

Phonon Dispersion이 열전달 모델에 미치는 영향

정재동[†]

Impact of Phonon Dispersion on Thermal Conductivity Model

Jae Dong Chung

Key Words: Thermal Conductivity(열전달계수), Phonon(포논), Dispersion Relation(분산관계)**Abstract**

The effect of (1) phonon dispersion in thermal conductivity model and (2) the differentiation of group velocity and phase velocity for Ge is examined. The results show drastic change of thermal conductivity regardless of using same relaxation time model. Also the contribution of transverse acoustic (TA) phonon and longitudinal acoustic (LA) phonon is changed by considering more rigorous dispersion model. Holland model underestimates the scattering rate for high frequency TA, so misleading conclusion, i.e. TA is dominant heat transfer mode at high temperature. But the actual reduction of thermal conductivity is much larger than the estimation by Holland model and high frequency TA is no more dominant heat transfer mode. Another heat transfer mechanism may exist for high temperature. Two possible explanations are (1) high frequency LA by Umklapp scattering and (2) optical phonon.

기호설명

| | |
|---------|---------------------------|
| f | : 분포함수 |
| \hbar | : Planck 상수/ 2π |
| k | : 열전달계수 |
| k_B | : Boltzmann 상수 |
| p | : polarization |
| q | : 파수 (wave number) 또는 열유속 |
| T | : 온도 |
| t | : 시간 |
| v | : 속도 |

그리스문자

| | |
|-----------------|-------------------|
| α, β | : fitting 상수 |
| θ_D | : Debye 온도 |
| τ | : relaxation time |

 ω : 진동수 (frequency)

하첨자

| | |
|----------|------------------------------------|
| 0 | : 낮은 진동수($q \rightarrow 0$)에서의 값 |
| g | : group |
| L | : longitudinal mode |
| m | : Brillouin zone 경계 |
| p | : phase |
| s | : 산란 (scattering) |
| T | : transverse mode |
| ω | : 진동수 (frequency) |

1. 서론

MEMS/NEMS 공정의 개발과 설계에 있어서 미세 구조의 물성을 정확히 추산, 측정하는 기술은 필수적이다. 특히 고밀도 미세 구조 내에서 발생하는 열 에너지의 이해와 제어가 더욱 중요해지는 추세이다. 하지만 대부분의 마이크로/나노 스케일에서의 실험적 접근은 그 자체가 불가능하

[†] 세종대학교, 기계공학과

E-mail : jdchung@sejong.ac.kr

TEL : (02)3408-3776 FAX : (02)3408-3333

나 매우 비싼 해석이므로 이론적인 방법으로 열 물성을 추산할 필요가 대두된다. 전형적인 이론적 접근방법으로 Boltzmann 수송방정식, Monte Carlo법, 분자동력학 시뮬레이션을 등을 이용하여 마이크로 스케일 전달현상을 해석하면 미세 구조의 물성을 이론적으로 추산하는 것이 가능하다. 하지만 많은 경우 미세구조 내에서 각 운반자(전자, 광자, phonon)들의 거동 및 상호작용이 알려져 있지 않은 것이 현실이다. 본 연구는 Boltzmann 수송방정식에 기초한 이론적 해석으로 열전달계수를 예측하는데 있어서 분산관계(dispersion relation)가 미치는 영향을 해석하는 것을 목표로 한다.

2. Boltzmann 수송방정식

전자, phonon, 분자, photon 등의 입자의 통계적인 거동을 보여주는 Boltzmann 수송방정식(Boltzmann transport equation, BTE)은 다음과 같은 식으로 잘 알려져 있다⁽¹⁾.

$$\frac{\partial f}{\partial t} + v \cdot \nabla_r f + a \cdot \nabla_v f = \left(\frac{\partial f}{\partial t} \right)_s \quad (1)$$

여기서 f 는 분포함수이며 우변은 충돌이나 산란에 기인한 산란항(scattering term)이다. Relaxation time 근사에 의해 산란항은 다음과 같이 단순화할 수 있다^(2,3).

$$\left(\frac{\partial f}{\partial t} \right)_s = \frac{f_0 - f}{\tau(r, p)} \quad (2)$$

여기서 f_0 는 평형상태의 분포함수이며 $\tau(r, p)$ 는 relaxation time이다.

