

# FCC구조에서 포논분산과 비열

정재동<sup>†</sup>·이경태<sup>\*</sup>

## Phonon Dispersion and Specific Heat in FCC Structure

Jae Dong Chung, Kyung Tae Lee

**Key Words:** Phonon(포논), Dispersion(분산), FCC(면심입방), DOS(상태밀도)

### Abstract

A model for the phonon dispersion relationship for cubic zinc sulfide structure, for example SiC, is developed in terms of two unknown force constants. Born model that incorporates bond bending and bond stretching, is used for the force constants. The force constants are determined by fitting to experimental data. Using only the nearest-neighbor coupling results in 6×6 sized dynamic matrix. The eigenvalues of dynamics matrix for each wavenumber in 3-D  $\kappa$  space correspond to frequencies, 3 for optical phonon and 3 for acoustic phonon, which is so-called dispersion relation ( $\kappa - w$ ). The density of state is determined by counting the states for each frequency bin, and the properties such as specific heat and thermal conductivity can be obtained. The specific heat is estimated on this model and compared with experiment and other models, i.e. Debye model, Einstein model and combined Debye-Einstein model. In spite of the simple bond potential model, reasonable agreements are found.

### 기호설명

$C_v$  : 비열  
 $D$  : dynamic matrix  
 $d$  : 변위  
 $g$  : 상태밀도함수  
 $\hbar$  : Planck 상수/ $2\pi$   
 $k$  : 스프링 상수  
 $k_B$  : Boltzmann 상수  
 $l_m$  : Lattice 상수  
 $m$  : 질량  
 $t$  : 시간

$x$  : 위치

그리스문자

$\kappa$  : 파수 (wavenumber)  
 $\varphi$  : 포텐셜 에너지  
 $w$  : 진동수 (frequency)

하첨자

$A \sim H$  : 원자  
 $S$  : 인장  
 $\phi$  : 굽힘

### 1. 서 론

“Nano-”라는 용어가 이제는 과학·기술 분야에 종사하는 연구자에게 익숙하게 된지도 꽤 오랜 세월이 지났다. 또한 수년 전부터 대학에서는 이와 관련된 교과목을 개발하고 새로운 수요에 대

<sup>†</sup> 세종대학교 기계공학과

E-mail : jdchung@sejong.ac.kr

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

<sup>\*</sup> 세종대학교 항공우주공학과

한 준비를 하고 있다. 하지만 전통적인 기계공학에 익숙한 학생들에게는 분자(molecule), 전자(electron), 광자(photon), 포논(phonon) 등의 열전달자(heat carrier)에 대한 개념은 매우 모호하며 적절한 교재의 선택도 쉽지 않은 실정이다.<sup>(1-6)</sup> 학제간 연구가 강조되고 있지만 교육 측면에서는 이에 대한 대응은 다소 늦게 진행되고 있지 않은가 싶은 생각도 든다.

본 원고는 나노스케일 열전달에 관심을 두고 1차원 단일원자, 1차원 2원자, 그리고 3차원 Cubic Zinc Sulfide 구조에 대해서 나노스케일에서의 열전달 해석과 이해의 기본이 되는 포논분산(phonon dispersion), DOS(density of state), 비열(specific heat) 등을 살펴보고자 한다. 본 원고의 목적이 새로운 연구결과의 발표라기보다는 나노스케일 열전달이라는 주제에 관심을 가지는 입문자에게 도움을 주기 위함이므로 이미 잘 알려진 1차원 단일원자나 1차원 2원자에 대한 언급을 하고 SiC를 대상으로 다소 복잡한 3차원 해석과정을 소개하는 순서로 한다.

