

研究提出高效且适用性广泛的声子输运理论模型

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/3618.html>

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

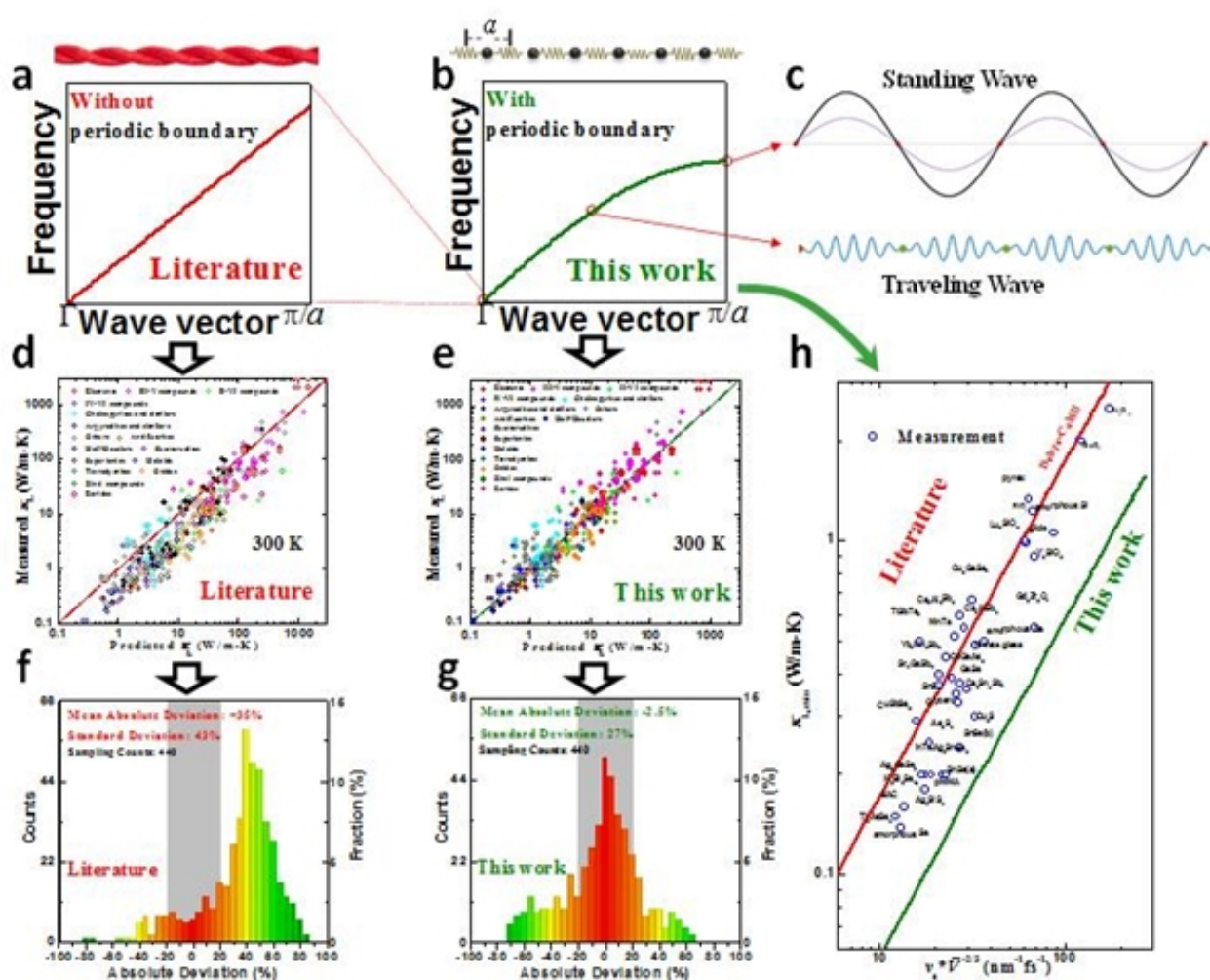


图 1 (a)基于连续介质弹性波的 Debye 色散；(b)考虑了原子周期性分布的声子色散；(c)晶格驻波(上)与晶格行波(下)；(d, e)基于 Debye 近似的模型和该工作考虑周期性边界条件提出的模型的实验晶格热导与预测值的比较及(f, g)对应误差分析；(h)基于 Debye-Cahill 模型(灰实线)和该工作考虑周期性边界条件提出的声子色散模型(红实线)，所预测的最低晶格热导与实验值的比较。