전형적인 해석방법은 간략화된 모델에 근거한 해석적인 접근방법과 수치적 접근방법으로 대별된다. 해석적인 접근방법은 Callaway⁽²⁾와 Klemens⁽⁴⁾의 선구적인 연구와 그 후 많은 연구자들에 의해 보다 정교한 모델들이 제시되어 왔다. Holland⁽³⁾는 transverse phonon(TA)과 longitudinal phonon(LA)의 역할을 구분함으로써 부분적으로 포논 분산관계를 고려한 모델을 제시하여 Callaway 모델이 낮은 온도에서만 의미를 갖는다는 단점을 극복하고 넓은 온도 범위에서 타당한 모델을 제시하였다. Parrott⁽⁵⁾과 Bhandari와 Rowe⁽⁶⁾는 Callaway 모델의 수정항을 고려한 해석을 하

였고 Tawari와 Agrawal⁽⁷⁾은 phonon group velocity와 phase velocity를 구별함으로써 포논 분산관계의 영향을 보다 정교하게 해석하였다. 그 후 Sood와 Roy⁽⁸⁾는 포논분산에 대한 엄밀한 해석과 각 영역에서의 relaxation time을 별도로 고려하여 일반적으로 받아들여졌던 사실인 높은 온도에서 주도적인 열전달 메카니즘이 transverse phonon이라는 주장이 잘못되었음을 정량적으로 보였다.

3. 분산관계

반도체에서 주도적인 열전달은 포논에 의해 이루어진다. 포논은 변위와 파 진행방향이 평행 또는 수직하는가에 따라 1개의 longitudinal mode와 2개의 transverse mode로 구별된다. 각 경우에서 파수(q)와 진동수(w)의 관계를 분산관계라 한다. 낮은 주파수에서는 흔히 Debye model이라 불리는 다음의 선형적인 관계식이 사용된다.

$$\omega = v_g q \quad (3)$$

여기서 v_g 는 group velocity로 포논의 전달속도(즉, 에너지 전달속도)이다. 위의 선형적인 관계는 높은 진동수, 즉 Brillouin zone 경계부근에서 심하게 왜곡된다. Neutron scattering 방법에 의해 측정된 [100] 방향의 dispersion curve를 Fig. 1에 나타내었다. 방향에 따라 dispersion curve가 다소 달라지지만 그 특성이 크게 변하지 않고 실험이 가지는 불확실성, 해석의 어려움 등으로 해서 등방성으로 가정하여 해석하기로 한다. Transverse와 longitudinal mode 각각에 있어서 Ge에 대한 실험값⁽⁹⁾과 더불어 본 논문에서 고려하고자 하는 분산관계에 대한 몇 가지 단순화된 모델을 함께 제시하였다. 이러한 단순화 정도가 해석결과에 얼마나 민감하게 영향을 미치는지 살펴보고자 한다. Brillouin zone 경계에서 transverse model에서의 group velocity는 0에 접근한다는 사실에 주의하여야 한다. 또한 group velocity $v_g = d\omega/dq$ 는 phase velocity $v_p = \omega/q$ 와 구별되어야 하며 이러한 차이가 가지는 영향을 또한 살펴볼 것이다. 본 논문에서는 optical phonon이 열전달에 미치는 영향은 매우 작은 것으로 알려져 있어 단지 acoustic phonon만을 해석 대상으로 한다. 고려하