## 2. 2장 포논 전달

주지하는 바와 같이 도체에서는 전자가, 부도체에서는 포논이 주도적인 열전달자이다. 포논은 전자기파의 광자와 비슷하게 격자진동의 양자화된 에너지를 의미한다. 포논은 반도체에서는 포논과 전자가 동일한 정도로 열전달에 기여를 할 것으로 예상하나 실제로는 반도체에서는 도체에서와는 달리( $\sim 10^{23} \text{cm}^{-3}$ ) 매우 작은 전자 밀도( $< 10^{18} \text{cm}^{-3}$ )를 가지므로 포논이 주도적인 열전달자 역할을 한다. 따라서 포논의 해석은 반도체가 대상인 열전달 해석에서 기본이 된다.

### 2.1 Born 모델

각각의 원자가 평형상태를 유지하고 있을 경우에는 아무런 에너지 전달도 일어나지 않는다. 하지만 온도차가 존재할 경우 높은 에너지를 가진 원자가 여기되어 격자 진동의 형태로 에너지를 전달한다. 평형상태에서 벗어난 원자의 위치에 따른 에너지를 Born 모델로 근사하여 살펴본다. 원자간의 결합은 Fig. 1에서와 같이 인장과 굽힘으로 구분하여 각각 다음과 같이 포텐셜을 나타낼 수 있다.

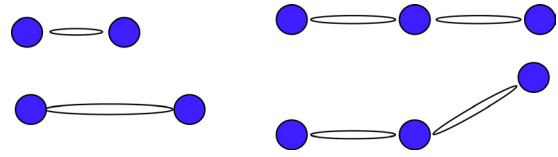


Fig. 1 Bond stretching and bending

$$\varphi_{i,j} = \frac{1}{2} k_s [\mathbf{b}_{i,j} \cdot (\mathbf{d}_j - \mathbf{d}_i)]^2 + \frac{1}{2} k_\phi (|\mathbf{d}_j - \mathbf{d}_i|^2 - [\mathbf{b}_{i,j} \cdot (\mathbf{d}_j - \mathbf{d}_i)]^2) \quad (1)$$

여기서  $k_s, k_\phi$ 는 각각 인장과 굽힘에서의 스프링 상수이며  $\mathbf{b}_{i,j}$ 는 평형상태에서 원자  $i$ 에서  $j$ 로의 단위벡터이다.  $\mathbf{d}_i, \mathbf{d}_j$ 는 평형상태에 대한 변위를 의미한다.

1차원 해석에서는 굽힘은 무시되며 따라서 1차원 1원자의 경우 dynamic matrix의 크기는  $1 \times 1$ , 1차원 2원자의 경우  $2 \times 2$ 이며,  $(1/4, 1/4, 1/4)l_m$ 의 변위로 2개의 면심입방(FCC)구조를 가지는 SiC의 경우는 가장 가까운 원자만이 에너지에 영향을 미친다고 가정할 때  $6 \times 6$  크기의 dynamic matrix를 가지게 된다.

### 2.2 1차원 1원자

1차원 격자의 각 격자점에 질량이  $m$ 인 입자가 있고, 이웃하는 입자들과 스프링상수가  $k$ 인 용수철로 연결되어 있는 구조(Fig. 2)를 살펴본다. 이러한 구조에 격자 진동이 존재할 때 포텐셜은 식 (1)에서 인장항만을 고려할 때 다음과 같다.

$$\varphi = \dots + \frac{1}{2} k_s \{d(x) - d(x - l_m)\}^2 + \frac{1}{2} k_s \{d(x) - d(x + l_m)\}^2 + \dots \quad (2)$$

각 원자에 주어지는 힘은 식 (2)를 이용하면 다음과 같이 구성된다.

