианта систем уравнений сохранения энергии  $\omega$  и импульса  $\vec{k}$  :  
при слиянии фононов

$$\omega_1 + \omega_2 = \omega_3, \vec{k}_1 + \vec{k}_2 = \vec{k}_3; \quad (6)$$

при распаде фононов

$$\omega_1 = \omega_2 + \omega_3, \vec{k}_1 = \vec{k}_2 + \vec{k}_3. \quad (7)$$

Ниже излагается последовательность действий, обеспечивающих сохранение энергии и импульса и позволяющих определить направления векторов  $\vec{k}$  .

1-й шаг. Определение  $\omega_1$ , соответствующей абсолютной величины  $k_1$ , и направления вектора  $\vec{k}_1$ . Эти величины следуют из предыдущего акта взаимодействия либо, при инициализации, могут задаваться с помощью описанного генератора случайных чисел (подраздел 3.1).

2-й шаг. Определение  $\omega_2$  и  $k_2$  с помощью генератора случайных чисел, представленного в Блоке инициализации.

3-й шаг. Расчет  $\omega_3$  из соответствующего уравнения сохранения, после чего следует определение  $k_3$  из дисперсионного соотношения.

4-й шаг. С помощью закона косинусов определяется направление волновых векторов относительно первого вектора  $\vec{k}_1$  :

$$\cos \alpha_i = \frac{k_1^2 + k_2^2 - k_3^2}{2k_1k_2} \quad (8)$$

Здесь остаётся неопределённым, с какой стороны от  $\vec{k}_1$  (слева или справа) должны находиться вектора  $\vec{k}_2$  и  $\vec{k}_3$ . Положение можно задать, к примеру, с помощью генератора случайных чисел. Задача, таким образом, полностью решена.

### 3.2.2. U-процессы

Сначала сделаем два предварительных замечания. Во-первых, очевидно, что в этом случае реализуются только взаимодействия со слиянием частиц:  $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$ . Во-вторых, после определения  $\omega_3$  значение  $k_3$  можно установить двумя способами: либо на ветви дисперсионного соотношения внутри зоны Бриллюэна (N-процесс), либо на ветви снаружи зоны Бриллюэна (U-процесс). Если в обоих случаях закон сохранения импульса выполняется, надо использовать генератор случайных чисел. При этом возможны случаи, для которых значение  $\omega_3$  превосходит величину  $\omega_{\max}$ , тогда процедуру поиска повторяют.

Теперь рассмотрим пошаговые действия в случае анализа U-процессов. Первые три шага аналогичны алгоритму для N-процессов.

5-й шаг. Он определяется тем, что значение волнового числа  $k_3$  превосходит величину  $k_{\max}$ , поэтому с помощью вектора обратной решётки  $\vec{G}$  вместо  $\vec{k}_3$  определяется новое значение третьего вектора  $\vec{k}'_3$ :  $\vec{k}'_3 = \vec{k}_3 - \vec{G}$ , для которого  $k'_3 < k_{\max}$ .

6-й шаг. Теперь мы имеем набор абсолютных значений волновых векторов  $k_1, k_2, k'_3$  и, используя их, проводим вычисления, аналогичные тем, которые выполняются в случае N-процессов. То есть нам известно направление и абсолютное значение вектора  $\vec{k}_1$ . Направления векторов  $k_2$  и  $\vec{k}'_3$  определяем с помощью известных уравнений, аналогичные уравнению (8). Таким образом обеспечиваем выполнение закона сохранения импульса.

### 3.3. Блок расчета перемещения фононов

Используя абсолютное значение и направление волнового вектора, а также значение энергии фонона, полученных на предыдущем шаге, определяется положение следующей точки пространства, в которой произойдет процесс трехфононного взаимодействия. Для расчета перемещения используется соотношение

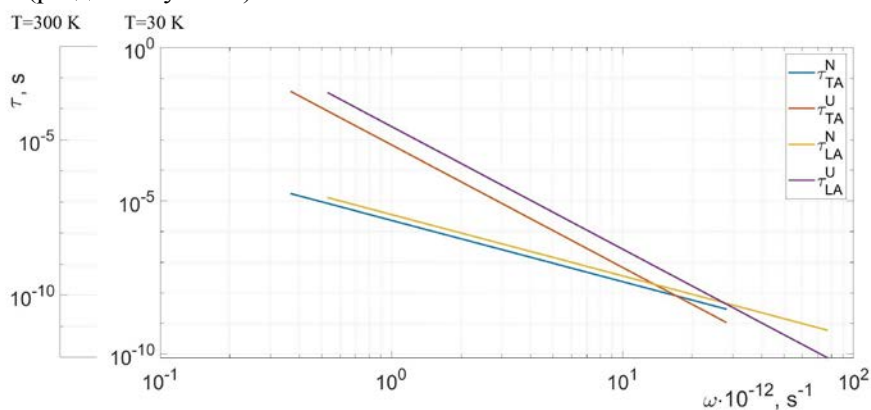
$$l_i = v_j(\omega_i) \cdot \tau_j(\omega_i), \quad l_{x,i} = l_i \cos \alpha_i, \quad l_y = l_i \sin \alpha_i \tag{9}$$