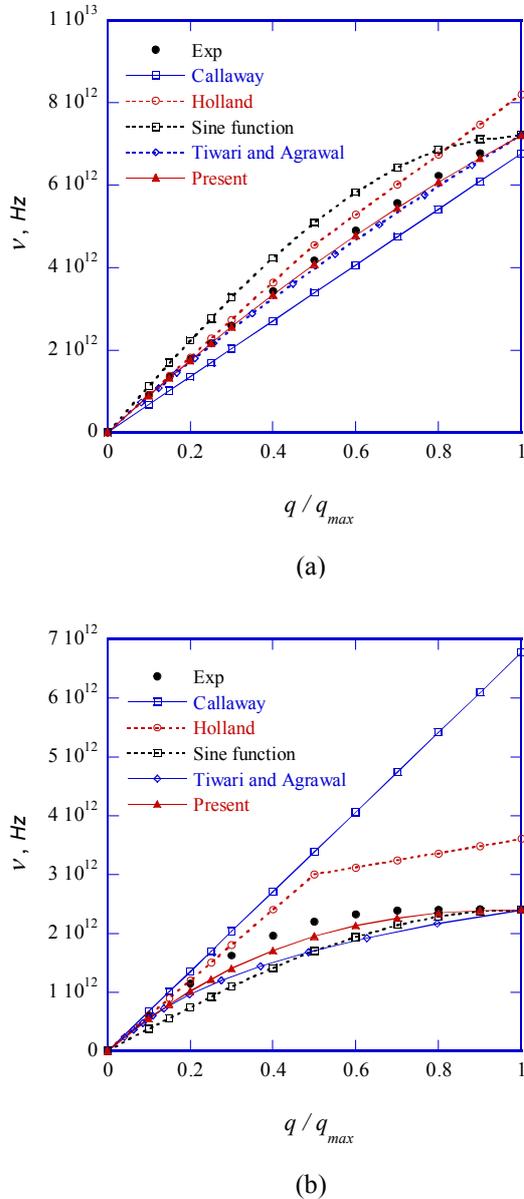


Fig. 1 Dispersion relation of Germanium for (a) Longitudinal phonon and (b) transverse phonon.

고자 하는 분산관계 모델은 다음과 같다.

(1) Debye model: Callaway

$$\omega = v_{0g}q \tag{4}$$

이 모델은 대개 낮은 주파수 영역대에서 유효한 모델로 뒤 서술에서 Callaway 모델에 적용된다. 이 경우 transversion acoustic (TA) mode와 longitudinal acoustic (LA) mode를 구별하지 않음

므로 다음 식에 의해 평균화된 phonon group velocity를 구한다. 여기서 하첨자 0은 낮은 진동수의 극한, 즉 $q \rightarrow 0$ 에서의 값을 의미한다.

$$\frac{1}{v_{0g}} = 3 \left(\frac{1}{v_{0g,L}} + \frac{2}{v_{0g,T}} \right) \tag{5}$$

(2) TA와 LA로 구별된 2 Region Debye model: Holland

$$\omega_p = v_{p,g}q \tag{6}$$

이 모델은 Holland⁽³⁾의 해석에서 사용된 분산관계이다. 하첨자 p 는 polarization으로 transversion acoustic mode와 longitudinal acoustic mode를 각각 의미한다. 또한 $q/q_{max} \sim 0.5$ 를 경계로 2영역으로 나누어 각 영역에서는 일정하지만 높은 주파수영역에서는 다소 낮은 group velocity를 정의한다. 하지만 이러한 영역 구분의 경계는 매우 임의적이며 어떠한 물리적 근거도 발견할 수 없다. 또한 Umklapp scattering이 이 경계를 시작으로 갑자기 의미를 갖는다는 사실도 매우 인위적이다.

(3) Sine function

이 모델은 linear atomic chain에 대한 근사식이다.

$$\omega_p = w_{mp} \sin \left(\frac{q}{q_m} \frac{\pi}{2} \right) \tag{7}$$

상기 두 모델과는 달리 여기서는 group velocity가 파수 (q)에 따라 다음과 같이 변하게 된다.

$$v_{g,p} = \frac{d\omega}{dq} = \frac{\omega_{mp}}{q_m} \frac{\pi}{2} \cos \left(\frac{q}{q_m} \frac{\pi}{2} \right) \tag{8}$$

여기서 $q_m = 2\pi/a$ 은 첫 번째 Brillouin zone 경계에 대응한다. 이 모델의 심각한 단점은 낮은 주파수 영역에서 비현실적인 거동을 보인다는 것이다. 이는 $v_{0g,L}$ 와 $v_{0g,T}$ 의 값이 실험값과 다르기 때문이다.

(4) Tiwari and Agrawal's model

$$q_L = \omega_L v_L^{-1} (1 + \alpha \omega_L), \quad q_T = \omega_T v_T^{-1} (1 + \beta \omega_T^2) \tag{9}$$

여기서 n 을 단위부피당 lattice point의 수로 하

면 결정할 수 있으며 이렇게 결정된 값은 Brillouin zone 경계에서의 ω_{mL} 와 ω_{mT} 의 실험값으로 얻은 결과와 거의 일치한다.

(5) Present

$$\omega_L = v_{0L}q + \frac{\omega_{mL} - v_{0L}q_m}{q_m^2} q^2,$$

$$\omega_T = v_{0T}q + (3\omega_{mT} - 2v_{0T}q_m)\left(\frac{q}{q_m}\right)^2 + (v_{0T}q_m - 2\omega_{mT})\left(\frac{q}{q_m}\right)^3 \quad (10)$$

Longitudinal phonon에 대해서는 2차식, transverse phonon에 대해서는 3차식으로 근사하여 아래 경계조건을 사용하여 실험값에 fitting한다.