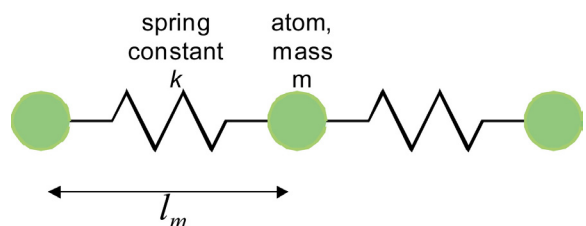


Fig. 2 1-D monatomic lattice model

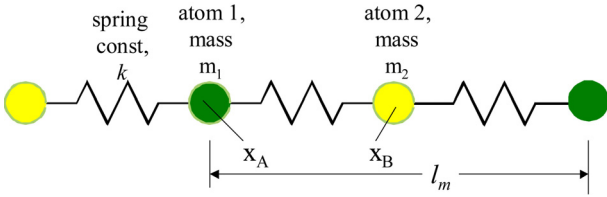


Fig. 3 1-D diatomic lattice model

$$m \frac{d^2 x_n(t)}{dt^2} = k[x_{n+1}(t) - 2x_n(t) + x_{n-1}(t)] \quad (3)$$

식(3)이  $x_n(t) = x_0 \exp(-i\omega t) \exp(in\kappa l_m)$ 와 같은 표준 진동(normal mode)의 해를 갖는다면 식(4)과 같은 선형 연립 방정식을 만족한다.

$$w^2 m = k[2 - \exp(-i\kappa l_m) - \exp(i\kappa l_m)] \quad (4)$$

여기서  $w$ 는 각속도,  $\kappa (= 2\pi/\lambda)$ 는 파수를 의미한다. 식(3)의 의미있는(nontrivial) 해가 바로 격자 진동의 표준 진동이 되고, 그 때의 고유치(eigenvalue)들이 가능한 격자 진동의 진동수들이 된다. 이로부터 얻은  $w - \kappa$  관계를 분산관계라고 한다. 이러한 과정은 식 (5)와 같이 정의되는 dynamic matrix를 구한 후 식 (6)의 고유치를 찾는 과정과 동일하다

$$D_{i,j}(\kappa) = \sum_{x_p} \left( \frac{\partial^2 \varphi}{\partial d_i[x_s + x_p] \partial d_j[x_s]} \right) e^{-i\kappa \cdot x_p} \quad (5)$$

$$M^{-1}D(\kappa)a_\kappa = w^2 a_\kappa \quad (6)$$

이 후의 과정에서는 보다 일반적인 접근방법인 두 번째 과정에 의하기로 한다.

### 2.2 1차원 2원자

서로 다른 2개의 원자로 구성된 1차원 구조를 Fig. 3에 도시하였다. 이에 대한 포텐셜과 이로부터 얻은 dynamic matrix는 식(7), 식(8)과 같다.

$$\begin{aligned} \varphi = & \dots + \frac{1}{2} k_{sA} (d_A(x) - d_B(x))^2 \\ & + \frac{1}{2} k_{sB} (d_A(x) - d_B(x - l_m))^2 + \dots \end{aligned} \quad (7)$$

$$D(\kappa) = \begin{bmatrix} k_{sA} + k_{sB} & -k_{sA} - k_{sB} e^{-i\kappa l_m} \\ -k_{sA} - k_{sB} e^{i\kappa l_m} & k_{sA} + k_{sB} \end{bmatrix} \quad (8)$$

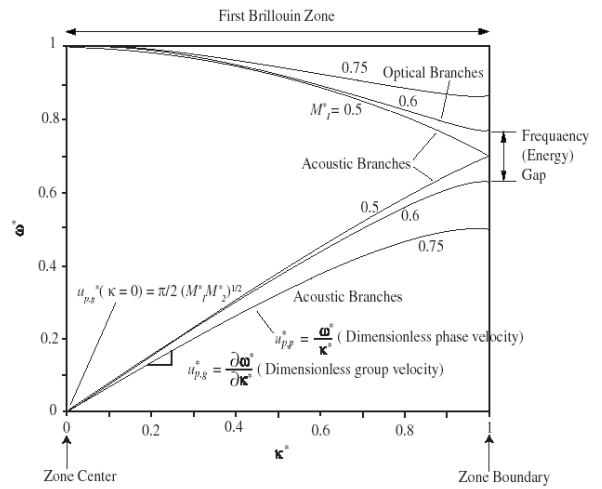


Fig. 4 Dimensionless dispersion relation for a linear, diatomic chain

식 (8)을 식(6)에 대입하여 고유치를 구하면 알려진 바와 같이 식 (9)를 얻을 수 있다.