где  $v_j(\omega_i)$  – скорость для данной частоты фонона и поляризации, которые получаем из дисперсионного соотношения;  $\tau_j(\omega_i)$  – время между последовательными взаимодействиями фононов, полученные на основе расчетов из первых принципов (*ab initio*) [9]:

$$\tau_{N,j}^{-1}(\omega,T) = A_j^N \omega^2 f(T), \quad \tau_{U,j}^{-1}(\omega,T) = A_j^U \omega^4 f(T), \quad f(T) = T \left[ 1 - \exp\left(\frac{3T}{\theta_D}\right) \right] \tag{10}$$

где  $A_j^N$  и  $A_j^U$  – коэффициенты для  $N$ - и  $U$ -процессов  $j$ -поляризации фононов,  $\theta_D$  – температура Дебая, значения которых приведены в работе [9].

На рисунке 1 проиллюстрировано, как соотносятся друг с другом времена  $\tau_j(\omega_i)$  для разных процессов и поляризаций. Видно, что в области низких частот преобладают  $N$ -процессы, а в области высоких частот –  $U$ -процессы. Существенной особенностью является сильный разброс значений  $\tau_j(\omega_i)$  (на несколько порядков) при изменении частоты от минимального значения до максимального (раздел 2 пункт 5).



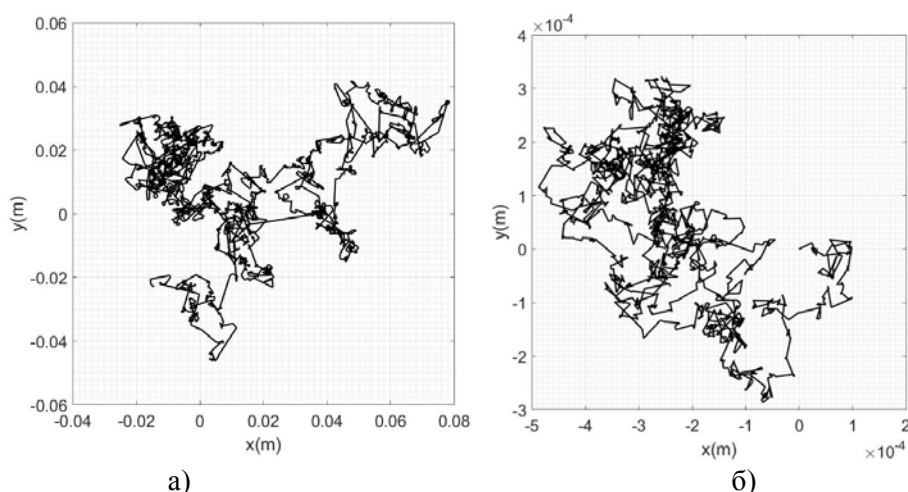
**Рисунок 1.** Зависимость времени между последовательными взаимодействиями фононов от частоты для  $T = 30\text{K}$  и  $T = 300\text{K}$  для  $N$ - и  $U$ -процессов, TA и LA поляризаций.

## 4. Результаты

На основе разработанного метода расчёта диффузии фононов (раздел 3) был написан программный код и проведено компьютерное моделирование диффузии фононов в двумерном образце из чистого кремния. Скорость фононов определялась из дисперсионных зависимостей  $\omega(k)$ , которые получены для направления  $[100]$  в изотропном приближении.

На рисунке 2 (а) представлены результаты расчёта диффузии фононов при температуре  $T = 15\text{K}$ , когда преимущественно происходят  $N$ -процессы. При этом длины свободного пробега одного порядка. На рисунке 2 (б) при температуре  $300\text{K}$  преобладают процессы переброса, поэтому длина свободного пробега на несколько порядков ниже, чем для  $15\text{K}$ .

Как видно из рисунков 2 (а,б), обе карты траекторий содержат крупные кластеры из малых длин пробега, которые соединяются линиями, соответствующими большим длинам свободного пробега фононов. Видно, что имеют место два типа поведения диффундирующей частицы.



**Рисунок 2.** Диффузия фононов при  $T = 15\text{K}$  (а) и при  $T = 300\text{K}$  (б). Траектории фононов, претерпевших  $10^3$  взаимодействий с другими фононами.

Один тип совпадает с броуновским движением – это диффузионное перемещение с малой длиной свободного пробега, которые образуют участки, похожие на броуновскую диффузию. Между собой эти кластеры соединяются наборами «трэков» с большими длинами свободного пробега, напоминающими так называемые «полёты Леви», относящиеся к диффузии Леви. Их появление связано с тем, что в расчётах были учтены зависимости времён между последовательными взаимодействиями фононов друг с другом от частоты. Эти зависимости имеют вид степенной функции  $\tau_{ph-ph} \sim \omega^{-n}$  [9]: для  $N$ -процессов  $n = 2$ , для  $U$ -процессов  $n = 4$ . Поэтому при случайных переходах в процессе расчёта из области высоких частот (малых длин свободного пробега) к области низких частот (большим длинам свободного пробега) получаются области, соответствующие малым и большим длинам свободного пробега соответственно. Расчёты диффузии показали, что при температуре 15 К (низкие температуры) имеют место только нормальные процессы, а при температуре 300К (комнатные температуры) определяющую роль играют именно процессы переброса (количество процессов достигает 40%), так как время между последовательными взаимодействиями уменьшается на несколько порядков (смотри рисунок 1). При этом доля  $U$ -процессов не может быть больше половины, так как все процессы распада фононов являются  $N$ -процессами.