(a) $v = v_{0p} = \frac{d\omega}{dq}$ at $q \rightarrow 0$ (11a)

(b) $w = w_{mp}$ at $q = q_m$ (11b)

(c) $\omega = 0$ at $q \rightarrow 0$ (11c)

(d) $v_T = 0$ at $q = q_m$ (11d)

(used only for transverse phonons)

4. 열전달 계수

식 (1)로 표현된 Boltzmann 수송방정식은 외력이 없는, 일차원, 정상상태로 가정하고 relaxation time 근사와 평형상태라는 조건에서 다음 식으로 선형화된다.

$$v_x \frac{df_{0\omega}}{dT} \frac{dT}{dx} = \frac{f_{0\omega} - f_{\omega}}{\tau} \quad (12)$$

여기서 구한 포논분포함수, f_{ω} 과 열유속의 정의 $q_x = \int v_x f_{\omega} \hbar \omega D(\omega) d\omega$ 로 부터 열전달 계수를 구할 수 있다. 여기서 포논은 Bose-Einstein 분포, $f_{0\omega} = \{\exp(\hbar \omega / k_B T) - 1\}^{-1}$ 를 따르며 $D(\omega)$ 는 density of state로 다음과 같이 정의된다.

$$D(\omega) = \frac{\text{no of state between } \omega \text{ and } \omega + d\omega}{V \cdot d\omega}$$

따라서 polarization (p)과 dispersion이 고려된 일

반적인 열전달계수는 다음과 같다.

$$k = \frac{1}{3} k_L + \frac{2}{3} k_T \quad (13)$$

$$k = \frac{k_B}{2\pi^2} \left(\frac{k_B T}{\hbar}\right)^3 \int_0^{\theta_D/T} \tau \frac{v_g}{v_p^2} x^4 \frac{e^x}{(e^x - 1)^2} dx \quad (14)$$

where $x = \frac{\hbar \omega}{k_B T}$.

5. 분산관계가 열전달계수에 미치는 영향

Fig. 2와 Fig. 3은 온도에 따라 열전달계수를 실험값⁽³⁾과 함께 각 모델의 결과를 보여준다. 동일한 relaxation time에 대해서도 분산모델에 따라 매우 큰 차이가 발견된다. 보다 실험값에 가까운 분산모델을 사용하고, 보다 정교한 열전달 모델, 즉 v_g 와 v_p 의 차이가 고려된 모델의 경우에 매우 낮은 열전달 계수가 예측된다. 물론 이것이 실험값에 가까운 Holland 모델이 보다 우수한 모델임을 의미하지는 않는다. 왜냐하면 Holland 모델은 이미 실험값에 가깝도록 조절된 relaxation time 상수들을 사용하였고 다른 모델들은 일관성을 위해 Holland 모델에서 얻어진 relaxation time 상수를 동일하게 사용하였기 때문이다. 동일한 조건에서 dispersion 모델의 영향과 v_g 와 v_p 의 차이 미치는 영향을 살펴보기 위함이다. 물론 다른 모델에 대해서도 실험값에 fitting된 relaxation time 상수를 사용할 경우 (이러한 fitting이 필요하다)는 사실이 해석적 접근방법의 단점이기도 하다) 실험에 매우 일치한 결과를 얻을 수 있다.

Fig. 2에서 “Variable $v_g (= v_p)$ ”는 phonon velocity가 일정한 Holland 모델에 비해 dispersion curve를 따라 변하며 (하지만 group velocity와 phase velocity를 구별하지는 않는다), ”Variable v_g, v_p ”는 dispersion curve에 따라 group velocity ($= d\omega/dq$)와 phase velocity ($= \omega/q$)가 결정되는 모델이다. Fig. 2와 Fig. 3에서 보이는 정교한 열전달 모델과 분산모델이 Holland 모델에 비해 특히 높은 온도에서 낮은 열전달 계수를 예측함은 Holland 모델에서 scattering이 과소 예측됐음을 알 수 있다. 높은 온도에서 주도적인 열전달 모드가

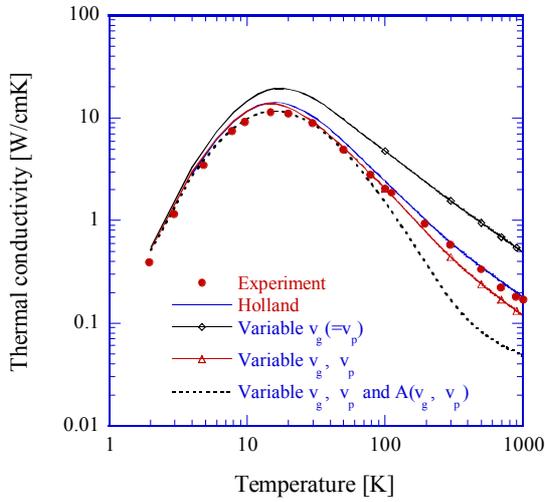


Fig. 2 Effect of the difference between group velocity and phase velocity on the thermal conductivity of Ge.