$$m_A m_B w^4 - 2k(m_A + m_B)w^2 + 2k^2(1 - \cos\kappa l_m) = 0 \quad (9)$$

이로부터  $w - \kappa$  관계를 찾으면 3개의 optical branch와 3개의 acoustic branch가 구해진다. 이러한 일련의 과정은 간단한 Matlab 프로그램으로 구현할 수 있고 전형적인 결과를 Fig. 4에 제시하였다.

### 2.3 Cubic Zinc Sulfide구조: SiC

Cubic Zinc Sulfide구조는 (1/4,1/4,1/4)  $l_m$ 의 변위로 2개의 면심입방(FCC)구조를 가진다. (Fig. 5(a)) 전형적인 Cubic Zinc Sulfide구조로 SiC를 살펴보기로 한다. 규소원자를 중심으로 하여 4개의 탄소원자가 같은 거리만큼 떨어져 연결되어 있으며 다음과 같은 단위벡터를 가진다.

$$(1/4, 1/4, 1/4) l_m \quad \mathbf{l}_A = 3^{-1/2}(\hat{x} + \hat{y} + \hat{z}) \quad (10a)$$

$$(-1/4, -1/4, 1/4) l_m \quad \mathbf{l}_B = 3^{-1/2}(-\hat{x} - \hat{y} + \hat{z}) \quad (10b)$$

$$(1/4, -1/4, -1/4) l_m \quad \mathbf{l}_C = 3^{-1/2}(\hat{x} - \hat{y} - \hat{z}) \quad (10c)$$

$$(-1/4, 1/4, -1/4) l_m \quad \mathbf{l}_D = 3^{-1/2}(-\hat{x} + \hat{y} - \hat{z}) \quad (10d)$$

(1/4,1/4,1/4)  $l_m$ 에 탄소원자가 있고 이 탄소원자에는 4개의 규소원자가 연결되어 FCC구조를 형성하고 있다.

주위의 가장 가까운 원자만이 포텐셜에 영향을

준다는 가정하에 SiC의 포텐셜을 식 (1)의 Born 모델로 구하면 아래 식 (11)과 같다.