## 5. Заключение

В работе представлен метод расчёта диффузионных процессов в фононном газе, а также алгоритм, позволяющий проводить компьютерное моделирование диффузии фононов. Необходимость постановки данной задачи связана с переносом тепла в твердотельных наноструктурах.

Разработанный метод учитывает одновременно тройные взаимодействия фононов, влияние  $N$ - и  $U$ -процессов, температуры твёрдого тела, дисперсии, наличия разных поляризаций фононов, зависимости времени между последовательными взаимодействиями фононов от частоты – то есть основные физические причины, которые определяют характер диффузии. Аналогов такого рода по расчётам диффузии в работах других авторов найти не удалось.

Из представленных результатов видно, что качественно характер диффузии фононов отличается от классической броуновской диффузии. В первую очередь это связано с зависимостью времён между взаимодействиями от частоты (энергии), которая отсутствует в случае броуновской диффузии. Данное обстоятельство определяется тем, что фонон-фононные взаимодействия зависят от энергии квазичастиц, а также тем, что эти взаимодействия сопровождаются распадом или слиянием фононов.

Представленный инструмент для моделирования может быть использован в дальнейшем при решении конкретных задач, связанных с диффузией фононов в полупроводниковых и

диэлектрических наноструктурах различной геометрии, а именно: рассеяние фононов на границах, расчет сопротивлений Капицы (тепловых контактных сопротивлений).

## 6. Литература

- [1] Einstein, A. Über die von der molekular-kinetischen Theorie der Wärme geforderte Bewegung von in ruhenden Flüssigkeiten suspendierten Teilchen // *Ann. der Phys.* – 1905. – Vol. 17. – P. 549-560.
- [2] Shlezinger, M.F. Above, below and beyond Brownian motion / M.F. Shlezinger, J. Klafter, G. Zumoten // *Am. J. Phys.* – 1999. – Vol. 67. – P. 1253-1259.
- [3] Бекман, И.Н. Математика диффузии. – М.: ОнтоПринт. – 2016. – 400 с.
- [4] Vermeersch, B. Superdiffusive heat conduction in semiconductor alloys. I. Theoretical foundations / B. Vermeersch, J. Carrete, N. Mingo, A. Shakouri // *Phys. Rev. B.* – 2015. – Vol. 91 – P. 085202.
- [5] Vermeersch, B. Superdiffusive heat conduction in semiconductor alloys. II. Truncated Lévy formalism for experimental analysis / B. Vermeersch, A.M.S. Mohammed, G. Pernot, Y.R. Koh // *Phys. Rev. B.* – 2015. – Vol. 91 – P. 085203.
- [6] Mantegna, R.N. Stochastic Process with Ultraslow Convergence to a Gaussian: The Truncated Lévy Flight / R.N. Mantegna, H.E. Stanley // *Phys. Rev. Let.* – 1994. – Vol. 73. – P. 2946.
- [7] Koponen, J. Analytic approach to the problem of convergence of truncated Lévy flights towards the Gaussian stochastic process // *Phys. Rev. E.* – 1992. – Vol. 45. – P. 1197.
- [8] Maldovan, M. Micro to nano scale thermal energy conduction in semiconductor thin films // *J. Appl. Phys.* – 2011. – Vol. 110. – P. 034308.
- [9] Ward, A. Intrinsic phonon relaxation times from first-principles studies of the thermal conductivities of Si and Ge / A. Ward, D.A. Broido // *Phys. Rev. B.* – 2010. – Vol. 81. – P. 085205.

## Благодарности

Работа выполнена при поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации, проект 16.8107.2017 / 6.7.

## Modeling of phonon diffusion using a Monte-Carlo method based on physics of phonon

V.I. Khvesyuk<sup>1</sup>, W. Qiao<sup>1</sup>, A.A. Barinov<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Bauman Moscow State Technical University, 2nd Baumanskaya Street 5, Moscow, Russia, 105005

**Abstract.** Modern studies of heat transfer in semiconductor and dielectric structures (integrated circuits, etc.) are based on the analysis of the interaction of quasi-particles called phonons – quanta of elastic waves propagating inside the crystal lattice. In this paper, it is shown that the kinetics of phonons is different from classical gases, so to describe the diffusion it requires a detailed analysis of the physics of phonons interactions. Firstly, we formulated a method to perform a phonon diffusion calculations which takes into account the peculiarities of phonon interaction. Secondly, we developed a brand new algorithm, which allowed to carry out a computer simulation of phonon diffusion in silicon. Obtained results are necessary both for a deeper understanding of the processes of heat transfer, and for future calculations of the contact thermal resistances and phonon scattering on the boundaries – the relevant problems of heat transport in nanostructures.