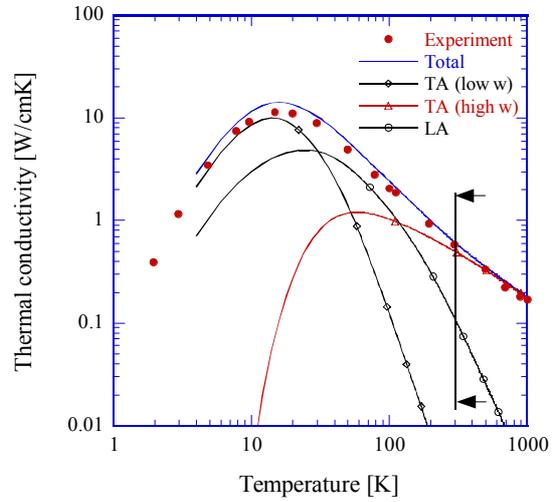


Fig. 4 Contribution of TA and LA phonons on the thermal conductivity of Ge based on Holland model

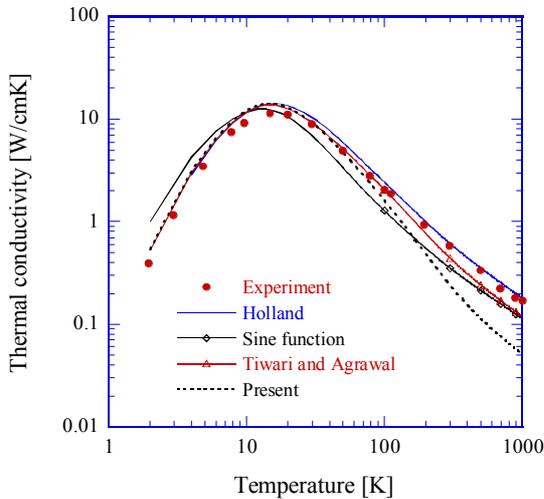


Fig. 3 Effect of phonon dispersion model on the thermal conductivity of Ge.

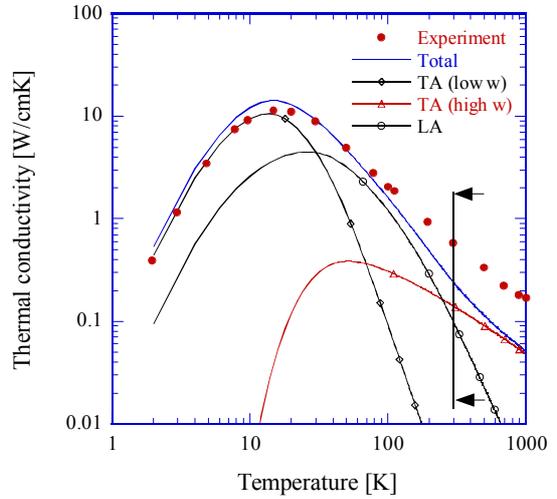


Fig. 5 Contribution of TA and LA phonons on the thermal conductivity of Ge based on present model

Umklapp scattering에 의한 TA임을 생각하면 이러한 과소 평가는 높은 온도영역에서 TA의 역할을 과대 평가했음을 의미한다. Holland 모델에 근거한 모든 연구들이 높은 온도에서 주도적인 열전달 모드로 TA의 역할을 주장하는 것은 이러한 점에서 재고찰이 필요할 것이다. 이를 확인하기 위해 Fig. 4와 Fig. 5는 전체 열전달계수와 각 모드의 값을 함께 보여준다. 알려진 바와 같이

Holland 모델은 고온에서 (예를들어 상온을 대상으로 생각해보자) 주도적인 열전달 모드는 높은 주파수에서의 TA 모드임을 재확인할 수 있다. 하지만 보다 엄밀한 해석에 의하면 Fig. 5에서 보이듯이 TA 모드와 LA모드가 비슷한 정도의 영향을 미치고 있다. 이는 relaxation time 상수를 실험값에 fitting한 후에도 동일한 결과를 보여준다. 주

의할 것은 Umklapp scattering만으로는 실험값에 fitting이 만족스런 수준이 아니라는 사실이다. 이럴 경우 높은 온도에서 가장 주도적인 열전달 모드는 높은 주파수에서의 TA 라는 기존의 주장은 의미를 잃게된다.