$$\begin{aligned}
\varphi = & \frac{1}{2} k_s | \mathbf{l}_A \cdot (\mathbf{d}_1(\mathbf{x}) - \mathbf{d}_2(\mathbf{x})) |^2 \\
& + \frac{1}{2} k_s | \mathbf{l}_B \cdot (\mathbf{d}_1(\mathbf{x}) - \mathbf{d}_2(\mathbf{x} + \mathbf{B})) |^2 \\
& + \frac{1}{2} \alpha_s | \mathbf{l}_C \cdot (\mathbf{d}_1(\mathbf{x}) - \mathbf{d}_2(\mathbf{x} + \mathbf{C})) |^2 \\
& + \frac{1}{2} k_s | \mathbf{l}_D \cdot (\mathbf{d}_1(\mathbf{x}) - \mathbf{d}_2(\mathbf{x} + \mathbf{D})) |^2 \\
& + \frac{1}{2} k_\phi \{ | \mathbf{d}_1(\mathbf{x}) - \mathbf{d}_2(\mathbf{x}) |^2 \\
& \quad - | \mathbf{l}_A \cdot (\mathbf{d}_1(\mathbf{x}) - \mathbf{d}_2(\mathbf{x})) |^2 \} \\
& + \frac{1}{2} k_\phi \{ | \mathbf{d}_1(\mathbf{x}) - \mathbf{d}_2(\mathbf{x} + \mathbf{B}) |^2 \\
& \quad - | \mathbf{l}_B \cdot (\mathbf{d}_1(\mathbf{x}) - \mathbf{d}_2(\mathbf{x} + \mathbf{B})) |^2 \} \\
& + \frac{1}{2} k_\phi \{ | \mathbf{d}_1(\mathbf{x}) - \mathbf{d}_2(\mathbf{x} + \mathbf{C}) |^2 \\
& \quad - | \mathbf{l}_C \cdot (\mathbf{d}_1(\mathbf{x}) - \mathbf{d}_2(\mathbf{x} + \mathbf{C})) |^2 \} \\
& + \frac{1}{2} k_\phi \{ | \mathbf{d}_1(\mathbf{x}) - \mathbf{d}_2(\mathbf{x} + \mathbf{D}) |^2 \\
& \quad - | \mathbf{l}_D \cdot (\mathbf{d}_1(\mathbf{x}) - \mathbf{d}_2(\mathbf{x} + \mathbf{D})) |^2 \} \\
& + \frac{1}{2} k_s | - \mathbf{l}_E \cdot (\mathbf{d}_2(\mathbf{x}) - \mathbf{d}_1(\mathbf{x} + \mathbf{F})) |^2 \\
& + \frac{1}{2} k_s | - \mathbf{l}_C \cdot (\mathbf{d}_2(\mathbf{x}) - \mathbf{d}_1(\mathbf{x} + \mathbf{G})) |^2 \\
& + \frac{1}{2} k_s | - \mathbf{l}_D \cdot (\mathbf{d}_2(\mathbf{x}) - \mathbf{d}_1(\mathbf{x} + \mathbf{H})) |^2 \\
& + \frac{1}{2} k_\phi \{ | \mathbf{d}_2(\mathbf{x}) - \mathbf{d}_1(\mathbf{x} + \mathbf{F}) |^2 \\
& \quad - | - \mathbf{l}_E \cdot (\mathbf{d}_2(\mathbf{x}) - \mathbf{d}_1(\mathbf{x} + \mathbf{F})) |^2 \} \\
& + \frac{1}{2} k_\phi \{ | \mathbf{d}_2(\mathbf{x}) - \mathbf{d}_1(\mathbf{x} + \mathbf{G}) |^2 \\
& \quad - | - \mathbf{l}_C \cdot (\mathbf{d}_2(\mathbf{x}) - \mathbf{d}_1(\mathbf{x} + \mathbf{G})) |^2 \} \\
& + \frac{1}{2} k_\phi \{ | \mathbf{d}_2(\mathbf{x}) - \mathbf{d}_1(\mathbf{x} + \mathbf{H}) |^2 \\
& \quad - | - \mathbf{l}_D \cdot (\mathbf{d}_2(\mathbf{x}) - \mathbf{d}_1(\mathbf{x} + \mathbf{H})) |^2 \} \quad (11)
\end{aligned}$$

여기서  $\mathbf{l}_A \sim \mathbf{l}_H$  는 식(10)에 정의되어 있다.

다소 복잡한 수학적 처리를 수행하면 dynamic matrix는 아래와 같이 구해진다.

$$D(\kappa) = \begin{bmatrix} d_{1x} & d_{1y} & d_{1z} & d_{2x} & d_{2y} & d_{2z} \\ A & 0 & 0 & B & C & D \\ 0 & A & 0 & C & B & E \\ 0 & 0 & A & D & E & B \\ B^* & C^* & D^* & A & 0 & 0 \\ C^* & B^* & E^* & 0 & A & 0 \\ D^* & E^* & B^* & 0 & 0 & A \end{bmatrix} \begin{bmatrix} d_{1x} \\ d_{1y} \\ d_{1z} \\ d_{2x} \\ d_{2y} \\ d_{2z} \end{bmatrix} \quad (12)$$