研究提出高效且适用性广泛的声子输运理论模型。众所周知，组成固体物质的原子分子会在有限温度下作平衡位置附近的热振动。当这些原子分子的排布具有周期性时，这种热振动便以声子(携带热能的准粒子)的形式将热能从高温端传输至低温端。有关声子输运的研究可以追溯到十九世纪初。1819年，法国化学家Dulong和Petit把固体物质比热与原子分子热振动联系起来，发现并提出固体的高温比热为常数，然而却无法解释固体比热在低温时随着温度的降低而显著下降的现象。近一个世纪以后，1907年，Einstein提出的量子热容理论，合理解释了Dulong-Petit高温固体比热，但同时面临了新的挑战：极低温度下热容下降过快与实验结果不符。1912年，Debye则基于连续介质弹性波假设(如同宏观上无限长的绳子)提出了声子线性色散理论(色散：不同频率(颜色)的光/声/电/磁波由于速度不同，在行进过程中会散开)，从而极大地推动了声子输运理论的发展。

基于此连续弹性介质假设(晶格常数趋向于零/倒空间波矢趋向于无穷大)，波矢空间中的声子色散关系为一条直线(图1a)，该色散关系在成功解释极低温比热的同时，大大简化了声子输运性质的量化公式，成为近一个多世纪以来固体晶格热传导的理论基础。在声子输运性质的定性/定量分析中，Debye近似展现了其简便、亲民的优势，获得了大规模的应用和推广。但是人们发现，基于Debye线性声子色散定量预测的晶格热导率比已知固体材料的实测值整体高估了40%左右(图1df)。从极低晶格热导率的非晶材料到极高晶格热导率的金刚石，过于简化的Debye线性近似越来越显示出其大幅度偏离真实情况的弊端(图1h)。一个更接近实际晶体的声子色散关系及相关固体材料热传导的理论模型亟待发展。

实际上，在Debye提出连续介质弹性波假设的同一年，Born和von Karman提出实际晶体材料中的原子排布具有周期性(即晶格常数不为零/倒空间波矢为有限值)，因此晶格振动应服从周期性边界条件。也就是说，Debye的连续介质弹性波假设只考虑了布里渊区中心点附近的情况(图1b)，而实际固体材料中受原子排布周期性的限制，倒空间(即布里渊区)边界处将形成晶格振动驻波，这部分声子由于定向传输速度为零而失去传导热能的能力(图1c)。因此，Debye线性色散近似在处理布里渊区边界附近的声子时存在本质上的不足。

由于声子是周期性排布原子简谐振动模式的集体量子化描述，实空间中的原子振动轨迹是各种声子波形的叠加。根据卷积定律，时域中的卷积(原子振动轨迹)即为频域中的乘积(声子)，声子谱中各种声子色散的乘积拟或呈现通用的规律。在这样的物理背景及规律下，声子输运研究的发展又将面临怎样的挑战与革新呢？

近期，同济大学裴艳中教授课题组联合中科院上海硅酸盐研究所陈立东研究员在《国家科学评论》发表了题为Rationalizing phonon dispersion for lattice thermal conductivity of solids的研究论文，揭示了该通用性规律，并发展了能显著改进预测固体声子输运性质的理论基础与量化模型。

该工作将固体材料中晶格的周期性边界条件纳入考虑，从而提出了比Debye近似更接近真实情况的声子色散(非直线)理论，并且发展出了不引入任何拟合参数的声子输运性质预测模型。作者对400多种固体材料进行了理论预测与实验测试的比较。统计结果表明，与此前Debye线性色散近似相比，新模型成功消除了Debye近似对晶格热导率的整体高估，并将晶格热导率预测的绝对偏差从Debye线性色散模型的+40%降低至0附近，大幅提高了预测的准确度(图1eg)。此外，近几十年来在热电能量转换材料磅礴发展的背景下，具有极低晶格热导率的固体材料层出不穷，实验上发现许多材料的晶格热导率已经低于基于Debye线性色散的Cahill模型的理论最低极限值，这进一步表明了Debye线性色散假设的不合理性(即布里渊区边界附近高频声子对热导的贡献被严重高估)。而本工作所发展的与实际情况更接近的色散关系理论模型，成功地解释了诸多材料中实测晶格热导率低于Debye线性色散预测的最低理论极限的矛盾，为进一步降低晶格热导率的可能性提供

了合理的理论依据(图1h)。该工作有望促进热电能量转换及热阻材料的进一步发展。

综上，该工作提出了一种高效且适用性广泛的声子输运理论模型，为精准快速设计固体材料晶格热导率提供了理论指导;同时，该工作为突破现有理论框架下晶格热导率的最小极限值从而实现更低晶格热导率的固体材料提供了理论依据，有望拓宽热电和热阻材料的发展空间。

本工作第一作者为同济大学博士生陈志炜，通讯作者为同济大学裴艳中教授和中科院上海硅酸盐研究所陈立东研究员。相关工作获得国家自然科学基金委、国家科技部等项目资助。

相关论文信息：<https://doi.org/10.1093/nsr/nwy097>

更多 科学进展 请访问 <https://www.iikx.com/news/progress/>

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，[爱科学iikx.com](https://www.iikx.com)转发