따라서 높은 온도에서 주도적인 열전달 모드는 높은 주파수에서의 TA라는 기존의 주장과는 달리 새로운 열전달 모드의 역할이 필요하다. 가능성 있는 하나는 높은 주파수영역에서 Umklapp scattering에 의한 LA모드의 역할이다. (Holland 모델에서는 이것이 무시되었다.) 또 다른 하나는 기존에 무시되었던 optical phonon의 역할이 높은 온도영역에서는 의미를 가질 수 있다는 사실이다. 이는 McGaughey와 Kaviany⁽¹⁰⁾에서 주장되었듯이 optical phonon은 절대값은 작지만 온도에 상관없이 일정하게 열전달에 영향을 미친다. 따라서 낮은 온도 영역 즉 열전달 계수가 클 경우는 상대적으로 optical phonon의 역할이 무시될 수 있지만 높은 온도영역, 즉 열전달 계수가 작을 경우 그 영향은 무시될 수 없게 된다.

6. 결 론

1. 동일한 relaxation time 모델 하에서 5가지의 분산모델을 대상으로 분산이 열전달계수의 해석 모델에 미치는 영향을 살펴보았다. 분산이 열전달계수 예측에 큰 영향을 미치며, 실험에 가까운 정교한 분산모델을 사용할 경우 보다 특히 높은 온도에서 낮은 열전달 계수가 예측됨을 알 수 있었다. 이는 기존의 Holland 모델에서 높은 온도에서 scattering이 과소 평가되었음을 의미한다.

2. Group velocity와 phase velocity의 차이가 열전달 계수에 미치는 영향은 매우 크며 해석모델에 반드시 고려되어야 할 것이다.

3. Holland 모델은 높은 온도에서 Umklapp scattering을 과소 평가하여 높은 온도에서 주도적인 열전달 모드가 transverse acoustic phonon이라는 결론을 내렸지만 정교한 열전달 해석모델과 분산이 고려되면 높은 온도에서의 주도적인 열전달 모드는 TA가 아님을 알 수 있다. 높은 주파수에서의 Umklapp scattering에 의한 LA 모드와 optical phonon이 가능성 있는 주도적인 열전달 모드이다. 이에 대해서는 추가적인 연구가 필요할 것이다.

후 기

이 논문은 2001년도 한국학술진흥재단의 지원에 의하여 연구되었음 (KRF-2001-003-E00002)

참고문헌

- (1) Ziman, J. M., *Electrons and Phonons*, Oxford University Press, London, 1960.
- (2) Callaway, J., 1959, "Model of lattice thermal conductivity at low temperatures," *Phys. Rev.*, Vol. 113, pp. 1046-1051.
- (3) Holland, M. G., 1963, "Analysis of lattice thermal conductivity," *Phys. Rev.*, Vol. 132, pp. 2461-2471.
- (4) Klemens, P. G., *Solid State Physics*, Academic Press Inc., New York, 1958
- (5) Parrott, J. E., 1971, "Generalization of the Callaway thermal conductivity equation," *Phys. Status Solidi B*, vol. 48, pp. K159-K161
- (6) Bhandari, C. M. and Rowe, D., 1979, "The generalisation of the Callaway thermal conductivity equation," *J. Phys. C: Solid State Phys.*, vol. 12, pp. L883-L885.
- (7) Tiwari, M. D. and Agrawal, B. K., 1971, "Analysis of the lattice thermal conductivity of Germanium," *Physical Review B*, vol. 4, pp. 3527-3532.
- (8) Sood, K. C. and Roy, M., 1993, "Longitudinal phonons and high-temperature heat conduction in germanium," *J. Phys: Condens. Matter*, vol. 5, pp. 301-312.
- (9) Nilsson, G. and Nelin, G., 1971, "Phonon dispersion relations in Ge at 80K," *Physical Review B*, vol. 3, pp. 364-369.
- (10) McGaughey, A. J. H. and Kaviany, M., "Thermal conductivity decomposition and analysis using molecular dynamics simulations. Part II. Complex silica structures," submitted to *International Journal of Heat and Mass Transfer*.