$$\text{여기서 } A = 4 \left( \frac{k_S + 2k_\phi}{3} \right),$$

$$B = - \left( \frac{k_S + 2k_\phi}{3} \right) \times (1 + e^{i(\kappa_x + \kappa_y)l_m/2} + e^{i(\kappa_y + \kappa_z)l_m/2} + e^{i(\kappa_z + \kappa_x)l_m/2})$$

$$C = \left( \frac{k_\phi - k_S}{3} \right) \times (1 + e^{i(\kappa_x + \kappa_y)l_m/2} - e^{i(\kappa_y + \kappa_z)l_m/2} - e^{i(\kappa_z + \kappa_x)l_m/2})$$

$$D = \left( \frac{k_\phi - k_S}{3} \right) \times (1 - e^{i(\kappa_x + \kappa_y)l_m/2} - e^{i(\kappa_y + \kappa_z)l_m/2} + e^{i(\kappa_z + \kappa_x)l_m/2})$$

$$E = \left( \frac{k_\phi - k_S}{3} \right) \times (1 - e^{i(\kappa_x + \kappa_y)l_m/2} + e^{i(\kappa_y + \kappa_z)l_m/2} - e^{i(\kappa_z + \kappa_x)l_m/2})$$

식 (12)의 dynamic matrix를 식(6)에 대입하여 고유치를 구하면 분산관계  $w - \kappa$ 를 얻을 수 있다. 구해진 분산관계로부터 많은 유용한 정보를 얻을 수 있으며 다음 절에서 이에 대한 간략한 설명을 하기로 한다.

### 3. SiC 해석

각 방향에 따른 분산관계는 중요한 의미를 가진다.<sup>(8)</sup> 예를 들어 SiC의 reciprocal 공간에서의  $\Gamma$ -X-L- $\Gamma$ 방향의 분산관계를 Fig. 6에 나타내었다. 대칭성으로  $\Gamma$ -X방향과  $\Gamma$ -L방향에서는 transverse 포논이 겹쳐(degeneracy) 보인다. 또한 Brillouin 영역 경계부근에서 군속도(group velocity)  $v_g = d\omega/dq$ 가 0에 접근하는 알려진 사실과 일치하는 결과를 보인다.

주파수 범위 내에 2000개의 bin을 설정하고 각각의 bin에 포함되는 파수의 수를 세어서 상태밀도(DOS, Density of State)를 계산한다.(Fig. 7) 고주파수 영역에 날카로운 피크는 optical 포논을

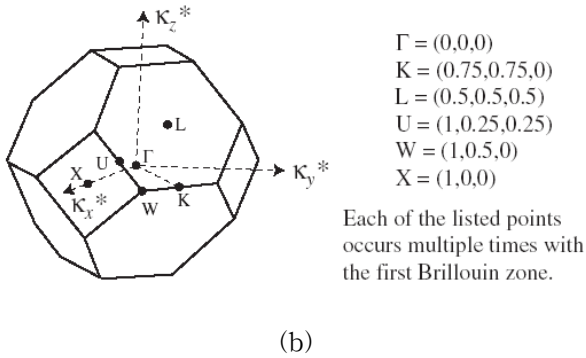
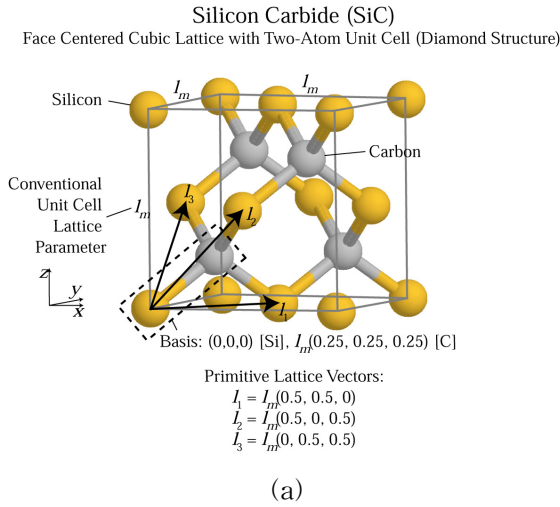


Fig. 5 (a) Primitive lattice vectors and (b) reciprocal space lattice vectors for SiC

의미하며 저주파수 영역은 acoustic 포논을 의미한다. Brillouin 영역 경계부근에 해당하는 주파수에서 acoustic 포논이 집중되어 있음을 알 수 있다.

비열은 정의에 따라 아래 식 (13)과 같다.

$$C_v = \frac{1}{k_B T^2} \int \frac{(\hbar\omega)^2 g(\omega) e^{\frac{\hbar\omega}{k_B T}}}{(e^{\frac{\hbar\omega}{k_B T}} - 1)} d\omega \quad (13)$$

여기서  $g(\omega)$ 는 상태밀도함수로 Fig. 7에서 보인 이미 구한 값이다. 각 주파수 bin에 대해 식 (13)을 적분한 결과를 Fig. 8에 실험값과 함께 비교하였다. Debye 온도의 3배까지 온도 범위에서 온도의 함수로 나타내었다. 아울러 저주파수 영역에서 유용한 Debye 모델에 의한 결과와 optical 포논에 적합한 Einstein 모델에 의한 결과도 함께 제시하였다. Debye 모델은 등방성이라는 가정과 optical

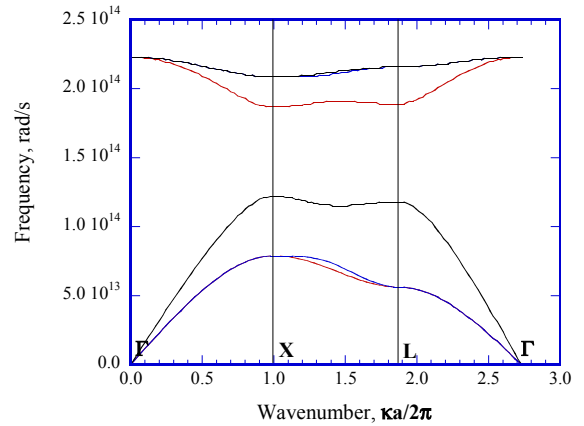


Fig. 6 Phonon dispersion of SiC along  $\Gamma$ -X-L- $\Gamma$

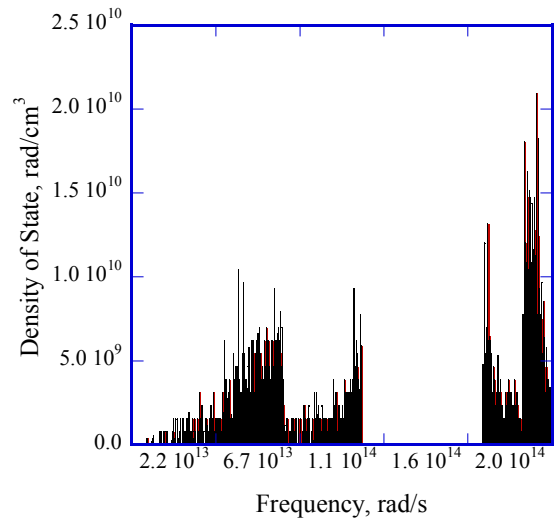


Fig. 7 Density of State (SiC) calculated by histogram method.

포논과 acoustic 포논을 구별하지 않고 종파와 횡파의 구별도 무시된 단순한 모델이나 간단한 해석에서 많이 활용되고 있다. Einstein 모델은 특정 주파수에 모든 상태가 집중되었다고 가정한 것으로 optical 포논의 특성을 비교적 잘 설명하고 있다. 비교에 도입된 Debye cutoff frequency는 Fig. 7의 총 상태가 같도록 구하였으며 Einstein 주파수는 Fig. 7의 높은 주파수 영역에서 가장 밀도가 높은 주파수 값을 사용하였다. 각 모델의 장점을 조합하여 Debye 모델과 Einstein 모델의 결과를 평균한 값도 함께 비교하였다.

실험결과와의 비교에서 정성적인 일치에도 불

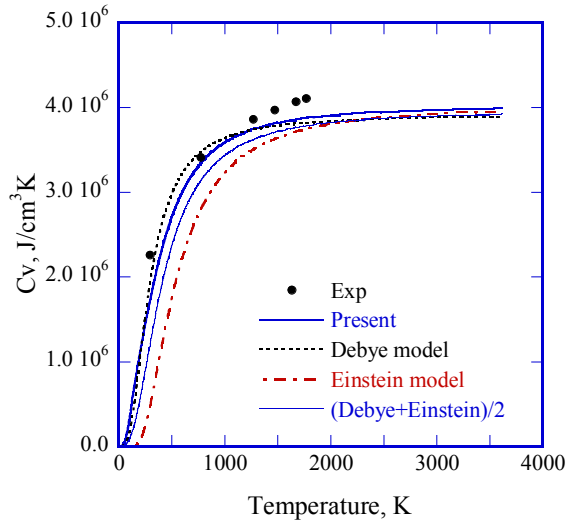


Fig. 8 Estimated specific heat of SiC compared with experiment and other models.

구하고 다소간의 차이는 주위의 가장 가까운 원자만이 포텐셜에 영향을 준다고 가정한 Born 모델의 한계 때문이다. 2번째로 가까운 원자까지 고려할 경우 추가로 2개의 스프링 상수가 도입되어 보다 정확한 예측이 가능할 것이다. 이럴 경우 본 논문에서 서술하고 있는 내용과 비교하여 단지 복잡해진다는 사실을 제외하고는 모든 과정이 동일하다.

#### 4. 결 론

나노열전달 현상을 이해하는데 기본이 되는 분산관계, 상태밀도를 구하고 이로부터 비열을 계산하는 일련의 과정을  $(1/4, 1/4, 1/4)l_m$ 의 변위로 2개의 면심입방(FCC)구조를 가지는 SiC에 대해서 보였다. 비교적 간단한 포텐셜 모델인 Born 모델에 근거하여 해석의 정확성보다는 관련 분야에 익숙치 않은 기계공학도가 접근 가능하도록 단계적인 해석과정을 살펴보고 그 결과를 실험 또는 일반적으로 많이 인용되는 다른 모델과 비교하였다. 포논의 거동에 대한 이해와 해석능력은 나노스케일 열전달에 기본이 되는 중요한 요구사항으로, 본 논문이 이에 대한 관심과 이해를 돕는데 일조했으면 하는 바람이다.

#### 후 기

이 논문은 2002년도 학술진흥재단의 지원에 의하여 연구되었음 (KRF-2002-005-D20001)

#### 참고문헌

- (1) Ashcroft, N. W. and Mermin, N. D., Solid State Physics, Thomson Learning, Inc., 1976.
- (2) Ziman, J. M., Electrons and Phonons: The Theory of Transport Phenomena in Solids, Oxford University Press, 2001..
- (3) Kittel, C., Introduction to Solid State Physics, John Wiley & Sons, Inc., New York, 1996.
- (4) Tzou, D. Y., Macro- to Microscale Heat Transfer, Taylor & Francis, 1997.
- (5) Lundstrom, M., Fundamentals of Carrier Transport, Cambridge University Press, 2000.
- (6) Tien, C. L., Majumdar, A., Gerner, F. M., Microscale Energy Transfer, Taylor&Francis, 1998.
- (7) <http://www.ceramics.nist.gov/srd/summary/scdscs.htm>
- (8) Chung, J. D., McGaughey, A. J. H., and Kaviany, M., 2004, Role of phonon dispersion in lattice thermal conductivity modeling, Transactions of the ASME, Vol. 126, pp. 376-380.